



KfK 2600
Mai 1978

Projekt Nukleare Sicherheit

Halbjahresbericht 1977/2

Kernforschungszentrum Karlsruhe

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

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE GMBH

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

KFK 2600

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

12. Halbjahresbericht / 2. Halbjahr 1977

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe



Vorwort

Im Rahmen des Projekts Nukleare Sicherheit (PNS) arbeiten die folgenden Institute und Abteilung der Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH 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 BUNDESMINISTERS 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 12. Halbjahresbericht 2/77 beschreibt die Fortschritte der Arbeiten des PNS, die von den Instituten und Abteilungen der KfK und den im Auftrag der KfK arbeitenden externen Institutionen auf dem Gebiet der nuklearen Sicherheit durchgeführt werden. Er enthält KURZFASSUNGEN in deutsch (S. 1 - 58) und englisch (S. 59 - 109), in denen über

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

Der Bericht wurde von der Projektleitung zusammengestellt.

zum Druck eingereicht: März 1978

NUCLEAR SAFETY PROJECT

SECOND SEMIANNUAL REPORT 1977

The 12th Project Report 2/77 is a description of work within the Nuclear Safety Project performed in the last six month of 1977 in the nuclear safety field by KfK institutes and departments and by external institutions on behalf of KfK. It includes for each individual research activity short summaries (pp. 59 - 109) 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	59
DETAILLIERTE BERICHTE	110
4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGEN	110
4110 Spaltjodabtrennung in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen	110
4111 Störfallumluftfilter zur Abscheidung von Spaltprodukten aus der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre	110
4112-1 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen	113
4112-2 Entwicklung und Bau einer Abgasfilteranlage für große Wiederaufarbeitungsanlagen	122
4114 Abluftfilterung an Reaktoren	126
4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten in Reaktorkreisläufen	156
4123 Reduktion der Aktivierung und Kontaminierung von Reaktorkreisläufen	156
4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung	161
4132 Untersuchungen zur Radioökologie des J-129	161
4140 Entwicklung der Krypton- und Xenon-Abtrennung	170
4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN	223
4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen	223
4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbau-systemen	223
4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrommessung in instationären Mehrphasen-strömungen	231
4215 Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschiedener Zweiphasen-Massenstrom-meßverfahren	240

	<u>Seite</u>
4220 Untersuchung der dynamischen Beanspruchung von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen	248
4221 Auslegung, Vorausberechnung und Auswertung der HDR-Blowdown-Experimente zur dynamischen Belastung und Beanspruchung von Reaktordruckbehältereinbauten	248
4222 Meßtechnische Erfassung und Auswertung des dynamischen Verhaltens der Versuchseinbauten im Reaktordruckbehälter (RDB) des HDR im Rahmen der HDR-Blowdown-Versuche	251
4223 Weiterentwicklung und Verifizierung gekoppelter fluid-strukturdynamischer Codes zur Analyse der dynamischen Spannungen und Verformungen von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen in LWR	259
4230 Notkühlung von LWR	277
4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen und Störfällen ohne Schnellabschaltung	277
4234 Messung der Nachzerfallswärme von ^{235}U im Zeitbereich 10 - 1000 sec	308
4235 Untersuchungen zum Materialverhalten von Zircaloy bei Störfällen	310
4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohren	310
4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy 4-Hüllrohren	324
4235.3 Untersuchungen zum Einfluß des Oxidbrennstoffes und von Spaltprodukten auf die mechanischen Eigenschaften von Zry-Hüllrohren bei Störfalltransienten	343
4235.4 Berstversuche an Zircaloy-Hüllrohren unter kombinierter mechanisch-chemischer Beanspruchung	362
4236 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase eines Kühlmittelverluststörfalles Out-of-pile-Experimente mit elektrisch beheizten Einzelstäben	367
4237 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverluststörfalles. In-pile-Versuche mit Einzelstäben im DK-Loop des FR2. Nuklearversuche und Referenzversuche.	373

4238	Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Niederdruckphase eines hypothetischen Kühlmittelverluststörfalles und zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllrohren und einsetzender Kernnotkühlung	383
4239	Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles	401
4240	Kernschmelzen von LWR	416
4241	Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von UO_2 -Zircaloy-Brennelementen bei versagender Notkühlung	416
4243	Untersuchung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Kernschmelzen	429
4244	Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Materialien beim Coreschmelzen	445
4246	Experimente zur Wechselwirkung zwischen Stahlschmelzen und Beton - Betontiegelversuche mit Thermitschmelzen -	463
4247	Hydrodynamische und thermische Modelle zur Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton	495
4300	AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN	514
4310	Untersuchungen der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reaktionsvorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Störfällen	514
4311	Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und Aerosolen in LWR-Containments	514
4320	Theoretische und experimentelle Untersuchung der atmosphärischen Ausbreitung radioaktiver Gase und Aerosole	526
4320-TUH	Erstellung und Erprobung eines neuen Rechenprogramms für die Berechnung der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre unter instationären Bedingungen in ausgedehnten Regionen	536
4330	Untersuchung der radiologischen Folgen von Reaktorunfällen unter probabilistischen Gesichtspunkten	542

4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN	554
4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen	554
4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren	554
4412 Wanderung langlebiger Transuranisotope (z.B. Pu-239, Am-241) im Boden und in geologischen Formationen	568
Veröffentlichungen und Berichte zu Arbeiten im 2. Halbjahr 1977	571

KURZFASSUNGEN

Kurzfassungen

4100 UMWELTBELASTUNGEN DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGS-
ANLAGEN

4110 Luftfilteranlagen in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungs-
anlagen

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

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

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Ein neuer, mit Metallfasern unterschiedlicher Faserstärken bestückter Tropfenabscheider wurde konstruiert und gebaut. Mit den Experimenten wurde begonnen und hohe Abscheidegrade schon bei geringen Druckabfällen gemessen. 4 Fasermatten von $22\ \mu\text{m}$ scheiden im Mittel bei Beaufschlagung mit einem Tropfenspektrum von 2 bis $5\ \mu\text{m}$ mehr als 99 % massenbezogen ab.

Die Bestrahlungsversuche in USA am Sorptionsmaterial Molekularsieb in der Silberform wurden positiv abgeschlossen. Ein abschließender Bericht hierüber liegt noch nicht vor.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Entwicklung von Störfall-Umluftfiltern wird hiermit vorläufig abgeschlossen. Der dabei fertig entwickelte Jodsorptionsteil wird in die neue Entwicklungsrichtung eines störfallresistenten Abluftfilters übernommen. Die weiteren Entwicklungsarbeiten für Tropfenabscheider und Schwebstofffilter werden auf die störfallresistenten Abluftfilter ausgerichtet. Der erreichte Stand bei der Störfall-Umluftfilter - Entwicklung sowie die geplanten weiteren F + E Arbeiten werden dem zuständigen Unterausschuß der RSK zur Stellungnahme vorgelegt werden.

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

Durchgeführte Arbeiten

Wegen der Festlegung neuer Abgasmengen für das Auflöserabgas einer GWA, die die bisher untersuchten Randbedingungen überschritten, müssen die Hochbeladungs- und Desorptionsversuche fortgesetzt werden. Durch GC-Untersuchungen wurden die org. Jod-Komponenten im Auflöserabgas ermittelt. Am Aerosol- und Jodmeßschrank wurden Messungen an Materialien zur Schwebstoff- und Jodabscheidung während einer Auflösekampagne durchgeführt.

Die PASSAT mit den vom LAF II und RBT entwickelten 1 : 1 Abscheidekomponenten und der Fernbedienungseinrichtung befindet sich in der Fertigstellung.

Die Konstruktionszeichnungen der Abscheidekomponenten für AZUR wurden dem TÜV zur Genehmigung vorgelegt.

Erzielte Ergebnisse

Bei der hohen linearen Luftgeschwindigkeit des Auflöserabgases von 63 cm/s im Jod-Sorptionsmaterial AC 6120/H₁, die sich bei dem neu angegebenen Volumenstrom ergibt, und den einer GWA entsprechenden Jodkonzentration traten in Laborversuchen Störungen im Abscheidungsprofil auf, die z. Z. genauer untersucht werden und ggf. Gasgeschwindigkeiten > 60 cm/s ausschließen. Die gaschromatographischen Messungen der organischen Jodkomponenten im Auflöserabgas der WAK ergaben niedrige Konzentrationen an Methyl-, Ethyl- und Butyliodid. Die am Aerosol- und Jodmeßschrank hinter dem WAK-Betriebsschwebstofffilter über die Aktivität einzelner Isotope gemessenen Dekontaminationsfaktoren für Schwebstoffe betragen 120 - 160. Die Dekontaminationsfaktoren für I-129 wurden bei einer Verweilzeit von 1,4 s mit $> 10^3$ ermittelt.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Durchführung des AZUR-bezogenen Versuchsprogramms an PASSAT. Erprobung und Optimierung der Einzelabscheidekomponenten.

Erprobung der Filter-Fernbedienungseinrichtung und der neu konzipierten Faßverschraubung und Ausschleuseinheit.

4114/1 Abluftfilterung an Reaktoren

Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien

(J. Furrer, R. Gerhard, R. Kaempffer, J.G. Wilhelm, LAF II)

Durchgeführte Arbeiten

Es wurden mobile Filterprüfstände zur Erprobung des MWS-Filters gebaut und im DWR Biblis B eingesetzt. Das Versuchsprogramm umfaßt die qualitative und quantitative Bestimmung der Schadstoffverteilung in der Sorptions-schicht sowie deren Abscheideleistung gegenüber Spaltjod in Abhängigkeit von der Einsatzdauer. (MWS-Filter = Mehrwegsorptions-Filter.)

Zur Messung des Schadstoffgehaltes in der Abluft von KKW wurde ein kontinuierlich arbeitender Prozeß-GC geeicht.

Zur Ermittlung der Beladung der einzelnen Zonen des MWS-Filters wurde ein Modell konstruiert und zum Bau vergeben. Das Meßverfahren zur Bestimmung der partiellen Beaufschlagung wurde entwickelt.

Erzielte Ergebnisse

Nach zweimonatigem Einsatz der Jod-Sorptionskohle in zwei 25 cm tiefen Betten in der Anlagenraumabluft des KKW Biblis B wurde ein Lösungsmittelgehalt von max. 6,3 Gew.% mit teilweise hochsiedenden Anteilen auf den ersten 25 cm des Aktivkohlefilters festgestellt. Nach Desorption der adsorbierten Lösungsmittelanteile von der darauffolgenden zweiten Aktivkohleschicht (Beladung mit leichtflüchtigen Lösungsmitteln bis zu 4,7 Gew.%) wurde mit geringen Abweichungen der Abscheidegrad der frisch eingesetzten Aktivkohle wieder erreicht.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Fortsetzung der Laborversuche zur Desorption der Schadstoffe und kontinuierliche Messung der organischen Abluftanteile über längere Betriebszeiträume.

Standzeituntersuchungen zur Ermittlung des Wechselzyklus am MWS-Filter.

4114/2 Bestimmung von Jodkomponenten in der Abluft kerntechnischer Anlagen

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

Durchgeführte Arbeiten

Es wurden kontinuierlich Messungen mit diskriminierenden Jodsammlern unter Verwendung von DSM 11 als I_2 -Sorptionsmaterial in der Kaminabluft bzw. Kaminabluft und Digestorienabluft von DWR-Kernkraftwerken (DWR 2 bzw. DWR 3) vorgenommen.

Es wurden Versuche zur Abscheidung von ^{131}I in Form von I_2 und HIO (hypojodige Säure) am I_2 -Sorptionsmaterial DSM 11 und an weiteren, zur selektiven Abscheidung von HIO in Frage kommenden Sorptionsmaterialien durchgeführt.

Erzielte Ergebnisse

Der mittlere Anteil des anorg. ^{131}I (I_2) betrug in der Kaminabluft des DWR 2 ca. 30 % (Meßdauer 37 Wochen), in der Kaminabluft des DWR 3 ca. 60 % (Meßdauer 11 Wochen). Die Digestorienabluft des DWR 3 enthielt im Mittel ca. 80 % anorg. ^{131}I und lieferte ca. 50 % des anorg. ^{131}I der Kaminabluft (Meßdauer 9 Wochen). Der Anteil des org. ^{131}I war praktisch komplementär, da der Anteil des schwebstoff. ^{131}I sehr gering war (meistens < 1 %).

Der Abscheidegrad von DSM 11 für ^{131}I in Form von I_2 war bei einer Verweilzeit von 0,1 s im gesamten relevanten Parameterbereich > 99,9 %. ^{131}I in Form von HIO schied sich bei gleicher Verweilzeit, 40°C und 50 % r.F. nur in geringem Maße ab (< 1 %). Zur selektiven Abscheidung von ^{131}I in Form von HIO erwies sich unter gleichen Bedingungen das Sorptionsmaterial IPH (Fa. NES, USA) am geeignetsten. Die Identität von HIO (Anteil im Trägergas bis 70 %) wurde weiter gesichert.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Die Messungen mit diskriminierenden Jodsammlern werden in den genannten sowie beim DWR 3 in weiteren Abluftströmen bis zum Erreichen einer Meßdauer von jeweils 1 Jahr (in der Kaminabluft) fortgeführt.

Die Abscheidung von ^{131}I in Form von HIO an DSM 11 und IPH wird im gesamten relevanten Parameterbereich untersucht. Die Entwicklung eines diskriminierenden Jodsammlers, der in der stickoxidhaltigen Abluft von Wiederaufarbeitungsanlagen eingesetzt werden kann, wird aufgenommen.

4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten
in Reaktorkreisläufen

4123 Reduktion der Aktivierung und Kontaminierung von Reaktorkreis-
läufen.

Durchgeführte Arbeiten

Die Metallabgabeuntersuchungen erstreckten sich im Berichtszeitraum auf den Dampferzeugerrohrwerkstoff INCOLOY alloy 800 und die ähnlich zusammengesetzte Cr-Ni-Legierung auf Eisenbasis NICROFER 3220 (VDM), Werkstoff-Nr. 1.4876, in Druckwasser bei 340°C, 150 bar und jeweils über 300 Stunden.

Erzielte Ergebnisse

Es wurden bei einem Vergleich der von den beiden austenitischen Werkstoffen an Druckwasser abgegebenen Fe-, Cr- und Ni-Gehalten gefunden, daß lediglich der Eisengehalt merklich niedriger lag, wenn dem Dionat Lithiumhydroxid bis zum pH-Wert 9 zugegeben war.

Für INCOLOY alloy 800 und bei pH-Werten des Ausgangswassers von 7 und von 9 zeigten sich durchweg bei pH 9 für alle Metallkomponenten deutliche Minderungen der Metallkonzentration im Druckwasser.

Schließlich wurden bei der Untersuchung der von NICROFER 3220 bei den pH-Werten 7, 9 und 10,5 des Ausgangswassers Metallgehalte im Druckwasser gefunden, wie sie Abb. 4123-3 zeigt. Der Eisengehalt ändert sich in Abhängigkeit von der Alkalisierung nahezu nicht mehr. Die Nickel- und Chromgehalte deuteten ein komplementäres Verhältnis an.

Ausblick auf den geplanten Fortgang der Arbeiten

Das Forschungsvorhaben ist beendet.

4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung

4132 Untersuchungen zur Radioökologie des J-129.

(H. Schüttelkopf, ASS)

Durchgeführte Arbeiten

1977 wurden aus der Umgebung der WAK Milchproben, Bodenproben, Schilddrüsenproben und Luftproben analysiert. Prozesslösungen aus der WAK, Luftproben aus der WAK und Abwasserproben wurden auf ^{129}J untersucht. Die Zusammensetzung des ^{129}J - organisch, anorganisch, aerosolförmig - in der Abluft der WAK wurde bestimmt. ^{127}J -Konzentrationen in der Umgebungsluft wurden in Kiel, Stade, Karlsruhe, Gundremmingen und München gemessen.

Erzielte Ergebnisse

Seit dem Einbau des Jodfilters in das Auflöserabluftsystem der WAK im Jahre 1975 liegt die ^{129}J -Emission der WAK relativ konstant bei 2 bis 3 mCi/a. Die ^{129}J -Konzentration in Ziegenmilchproben nimmt seit diesem Zeitpunkt mit einer Halbwertszeit von 0,5 Jahren ab. Die ^{129}J -Konzentrationen in Bodenproben liegen zwischen 0,05 und 40 fCi/g. Die höchsten Werte werden in der Nähe des Hauptbeaufschlagungspunktes durch die Abluftfahne der WAK gefunden. Die Konzentration des ^{129}J in den obersten 5 cm Boden ist im allgemeinen höher als in den folgenden 15 cm.

Die chemische Zusammensetzung von ^{129}J in der Abluft der WAK wurde während einer 3-monatigen Probenahme bestimmt. Der organisch gasförmige Anteil liegt bei ca. 20 %, der anorganisch gasförmige bei 80 %. Die Konzentration der Jod-Aerosole liegt bei 1 % des Gesamtjodgehaltes der Abluft.

Die ^{127}J -Messung - getrennt nach gasförmig anorganischen und nach Aerosoljod - wurde mit einer 1976 entwickelten und geprüften Methode

von Oktober 1976 bis Dezember 1977 in der Umgebung des KfK durchgeführt. Ähnliche Probenahmeapparaturen wurden 1977 in Kiel, Stade, Gundremmingen und München installiert. Die Ergebnisse dieser Messungen zeigten, daß der anorganisch gasförmige ^{127}J -Gehalt der Umgebungsluft in der gesamten Bundesrepublik zwischen 5 und 10 ng/m^3 beträgt. Die Konzentration des aerosolförmigen ^{127}J liegt bei 1 ng/m^3 .

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

1978 wird die vertikale Verteilung von ^{129}J und die Kontamination von Bodenproben, welche 1977 und 1978 genommen wurden, gemessen werden. Bis Ende 1978 werden Ziegenmilchproben auf ^{129}J analysiert werden. Das Forschungsprogramm wird zum Thema ^{129}J 1978 abgeschlossen.

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

Teil 1: Entwicklung der Tieftemperatur-Rektifikations-Anlage

Durchgeführte Arbeiten

Zwei Versuchskampagnen zu je vier Wochen wurden mit den Versuchsanlagen ADAMO und KRETA im Verbundbetrieb durchgeführt. An der katalytischen Labor-Kreislaufanlage wurden mehrere Versuchsserien durchgeführt; sicherheitstechnische Überlegungen wurden im Zusammenhang mit dem Betrieb der Anlage REDUKTION (Gasdurchsatz $50 \text{ Nm}^3/\text{h}$), deren Lieferung kurz bevorsteht, zusammen mit dem TÜV angestellt. Das Adsorptions- und Desorptionsverhalten von Krypton und Xenon (markiert mit Kr-85 bzw. Xe-133) an säurefesten Molekularsieben wurde im Laborversuch bestimmt.

Erzielte Ergebnisse

Beim Betrieb der ersten Kolonne der TTR-Anlage KRETA mit dem Dreikomponentensystem N_2 -Kr-Xe konnte das Konzentrationsgebiet von Kr und Xe im Speisegas eingegrenzt werden, bei dem es zu Ausfrierungen von Xe

aus der Gasphase in der Nähe des Gaseintritts in die Kolonne kommt. Dieses Gebiet wird umso kleiner, je kleiner der Gesamt-Gasstrom und je höher der Kolonnendruck ist. Die für die verbesserte Auflöser-abgasreinigung an der WAK (Projekt AZUR) vorgesehene Krypton-Rückführung wurde durch Variation des Kr-Gehalts im Speisegas simuliert. Eine Erhöhung der Kr-Konzentration verringert ebenfalls die Tendenz des Xenons zum Ausfrieren.

Die Messung und damit Regelung von H_2 bei der katalytischen Reduktion von O_2 und NO_x erfolgt am besten mit Wärmetönungszellen der Fa. Leeds und Northrup. Dieses Gerät arbeitet bei Raumtemperatur und ist nicht querempfindlich gegen NO_x .

- CO_2 wird am Ru-Katalysator teilweise zu CH_4 reduziert, jedoch nur bei Abwesenheit von O_2 .

Die Adsorptionskoeffizienten von Kr und Xe sind an säurefestem Molekularsieb Zeolon-200 (Norton) rund doppelt so hoch wie am Typ 5A. Dasselbe gilt für NO , NO_2 und NH_3 dagegen zeigen am Zeolon schwächere Adsorption als am Typ 5A.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die KRETA-Versuche mit dem System N_2 -Kr-Xe werden noch in der ersten Hälfte 1978 unter Bezug auf die Randbedingungen des Projekts AZUR fortgesetzt, um die Betriebsweise zu finden, bei der das Ausfrieren von Xenon unter minimaler Anwendung der Krypton-Rückführschleife vermieden wird. Danach werden Parameter- und Störfalluntersuchungen durchgeführt. Durch Anlagenverbesserungen werden festgestellte Störquellen beseitigt.

Die Anlage REDUKTION wird etwa im März 1978 in Betrieb genommen - werden. Wenn sie vom TÜV abgenommen ist, wird sofort der Versuchsbetrieb aufgenommen.

Die Adsorptionsversuche mit Edelgasen und anderen Gasen werden im Laborversuch fortgesetzt, insbesondere mit säurefesten Molekularsieben als Adsorbentien. Auch an ADAMO werden einige Versuche zur Adsorption und Desorption der Edelgase mit verbesserter Analysentechnik durchgeführt werden.

Teil 2: Ozonsicherheit und Kr-85-Entfernung

Durchgeführte Arbeiten

Der Kryostat wurde bei Temperaturen zwischen -150 und -50°C sowie Drücken zwischen 0 und 10 bar in Betrieb genommen. Nach Feststellung diverser Mängel (unzureichende Kühlung der Meßzelle, Undichtigkeiten an Ventilen und Durchführungen, falsche Rohrverlegung usw.) mußte der Kryostat an eine Kryotechnik-Fa zur Umkonstruktion und Verbesserung geschickt werden. Weiterhin wurde der Aufbau und die Einrichtung einer Handschuhbox zur Bestimmung von Ozon in Gegenwart von Kr-85 im wesentlichen beendet. Nach Abschluß einer Meßreihe wird das Gasgemisch mit N_2 auf Normaldruck aufgefüllt, von O_2 und O_3 mittels eines Cu-Katalysators befreit und das Kr/Kr-85 anschließend auf einem Aktivkohlefilter abgetrennt.

Laboruntersuchungen zur Auswahl eines geeigneten Ozonzerstörungs-Katalysators wurden bei Temperaturen um 190 K durchgeführt.

Eine umfangreiche Literaturstudie über die Alternativen zur Kr-85-Endlagerung wurde erstellt (KFK 2482, Dezember 1977). Erste Berechnungen zur Optimierung der Flaschenauslegung, insbesondere über die Abhängigkeit der Flaschenwandtemperatur von dem Inhaltsdruck, dem Behältervolumen und der Behälterdimensionierung wurden durchgeführt. Stoffdaten wie z.B. Realfaktoren von Xe-Kr-Gemischen bei verschiedenen Drücken und Temperaturen sowie die erforderlichen Abschirmungen für verschiedene Lagerungsbehälter und Kryptoninventare wurden rechnerisch ermittelt. Ein Versuchsprogramm zur Untersuchung der Auswirkungen der Rubidiumkorrosion auf die Behälterwerkstoffe wurden aufgestellt und mit den Versuchen begonnen.

Erzielte Ergebnisse

Da unter Voraussetzung einer ausreichenden Katalysatorbettlänge, z.B. 35 g/h Ozon bei einer Gaströmungsgeschwindigkeit zwischen 0,1 und 0,7 Nm^3/h , bis zu 99,9 %, über mehrere Stunden bei einer Temperatur von

- 80 °C, ohne Anzeichen einer Verschlechterung des katalytischen Wirkungsgrades zerstört werden, kann eine kryogene heterogene Ozonzerstörung im TTR-Teil in Erwägung gezogen werden.

Cu-Katalysatoren eignen sich für eine Vorreinigung (Entfernung von O₂ und O₃) des Kr-85 vor der Endlagerung.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Versuche an dem Kryostaten und über den Einfluß von Radioaktivität auf die Ozonanalytik.

Erprobung des Ozonzerstörungsverfahrens an realistischen Ozon-Edelgasmischungen unter Simulierung von TTR-Verhältnissen (Kryostat).

Fortführung und Erweiterung der Korrosionsuntersuchungen. Entscheidung über die Auslegung des Endlagerbehälters.

Erstellung einer Konzeptstudie.

- 4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN
- 4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen
- 4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen

Durchgeführte Arbeiten

Für die bei den Marviken II-Versuchen eingesetzten Infrarot-Meßeinrichtungen wurde die abschließende Dokumentation erstellt.

Die Kontrollmessungen im Großkraftwerk Mannheim wurden im Auftrag und auf Rechnung des TÜV Baden, Mannheim, fortgesetzt. Die im Rahmen dieser Serie bisher durchgeführten 24 Versuche waren an der Auslegung und Geometrie des Druckabbausystems des Kernkraftwerkes Philippsburg orientiert. Alle Meßdaten wurden auf Magnetband aufgezeichnet, im IRE geplottet und dem TÜV Baden zugestellt.

Auch für die durchgeführten Modellrechnungen zum Kondensationsvorgang wurde im Berichtszeitraum die abschließende Dokumentation erstellt. Das Rechenprogramm KONDAS wurde inzwischen von der Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS), München, übernommen.

Für die Berechnung der dynamischen Verformung einer dünnwandigen Kugelschale wurde ein auf der Flügge'schen Schalentheorie basierendes Rechenprogramm (SPHERI) entwickelt. Hiermit wurden Testrechnungen für eine lokale Stoßbelastung durchgeführt. Als Belastungswerte wurden die bei den Abblaseversuchen im Kernkraftwerk Brunsbüttel gemessenen transienten Wanddrücke verwendet.

Erzielte Ergebnisse

Das Infrarot-Meßverfahren ist in der bisher verwendeten Form vor allem für die Messung der Tröpfchengeschwindigkeit und die praktisch verzögerungsfreie Bestimmung der Dampfdichte geeignet. Über die Dampfdichte werden dabei auch alle Druckschwankungen mit hoher zeitlicher Auflösung erfaßt.

Die Ergebnisse der durchgeführten Modellrechnungen zum Kondensationsvorgang sind unmittelbar in die Genehmigungsverfahren der deutschen Siedewasserreaktor-Kernkraftwerke eingeflossen.

Die Berechnung zur dynamischen Verformung einer dünnwandigen Kugelschale unter einer lokalen Stoßbelastung zeigten, daß sich die lokale Auslenkung erst nach sehr vielen Zyklen auf die weiter entfernt liegenden Schalenbereiche ausbreitet. Das berechnete lokale Zeitverhalten stimmt recht gut mit den bei den Versuchen im KKW Brunsbüttel gemessenen Strukturschwingungen überein.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Im Großkraftwerk Mannheim sind noch 8 weitere Versuche vorgesehen, die auf die Bedingungen der neuen Siedewasserreaktor-Baulinie der KWU, d.h. des Kernkraftwerkes Gundremmingen II abgestimmt sind. Die unabhängigen, begleitenden Kontrollmessungen werden auch bei diesen Versuchen im bisherigen Umfang durchgeführt werden.

Die Arbeiten zum dynamischen Schalenverhalten werden in Zukunft unter dem Vorhaben PNS 4223 weitergeführt werden, da es sich hierbei um ein gekoppeltes fluidschalendynamisches Problem handelt, das als ein Ganzes zu behandeln ist.

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

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Am Gemeinsamen Versuchsstand (PNS 4215) wurden 250 Versuche im Bereich $p = 5$ bis 100 bar, $\alpha = 0$ bis 1 und $\dot{m} = 0$ bis 4 kg/s durchgeführt. Dabei wurden Geschwindigkeiten von 0,1 bis 50 m/s für beide Phasen und Schlupffaktoren von 1,0 bis 7,0 gemessen.

Bis zur Fertigstellung und dem Einbau der Mehrstrahl- γ -Absorptionsdichtemeßeinrichtung in die Teststrecke wurde der Zweiphasenmassenstrom aus den mit der Radiotracermethode gemessenen Geschwindigkeiten des Dampfes und des Wassers sowie aus Druck, Temperatur und den "superficial velocities" errechnet. Die dabei ermittelten Werte zeigten eine gute Übereinstimmung mit den vom IRB angegebenen Bilanzmassenströmen. Bei diesen Zweiphasengeschwindigkeitsmessungen konnte nachgewiesen werden, daß die Gas- und Flüssigtracer sich gut mit der entsprechenden Dampf- bzw. Flüssigphase vermischen und in dieser Phase auch als Gas bzw. Flüssigkeit verbleiben. Außerdem wurden die erforderlichen Mindestgrößen der Anlauf- und Meßstrecken bestimmt.

Mit der im 4. Quartal in Betrieb genommenen Mehrstrahl- γ -Absorptionsdichtemeßeinrichtung wurden gleichfalls gute Ergebnisse erzielt, so daß es nunmehr möglich ist, den Massenstrom direkt aus den Geschwindigkeiten der beiden Phasen und der Dichte des Zweiphasengemisches zu bestimmen.

Das eigene für die IBM-Großrechenanlage konzipierte Auswerteprogramm zur Ermittlung der Phasengeschwindigkeiten läuft seit November 1977 zufriedenstellend.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

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

4215 Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschiedener
Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren

(J. Reimann - IRB)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Im Berichtszeitraum wurden in ausführlichen Versuchsserien diverse Meßverfahren getestet, die zum einen vom BMFT, zum anderen von der US NRC gefördert werden.

Die erste Gruppe setzte sich aus folgenden Verfahren zusammen:

- Dragbody + Turbinendurchflußmesser + γ -Strahl-Densitometer (Euratom Ispra, RS 109)
- Temperaturkorrelationsverfahren (TU-Berlin-IKT, RS 135)
- Dragbody (Batelle Frankfurt, RS 147)
- Radionuklid-Meßverfahren + γ -Strahl-Densitometer (KfK-LIT, RS 146, PNS 4214)

Diese Meßsysteme wurden, mit Ausnahme von RS 147, gleichzeitig in der waagerechten Teststrecke (50 mm \emptyset) bei stationärer Dampf-Wasser-Strömung getestet. Variiert wurde der Massenstrom und Dampfgehalt bei Drücken von 10, 25, 50, 75 und 100 bar. Insgesamt wurden ca. 110 verschiedene Versuchspunkte (incl. der einphasigen Betriebszuständen) eingestellt.

Zur zweiten Gruppe gehörten Verfahren, die im INEL (Idaho) entwickelt und in den LOFT- und Semiscale-Versuchen eingesetzt werden. Diese Verfahren bestehen jeweils aus einer Kombination von Dragbody (bzw. Dragscreen), Turbinendurchflußmesser und γ -Strahl-Densitometer, unterscheiden sich jedoch wesentlich in der konstruktiven Ausführung. Bei einem Teil dieser Versuche war auch das vom KfK-LIT entwickelte Meßverfahren im Einsatz.

Die Versuche fanden bei stationärer Luft-Wasser- sowie Dampf-Wasser-Strömung statt, insgesamt wurden ca. 240 Versuchspunkte eingestellt.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

- Auswertung und Dokumentation bisheriger Versuche.
- Fortsetzung der Tests des LOFT-Verfahrens.
- Weitere Versuche mit BMFT geförderten Vorhaben.

- 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
(H. Beuter, G. Grötzbach, R. Krieg, A. Ludwig, H. Mössinger, W. Olbrich, H. Schnauder, U. Schumann, IRE)

Durchgeführte Arbeiten

Der fertiggestellte Kernmantel wurde vermessen. Dabei zeigten sich nicht tolerierbare Abweichungen. Es wurden Vorschläge zur Behebung der daraus resultierenden Probleme erarbeitet. Für den Naturkonvektionsversuch wurden Einzelheiten festgelegt. Er soll die Stabilität der Temperaturverteilung vor der Blowdownauslösung bestätigen. Mit Hilfe des Codes TURBIT2 wurde der turbulente Abbau von Temperaturunterschieden in radialer Richtung im Ringraum untersucht. Die hydraulischen Spannvorrichtungen gehen in die Fertigungsphase; mit ihnen sollen die Anfangsauslenkungen des HDR-Kernmantels bei den Snap-back-Versuchen erzeugt werden. Die inkompressible Version des Codes FLUX wurde zur Vorausberechnung von Snap-back- und Eigenschwingungsversuchen benutzt. Mit dem 3D-Code FLUX und dem 2D-Code STRUYA wurden Blowdown-Transienten berechnet. Beide Codes werden noch weiterentwickelt.

Erzielte Ergebnisse

Im quasistationären Zustand vor der Blowdown-Auslösung werden radiale Temperaturvariationen im Ringraum durch turbulente Naturkonvektion auf etwa 25 % vermindert. Die Snap-back- und Eigenschwingungsversuche werden wichtige Aufschlüsse über den Effekt der Fluid-Struktur-Kopplung liefern. Versuche mit Schwingungsanregung wären vorzuziehen, wenn die Dämpfungscharakteristiken bestimmt werden sollen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Einzelheiten des Vorgehens bei der Montage des Kernmantels müssen ausgearbeitet und der Naturkonvektionsversuch muß durchgeführt und ausgewertet werden. Die hydraulische Spannvorrichtung für die Snap-back-Versuche wird montiert. Vorausberechnungen der HDR-Blowdown-Versuche werden dokumentiert.

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

K.D.Appelt, F.Eberle, J.Kadlec, G.Lang, R.A.Müller, P.Philipp, IRE)

Durchgeführte Arbeiten

Es wurden vier verschiedene Wegaufnehmer und zwei Beschleunigungsaufnehmer unter ähnlichen thermohydraulischen Bedingungen wie im HDR-RDB in der Autoklav-Testanlage des IRE untersucht. Ein weiterer Gegenstand der Untersuchungen war das Beschleunigungsverhalten der Aufnehmer (in diesem Fall der Wegaufnehmer) und vor allem das dynamische Verhalten. Es wurden jeweils das Signal- und das Stör- bzw. das Fehlerverhalten der Aufnehmer ermittelt. Parallel zu diesen Arbeiten wurden entsprechende Prüfverfahren und Rechenprogramme (zur Benutzung auf dem eingesetzten Prozeßrechner und Analyser TDA 33) für die Versuchsdatenerfassung und Auswertung erstellt.

Neu aufgenommen wurde die Betreuung einer Hochtemperatur-Druckaufnehmerentwicklung auf induktiver Basis, deren erste Prototypen dem IRE ausgeliefert wurden. Erste Untersuchungen haben begonnen.

Zum Schwingungsverhalten des Modellkernmantels des HDR wurde ein Realisierungsvorschlag für Modaluntersuchungen am HDR-Kernmantel ausgearbeitet.

Erzielte Ergebnisse

Bei den Untersuchungen der induktiven Wegaufnehmer die im Mittelpunkt der Arbeit standen, hat ein Aufnehmertyp alle thermohydraulischen und mechanisch-dynamischen Tests überlebt und zeigte dabei ein Fehlerverhalten, das ihn für die vorgesehenen Versuche geeignet macht. Alle anderen Prototypaufnehmer haben sich nicht qualifiziert und wurden den Herstellerfirmen zur Modifizierung übergeben. Die Fehlerursachen waren: nicht reproduzierbares Verhalten aufgrund von Isolationsänderungen durch thermische Spannungen und große Störpegel bei Beschleunigungen am Aufnehmergehäuse.

Die Untersuchungen an den Beschleunigungsaufnehmern mußten wegen Defekten an den Aufnehmern (Verlust des Isolationswiderstandes) eingestellt werden, neue Prototypen sind bestellt.

Die ersten Untersuchungen an den induktiven Hochtemperatur-, Druck- und Differenzdruckaufnehmern lassen noch keine Aussage über eine Eignung dieser Aufnehmer zu.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Es werden die Untersuchungen an den modifizierten bzw. neuen Prototyp-Wegaufnehmern und Beschleunigungsaufnehmern mit dem Ziel der Qualifizierung fortgeführt bzw. abgeschlossen, um die am besten geeigneten Aufnehmer schnellstmöglich bei den Herstellern in Auftrag zu geben. Das gleiche gilt für die Hochtemperatur-, Druck- und Differenzdruckaufnehmer, wobei in diesem Fall mit einiger Sicherheit im Verlauf der Untersuchungen noch verschiedene Modifikationen vorgenommen werden müssen.

Die vorgesehenen Hochtemperatur-DMS werden im wesentlichen in der MPA der Universität Stuttgart untersucht, im IRE wird ein abschließender Test zum dynamischen Verhalten erfolgen.

- 4223 Weiterentwicklung und Verifizierung gekoppelter fluid-strukturdynamischer Codes zur Analyse der dynamischen Spannungen und Verformungen von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen in LWR.
(H.H. Bechler, H. Beutel, G. Enderle, G. Hailfinger, F. Katz, R. Krieg, A. Ludwig, H. Mössinger, W. Olbrich, E.G. Schlechtendahl, U. Schumann, K. Stölting, IRE)

Durchgeführte Arbeiten

Der Code für zweidimensionale Nichtgleichgewichts-Zweiphasen-Strömung DRIX-2D ging in die Anwendungsphase. Mit dem Systemcode FLUST konnten nach Kopplung entsprechender 2D-Modelle Blowdownvorgänge im Ringraum, im Bruchstutzen und im Ausström-Freistrahler erfolgreich berechnet werden. Der 3D-Code FLUX und der 2D-Code STRUYA (beide gekoppelt mit dem Schalenmodell CYLDY2 für den Kernmantel) wurden erfolgreich bei Blowdown-Rechnungen eingesetzt. Mit FLUX wurden außerdem die Snap-back-Versuche und ein Blowdown in einem DWR untersucht. Die Arbeit am Code CYLDY2, der im wesentlichen auf einer analytischen Integration der Schalengleichungen von Flüge beruht, wurde fortgesetzt; damit sollen einige Widersprüche zwischen verschiedenen Schalenmodellen für den Kernmantel aufgeklärt werden. Die Entwicklung des Fluidynamik-Codes SING1 wurde abgeschlossen; SING1 beruht auf einer verbesserten Singularitätenmethode und ist anwendbar

auf eine große Klasse von stark transienten, inkompressiblen 3D-Vorgängen mit vernachlässigbarer Zähigkeit. Außerdem konnten die Gleichungen für die Schalen, welche das Fluid umgehen, mit Hilfe des Singularitätenverfahrens so modifiziert werden, daß die dynamische Fluid-Struktur-Kopplung berücksichtigt wird (Code SING-S).

Mit der Fertigung der Meßstrecke und der Dichtemeßeinrichtung für die Zweiphasenströmungsversuche wurde begonnen. Für Laborversuche (vom Blowdown-Type), welche die Großversuche am HDR ergänzen sollen, wurde ein detailliertes Konzept erarbeitet. Die Laborversuche sollen besonders dazu dienen, den Einfluß der Kernstruktur bei einem Blowdown zu untersuchen.

Erzielte Ergebnisse

- Im Code DRIX-2D wurden wesentliche Verbesserungen für die starke transiente Phase erzielt, indem die Drift-Flux-Näherung durch ein Modell mit 6 Gleichungen ersetzt wurde.
- Eine neue Zustandgleichung für Wasser und Dampf, die für alle praktisch auftretenden Zustände gilt, führte zur erfolgreichen Beschreibung des Freistrahls vor dem Blowdown-Bruchstutzen mit FLUST.
- Durch eine Rechnung mit FLUX in Verbindung mit einem numerischen Integrationsverfahren, das keine künstliche Dämpfung hervorruft, wurde bestätigt, daß die gekoppelte Analyse der Kernmantelverformungen beim Blowdown eine Voraussetzung für sinnvolle Rechenergebnisse bei hohen Frequenzen ist.
- Sowohl mit FLUX als auch mit STRUYA wurde die Fluid-Strukturkopplung erfolgreich durchgeführt.
- Der Fluidodynamik-Code SING1, der für 3D-Probleme mit stark transienten Strömungen vorgesehen ist, wurde erfolgreich bei Untersuchungen des Druckabbausystems eines Siedewasserreaktors eingesetzt.
- Erste Rechnungen mit dem gekoppelten Fluid-Schalendynamik-Code SING-S zeigten eine außerordentlich starke Verminderung der Eigenfrequenzen im Vergleich zur Schalendynamik ohne Kopplung.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

- Die Codes FLUX (inkompressible Version), STRUYA und SING-S werden dokumentiert.
- Die Codeentwicklung wird fortgesetzt: Hauptsächlich Verbesserungen bei FLUX, STRUYA, DRIX-2D; Einbindung von DRIX-2D in FLUST; Test von CYLDY3.
- Anwendung von SING-S auf Probleme des Druckabbausystems eines Siedewasserreaktors.
- Gründliche Untersuchung des Codes TRAC
- Durchführung der Zweiphasenströmungsversuche ("Düsenversuche")
- Durchführung verschiedener Laborversuche.

4230 Notkühlung von LWR

4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen und Störfällen ohne Schnellabschaltung

Durchgeführte Arbeiten

Zur Durchführung der ersten Bündelversuche mit Brennstabsimulatoren im Rahmen von PNS 4238 wurden mit SSYST Begleitrechnungen für Einzelstabgeometrie erstellt. Ihre Ergebnisse sollen unter anderem Planung und Ablauf des Versuchsprogramms unterstützen. Bei den Rechnungen wurden verschiedene Wärmeübergangparameter (kühlmittelseitige Wärmeübergangszahl, Emissionszahl im Spalt, Spaltweite) variiert. Ferner wurde die Simulation des Stabverhaltens unter Flutbedingungen durchgeführt.

Mit SSYST wurden Rechnungen zu einem TREAT-Experiment durchgeführt, dabei wurde ein Vergleich mit FRAP-T4 angestellt.

Die Einsatzfähigkeit verschiedener Programme wurde durch Vergleichsrechnungen getestet, z.B. mit SATURN-L und FRAP-S anhand eines Brennstabs,

für den Messungen der Zentraltemperatur vorlagen. Weitere Vergleiche wurden zwischen CARO-D und FRAP-S durchgeführt.

Die Zry-Deformationsdatenbank wurde weiter mit Daten aus isothermen Zug- und Kriechversuchen aufgefüllt. Aus diesen isothermen Daten ein-dimensionaler Versuchsproben wurde ein erstes Modell für den Temperaturbereich $850 \text{ K} \leq T \leq 1200 \text{ K}$ aufgestellt.

Für die statistische Analyse des Brennstabverhaltens wurden SSYST Moduln für folgende Aufgaben geschrieben:

- Aufstellung eines Eingabevektors mit aktuellen Werten statistischer Variabler für RELAP bzw. SSYST, die nach dem "experimental design" des "hypercube sampling" gewählt werden.
- Auswertung der "response surface" mit einer linearen Regressionsanalyse zur Gewinnung einer Ersatzfunktion.
- Auswertung der Ersatzfunktion mit Monte Carlo zur Gewinnung von Häufigkeitsverteilungen, z.B. für die maximale Hüllrohrtemperatur.

Für einen heißen Brennstab wurde ein "Master" Input zusammengestellt und ausgetestet.

An einigen fremden Programmen wurden Verbesserungen vorgenommen. In COBRA IIIC wurden erweiterte Wasserdampf tafeln eingebaut, um Experimente mit Brennstabbündeln (z.B. solche bei denen überhitzter Dampf auftritt) mit dem Programm COBRA IIIC nachrechnen zu können. Die Moduln FRAPDR und FRASSY wurden ebenfalls ausgetestet und verbessert.

Verschiedene SSYST-Moduln wurden verbessert, es wurde eine zweite Version des Moduls ZIRKOX erstellt, die es gestattet, die durch die Zirkon-Wasser-Reaktion freigesetzte Wärme, H_2 -Menge, Volumänderung der Hülle durch Oxidation, und die Beschränkung des Dampfangebotes zu berechnen. Durch Teilweise separierte Darstellung der beiden Phasen Dampf und Wasser in den Gleichungen für das Strömungsmodell im Modul ZETHYF wurde eine verbesserte Beschreibung des Zweiphasengemisches erzielt. Zur Berechnung des ortsabhängigen Drucks im Spalt wurde ein neuer Satz von Gleichungen erarbeitet.

Im Zusammenhang mit der Weiterentwicklung von SSYST wurde ein Vorschlag für eine Vorgehensweise bei der Beurteilung des Schadensumfangs an den Brennstäben eines Reaktorkerns nach einem Kühlmittelverluststörfall erarbeitet.

Erzielte Ergebnisse

Die Variation einiger Wärmeübergangparameter bei Rechnungen an Einzelstäben ergab eine starke Abhängigkeit der Hüllrohrtemperatur von der Spaltweite, eine geringe Abhängigkeit von der Emissionszahl im Spalt und eine außerordentlich empfindliche Reaktion des Dehnungsverhaltens auf die Hüllrohrtemperatur.

Rechnungen mit SSYST zu einem TREAT-Experiment und ein Vergleich mit FRAP-T4 zeigten bezüglich des Hüllrohrtemperaturverlaufs in der Aufheizphase eine gute Übereinstimmung. Der Einfluß eines begrenzten Dampfangebots konnte mit SSYST gut simuliert werden, ebenso die Versagenszeit des Brennstabes (ca. 30 s).

Vergleichsrechnungen zwischen SATURN-L und FRAP-S zeigten eine gute Übereinstimmung bezüglich der Zentraltemperaturen der berechneten Stäbe. In Wärmeübergangszahlen im Spalt ergaben sich größere Abweichungen, die jedoch bei geschlossenem Spalt weitgehend verschwanden. Der Kontaktdruck zeigte, insbesondere bei hohen Stableistungen wieder größere Abweichungen. Vergleichsrechnungen zwischen CARO-D und FRAP-S zeigten in einem Leistungsbereich, der beim Reaktorbetrieb in Frage kommt, ebenfalls eine gute Übereinstimmung. Bei unrealistisch großen Leistungen lieferten Vergleichsrechnungen deutlich unterschiedliche Ergebnisse, sie resultieren aus Unterschieden in den verwendeten Modellen zur Berechnung der Wärmeübergangszahlen im Spalt und der Spaltgasfreisetzung.

Der verbesserte Modul ZIRKOX gestattet eine realistische Berechnung des Einflusses der Begrenzung des Dampfangebots auf die Hüllrohrtaussentemperatur und den Hüllrohrtaussenradius. Die erreichten Werte stimmten gut mit dem Experiment überein.

Die Analyse der in der Datenbank für das Zircaloy gespeicherten Daten ergab folgendes Bild:

- der Beginn der plastischen Verformung im sekundären Kriechbereich läßt sich mit einem "Norton"-Ansatz beschreiben, wobei die Koeffizienten temperaturabhängig sind.
- für einzelne Temperaturbereiche lassen sich so Dehnungen bis zu 30 % bzw. 70 % beschreiben.
- die Anwesenheit von Sauerstoff während der Verformung erhöht die Bruchdehnung von $870 \text{ K} \leq T \leq 1070 \text{ K}$ und reduziert die Berstdehnung für höhere Temperaturen.

Testrechnungen mit dem Regressionsmodul in SSYST zeigten, daß Probleme mit mehr als 20 statistischen Variablen in befriedigender Weise behandelt werden können.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Weiterentwicklung von SSYST wird durchgeführt, die Ankopplung eines geeigneten Steady-State-Programms wird vollzogen. Vergleichstudien zwischen verschiedenen Steady-State-Codes werden erstellt. 2D und 3D Wärmeleitrechnungen zur Schadenspropagation und zu nichtkühlbaren Geometrien werden durchgeführt.

Der Aufbau einer Datenbank zur Gewinnung eines Berstkriteriums für Zircaloy-Hüllrohre wird begonnen.

Rechnungen zur Gewinnung einer Antwortfunktion für die Enddehnung eines Hüllrohres abhängig von seinen statistischen Variablen werden durchgeführt.

4234 Messung der Nachzerfallswärme von ^{235}U im Zeitbereich
10 - 1000 sek

(K. Baumung, INR)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Im Berichtszeitraum wurde die Meßapparatur, bestehend aus Rohrpost mit Kühlkreislauf und angeschlossenen Kalorimeter, am FR2 aufgebaut. Dabei ergaben sich Verzögerungen, weil im Gegensatz zur ursprünglichen Planung kein Kühlwasser mehr bereitgestellt und die Abgase nicht in die FR2-Halogenabluftanlage eingeleitet werden konnten. Es mußte eine Kältemaschine beschafft und getestet sowie der Nachweis über den Abscheidegrad der Jodfilter erbracht werden, die nunmehr Bestand der Anlage sind. Inzwischen wurden erste kalte Tests an der thermischen Säule des FR2 durchgeführt.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Nach Abschluß der Tests werden die Bestrahlungsexperimente aufgenommen.

4235 Untersuchungen zum Materialverhalten von Zircaloy
bei Reaktorstörfällen

4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllmaterial

(M. Bocek, C. Petersen, H. Schneider, W. Schweiger, B. Seith,
K. Dindorf, IMF II)

Durchgeführte Arbeiten

- 1) Vergleich der Temperaturabhängigkeit des Spannungsexponenten n (aus dem Kriechgesetz $\dot{\epsilon} = A(T)\sigma^n$) ermittelt unter verschiedenen Versuchsbedingungen.
- 2) Vergleich der Temperaturabhängigkeit der Größe Q (aus $A(T) = A_0 e^{-Q/kT}$) ermittelt unter verschiedenen Versuchsbedingungen.

- 3) Analyse von Zug-Kriechkurven
- 4) Untersuchungen zur Risbmorphologie von ZrO_2 -Schichten

Erzielte Ergebnisse

- 1) Die n -Wertbestimmung erfolgte zum einen aus Warmzugversuchen durch Auftragung $\log \sigma_{0,2}$ vers. $\log \dot{\epsilon}_0$ ($\sigma_{0,2}$ ist die Spannung für die plastische Dehnung 0,2% und $\dot{\epsilon}_0$ ist die auf die Probenausgangslänge bezogene Dehngeschwindigkeit), sog. n_{ϵ_0} -Wert, und zum anderen aus Kriechversuchen (konstante Last) durch Auftragung $\log \sigma$ vers. $\log \dot{\epsilon}_{min}$ (σ ist die wahre, der Dehnung für $\dot{\epsilon}_{min}$ entsprechende Spannung) sog. $n_{\epsilon_{min}}$ -Wert. Verglichen werden die Temperaturabhängigkeiten $n_{\epsilon_0}(t)$ und $n_{\epsilon_{min}}(T)$ dieser Werte für Versuche in Vakuum (Druck $p < 10$ n bar) und Luft bzw. im schlechten Vakuum ($p > 10$ n bar). Für Vakuumversuche ($p < 10$ n bar) ist $n_{\epsilon_{min}}$ zwischen $600^\circ C$ und $800^\circ C$ im Vergleich zu den n_{ϵ_0} -Werten sehr schwach temperaturabhängig (6,5 - 5,5). Mit wachsender Temperatur fallen die $n_{\epsilon_{min}}$ -Werte ähnlich wie n_{ϵ_0} (2,5). Die n_{ϵ_0} -Werte zeigen im α - und α/β -Phasenbereich fallende Tendenz (9,0-2,5), bleiben aber im β -Bereich bis $1100^\circ C$ konstant (3,0). Für Luftversuche ist das Temperaturverhalten der n_{ϵ_0} -Werte sehr komplex, da in diesem Fall (im Unterschied zu Vakuumversuchen) n_{ϵ_0} offenbar spannungsabhängig ist. Die bislang wenigen zum Vergleich verfügbaren $n_{\epsilon_{min}}$ -Werte aus Versuchen im "Schlechten" Vakuum ($p > 10$ bar) zeigen bei $700^\circ C$ ein Maximum.
- 2) Die Q -Wertbestimmung erfolgte zum einen aus Warmzugversuchen durch Auftragung von $\log \dot{\epsilon}_0$ vers. $1/T$ für konstanten $\sigma_{0,2}$ -Wert, sog. $Q_{\sigma_{0,2}}$ -Wert; und zum anderen aus Kriechversuchen durch Auftragung $\log \dot{\epsilon}_{min}$ vers. $1/T$ für konstanten σ -Wert, s. Ausführung zum $n_{\epsilon_{min}}$ -Wert, sog. Q_σ -Wert. Für Vakuumversuche ($p < 10$ n bar) zwischen $600^\circ C$ und $800^\circ C$ ist sowohl $Q_{\sigma_{0,2}}$ als auch Q temperaturunabhängig ($3,5 \times 10^2$ kJ/Mol). Im Zweiphasenbereich erfolgt eine offenbar von der Spannung abhängige Auffächerung der Q_σ - bzw. $Q_{\sigma_{0,2}}$ -Werte. Ein ähnlicher Sachverhalt folgt aus Messungen am ANL [1]. Zur Aufhellung dieses Umstandes sind weitere Versuche, insbesondere im α/β -Bereich, notwendig. Zu ähnlichen Schlußfolgerungen, bezüglich $Q(T)$ im α - bzw. α/β -Bereich, führen Ergebnisse von Versuchen in Luftatmosphäre. Die entsprechenden Q -Werte im α -Bereich sind im Vergleich zu denen aus Vakuum-Versuchen um den Faktor 0,8 kleiner. Die unter 1) und 2) genannten Untersuchungen dienen in erster Reihe der Erstellung der Datenbasis für modellmäßige Berechnungen inelastischer Verformung.

- 3) Die Beschreibung der inelastischen Verformung mittels einer mechanischen "Zustandsgleichung" erfordert Kenntnis über verfestigende und entfestigende Vorgänge, die eine solche Verformung begleiten. Dazu wurden im Temperaturbereich 600-1100°C isotherme Vakuum-Zug-Kriechversuche bei konstanter Last durchgeführt. Die Analyse der Form der Kriechkurven führt zu folgenden Feststellungen:
- Im allgemeinen zeigen die Kriechkurven (in der Darstellung $\log \dot{\epsilon}$ vers. ϵ) 2 Bereiche: Einen Anfangsbereich, in dem die Kriechgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}$ im Laufe der Verformung entweder abnimmt (sogn. normales Übergangskriechen (Ü.-Kriechen)) oder zunimmt (sogn. anomales Übergangskriechen) bzw. sich nicht verändert. Den Ü.-Bereichen schließt sich im allgemeinen unmittelbar der Bereich des beschleunigten Kriechens an. In Ausnahmefällen konnten auch Drei-Bereichs-Kriechkurven (mit linearem Mittelstück) auftreten.
 - Mit wachsender Temperatur und Spannung nimmt die Tendenz zum anomalen Ü.-Kriechen zu. So dominierte dieses Kriechverhalten im α/β - bzw. β -Bereich. Woraus zu schließen ist, daß entfestigende Prozesse von Anfang der Verformung überwiegen.
 - Für die Stabilität der Probe gegenüber Einschnürung folgt unter Anwendung des Stabilitätskriteriums (wenn $\frac{d \ln \dot{\epsilon}}{d \epsilon} < 1$ dann Verformung stabil) auf die vorliegenden Kriechkurven, daß eine einschnürungsfreie Dehnung nur wenig über den Bereich des normalen Ü.-Kriechens hinaus stattfindet.
- 4) Eine Methodik wurde entwickelt, die es gestattet, durch Zielpräparation die Rißmorphologie in ZrO₂-Schichten an vorgegebenen Bereichen von ZrO₂/Zry-Zugproben im Laufe der Verformung zu verfolgen. Entsprechende Messungen der Rißdichte und Rißbreite als Funktion der Dehnung an voroxidierten Flachzugproben sind im Gange. Die Haftfestigkeit dieser Schichten gegenüber der Dehnung nimmt im α -Bereich mit abnehmender Temperatur ab. Das Abplatzen der ZrO₂-Schicht bei 400°C erfolgt bereits nach 2% Dehnung, bei 800°C hingegen haftet die ZrO₂-Schicht noch nach Dehnungen > 50%.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

- Abschluß von Iso-Zug-Kriechversuchen im Vakuum ($p < 10$ n bar).
- Beginn mit temperaturtransienten Zug-Kriechversuchen.
- Fortführung der Untersuchungen am Zry-ZrO₂-Verbundwerkstoff.
- Iso-Berstversuche mit kontinuierlicher Verformungsaufzeichnung.

4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation an
Zircaloy-Hüllmaterial

(S. Leistikow, IMF/II)

Durchgeführte Arbeiten

Auswertung von isothermen Oxidationsuntersuchungen $< 1000^{\circ}\text{C}$ an ungespannten Rohrabschnitten. Bewertung von Versuchen an voroxidiertem Material unter isothermen Bedingungen. Durchführung von temperatur-transienten Oxidationsreaktionen bei Einsatz von voroxidiertem Material (400 und 450°C). Rohrinneindruckzeitstand- und Kriechversuche an verlängerten Rohrkapseln (1000°C) und voroxidierten Rohrkapseln (900 - 1300°C) sowie an üblichen Kapseln bei temperatur-transienter Versuchsführung (800 - 1300°C) unter Heißstabbedingungen.

Erzielte Ergebnisse

Bei 1000°C entsprach die gemessene Oxidschichtdicke näherungsweise den nach den Hochtemperaturergebnissen berechneten Werten. Bei 950 - 700°C wurde registriert, daß für 2-5 min Versuchszeit das gleiche galt, jedoch mit zunehmender Versuchszeit die erwartete Schichtstärke größer war als die tatsächlich beobachtete und ein Ausgleich erst nach noch längerer Zeit erfolgte. Eine Beschreibung der Oxidationskinetik durch ein parabolisches Zeitgesetz erscheint deshalb näherungsweise möglich.

Die Berechnung der durch Voroxidation erzielten prozentualen Verminderung der isothermen Störfalloxidation zeigte die für eine Nachoxidation bei 1000°C starken Vorteile, für 1200°C keine Vorteile, z.T. jedoch sogar den Nachteil erhöhten Umsatzes. Eine ähnliche Tendenz zeigten auch die temperatur-transienten Störfalluntersuchungen der Gesamtheit der bei 400 - 800°C voroxidierten Proben. Hierbei erwies sich der Störfallumsatz als weniger abhängig von der Voroxidationstemperatur, jedoch entscheidend abhängig von der maximalen Prüftemperatur der Nachoxidation. Ein vorteilhaftes Verhalten voroxidierten Proben konnte bis 1100°C gezeigt werden, bei 1200°C überstieg - wie oben gezeigt - der Störfallumsatz z.T. den des metallischen Materials.

Die isotherm/isobaren Rohrinneindruckversuche an auf 100 mm verlängerten Rohrkapseln bei 1000°C ergaben keine Veränderung der gegenüber den an 50 mm langen Kapseln registrierten Dehnungswerten.

Im Rahmen der temperatur-transienten/isobaren Rohrberstexperimente barsten die mit 7-19 at Innendruck beaufschlagten Rohrkapseln beim Durchfahren von für Heißstäbe im Störfall typischen Zeit-Temperaturverläufen (950/750/800-1300°C) bereits während der Transienten resp. nach Erreichen der vorprogrammierten Maximaltemperaturen. Für jede Maximaltemperatur wurde ein Druckbereich ermittelt, unterhalb dessen aufgrund fortschreitender oxidativer Verfestigung kein Bersten mehr eintrat. Die gemessenen max. Umfangsdehnungen beliefen sich auf 20-86%. Bereits im Blowdown-Peak (950°C) platzten die zwischen 15-19 at mit Innendruck beaufschlagten Rohrkapseln.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Isotherme und transiente Rohrrinnendruck-Berst- und Kriechexperimente bei Temperaturen < 900°C. Programmabfassung und Mitarbeit bei der Erstellung der für Prüfzwecke an Brennstabsimulatoren bestimmten Rohrberstanlage "FABIOLA". Durchführung umfangreicher metallographischer Auswertungsarbeiten an nachzuuntersuchenden Stäben und Bündeln.

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

Durchgeführte Arbeiten

- Isotherme, isobare Experimente mit fehlerfreien Zry-Hüllrohren (Anlieferungszustand) zum Studium des Spannungsrisskorrosionsverhaltens gegenüber elementarem Jod.
- Erste Untersuchungen zum Sauerstoffpotentialeinfluss des UO_2 und dünner Oxidschichten auf der Hüllrohrinnenoberfläche auf das Spannungsrisskorrosionsverhalten von Zry-4 gegenüber Jod.
- Fortführung der UO_2 /Zry-Reaktionsexperimente unter PCM-Bedingungen. Experimente zur Bestimmung der ursprünglichen UO_2 /Zry-Phasengrenze nach den Reaktionsglühungen.
- Chemisch analytische Untersuchungen an UO_2 und Zry. Quantitative Bestimmung der Sauerstoffverteilung über den Zry-4 Hüllrohrquerschnitt.

Erzielte Ergebnisse

- Die isothermen, isobaren Experimente (Zeitstandexperimente) zum Spannungsrissskorrosionsverhalten von Zry-Hüllrohren gegenüber Jod ergeben, dass bei allen untersuchten Temperaturen (700 - 1000°C) und Standzeiten <10 min, die Zeit bis zum Bersten für die jodhaltigen Proben deutlich kleiner ist als für die jodfreien Vergleichsproben. Bei längeren Standzeiten (>10 min) und dementsprechend kleineren Innendrücken bzw. Hüllrohrtangentialspannungen geht der Jodeinfluss auf die Zeit bis zum Bruch jedoch deutlich zurück. Im Hinblick auf die Berstdehnungen werden die schon bei transienten Experimenten gemachten Versuchsergebnisse bestätigt; unterhalb 900°C sind die Berstdehnungen der jodhaltigen Rohrproben deutlich kleiner als die der jodfreien Vergleichsproben.
 - Erste Experimente mit innen voroxidierten (ZrO_2 -Schicht $\leq 25 \mu m$) oder mit UO_{2+x} -Pulver ($O/U = 2.03$) gefüllten Zry-4 Rohrproben zeigen, besonders bei Temperaturen $\geq 900^\circ C$, eine durch die Sauerstoffaufnahme bedingte deutlich grössere Zeitstandfestigkeit als die entsprechenden Vergleichsproben. Die Standzeiten dieser Rohrproben sind daher im Vergleich zu den nur mit Argon gefüllten nicht voroxidierten Rohrproben erheblich grösser. In Gegenwart von Jod geht der Sauerstoffeinfluss jedoch stark zurück, d.h. die Standzeiten der Hüllrohre werden infolge SRK wieder stark reduziert.
- Die Gegenwart von Jod hat bei den voroxidierten oder UO_{2+x} -haltigen Proben, im Vergleich zu jodfreien Proben, unterhalb 900°C eine kleinere und bei Temperaturen $\geq 900^\circ C$ eine grössere Berstdehnung der Zry-Hüllrohre zur Folge.
- UO_2/Zry -Reaktionsexperimente zwischen 1000 und 1500°C zeigen, unabhängig von der untersuchten Temperatur, stets die gleiche Phasenbildung. Vom UO_2 ausgehend bildet sich zunächst $\alpha-Zr(O)$, das noch etwas α -Uran enthält, danach eine (U,Zr)-Legierung und anschliessend im Hüllmaterial reines $\alpha-Zr(O)$. Der Sauerstoffgehalt in den verschiedenen Phasen wurde mittels Auger-Elektronen-Spektroskopie quantitativ bestimmt.

Experimente mit Wolfram-Markern (Bleche, Drähte) zwischen dem UO_2 und Zry zur Bestimmung der ursprünglichen UO_2 /Zry-Phasengrenze nach den Reaktionsglühungen ergeben, dass die an das UO_2 angrenzende α -Zr(O)-Phase infolge Reaktion des Zry mit dem UO_2 in das UO_2 eindringt. Die ursprüngliche UO_2 -Zry-Phasengrenze liegt in dem Bereich der (U,Zr)-Legierung, die der α -Zr(O)-Phase nachfolgt.

- Chemisch analytische Untersuchungen (Auger-Elektronen-Spektroskopie) der Hüllrohrinnenoberfläche von UO_2 -haltigen Zry-Rohrproben nach dem Bersten zeigen, dass es an der Hüllrohroberfläche zu einer starken Sauerstoffaufnahme kommt (bis zu etwa 25 Gew.%). Der max. Sauerstoffgehalt ist neben dem O/U-Verhältnis, der Temperatur und der Zeit bis zum Bersten stark von der Brennstoffoberfläche abhängig.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

- Fortführung der isothermen und transienten Experimente zur SKR von Zry-Hüllrohren durch Jod und anderen flüchtigen Spaltprodukten. Ermittlung der kritischen Jodkonzentration.
- Einfluss des UO_2 und dünner Oxidschichten auf der Hüllrohrinnenoberfläche auf die kritische Jodkonzentration.
- Spannungsrisskorrosionsexperimente mit vorgeschädigten Zry-Hüllrohren (scharfe Kerben, Ermüdungsrisse).
- Rasterelektronenmikroskopische Untersuchungen von geborstenen Zry-4-Rohrproben; Ermittlung der Hüllrohr-Versagensmechanismen.
- Nachuntersuchung von bestrahlten Brennstäben des PNS-Vorhabens 4237.
- UO_2 /Zry-Reaktionsexperimente unter PCM-Bedingungen. Einfluss von simulierten Spaltprodukten auf die UO_2 /Zry-Reaktionskinetik.
- Chemisch analytische Untersuchungen des UO_2 und Zry.

4235.4 Berstversuche an Zircaloy-Hüllrohren unter kombinierter mechanisch-chemischer Beanspruchung
(S. Leistikow, L. Schmidt, IMF)

Durchgeführte Arbeiten

Die Konstruktion und Spezifikation der Dampfversorgungsanlage und erforderlichen Meß-, Regel- und Leistungseinheiten für den Versuchsstand konnten weitgehend abgeschlossen werden. Die Beschaffung der einzelnen Komponenten wurde in die Wege geleitet und die Fertigung der Teststrecke in Angriff genommen.

Die Erweiterung einer vorhandenen Datenerfassungsanlage zur Meßdatenaufzeichnung im on line-Betrieb ist nahezu abgeschlossen.

Vorversuche zur Temperaturmessung an Zircaloy-Hüllrohren mit speziellen Teilstrahlungs-pyrometern im Temperaturbereich von 500 bis 800°C wurden durchgeführt. Dazu wurde eine spezielle Testeinrichtung erstellt, in der auch Untersuchungen zur Auslegung der elektrischen Innenheizer durchgeführt werden sollen.

Erzielte Ergebnisse

Durch die oben erwähnten Arbeiten wurde nunmehr sichergestellt, daß außer den bislang vorgesehenen Heißstabbedingungen auch die LOCA-Transienten eines Normalstabes gefahren werden können.

Die Vorversuche zur Temperaturmessung zeigten, daß unter den gegebenen Verhältnissen die Meßgenauigkeit der Pyrometer gleichzusetzen ist mit der von Thermoelementen. Voraussetzung ist allerdings eine uniforme, stabile Hüllrohroberfläche, die durch Voroxidation bei höheren Temperaturen in Wasserdampf erzeugt wird.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Bereitstellung aller erforderlichen Komponenten und Inangriffnahme der Montage des Versuchsstandes.

- Vorversuche mit Prototypheizern
- Vorversuche zur Temperaturmessung bis 1.000°C .
- Spezifikation und Beschaffung einer röntgenkinematographischen Anlage zur Dehnungsmessung.

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

Durchgeführte Arbeiten

Mit Beginn des Berichtszeitraumes wurde der Experimentierbetrieb aufgenommen. Das True-mass-flow-meter (TMFM) zur direkten Messung des transienten Zweiphasenmassenstromes wurde weiter verbessert. Soweit es die aufgezeichneten Daten erlauben, erfolgte mit dem fertiggestellten Rechenprogramm COSIMA-A eine Auswertung der ersten Blowdownversuche. Zusätzlich wurden weitere Programme zur Datenkonversion und zur graphischen Meßwertdarstellung erstellt.

Erzielte Ergebnisse

In der ersten Serie von 12 rechnergesteuerten Blowdownversuchen wurde ein Ventil-Steuerprogramm für die Simulation eines 2F-Bruches im kalten Strang iteriert. In diesen Experimenten, die auch der Überprüfung der Gesamtanlage und der Instrumentierung dienten, erwies sich der Simulationsbrennstab auf der Basis Al_2O_3 -Ringpellets als voll funktionsfähig, Stableistungen von über 700 W/cm konnten ohne Schwierigkeiten beherrscht werden.

Die Ergebnisse dieser Versuche zeigen, daß mit dem gewählten Anlagen- und Steuerungskonzept die Einstellung von vorgewählten reaktortypischen Versuchsbedingungen in der Teststrecke möglich ist. Druck- und Hüllrohrtemperaturtransienten wurden in befriedigendem Maße den reaktortypischen Referenzverläufen angeglichen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Neben der Durchführung der eigentlichen LOCA-Simulationsexperimente wird der Versuchsbetrieb mit dem Brennstab zur Messung von Wärmeübergangskoeffizienten aufgenommen werden. Parallel dazu wird die Entwicklung des Simulationsbrennstabes auf der Basis ThO_2 -Ringpellets vorangetrieben. Die theoretischen Arbeiten werden sich neben der Auswertung der laufenden Experimente auf die Erstellung von Steuerprogrammen für verschiedene Bruchlagen und Bruchgrößen konzentrieren.

- 4237 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der 2. Aufheizphase
eines Kühlmittelverluststörfalles
Inpile-Versuche mit Einzelstäben im DK-Loop des FR2
(B. Räßle, RBT-IT)

Durchgeführte Arbeiten

Zur Erprobung des beulfähigen Stabkonzeptes, einer neuen Dampf-Mischerkonstruktion und zur Einengung der Temperaturkorrekturwerte wurde ein BSS-Versuch (BSS 07) durchgeführt.

Die Vorrichtungen für die Montage und Instrumentierung vorbestrahlter Nuklearprüflinge wurden fertiggestellt und nach umfangreicher Erprobung mit der Komplettierung der 5 Prüflingseinsätze der Abbrandstufe 20.000 MWd/t_U in Betrieb genommen. Die anschließenden Versuche mit diesen Stäben erfolgten zum geplanten Termin.

Der Bypaß wurde beim BSS 07-Versuch umfangreichen Tests unterzogen. Die dabei gefundenen transienten Temperaturverläufe wurden verglichen mit denen aus Rechnungen des IKE, Stuttgart, und mit Verläufen ohne Bypaß.

Die Vorbestrahlung von 2 Bündeln zu je 6 Stäben für Zielabbrand 35.000 MWd/t_U wurde fortgeführt.

Von den in die Heißen Zellen eingeschleusten 14 Stäben wurden bisher 8 Stück zerstörungsfrei untersucht und - soweit vorgesehen - metallographisch aufbereitet.

Die Vergleichsrechnungen zu den BSS 05-Versuchen im IKE wurden fortgeführt und in den Quartalsberichten dargestellt.

Erzielte Ergebnisse

Die neue Mischerausführung zeigte im Betrieb keine Nachteile im Vergleich zur früheren Konstruktion. Der Mischer wurde bei den vorbestrahlten Stäben eingesetzt.

Der Hülltemperatur-Korrekturwert von 75 K bei 50 W/cm spezifischer elektrischer Stableistung hat sich bestätigt. Die maximale Abweichung lag bei < 15 K gegenüber bisheriger Gebrauchswerte von 35 K. Mit 3 Stück axial identisch angeordneten 0,5 mm-TE wurde am nicht deformierten Simulatorstab die azimutale Temperaturspanne zu < 10 K bestimmt.

Die Bersttemperaturen und -drücke der Versuche mit vorbestrahlten Stäben zeigten ebenso wie die zeitlichen Verläufe von Hülltemperatur und Innendruck keine Abweichungen gegenüber den Versuchen mit frischen Nuklearprüflingen. Die während der Vorbestrahlung bereits gerissenen Pellets zerfielen im Verlauf der Transiente überall dort, wo durch radiale Dehnung die Stützwirkung der Hülle entfiel.

Die Übereinstimmung der Nachrechnungen (IKE) der Hüllrohrtemperaturtransienten der BSS 05-Reihe mit den Versuchsdaten konnte durch veränderte Modellannahmen für den Wärmedurchgang in den Ringspalten verbessert werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Ein weiterer BSS-Versuch zur Erprobung direkt aufgeschweißter platingehülster Thermoelemente wird vorbereitet.

Die Montage und Instrumentierung von 5 Prüflingen der Abbrandstufe 35.000 MWd/t_U in der Abschirmzelle des FR2 und die Versuche mit diesen Stäben im FR2 sind geplant.

Die Vorbestrahlung des zweiten Bündels mit einem Zielabbrand von 35.000 MWd/t_U wird fortgesetzt.

Die Nachbestrahlungsuntersuchungen und deren Auswertung werden verstärkt weitergeführt.

4238 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Niederdruckphase eines hypothetischen Kühlmittelverluststörfalles und zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zirkaloy-Hüllrohren und einsetzender Kernnotkühlung (REBEKA-Programm).

(K. Wiehr, IRB)

Durchgeführte Arbeiten

- Versuche an verkürzten Brennstabsimulatoren
 - . unter simulierten Temperaturtransienten für Normal- bis Heißstäbe
 - . bei Variation der isothermen Starttemperatur zur Verdeutlichung des Einflusses der azimuthalen Temperaturdifferenz auf die Berstumfangsdehnung.
- Vorversuche zum Bündelversuch mit Fluten
 - . zur Bestimmung der Aufheizraten
 - . zur Isothermie der Teststrecke
 - . zur Festlegung der Flutwassersteiggeschwindigkeit
 - . zur Bestimmung des Flutzeitbeginns
- Erster Bündelversuch mit 25 Brennstabsimulatoren voller Länge und axialem Leistungsprofil sowie Fluten.
- Versuchsauswertung

Erzielte Ergebnisse

Die Versuche an verkürzten Brennstabsimulatoren unter simulierten Temperaturtransienten zeigten, daß selbst bei völligem Ausgleich aller Temperaturunterschiede auf dem Hüllrohr vor Beginn der plastischen Verformung sich im Verlaufe der Verformung bei den angewendeten Leistungs- und Kühlbedingungen wieder azimutale Temperaturdifferenzen ausbilden können. Die entstehende Berstumfangsdehnung war umso kleiner, je größer die sich ausbildende Temperaturdifferenz bis zum Berstzeitpunkt wurde, da die Wandstärkenabnahme dann auf den heißen Teil des Hüllrohrumfanges lokal begrenzt blieb.

Bei den Einzelstabversuchen waren Umfangsdehnungen der Zirkaloy-Hüllrohre größer als 33 %, was ein gegenseitiges Berühren benachbarter, aufblähender Stäbe bedeuten würde, stets auf eine relativ kurze Länge um die Berststelle begrenzt. Große axial ausgedehnte Hüllrohrverformungen wurden in keinem Fall beobachtet.

Ein erster Bündelversuch mit Fluten wurde an einem 25-er Stabbündel voller Länge und axialem Leistungsprofil durchgeführt. Es wurden Stableistungen von Stäben mittlerer Belastung mit einer Nachwärmeleistung von 20 W/cm sowie eine Flutrate von etwa 3 cm/s zugrunde gelegt. Hierdurch stellte sich in der Flutphase ein Temperaturplateau maximaler Hüllrohrtemperaturen bei etwa 800° C ein.

Von den unter Innendruck von 70 bar stehenden Zirkaloyhüllen kamen nur zwei zum Bersten und erreichten Berstumfangsdehnungen von 25 % bzw. 31 %. Die maximalen Umfangsdehnungen der nicht geberstenen Hüllrohre lagen zwischen 8 und 32 %. Nach Versuchsende ergab sich im Stabbündel eine maximale Kühlkanalversperrung von nur 25 % und keine unzulässige Beeinträchtigung der Kühlbarkeit.

Die Verformungen der Zirkaloyhüllrohre entsprachen dem Erscheinungsbild der Einzelstabversuche. Große, axial ausgedehnte Hüllrohrverformungen wurden auch im Stabbündel nicht beobachtet.

Die Abstandshalter hatten einen entscheidenden Einfluß auf die Hüllrohrverformung und verhinderten infolge erhöhter lokaler Kühlwirkung größere Umfangsdehnungen im Bereich der Abstandshalter.

Der Bündelversuch zeigte einen starken Einfluß des sich ändernden Spaltes zwischen Pellets und Hüllrohr auf den Hüllrohrtemperaturverlauf während der ganzen Flutphase und unterstrich die zentrale Bedeutung der zeit- und ortsabhängig richtigen Simulation der Wärmeerzeugung, des Wärmetransports an die Hülle sowie den äußeren Kühlbedingungen in den verschiedenen Phasen eines Kühlmittelverluststörfalles.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

- weitere Einzelstabversuche zur Quantifizierung des Aufblähmechanismus.
- weitere Bündelversuche unter veränderten Versuchsrandbedingungen zum Nachweis, inwieweit mit größeren Kühlkanalversperrungen und einer Stab-zu-Stab-Wechselwirkung zu rechnen ist.
- begleitende, theoretische Arbeiten.

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

Durchgeführte Arbeiten

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. Zur Auswertung der Experimente und zur graphischen Darstellung der Ergebnisse wurde das Auswerteprogramm weiterentwickelt. Zwei zusätzliche Optionen erlauben, die Simulationsqualität der benutzten Brennstabsimulatoren zu ermitteln und gegebenenfalls durch eine während der Versuche berechenbare und damit steuerbare Leistungszufuhr zu verbessern.

Erzielte Ergebnisse

Die bisher durchgeführten Experimente ergaben den Zielvorstellungen entsprechend

- optischen Einblick in die Zweiphasenströmung und
- qualitative Ergebnisse für die Hülltemperaturtransienten.

Obwohl bei dieser Anordnung der Wandeinfluß relativ groß ist, können mit dem Vorbehalt der noch ausstehenden Bestätigung mit hülsenförmigen Blockaden und mit größerem Bündel folgende Aussagen gemacht werden:

Vor der Blockade:

- gleicher Wärmeübergang wie in ungestörtem Bündel bei gleichem örtlichen Kühlmitteldurchsatz.

Nach der Blockade:

- gleicher oder besserer Wärmeübergang gegenüber unblockierter Anordnung mit gleichem örtlichen Kühlmitteldurchsatz. Dieser Effekt wird verursacht durch Tropfenzerstäubung und ist stärker bei größerem Blockadefaktor.

- Der axiale Einfluß nimmt nach der Blockade nach oben hin ab, ist aber noch nach mehr als 1 m feststellbar.
- Flutgeschwindigkeit und Systemdruck verschlechtern mit fallenden Werten allgemein den Wärmeübergang, verändern jedoch den Kühlmechanismus hinter der Blockade nicht.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Für die weiteren Experimente ergeben sich Schwerpunkte, die in der 5-Stab-Reihe und in einem in Vorbereitung befindlichen 25-Stab-Bündel untersucht werden. Die zu untersuchenden Probleme sind:

- Einfluß der Blockadeform auf Druckverlust und lokalen Wärmeübergang (5-Stab-Reihe und 25-Stab-Bündel).
- Einfluß von Umströmung und Durchströmung von blockierten Bereichen in einem teilweise blockierten Bündel auf den lokalen Wärmeübergang.

4240 Kernschmelzen von LWR

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

Durchgeführte Arbeiten

Im 2. Halbjahr 1977 wurden Abschmelzversuche mit Bündeln in Dampf durchgeführt, bei denen der Zentralstab aus Vollpellets aufgebaut war. Bei dem früher verwendeten Aufbau aus 3 x 3 beheizten Stäben und einer doppelten Reihe von Reflektorstäben war für einen zentralen Stab mit Vollpellets nur eine Temperatur von 1700 °C zu erreichen. Es mußte daher eine Anordnung geschaffen werden, die geringere Strahlungsverluste aufweist. Hierfür wurde ein Keramikfaserstrahlenschirm aufgebaut. Er besteht aus einem inneren Mantel von 2,5 cm Zirkonoxid-Faser und einem äußeren Mantel mit 5 cm Aluminium-Silikat-Faser. Dieser Schirm hat bei den notwendigen hohen Temperaturen von über 2000 °C im Innern - neben der Beständigkeit gegen eine oxidierende Atmosphäre und ausreichender Thermoschockunempfindlichkeit - eine gute Isolationswirkung.

Mit dieser Anordnung wurden Bündelversuche mit Temperaturen von über 2000 °C am Vollpelletzentralstab durchgeführt. Es wurden Experimente mit verschiedenen Aufheizgeschwindigkeiten, verschiedenen Stablängen und unter Verwendung von Abstandshaltern gefahren.

Erzielte Ergebnisse

Die im Zentrum des Bündels auf 2000 - 2100 °C aufgeheizten Vollpelletstäbe bestätigen, daß der Schmelzangriff auf das UO_2 durch das Zircaloy beim Vollpellet der gleiche ist wie beim Ringpellet des Brennstabsimulators mit W-Heizer. Vergleicht man das Eindringen der Schmelzfront bei benachbart stehendem Vollpellet- und Ringpelletstab, so ist das Eindringen am Ringpelletstab stärker. Dies ist auch verständlich, da die Temperatur im Ring-

pellet vom Rand zum Zentrum ansteigt und damit insgesamt höher liegt als im benachbarten Vollpellet. Die höhere Temperatur ermöglicht eine stärkere Diffusion des Zircalloys ins UO_2 .

Zur Stabilität der Vollpelletstäbe hat sich folgendes ergeben: Bei allen Aufheizgeschwindigkeiten ($0,25 - 4 \text{ }^\circ\text{C/sec}$) blieb sowohl bei den kürzeren Bündeln (ca. 30 cm) als auch bei den längeren Bündeln (ca. 50 cm) der Vollpelletstab während des Aufheizvorganges als Säule stehen. Für die kürzeren Bündel war dies auch nach dem Abkühlen der Fall. Die längeren Vollpelletstäbe stürzten dagegen zum Ende des Abkühlvorganges ab. Hierbei ist aber zu bemerken, daß der Zentralstab auf einer Seite keinen Nachbarstab hatte. Dieser wurde weggelassen, um die Temperatur des Zentralstabs messen zu können. Nach dieser Seite konnte der Stab ausweichen. Im kompletten Bündel hat der Stab nur ca. 3 mm Platz für eine seitliche Verschiebung der Säule. Ebenso konnte das Abplatzen der Oxidschicht stets erst beim Abkühlen des Bündels unter ca. $800 \text{ }^\circ\text{C}$ beobachtet werden.

Die Versuche mit Abstandshalter bei Temperaturen unterhalb der Schmelztemperatur des Zircalloys hatten gezeigt, daß durch die Oxidation der Angriff des Inconels auf das Zircaloy weitgehend vermieden wird. Es kommt zur Ausbildung einer stabilen Oxidhülle auf der ganzen Stablänge.

Bei den Versuchen mit langen Bündeln, die gleichzeitig einen Abstandshalter am Zentralstab enthielten, brach der Zentralstab aber zuerst in dem Bereich ab, an dem der Abstandshalter sich befunden hatte. Die Bereiche der Abstandshalter stellen also die schwächsten Stellen des Stabes dar. Gleichzeitig war bei diesem Versuch mit Abstandshalter trotz etwas niedriger Endtemperatur - bei sonst gleichen Versuchsbedingungen - mehr Schmelzgut entstanden als beim Versuch ohne Abstandshalter.

Zum Erstarrungsverhalten der entstehenden Schmelze zwischen den Stäben hat sich aus den Experimenten dieses Halbjahres folgendes ergeben: Die Neigung der Schmelze zum Hängenbleiben zwischen den Stäben hat sich voll bestätigt. Es zeigt sich, daß diese Tendenz zunimmt, je stärker die Oxidation der Stäbe fortgeschritten ist.

Dies hat 3 Ursachen:

1. Vergrößert sich der Durchmesser des Stabes durch die Oxidation und verringert damit den Spalt zwischen den Stäben.

2. Die Oberfläche der Stäbe wird rauher.
3. Das Oxid im Vergleich zum Metall wird weniger leicht aufgeschmolzen und bildet eine Matrix, an der das Schmelzgut hängen bleibt,

Bei den Versuchen mit ausreichend oxidiertem Hülle kam es so zur Ausbildung eines Schmelzklumpens zwischen den Stäben am unteren Ende des heißeren mittleren Bereiches, ohne daß dabei merkliche Mengen dieses Schmelzgutes auf die untere Elektrode abtropften.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Untersuchungen an Brennstabbündeln werden fortgeführt. Insbesondere sollen Versuche zum Einfluß des Geschehens in der Notkühlphase auf das Kernschmelzen durchgeführt werden. Das Einsetzen des Kernschmelzens bei partiellem Ausfall der Notkühlung soll untersucht werden. Es sind Experimente mit geblähten Hüllen geplant.

- 4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Kernschmelzen
(H. Albrecht, IRCH)

Durchgeführte Arbeiten

1. Versuche mit 30 g Corium, bei dem die Zircaloy- und Stahlteile durch vorherige Reaktor-Bestrahlung aktiviert wurden. Diese Versuche dienen der Vorbereitung von Experimenten mit aktivem Fissionium und zur Bestimmung der Freisetzung zusätzlicher Elemente, wie z.B. Zr und Sn.

2. Freisetzungsversuche mit 30 g - 3 kg Corium, das schwach aktives Fissium (UO_2 /Spaltproduktgemisch) mit einem simulierten Abbrand von 10.000 bis 50.000 MWd/t enthält.

Es erfolgte die Auswertung der ersten oben genannten Versuche. Um eine Bilanz für die Aktivitätsverteilung nach dem Versuch aufzustellen, wurden der Tiegel mit dem Schmelzgut, die Niederschläge auf den Glasteilen des Absaugsystems sowie die Membranfilter γ -spektrometrisch ausgemessen.

Zur Untersuchung der nach der Freisetzung entstehenden Aerosole wurde bei einigen zusätzlichen Schmelzversuchen mit inaktivem Corium ein Teilstrom der Freisetzungsprodukte in eine sog. Aerosolzentrifuge geleitet. Die dort auf einem langen Metallband abgeschiedenen Teilchen wurden bezüglich ihrer Größenverteilung, Struktur und chemische Zusammensetzung analysiert, wobei u.a. die Methoden der Rasterelektronenmikroskopie und der Röntgenmikroanalyse zum Einsatz kamen.

Durch den Umbau der Schmelzanlage SASCHA waren keine weiteren Freisetzungsversuche möglich.

Erzielte Ergebnisse

Bei der Bestimmung der Aktivitätsverteilung nach dem Versuch ergab sich, daß der freigesetzte Anteil der o.g. Elemente zu über 70 % auf den Membranfiltern abgeschieden wird, die sich in etwa 1 m Entfernung vom Schmelztiegel befinden. Im Gegensatz dazu hatte sich bei den Freisetzungsversuchen mit Corium ergeben, daß die Elemente, Fe, Cr, Co, Zr und U zum überwiegenden Anteil auf den Wänden des Glasystems, d.h. in unmittelbarer Nähe des Tiegels abgeschieden werden.

Beim Kernschmelzen wird also voraussichtlich ein hoher Anteil der freigesetzten schwerflüchtigen Stoffe im Primärsystem zurückgehalten - ein Aspekt, der für die Wärmequellenverteilung außerhalb der Schmelze und für die Zusammensetzung der Containment-Atmosphäre (z.B. bezüglich des Gehalts an Pu) von Bedeutung ist.

Bei der Größenbestimmung der Aerosolpartikeln ergab sich eine trimodale Verteilung mit Maxima bei 0,17 μm , 0,30 μm , und 0,73 μm . Die Partikeln des 1. und 3. Maximums erwiesen sich als nahezu kugelförmig, das mittlere wurde dagegen aus koagulierten Partikeln gebildet. Es zeigte sich ferner, daß die chemische Zusammensetzung der Teilchen aller drei Maxima qualitativ gleich ist: In allen Fällen wurden die Elemente Fe, Cr, Mn, Ni und U als Bestandteile ermittelt. Bei quantitativer Analyse müssen sich natürlich Unterschiede ergeben, da die absolute Freisetzung der einzelnen Elemente nicht gleich ist und bei Aerosoltransport eine Abreicherung der schwerflüchtigen Elemente stattfindet.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

- Durchführung weiterer Freisetzungsversuche mit Fissium (zusätzliche Spaltelemente, höhere Temperaturen, Wasserdampf-Atmosphäre)
- Einsatz größerer Schmelzgutmengen (300 g - 3 kg).

4244 Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Materialien
beim Coreschmelzen

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

Durchgeführte Arbeiten

- Das Abdampfen von Corekomponenten aus einer Corium E-Schmelze wurde unter definierten Parametern experimentell überprüft.
- Die Spaltproduktverteilung in der Schmelze in Abhängigkeit vom Oxidationsgrad wurde weiter untersucht.

- Es wurden Tiegelversuche zum chemischen Reaktionsverhalten im komplexen System Coreschmelze + Spaltprodukte + Beton durchgeführt.
- Proben von Thermitschmelzversuchen in Betontiegeln im 100 kg-Maßstab wurden nach dem Schneiden der Tiegel materialkundlich ausgewertet.

Erzielte Ergebnisse

- Der Schmelzpunkt von Corium E liegt höher als bisher angenommen. Bei 3000 K betragen die Abdampfverluste nach 5 min $\sim 2\%$, nach 10 min $\sim 4\%$ und liegen somit erheblich unter den früher angenommenen Werten.
- Geringfügige Änderungen in der Reihenfolge der Oxidation der Spaltprodukte und Corekomponenten resultieren aus Reaktionen in der Schmelze. So wird Fe zumindest teilweise schon vor Mo oxidiert, da es in der Schmelze an Cr gebunden ist, während die Oxidation von Mo in metallischer Lösung durch seine Bindung an die Platinmetalle verzögert wird.
- Die Versuche im komplexen System Coreschmelze + Spaltprodukte + Beton haben die zuvor in den Teilsystemen erhaltenen Befunde untermauert. Zusätzliche Erkenntnisse wurden hinsichtlich des Verhaltens der Spaltprodukte bei der Erstarrung der oxidischen Schmelze gewonnen. Je nach Zuschlagsart des Betons wird eine homogene Verteilung im Glas (SiO_2 -Zuschlag) oder eine heterogene Aufteilung auf verschiedene U- und Zr-haltige Phasen (Karbonat-Zuschlag) beobachtet.
- Die Nachuntersuchungen von Probenmaterial aus den Thermitversuchen haben gezeigt, daß die oxidische Thermitschmelze beträchtliche Mengen MgO aus der Auskleidung des Zündkessels gelöst hat. Die Oxidation der metallischen Schmelze im Betontiegel hat im wesentlichen die Cr-Komponente erfaßt, dagegen wurde nur sehr wenig Fe und kein Ni oxidiert. Die oxidische Thermitschmelze hat zwischen $\sim 17\%$ und $\sim 45\%$ Tiegelmateriale (Betonschmelze) aufgenommen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

- Untersuchungen des Abdampfverhaltens von Corekomponenten und Spaltprodukten in Schmelzen ohne und mit Beton; Parameter: chemische Zusammensetzung, Oxidationsgrad, Temperatur.
- Wechselwirkungsversuche Kernschmelze/Beton in oxidierender Atmosphäre.
- Weitere materialkundliche Nachuntersuchungen von Reaktionsproben aus Beton-Großtiegelversuchen (~ 100 kg Schmelze).

4246 Experimente zur Wechselwirkung zwischen Stahlschmelzen und Beton

- Betontiegelversuche mit Thermiterschmelzen -

(D. Perinic, B. Kammerer, H. Knauß, A. Mack, B. Stuka, RBT/IT)

Durchgeführte Arbeiten

Es wurden Arbeiten zur Auswertung der Thermitversuche durchgeführt und die Ergebnisse in einem Abschlußbericht zusammengefasst.

Weiterhin wurden Untersuchungen zur technischen Durchführbarkeit von Versuchen mit großen Schmelzen fortgesetzt.

Erzielte Ergebnisse

1. Auswertung der Betontiegelversuche mit Thermiterschmelzen

- Die Asbestzementrohre sind bei keinem der Versuche gerissen. Die Betontiegel selbst sind an mehreren Stellen unregelmäßig gerissen. Die Rißbreite beträgt an der äußeren Oberfläche des Tiegels max. 2 mm. Bei allen Tiegeln sind die oberen Stirnflächen und die Innenwand mit erstarrtem Auswurf bedeckt. Die Oberfläche dieser Schicht ist vorwiegend oxidisch und vereinzelt mit gut erkennbaren Metallspritzern überdeckt.

- Der Verlauf der Grenzflächen zwischen Regulus, der aufgeschmolzenen anthrazitfarbenen Schicht, der dehydrierten grauen Schicht, der z.T. dehydrierten gelb-bräunlichen Schicht und des unverfärbten Betons wurde vermessen. Durch unterschiedliches Schrumpfverhalten ist zwischen Metallregulus und Beton ein Spalt von rund 5 mm entstanden. Den Übergang von der Metallschmelze zum Beton bildet eine 2 - 3 mm dicke aufgeschmolzene, glasartige, anthrazitfarbene Schicht. Die dehydrierte Schicht hat keine mechanische Festigkeit und zerbröckelt bei Berührung. Ihre Stärke beträgt axial 25 bis 60 mm und radial 35 bis 70 mm. Die zum Teil dehydrierte Schicht unterscheidet sich durch ihre Färbung deutlich von der dehydrierten Schicht und von dem restlichen Beton. Ihre Stärke beträgt axial 30 bis 132 mm und radial über 35 mm.
- Aufgrund der Temperaturschriebe der im Beton eingebetteten Thermoelemente konnten die Fortschrittsgeschwindigkeiten der 100°C und 800°C Isothermen sowie der Schmelzfront bestimmt werden. Die Werte liegen für die 100°C -Isotherme zwischen 2,6 und 148 mm/min, für die 800°C -Isotherme zwischen 1,5 und 42,9 mm/min und für die Schmelzfront zwischen 2,9 und 40 mm/min jeweils stark abhängig von der Schmelzbadtemperatur.

4247 Hydrodynamische und thermische Modelle zur Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton
(H. Alsmeyer, W.B. Murfin, M. Reimann, IRB)

Durchgeführte Arbeiten

- Verallgemeinerung des quasistationären Wärmeleitungsmodell zur Beschreibung der Betonzerstörung für silikatischen und karbonatischen Beton.
- Übernahme des Rechencodes INTER; Entwicklung des Rechencodes WECHSL auf der Basis von INTER; Einbau des Filmmodells in WECHSL.
- Nachrechnung von Thermitversuchen mit WECHSL.
- Erweiterung des Filmmodells für geneigte Wände.

Erzielte Ergebnisse

Aus einem Vergleich der Ergebnisse des Betonzerstörungsmodells mit Meßwerten folgt, daß die Betonzerstörungsenthalpie für silikatischen Beton sicher angegeben werden kann, während bei karbonatischem Beton Diskrepanzen auftreten, die noch näher geklärt werden müssen.

Die Auswertung der Thermitversuche (PNS 4246) ergab, daß der zeitliche Verlauf der Erosion an horizontalen Betonflächen und die zeitabhängige Oberflächentemperatur durch WECHSL in der Tendenz richtig berechnet werden kann. Der Zeitpunkt des Einsetzens von Erstarrungsvorgängen wie auch die maximale Erosionstiefe stimmen ebenfalls größen-

ordnungsmäßig mit der Versuchsbeobachtung überein.

Die Ergebnisse des erweiterten Filmmodells für den Wärmeübergang an geneigte Wände wurde mit Modellversuchen (sublimierende Trockeneisplatten in Wasser) untersucht.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Nach Einbau des erweiterten Filmmodells in WECHSL soll die Ausbildung von Kavernen durch die Wechselwirkung von Schmelzen mit Betontiegeln für die Simulationsversuche vorausberechnet werden.

- 4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN
 SCHADSTOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN
- 4310 Untersuchungen der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reak-
 tionsvorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren
 Störfällen
- 4311 Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und
 Aerosolen in LWR-Containments
 (W. Schöck, LAF I)

Durchgeführte Arbeiten

Die Lieferung und Montage des Versuchsstandes wurde im Oktober abgeschlossen. Es wurde eine erste Serie von Messungen der Kondensationsraten am Aerosol bei 100 °C durchgeführt.

Erzielte Ergebnisse

Es wurde ein 17-tägiger Dauertest mit dem Versuchsstand gefahren. Die Funktionsfähigkeit der Anlage wurde in allen in die Konstruktionsberechnungen eingegangenen Punkte bestätigt. Einige Mängel in der Fertigung wurden festgestellt, die sich aber alle beheben lassen. Während des Probetriebes wurde eine Versuchsreihe zur Wasserdampfkondensation am Aerosol durchgeführt, wobei die Temperatur zunächst bei 100 °C lag. Die Messungen ergaben eine höhere Kondensationsrate beim Übergang von den trockenen Partikeln zum Tröpfchenaerosol als bisher im Modell (aus Mangel an Daten) angenommen. Auch wurde bei den Versuchen beobachtet, daß der Einsatz der Kondensation schon unterhalb des Sättigungspunktes erfolgt. Dies liegt sicher an der Aggregatstruktur des bei den Versuchen verwendeten Plantinoxidaerosols, das dem beim Kernschmelzen auftretenden UO_2 -Aerosol sehr ähnlich ist. Die Verwertung dieses Ergebnisses im Modell ist ohne Schwierigkeiten möglich, bedarf allerdings noch weiterer Messungen bei anderen Temperaturen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Die Kondensationsexperimente werden fortgesetzt. Dabei muß der gesamte Temperaturbereich bis 150 °C abgedeckt werden. Auch Versuche mit löslichen Aerosolen und mit UO₂-Aerosol werden durchgeführt.

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

(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 6 Ausbreitungsversuche mit chemischen Tracern durchgeführt. Die Tracer wurden jeweils simultan in 2 verschiedenen Höhen am meteorologischen Turm emittiert. Drei der Versuche fanden am späten Abend bei teilweise stabiler Schichtung der bodennahen Luftschicht statt (Emissionshöhe 60 und 100 m); drei weitere Versuche fanden am Tage statt (Höhe 160 und 190 m).

Zur Untersuchung der Transport- und Ausbreitungsvorgänge im Mesoscale (bis über 15 km Entfernung) werden Tetroons aufgelassen und mit Hilfe von Radar verfolgt. Die Radar-Ortung des Tetroons wird wesentlich verbessert, wenn der Tetroon mit einem Transponder ausgerüstet ist. Verschiedene Testflüge zeigten die Beschränkungen der Reichweite des Radars bei Betrieb ohne Transponder, sowie die mögliche Verbesserung durch Einsatz eines Transponders. Es wurde der Auftrag zur Fertigung von Testexemplaren solcher Transponder vergeben, welche mit dem Radar MBVR 120 verfolgt werden können.

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.

Erzielte Ergebnisse

Die Ausbreitungsparameter für 100 m Emissionshöhe wurden durch theoretische Arbeiten abgesichert. So wurde der Einfluß des Auswerteverfahrens, der Probenahmedauer sowie der Bodenrauigkeit auf die Ausbreitungsparameter untersucht. Die Ausbreitungsparameter aus den Versuchen im KfK sowie in der KFA Jülich wurden zu einer gemeinsamen Kurvenschar zusammengefaßt.

Die über Wiesengelände (Rauhigkeitsstufe II) gemessenen Turbulenzparameter wurden mit den im KfK (Rauhigkeitsstufe III) gemessenen verglichen. Dieser Vergleich zeigt eine wesentlich geringere Turbulenz über Wiesen- als über Waldgelände, vor allem bei labiler Luftschichtung.

Ein Vergleich der Strahlenexposition der Bevölkerung in der Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe, berechnet einerseits mit realistischen, andererseits mit den in Genehmigungsverfahren üblichen konservativen Annahmen, zeigt starke Überschätzungen um mindestens eine Größenordnung durch das konservative Berechnungsverfahren, insbesondere bei den Ingestionsdosen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Ausbreitungsversuche werden fortgeführt mit dem Schwerpunkt auf Emissionshöhen über 100 m.

Tetroonflüge werden in der Oberrheinebene durchgeführt, jedoch in größerem Rahmen erst nach Entwicklung eines leichten kleinen Transponders (voraussichtlich ab 1979).

Die Feldmessungen werden 1978 weitergeführt.

- 4320-TUH Erstellung und Erprobung eines neuen Rechenprogramms für die Berechnung der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre unter instationären Bedingungen in ausgedehnten Regionen
(H. Schultz, E. Voelz, C.D. Wüneke, Arbeitsgruppe f. Technischen Strahlenschutz der T.U. Hannover)

Durchgeführte Arbeiten

Durch Einführung einer Teilchensinkgeschwindigkeit und des maschinellen Zeichnens der Belastungsisoplethen wurde das Programm XPIC erweitert, und durch programminterne Optimierung die Rechenzeit verkürzt.

Ausbreitungsrechnungen wurden mit Diffusionskoeffizienten durchgeführt, die in passender Weise aus im Kernforschungszentrum Karlsruhe gemessenen Windfluktuationen abgeleitet wurden.

Durch Verwendung der neuen Ausbreitungsdaten von Pasquill (1974) wurden unterschiedliche Bodenrauigkeiten erfaßt. Schließlich wurden Untersuchungen über eine vereinfachte Belastungsrechnung mit Hilfe einer Ersatzgeschwindigkeit begonnen.

Erzielte Ergebnisse

Durch Kombination der Versionen A und B von XPIC lassen sich nun auch Inhomogenitäten in einem größeren Bereich behandeln.

Die aus den Fluktuationmessungen in Karlsruhe abgeleiteten Diffusionskoeffizienten ergaben im Vergleich zu anderen Ansätzen Belastungsverteilungen, die besser mit gemessenen Werten übereinstimmten. Mit den neuen Daten von Pasquill konnten die Ausbreitungsverhältnisse realistischer als bisher nachgebildet werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Abschluß der Programmierungsarbeiten zur leichteren Benutzung des Programms XPIC. Fertigstellung des Abschlußberichtes zum Erstellungsauftrag SR 21 des BMI.

Darüberhinaus halten wir noch folgende Arbeiten für zweckmäßig:

Fortsetzung von Kontrollrechnungen zu den Karlsruher Messungen.

Genauere Isoplethenberechnung für die Submersions-Gammabelastung in inhomogenen Bereichen der Schadstoffwolke bzw. in Gebieten mit stark unterschiedlicher Bevölkerungsdichte.

Einfluß der Bodenrauigkeit auf die Belastung.

Untersuchung über realistischere Darstellungen der Ausbreitungsverhältnisse in Bodennähe.

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

Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Im Rahmen der deutschen Reaktor-Risikostudie zur Beurteilung der Sicherheit von Kernkraftwerken in der Bundesrepublik Deutschland wird das Unfallfolgenmodell entwickelt.

Für den ausgewählten Störfall "spätes Überdruckversagen" wurden unter Zugrundelegung eines Modellstandortes die Aktivitätskonzentrationen sowie gesundheitlichen Schäden mit dem sogenannten Fernbereichsmodell berechnet und im Rahmen des GRS-Fachgespräches im November 1977 in München vorgestellt.

Für die weitere Berechnung des Gesamtrisikos für Deutschland wurde die Bundesrepublik in 4 meteorologisch ähnlichen Zonen eingeteilt und diese Einteilung wissenschaftlich argumentativ abgesichert.

Es wurden verschiedene Möglichkeiten untersucht, bei der Berechnung von Unfallfolgen richtungsunabhängig ermittelte Ortsdosen mit der Bevölkerungsverteilung zu verknüpfen. Für den Fernbereich des Unfallfolgenmodells wurde ein Vorschlag unterbreitet.

Die Einteilung des Entfernungsrasters für das Unfallfolgenmodell wurde geringfügig geändert, um der Tatsache Rechnung zu tragen, daß die Radionuklidkonzentration in der Luft im allgemeinen für nicht zu kleine Entfernungen von der Quelle mit $\frac{1}{R^a}$ abnimmt ($1 \leq a \leq 1,5$).

In Verfolgung des Planes, in der endgültigen Fassung der Risiko-studie nicht mehr die Wahrscheinlichkeitsverteilung der genetischen Schäden sondern statt dessen die genetisch-signifikanten Dosen anzugeben, wurde ein Vorschlag für die Berechnung der genetisch-signifikanten Dosis aus der Keimdrüsendosis erarbeitet.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Abhängig von einer Grundsatzentscheidung über die Anlehnung an bzw. die Loslösung von WASH-1400 werden die Modellvorstellungen und -parameter überprüft und ggf. geändert. Die meteorologischen Daten für die Standortregionen werden zusammengestellt und aufbereitet. Es werden weitere Unfälle analysiert, sowie deren Freisetzungsmatrizen von der GRS bereitgestellt werden.

4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN

4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen

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

Durchgeführte Arbeiten

Optimierung eines flüssigen Reinigers

Alle auf dem Markt erhältlichen Lösungsvermittler zur Beseitigung der Trübungen im Reiniger wurden auf thermische Stabilität, Schaum- und Dekontaminationsverhalten geprüft und die besten Produkte in den entwickelten alkalischen Reiniger eingearbeitet.

Außerdem wurden die vergleichenden Prüfungen der Dekontaminationswirkung an kontaminierten Edelstahl-, Glas-, Polyvinylchloridbodenproben sowie an epoxidanstrichbeschichteten Oberflächen, der Schaumwerte, der thermischen Stabilität, der Feststoffgehalte und pH-Werte von den in kerntechnischen Anlagen häufig verwendeten Reinigungsmittel abgeschlossen.

Optimierung der Dekontamination großer Komponenten

Aus den vorangegangenen Arbeiten und Berichten ging hervor, daß keines der üblicherweise eingesetzten Dekontaminationsmittel allein geeignet ist, kontaminierte Werkstücke befriedigend zu dekontaminieren. Es zeigte sich, daß eine Vorbehandlung mit alkalischer Permanganatlösung die Wirkung dieser Mittel verstärkt. Da bei den AP-Prozessen die Hauptmenge an Abfall durch die AP-Lösung anfällt, wurden Versuche mit verringerten Konzentrationen dieser Lösung an im Autoklaven und im Reaktorbetrieb kontaminierten Proben durchgeführt.

Um die anfallenden Abfallmengen weiter zu reduzieren, wurden entsprechende Versuche durchgeführt, bei denen die Lösungen als Pasten eingesetzt wurden.

Erzielte Ergebnisse

Optimierung eines flüssigen Reinigers

Die Trübungen im entwickelten alkalischen Reiniger konnten unter Verwendung geringer Mengen von Lösungsvermittlern auf Basis neutraler Phosphatester das Schaumverhalten und die thermische Stabilität gemindert werden.

Aus den vergleichenden Versuchen von 25 Reinigern ergab sich, daß neben dem entwickelten flüssigen alkalischen, höchstens drei der geprüften Produkte und zwar

ein alkalisch reagierendes Pulver und
zwei sauer reagierende flüssige Reiniger

für Dekontaminationszwecke, störungsfreie Aufarbeitung der radioaktiven Abwand und der Verfestigung in Bitumen geeignet sind.

Optimierung der Dekontamination großer Komponenten

Die Untersuchungen der sog. "AP-Prozesse", bei denen das Dekontaminationsobjekt mit alkalischer Permanganatlösung vorbehandelt wird ehe das eigentliche Dekontaminationsmittel - eine Komplexbildnerlösung - zu Anwendung kommt, ergab folgende Ergebnisse:

- Versuche an Proben aus Reaktoren zeigten, daß das Optimum offensichtlich bei einer 9/3 AP-Lösung und einer 1 %-igen Oxalsäure-Lösung liegt.
- Die Abfallersparnis bei dieser Kombination beträgt etwa 50 % zu den üblicherweise angewandten Dekontaminationslösungen.
- Eine Verarbeitung der angewandten Lösungen zu Pasten ergab zwar für Proben, die im Autoklaven kontaminiert waren, vergleichbare Dekontaminationsergebnisse zu den Lösunge, jedoch wurde bei den Reaktorproben eine deutliche Verschlechterung beobachtet.
- AP-Prozesse unter Verwendung ammoniakalischer Citronensäure (AC) als Dekontaminationsmittel ergaben bei allen eingesetzten Konzentrationen keine befriedigenden Dekontaminationsergebnisse (Restaktivitäten > 10 %). Das gilt auch wenn dieser Lösung Äthylen-diamintetraessigsäure (Na-Salz) zugesetzt wird (APACE-Prozeß).

- Bei den anderen Prozessen mit Oxalsäure (APOx), ammoniakalischer Citronensäure/Oxalsäure (Citrox) und dibasischem Natriumnitrat/Oxalsäure (N Citrox) ist eine Senkung der in der Praxis angewandten Konzentrationen möglich und zwar die der AP auf 9 g Natriumhydroxid und 2 - 3 g Kaliumpermanganat pro 100 ml Wasser und die der Dekontaminationslösungen auf ein Viertel der üblicherweise angewandten Konzentrationen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Optimierung eines flüssigen Reinigers

Das Vorhaben ist abgeschlossen.

Optimierung der Dekontamination großer Komponenten

Das Vorhaben ist abgeschlossen.

4412 Wanderung langlebiger Transuranisotope (zum Beispiel Pu-239, Am-241) im Boden und in geologischen Formationen.

Beziehung der PuO₂-Mobilität zu bodenphysikalischen Eigenschaften

(A. T. Jakubick, ABRA)

Durchgeführte Arbeiten

Zur Bestimmung der Abhängigkeit der Mobilität des partikularen PuO₂ von bodenphysikalischen Eigenschaften wurden drei ungestörte Bodenprofile herangezogen.

Die Standorte können verkürzt als

- 1) Sandboden (Quarz, Calcit)
- 2) Lehmboden (Quarz, Chlorit, Illit, Feldspat Calcit)
- 3) Ton-organischer Boden (Quarz, Chlorit, Illit, Mixedlayer Tonminerale, Feldspat, Calcit)

charakterisiert werden.

In den Bodenprofilen wurde die Pu-239 Tiefenverteilung (aus den atmosphärischen Waffentests der vergangener Jahre) bestimmt. Mit Hilfe der früher abgeleiteten PuO_2 -Input-Funktion und eines mathematischen Migrationsmodells wurden für 2 cm dicke Bodenschichten die Verweilzeiten von PuO_2 berechnet. Gleichzeitig wurden auch die relevanten bodenphysikalischen Eigenschaften der entnommenen Schichten ermittelt und Korrelationen zu den jeweiligen Verweilzeiten aufgestellt.

Erzielte Ergebnisse

Vorläufig können folgende Korrelationen angegeben werden:

- 1) Verweilzeit, τ in Jahren - spezifische Oberfläche, s in m^2/g

$$\tau = 0,214 s + 4,169$$

für den Bereich von ca. 0,5 bis 20 m^2/g

- 2) Verweilzeit, τ in Jahren - Ionenaustauschkapazität, T in $\text{mval}/100 \text{ g}$

$$\tau = 0,137T + 3,503$$

für den Bereich von ca. 5 bis 30 $\text{mval}/100 \text{ g}$

- 3) Verweilzeit, τ in Jahren - org. Kohlenstoff, C in %

$$\tau = 0,583C + 4,009$$

für den Bereich von ca. 0,1 bis 8 %

Die Korrelationskoeffizienten lagen zwischen 0,50 - 0,53, was für in situ Felduntersuchungen durchaus ausreichend ist. Für eine Interpretation müssen noch die Ergebnisse von weiteren Untersuchungen abgewartet werden.

Ausblick auf den geplanten, weiteren Fortgang

Weitere Arbeiten sollen die Abhängigkeit im Bereich von höheren spezifischen Oberflächen und höheren Ionenaustauschkapazitäten in unterschiedlichen Tonböden klären. Zu diesem Zweck werden noch stark kaolinit- und montorillonit-haltige natürliche Böden untersucht werden.

S U M M A R I E S

4100 ENVIRONMENTAL IMPACT OF 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 Containments (H.-G. Dillmann, H. Pasler, A. Weinert, LAF II)

Work completed and Essential Results

A new droplet separator equipped with metallic fibers of various thicknesses was designed and fabricated. The experiments have started and high removal efficiencies have been measured even for minor pressure drops. Four fiber mats of 22 μm length remove on an average more than 99 %, related to mass, if exposed to a 2 to 5 μm droplet spectrum.

The irradiation tests performed in the USA on the sorption material consisting of a silver-type molecular sieve were successfully completed. A final report is being published.

Plans for the Near Future

The droplet separator will be optimized during the coming period of reporting within the frame of a new program topic. Measurements on aerosol filters under accidental conditions will likewise start during the next period of reporting.

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

Work Completed

Since new limits have been fixed for the amounts of dissolver off-gas from a large-scale reprocessing plant, which have exceeded the boundary conditions previously studied, the high-loading and desorption tests have to be continued. The organic iodine components in the dissolver off-gas were determined by means of gas chromatography. Measurements of materials used to remove aerosols and iodine were performed during a dissolving campaign at the aerosol and iodine measuring console.

The PASSAT facility is being completed which has been jointly developed by LAF II and RBT and includes 1 : 1 removal components and a remote handling system.

The working drawings for the removal components to be used in AZUR have been submitted to the Technical Inspectorate (TÜV) for approval.

Essential Results

At the high linear air velocity of 63 cm/s of the dissolver off-gas found in the iodine sorption material AC 6120/H₁ for the newly fixed volume flow and at the iodine concentrations corresponding to a large-scale reprocessing plant disturbances in the removal profile occurred in laboratory tests, which are presently investigated in more detail and might result in excluding gas velocities > 60 cm/s. The gas-chromatographic measurements of the organic iodine components contained in the WAK dissolver off-gas yielded low concentrations of methyl-, ethyl- and butyl-iodide. At the aerosol and iodine measuring console decontamination factors for aerosols of 120 - 160 were measured downstream of the WAK aerosol filter, using the activities of individual isotopes. The decontamination factors for I-129 were found to be > 10³ for a residence time of 1.4 s.

Plans for the Near Future

Performance at PASSAT of the testing program relating to AZUR. Testing and optimization of individual removal components.

Testing of the filter remote handling equipment and of the newly conceived barrel screw coupling and bag-out unit.

4114 Ageing and Poisoning of Iodine Sorption Materials

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

Work Completed

Mobile filter test benches were built and installed in the PWR of Biblis B in order to test the new multiway sorption filter. The program of testing comprises the qualitative and quantitative evaluation of pollutant distribution in the sorption layer and of the removal efficiency of the latter with regard to fission product iodine, as a function of service life.

A continuous process gas chromatograph was calibrated to allow measurement of pollutants contained in the exhaust air of nuclear power plants.

To be able to determine the loading of the individual zones of the multiway sorption filter a model was conceived and the order for construction placed. The measuring technique was developed which allows to evaluate partial loading.

Essential Results

At the end of two months of operation of the iodine sorption carbon in two 25 cm deep beds exposed to the room exhaust air of the Biblis B nuclear power station a solvent content of 6.3 wt.% at the maximum was found with some high boiling portions in the initial 25 cm of the activated carbon filter. After desorption of the adsorbed solvent fractions by the following second layer of activated carbon (loaded up to 4.7 wt.% with easily volatile solvents) the removal efficiency of fresh activated carbon was attained with slight deviations.

Plans for the Near Future

Continuation of laboratory testing on pollutant desorption as well as continuous measurement of organic components in the exhaust air over extended periods of operation.

Investigations into the service life in order to determine the intervals for replacements at the multiway sorption filter.

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

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

Work Completed

Using the I₂ sorption material DSM 11 measurements were performed with radioiodine species samplers in the stack discharge and hood exhaust air of PWRs (PWR 2 and PWR 3). Experiments on the removal of ¹³¹I in the form of I₂ and HIO (hypoiodous acid) by the I₂ sorption material DSM 11 and other sorption materials eligible for the selective removal of HIO were carried out.

Essential Results

The average proportion of inorganic ¹³¹I (I₂) was 30 % in the stack discharge of PWR 2 (measurement time 37 weeks) and 60 % in the stack discharge of PWR 3 (measurement time 11 weeks). The hood exhaust air of PWR 3 contained 80 % inorganic ¹³¹I on the average and furnished 50 % of the inorganic ¹³¹I of the stack discharge (measurement time 9 weeks). The fraction of the organic ¹³¹I was nearly complementary, because the fraction of particulate ¹³¹I was very small (mostly < 1 %).

The removal efficiency of DSM 11 for ¹³¹I in the form of I₂ was > 99,9 % in the relevant range of parameters at a residence time of 0,1 s. ¹³¹I in the form of HIO was removed by DSM 11 to a small extent only (< 1 %) at the same residence time, 40°C, and 50 % R.H. Of the sorption materials tested, IPH (from NES, USA) proved to be the most suitable for selectively removing HIO under the same conditions. The identity of HIO (proportion in the carrier gas in laboratory tests up to 70%) was further ensured.

Plans for the Near Future

The measurements with radioiodine species samplers will be continued in the mentioned and other flows of exhaust air until a measurement time of 1 year (in the stack discharge) will be reached in each of the PWRs.

The removal efficiencies of DSM 11 and IPH for ¹³¹I in the form of HIO will be ascertained in the relevant range of parameters. The development of a radioiodine species sampler applicable to the exhaust air of reprocessing plants will be started.

4120 Release, Transport and Depositing of Fission Products

4123 Reduction of Activation and Contamination of Reactor
Circuits

(I. Michael, IRB)

Work Completed

During the period of reporting the investigations into metal losses have been concentrated on the steam generator tube material INCOLOY alloy 800 and on the similarly composed iron-base Cr-Ni alloy NICROFER 3220 (VDM), material No. 1.4876, tested in pressurized water at 340°C, 150 b for more than 300 hours each.

Essential Results

It was found in a comparison of the Fe, Cr and Ni contents released to the pressurized water by the two austenitic steels that only the iron content was markedly reduced when lithium hydroxide had been added to the dionate up to the ph-value of 9.

For INCOLOY alloy 800 and with ph-values of 7 and 9 of the initial water distinct reductions in the metal concentration of the pressurized water were found for all the metal components at pH 9.

Finally, the investigation of NICROFER 3220 at the ph-values 7, 9 and 10.5 of the initial water yielded metal contents in the pressurized water as shown in Fig. 4123-3. The iron content hardly undergoes any more changes as a function of alkalization. The nickel and chromium contents indicate a complementary relationship.

Plans for the Near Future

The task has been terminated.

4130 Investigation of the Physical and Chemical Environmental Behaviour of Radionuclides characterized by a Particular Biological Effectiveness

(H. Schüttelkopf, ASS)

4132 Investigations on the Radioecology of I-129

Work Completed

In 1977 milk, soil, thyroid and air samples were analyzed which had been taken in the environment of WAK. Samples from WAK process solutions, air and effluent waters were checked for ^{129}I . The composition of organic, inorganic and aerosol ^{129}I in the WAK effluent air was determined. ^{127}I concentrations in the environmental air were measured in Kiel, Stade, Karlsruhe, Gundremmingen, and Munich.

Essential Results

Since the installation in 1975 of the iodine filter in the dissolver exhaust air system of WAK the ^{129}I emission of WAK has been maintained at a relatively constant level of 2 to 3 mCi/a. The ^{129}I concentrations in goat milk samples has decreased since that time with a half-life of 0.5 year. The ^{129}I concentrations in soil samples range from 0.05 to 40 fCi/g. The maximum values are found near the principal point of exposure to the WAK exhaust air plume. The concentration of ^{129}I in the upper 5 cm of soil is generally higher than in the underlying 15 cm.

The chemical composition of ^{129}I in the WAK exhaust air was determined during three months of sampling. The organic gaseous portion attains about 20 %, the inorganic gaseous portion being 80 %. The concentration of the iodine aerosols amounts to 1 % of the total iodine contained in the effluent air. The ^{127}I measurement - performed separately for gaseous organic iodine and aerosol iodine - was carried out in the environment of KfK from October 1976 until December 1977, using a method developed and tested in 1976. Similar sampling devices were installed in Kiel, Stade, Gundremmingen and Munich in 1977. The results of these measurements have shown that the inorganic gaseous ^{127}I content in the environmental air ranges from 5 to 10 ng/m³ for the total area of the Federal Republic. The concentration of ^{127}I as an aerosol reaches 1 ng/m³.

Plans for the Near Future

In 1978 the vertical diffusion of ^{129}I and the contamination of soil samples taken in 1977 and 1978 will be measured. Up to the end of 1978 samples of goat milk will be analyzed for ^{129}I . The research programme on ^{129}I will be terminated in 1978.

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

(R.v. Ammon, W. Bumiller, G. Franz, G. Knittel, IHCH

E.Hauß, E. Hutter, G. Kimmig, G. Neffe, RBT)

Work Completed

Two test campaigns of four to five weeks duration were conducted at the test facilities ADAMO and KRETA.

Several runs were carried out with the laboratory scale catalytic test loop. A safety study was conducted concerning the pilot plant REDUKTION (gas throughput $50 \text{ Nm}^3/\text{h}$) which will be mounted in the beginning of 1978. The absorption and desorption behaviour of krypton and xenon on acid resistant molecular sieves was studied on a laboratory scale using radioactive tracers Kr-85 and Xe-133.

Essential Results

During the test runs of the KRETA plant with the three-component system N_2 -Kr-Xe the concentration range of Kr and Xe in the feed gas could be determined where desublimation in the vicinity of the feed entry into the column takes place. This range decreases with decreasing total gas flow and increasing column pressure. The Kr recycle stream which is being planned for the improved offgas specification system of the WAK (project AZUR) was simulated by increasing the Kr feed concentration. The tendency of xenon to freeze out also decreases by this means. Analysis and control of H_2 during the catalytic reduction of O_2 and NO_x

is achieved best using the method of measuring combustion heats. The cell of Leeds and Northrup operates at room temperature and is insensitive towards NO_x .

CO_2 is partially reduced by H_2 on the Ru-catalyst, but only if there is no O_2 present.

Acid resistant molecular sieves (e.g. Norton Zeolen) adsorb Krypton almost twice as well as the type 5A. The same is true with NO. However, NH_3 and NO_2 are adsorbed less strongly on Zeolen as on 5A.

Plans for the Near Future

The operation of the test plants ADAMO and KRETA will be continued using the three-component system N_2 -Kr-Xe. Particularly, the specifications of the WAK-offgas (project AZUR) are taken into account. The dependence of xenon desublimation on various parameters will further be studied, in order to minimize the Kr recycle.

The pilot plant REDUKTION will be mounted in March 1978 and taken into operation thereafter.

Adsorption and desorption of Kr and Xe will further be studied on laboratory scale and on the ADAMO plant, using improved analytical techniques (radioactive tracers Kr-85 and Xe-133).

4200 SYSTEM BEHAVIOUR OF NUCLEAR FACILITIES DURING INCIDENTS

4210 Dynamic Load of Components and Systems

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

Work Completed

The final documentation was written on the infrared measuring equipment used in the Marviken II tests.

The verification measurements at the Mannheim Large Power Station have been continued on behalf and for the account of TÜV Baden (Technical Inspectorate). The 24 tests as yet performed within this series referred to the design and geometry of the pressure suppression system of the Philippsburg Nuclear Power Station. All the measured data were recorded on magnetic tape, plotted at IRE, and transmitted to TÜV Baden.

Within the period of reporting also the final documentation was prepared on the model computations performed with respect to condensation. The KONDAS computer program has meanwhile been taken over by Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS), Munich.

To calculate the dynamic deformation of a thin-walled spherical shell, a computer program (SPHER 1) was developed which is based on the shell theory by Flügge. It was used in test computations relating to local impact load. The load values employed were the transient wall pressures measured in the blowdown tests of the Brunsbüttel Nuclear Power Station.

Essential Results

The infrared measuring technique, as used so far, is suited above all for the measurement of the droplet velocity and for the determination of the steam density, practically without any delay. All the pressure variations having a high time resolution are recorded via the steam density.

The results of the model computations on condensation were directly integrated in the licensing procedure for German BWR nuclear power stations.

The calculations on the dynamical deformation of a thin-walled spherical shell exposed locally to impact load have shown that the local deflection propagates to the more distant spherical zones after a large number of cycles only. The local behavior in terms of time agrees quite well with the structural vibrations measured in the Brunsbüttel Nuclear Power Station tests.

Plans for the Near Future

Another 8 tests are planned to be performed in the Mannheim Large Power Station. They will be based on the conditions prevailing in the new KWU boiling water reactor line, i.e., the Gundremmingen II Nuclear Power Station. The independent accompanying verification measurements will be carried out for these tests to the extent previously applied.

Work on the dynamic shell behavior will be carried on in future under PNS 4223, since it involves a coupled fluid shell dynamic problem which has to be treated in its entirety.

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

Work Completed and Essential Results

At the "Joint Test Rig (PNS 4215) for Testing and Calibrating of Two-phase Mass Flow Measurement Techniques" roughly 250 tests were performed within the range of $p = 5 - 100$ bar with $\alpha = 0 - 1$ und $\dot{m} = 0 - 4$ kg/s. Velocities of 0,1 - 50 m/s for both phases and slip ratios of 1,0 - 7,0 were measured. A typical result has been represented as an example in the two diagrams.

Until completion and installation in the test rig of the γ -absorption density measuring system the two-phase mass flow was calculated from the steam and water velocities measured by the radiotracer method as well as from the pressure, temperature, and superficial velocities. The values so determined showed good agreement with the balance mass flows evaluated by the IRB Institute. It was demonstrated in these two-phase velocity measurements that the gaseous and liquid tracers mix well with the related steam and liquid phase, respectively, and stay in this phase as a gas and liquid, respectively. Moreover, further knowledge was derived about the length of starting and measuring sections. Good results have been likewise obtained with the multiple beam γ -absorption density measuring system, which started operation in the fourth quarter of the year, so that it is possible now to determine the mass flow directly from the velocities of the two phase and from the density of the two-phase mixture.

Plans for the Near Future

The tests will continue in the "Joint Test Rig for Testing and Calibrating of Different Two-phase Mass Flow Measurement Techniques" (PNS 4215) and for the HDR blowdown experiments.

4215 Joint Test Rig for Tests and Calibration of Different Methods of Two-Phase Mass Flow Measurement

(J. Reimann - IRB)

Work Completed and Essential Results

Two groups of measuring methods have been extensively tested. The first group is sponsored by the BMFT:

- Two pairs of free field turbine meters and drag discs together with a 2 beam densitometer (RS 109, Euratom Ispra).
- Temperature noise signal correlation (RS 135, IKT-Technische Universität Berlin).
- Radiotracer technique (PNS 4214, RS 146, KfK-LIT).
- Dragbody (RS 147, Battelle Frankfurt).

All these measuring systems (except RS 147) were tested simultaneously in the horizontal test section (50 mm diameter) at steady-state steam-water flow. Mass flow rate and quality have been varied at pressures of 10, 25, 50 and 100 bars. About 110 different test points (incl. single phase points) were performed.

The second group of techniques was sponsored by the US NRC and developed by the INEL (Idaho) to be utilized in the LOFT- and Semiscale-experiments. The instrumentation, drag disc, turbine, γ -densitometer, is similar in principle for both LOFT and Semiscale, however, the mechanical design of some transducers is significantly different. The data reduction techniques are essentially the same.

The experiments included both steady-state air-water and steam-water flow. Approximately 240 test points were performed.

Plans for the Near Future

- Evaluation and documentation of the data.
- Continuing tests with the LOFT instrumentations.
- Additional tests of the techniques sponsored by the BMFT.

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

(H.Beutel, G.Grötzbach, R.Krieg, A.Ludwig, H.Mösinger,
W.Olbrich, H.Schnauder, U.Schumann, IRE)

Work Completed

The finished core barrel had been measured and intolerable deviations were found. Proposals have been made to overcome these problems. Details were fixed for the natural convection test which is planned for verification of the stability of the temperature distribution prior to blowdown initiation. The code TURBIT2 was used to study the turbulent decay of radial temperature variations in the downcomer. Hydraulic jacks in order to generate the initial deformations for the snap-back-tests of the HDR-core barrel are going to be manufactured. The incompressible FLUX code version was applied for snap-back and oscillation test analysis. The 3D code FLUX and the 2D code STRUYA were applied to blowdown transients. Both codes are still under development.

Essential Results

Radial temperature variations in the downcomer prior to blowdown will be reduced to 25 % by turbulent natural convection.

Plans for the Near Future

Snap-back test and oscillation tests will give significant measurements to indicate the effect of fluid-structure coupling. Oscillatory tests would be preferable for determining the damping characteristics.

Details for the mounting procedure of the core barrel have to be worked out. The natural convection test is to be carried out and analysed. The hydraulic jacks for the snap-back tests will be mounted. Predictive calculations for HDR-blowdown tests will be documented.

4222 Experimental Data Acquisition and Processing of the
Dynamic Behaviour of the Pressure Vessel Test Internals
in the HDR-Blowdown-Experiments
(K.D. Appelt, S. Eberle, J. Kadlec, G. Lang, A. Müller,
P. Philipp, IRE)

Work Completed

Four types of displacement transducers and two accelerator transducers were studied in the IRE autoclave test facility under thermohydraulic conditions similar to those of LWR Blowdown. Other subjects of investigations included the acceleration behaviour of the transducers (in this case of displacements transducers) and, above all, the frequency response. The signal, interference and error behaviour of each of these transducers was determined. Parallel with these activities the corresponding testing methods and computer programs (for use on the process computer and TDA 33 analyzer employed) were elaborated to allow acquisition and evaluation of experimental data.

The supervision of development work for a high-temperature induction type pressure transducer was assumed as a new task; the first prototypes were already delivered to IRE. Preliminary investigations have started.

A proposal was worked out to realize modal investigations on the HDR core barrel so as to obtain information about the vibrational behaviour of the core barrel mock-up.

Essential Results

In the central investigations relating to the induction type displacement transducers one single transducer type survived all the thermohydraulic and mechanical-dynamic tests and showed at the same time an error behaviour which shows suitable for the planned tests. The rest of prototype transducers did not qualify and were returned to the manufacturers for modification. The causes of errors were: non-reproducible behaviour due to irreversible changes of insulation by resistance due to thermal stresses and high noise levels during accelerations of the transducer housing.

The investigations into the acceleration transducers had to be discontinued since defects occurred at the transducers (loss of insulating resistance); new prototypes have been ordered.

The initial investigations into the induction type high-temperature, pressure, and differential pressure transducers do not yet allow statements to be made about the suitability of such transducers.

Plans for the Near Future

Investigations into modified and new prototype displacement transducers and acceleration transducers will be continued and terminated, respectively, with the aim of qualification so as to order as soon as possible the best suited transducers with the manufacturers. The same applies for the high-temperature, pressure, and differential pressure transducers; in this case, however, it is rather certain that several modifications will have to be performed in the course of investigations.

The anticipated high-temperature strain gauges will be examined mainly at MPA of Stuttgart University; a final test on the dynamical behaviour will be made at IRE.

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

Bechler, Beutel, Enderle, Hailfinger, Katz, Krieg, Ludwig, Mössinger, Olbrich, Schlechtendahl, Schumann, Stölting

Work Completed

The twodimensional non equilibrium two-phase flow code has gone into production. The system code FLUST was successfully used to compute blowdown phenomena in downcomer, nozzle and free outflow jet by coupling 2D models. The 3D code FLUX and 2D code STRUYA (both coupled with the CYLDY2 shell model) were successfully

applied for blowdown calculation. With FLUX also the snap-back test and blowdown in a DWR was analysed. In order to clear some discrepancies between different shell models for the core barrel work was continued on the code CYLDY3, which is based essentially on analytical integration of Flugge's shell equations. The development of the fluid dynamic code SING1 which is based on an advanced singularity method and applicable to a broad class of highly transient, incompressible 3D-problems with negligible viscosity has been completed. Using the code SING1 the equation for the shells which surround the fluid could be modified in order to account for the dynamic fluid structural coupling. (code SING-S).

The test section and density measurement equipment of the two-phase flow test have gone into production. A detailed concept for blowdown-type laboratory experiments in addition to the full scale HDR experiments has been worked out. The laboratory experiments will especially be used to study the effect of the core structure in case of a blowdown.

Essential results

- In the DRIX-2D code significant improvements were achieved in the highly transient phase by replacing the drift phase approximation by a 6-equation model.
- A new equation of state which is valid for water and steam in all practical states led to successful simulation of the free jet stream from the blowdown nozzle with FLUST.
- FLUX application with a non damping numerical integration scheme has proven that coupled analysis of blowdown deformation of the core barrel is a prerequisite to get meaningful results at high frequencies.
- Fluid/structural coupling was successfully achieved with both FLUX and STRUYA codes.
- The fluid dynamic code SING1 which has been designed for any given 3D problem with highly transient flow was successfully applied to problems of the pressure suppression system of a boiling water reactor

- First applications of the coupled fluid-shell dynamics code SING-S showd a tremendous decrease of eigenfrequencies in comparison to shell dynamics without coupling.

Plans for the next future

- The codes FLUX (incompressible version), STRUYA and SING-S will be documented.
- Code development will continue: mainly improvements for FLUX, STRUYA, DRIX-2D; integration of DRIX-2D in FLUST; test of CYLDY3.
- Application of SING-S to problems concerning the pressure suppression system of a boiling water reactor.
- Detail study of the TRAC code
- Performance of the two phase flow tests ("nozzle tests")
- Performance of different laboratory experiments.

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:

For the first bundle experiments in PNS 4238 with rod simulators a parameter study was performed. These results support the definition of the various experiments planned. For the calculations different heat transfer parameters were varied (heat transfer coefficient into the coolant, emissivity coefficients in the gap, gap width). Additionally the rod behaviour during reflood phase was simulated.

SSYST was applied to TREAT experiments and the results were compared with FRAPT4.

Comparative calculations between SATURN-L and FRAP-S as well as between CARO-D and FRAP-S were performed.

The data base for Zry-cladding deformation performance was extended by tensile and creep tests. From those data of 1-D-experiments a first model was deduced for cladding creep rates for $870 \text{ K} \leq T \leq 1200 \text{ K}$.

For the statistical analysis of rod behaviour modules were written for the following purposes:

- generating of input data vectors for the statistical variables in RELAP respectively SSYST;
- evaluating of a response surface by a linear regression analysis to find an interpolation function;
- evaluating the interpolation function with MC to find the pdf of e.g. peak cladding temperature.

For a hot rod a "master input" was set up.

At some computer codes improvements have been made. COBRA III C extended steam tables were implemented to be able to calculate bundle experiments for which superheated steam is to be expected. The modules FRAPDR and FRASSY were tested and improved.

Different SSYST-modules were improved. A second version of the module ZIRKOX was written which calculates the reaction heat of Zry-oxidation, generation of H_2 , volume increase of cladding due to oxidation, and the limitation of oxidation rate due to oxidation in preceding axial levels. By an improved numerical representation of vapour and liquid in the momentum equations of module ZETHYF a better description of the two phase flow was achieved. To calculate the space dependent pressure within the gap a new set of equations was derived.

In connection with the development of SSYST a proposal was made how to evaluate the amount of damage on fuel rods in a reactor core after a LOCA.

Essential Results

The variation of some heat transfer parameters for the rod analysis showed a strong dependence of clad temperature from gap width, a low dependence from emmissivities in the gap and an extreme dependence of deformation behaviour from clad temperature.

SSYST calculations for a TREAT experiment and a comparison to FRAP-T4 showed a good agreement of cladding temperature during the heat up phase. The influence of limited steam rate for oxidation and the rupture time (about 30 sec.) were well simulated.

Comparative calculations for SATURN-L and FRAP-S showed a good agreement for the centerline temperatures. For the heat transfer in the gap differences were detected, which vanished with small gaps. For contact pressure especially for high rod power again differences were found.

Comparative calculations for CARO-D and FRAP-S showed a good agreement for rod powers typical for LWR's.

For unrealistic high rod powers, differences in the models for gap conductance and fission gas release led to quite different results.

The improved module ZIRKOX allows a realistic calculation of the influence of limitation of steam available for cladding oxidation on cladding temperature and cladding radius. The calculated values are in good agreement with the experiment.

The evaluation of the data in the Zry data base gives the following results:

- the onset of plastic creep can be calculated with a Norton type relation where the coefficients are a function of temperature;
- in some temperature ranges strains up to 30 % respectively 70 % could be verified;
- the presence of oxygen during deformation increases rupture strain for $870\text{ K} < T < 1070\text{ K}$ and reduces rupture strains for higher temperatures.

Test calculations using the regression module in SSYST showed that problems with up to 20 variables could be handled in a satisfactory manner.

Plans for the Near Future:

SSYST will be improved continuously, the linking of a suitable steady state code will be done. Comparative calculations for different codes will be performed.

2 D and 3 D heat transfer calculations will be done to get an idea on questions like propagation of failure and feed back of deformation on coolability.

A data base for burst data to find a burst criteria will be initiated. Calculations to generate a response surface for maximum strain of a cladding dependant of its statistical parameters will be performed.

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

(K. Baumung, INR)

Work Completed and Essential Results

During the report period, the experimental facility was installed at the FR2 reactor. A delay was caused by the fact, that the supplying with water for the cooling loop of the pneumatic transfer system as well as discharge of exhaust gas into the halogene-ventilation system of the reactor could not be performed as planned before. Therefore a cooling system was provided and tested and the efficiency of special halogene filters belonging to the experimental facility was verified. Now the apparatus is assembled and first cold tests have been performed.

Plans for the Near Future

After the completion of the cold tests, the irradiation experiments will start.

4235.1 Material Behavior of Zircaloy-4 under Transient Conditions

(M. Boček, C. Petersen, H. Schneider, W. Schweiger, B. Seith
and K. Dindorf)

Work completed

- 1) Comparison of the temperature dependence of the stress exponent n (from the rate equation $\dot{\epsilon} = A(T)\sigma^n$) determined under different experimental conditions.
- 2) Comparison of the temperature dependence of Q (from the rate equation $A(T) = A_0 e^{-Q/kT}$) determined under different experimental conditions.
- 3) The analysis of tensile creep curves.
- 4) Examination of the crack morphology of ZrO_2 -layers.

Essential results

- 1) The n -values were determined in two ways.
 - a) From stress-strain curves: plotting $\log \sigma_{0,2}$ vers. $\log \dot{\epsilon}_0$ ($\sigma_{0,2}$ is the 0,2 % proof stress and $\dot{\epsilon}_0$ is the engineering strain rate) these are called $n_{\dot{\epsilon}_0}$ -values.
 - b) From creep tests (constant load): plotting $\log \sigma$ vers. $\log \dot{\epsilon}_{min}$ (σ is the true stress for $\dot{\epsilon}_{min}$ (σ is the true stress for ϵ corresponding to the minimum creep rate $\dot{\epsilon}_{min}$)). These are called $n_{\dot{\epsilon}_{min}}$ -values.

The dependencies $n_{\dot{\epsilon}_0}(T)$ and $n_{\dot{\epsilon}_{min}}(T)$ are compared for deformation in vacuum (pressure $p < 10$ nbar) and air (or less good vacuum $p > 10$ nbar) resp..

For tests performed in vacuum ($p < 10$ nbar) the $n_{\dot{\epsilon}_{min}}$ -values between 600 and 800°C are less dependent on temperature than the $n_{\dot{\epsilon}_0}$ -values (6,5 - 5,5). In the two phase region both the values decrease (2,5). Moreover the $n_{\dot{\epsilon}_0}$ -values decrease in the α -phase region too. However in the β -phase region $n_{\dot{\epsilon}_0}$ -values remain constant (3,0).

For tests in air atmosphere $n_{\dot{\epsilon}_0}(T)$ is rather complex due to an apparent stress dependence (which was not observed in vacuum tests). Up to now

there are only few results from tests in less good vacuum ($p > 10$ nbar) which indicate that $n_{\dot{\epsilon}_{\min}}(T)$ has a maximum at 700°C .

2) The Q-values were determined in two ways.

- a) From plots: $\log \dot{\epsilon}_0$ vers. $1/T$ for $\sigma_{0,2} = \text{const.}$ (so called $Q_{\sigma_{0,2}}$ -value).
- b) From plots: $\log \dot{\epsilon}_{\min}$ vers. $1/T$ for $\sigma = \text{const.}$ (so called Q_{σ} -value).

For tests performed in vacuum ($p < 10$ nbar) between 600 and 800°C both the values are independent upon temperature (3.5×10^2 kJ/mol). In the two phase region irrespective upon test atmosphere the Q-values become temperature dependent in a complex manner. In the α -phase region the Q-values from tests in air are $0.8 \times$ Q-value measured in vacuum. Between 1000 and 1100°C the Q-values for vacuum are independent upon temperature (1.5×10^2 kJ/mol).

The examinations mentioned sub 1) and sub 2) serve above all as a data bank for model calculations of cladding deformation.

3) For the development of a constitutive equation for plastic flow we need information about the work hardening as well as the recovery behavior of Zircaloy. Therefore tensile creep experiments at constant load were conducted in vacuum between 600 and 1100°C . From the analysis of creep curves it follows that:

- a) in general the curves (in a plot $\log \dot{\epsilon}$ vers. ϵ) consist from two regions. The first creep stage is immediately followed by the accelerated creep stage. 3-stage creep curves (with a linear intermediate region) were observed only exceptionally. Three different types of initial creep appeared. Normal-transient creep (decreasing $\dot{\epsilon}$), anomalous transient creep (increasing $\dot{\epsilon}$) and occasionally (as an intermediate type) a stage with $\dot{\epsilon} = \text{const.}$
- b) The tendency for anomalous creep increases with increasing temperature and load. Thus anomalous creep was predominately observed in the α/β - and β -phase region resp. (no network hardening during the whole course of deformation).

- c) Applying the stability criterion for a tensile test:
if $dlne/de \leq 1$ then deformation is stable to the creep curves obtained, it follows, that the deformation is stable (no necking occurs) only under conditions of normal transient creep.
- 4) A method was developed for the investigation of the crack-morphologie during a tensile test on ZrO_2/Zry specimens. Measurements of crack density and crack width on preoxidized samples as a function of temperature, strain and strain rate are on the way. At $400^\circ C$ blistering of the ZrO_2 -layer occurs after low plastic strain (1-2 %). Whereas at $800^\circ C$ the layer adheres to the metal up to the failure of the specimen (strain ≥ 50 %).

Plans for the near future

- To close ISO-tensile creep test in vacuum ($p < 10$ nbar).
- To start with temperature transient tensile creep test in vacuum.
- Examinations of the single-fibre composite will continue.
- ISO-burst tests on short Zry cladding specimens (with continuous strain measurement) will continue.

4235.2 Investigation of the High Temperature Steam Oxidation of
Zirkaloy 4 Cladding Tubes
(S. Leistikow, IMF II)

Work Completed and Essential Results

Final isothermal and temperature-transient testing. Further post-test evaluation and documentation. Isothermal/isobaric creep-rupture testing of capsules in argon and steam (unoxidized and preoxidized condition). Temperature-transient/isobaric testing in steam according to LOCA-transients.

Post-test evaluation of Zirkaloy 4 specimens, oxidized in steam at temperatures between 700 and $1000^\circ C$, showed that not only oxygen take-up but

also the different layer thicknesses can approximately be calculated on the basis of parabolic rate laws which were established recently for the range of high temperature (1000-1300°C).

Accidental oxidation of nearly equally preoxidized (400-800°C) tube specimens showed to be more dependent on maximum temperature of the following LOCA exposure than on temperature of preoxidation (oxide structure). At 1200°C there was no protection by performed scales, at 1000° and 1100°C however, a considerable reduction of accidental oxygen consumption, hydrogen release, and heat generation was observed.

The isothermal/isobaric creep-rupture tests of one-sided closed Zircaloy 4 capsule 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. This effect was found to be strongly increased when preoxidized (2 hrs, 800°C) capsules were tested at 900-1300°C.

First temperature-transient/isobaric creep-rupture experiments were performed in steam under inductive heating. First of all, a good agreement was found when isothermal/isobaric experiments were performed and compared to the results of our creep-rupture tests in the resistance heated furnace system. The following experiments were performed by specimen exposure to LOCA similar time-at-temperature conditions (950/750/800-1300°C). Burst-pressures and max. circumferential elongations were measured over the whole range of temperatures. All specimens, being pressurized higher than 15-19 at, ruptured already after having reached the blowdown peak (950°C).

Plans for the Near Future

Creep-rupture testing at temperatures < 900°C. Cooperation in construction of facility for burst testing of fuel rod simulators (FABIOLA). Post-test evaluation of fuel rods and bundles.

4235.3 Studies of the Influence of Oxide Fuel and Fission Products on the Mechanical Properties of Zry-Cladding Tubes under Transient LWR-Conditions

(P. Hofmann, IMF I)

Work Performed

- Isothermal, isobaric experiments with as-received Zry cladding tubes in order to study the stress corrosion cracking behavior with respect to elemental iodine.
- Preliminary investigations into the influence exerted by the oxygen potential of UO_2 and by thin oxide layers present on the cladding tube inner surface on the stress corrosion cracking behavior of Zry-4 with respect to iodine.
- Continuance of UO_2 /Zry reaction experiments under PCM conditions. Experiments for determination of the initial UO_2 /Zry phase boundary after reaction annealings.
- Investigations of UO_2 and Zry based on analytical chemistry. Quantitative determination of oxygen distribution across the Zry-4 cladding tube section.

Results Obtained

- The creep rupture tests on the stress corrosion cracking behavior of Zry cladding tubes with respect to iodine show that for all temperatures (700 - 1000°C) and endurance times (<10 min) the time until burst is markedly shorter for specimens containing iodine as compared with specimens free from iodine. However, with the endurance times getting longer (>10 min) and inner pressures and cladding tube tangential stresses, respectively, decreasing accordingly the influence of iodine on the time until rupture becomes clearly smaller. As to burst strains, the results already obtained from transient experiments are confirmed; below 900°C the burst strains of tubular specimens containing iodine are markedly lower than that of comparison specimens without iodine.
- First experiments with Zry-4 cladding tube specimens either subjected to preliminary inner oxidation (ZrO_2 -layer $\leq 25 \mu m$) or filled with UO_{2+x} powder ($O/U = 2.03$) show, espec. at temperatures $\geq 900^\circ C$, a distinctly

higher strength due to the uptake of oxygen, as compared with reference specimens. This means that, compared with the tubular specimens only filled with argon and not subjected to preliminary oxidation, the endurance times of the said tubular specimens are substantially longer. However, in the presence of iodine, the influence exerted by oxygen strongly decreases, i.e. the endurance lives of cladding tubes are again greatly reduced by stress corrosion cracking.

In the presence of iodine the burst strain of the Zry cladding tubes gets smaller below 900°C for UO_{2+x} bearing specimens as compared to specimens free from iodine, and greater at temperatures $\geq 900^\circ C$.

- Independent of the temperature investigated the UO_2 /Zry reaction experiments carried out between 1000 and 1500°C are always characterized by the same phase formation. Starting from UO_2 first α -Zr(O) is formed which still contains some α -uranium; subsequently, a (U,Zr) alloy is formed and, finally, pure α -Zr(O) in the cladding material. The oxygen content in the different phases was evaluated quantitatively by means of Auger-Electron-Spectroscopy (AES).

Experiments with tungsten markers (sheets, wires) provided between UO_2 and Zry for the determination of the initial UO_2 /Zry phase boundary after reaction annealings have shown that the α -Zr(O) phase adjacent to UO_2 penetrates into UO_2 as a result of Zry reacting with UO_2 . The initial UO_2 -Zry phase boundary lies within the range of the (U,Zr) alloy following the α -Zr(O) phase.

- Investigations based on analytical chemistry (AES) of the inner cladding tube surface of UO_2 containing Zry tube specimens show that much oxygen is absorbed by the cladding tube surface (up to about 25 wt.%). Besides on the O/U ratio, the temperature, and the time until burst, the maximum oxygen content depends heavily on the fuel surface.

Plans for Future Work

- Continuance of isothermal and transient tests on stress corrosion cracking of Zry cladding tubes due to iodine and other volatile fission products. Determination of the critical iodine concentration.

- Influence of UO_2 and of thin oxide layers on the inner cladding tube surface on the critical iodine concentration with regard to SCC.
- Stress corrosion cracking experiments on pre-cracked Zry cladding tubes (sharp edges, cracks due to fatigue).
- SEM investigations of ruptured Zry-4 tube specimens; determination of the mechanisms leading to cladding tube failure.
- Post-irradiation examination of irradiated fuel rods belonging to PNS task 4237.
- UO_2 /Zry reaction experiments under PCM conditions. Influence of simulated fission products on the UO_2 /Zry reaction kinetics.
- Investigations of UO_2 and Zry based on analytical chemistry.

4235.4 Burst-tests of Zircaloy Cladding Tubes under Mechanical and
 Chemical Load
 (S. Leistikow, L. Schmidt, IMF)

Work Completed

The design and specification of the steam supply unit and the necessary control and power supply devices were terminated. The main components were ordered and the construction of the test section was started. The extension of the available data processing device for on-line measurements was nearly finished. Pretesting of temperature measurement - using special pyrometers - was performed in the range of 500-800°C. For that, a preliminary test facility was built in which also tests for design purposes of electrical heaters will be performed.

Essential Results

With the aid of the above mentioned action it could be assured that in addition to the LOCA transient tests under high thermal load also those under " normal " conditions can be performed. The pretests of temperature measurement showed that under the given LOCA conditions the accuracy of the pyrometers is equal to those of thermocouples in case that an uniform stable surface oxide layer was preformed in steam.

Plans the Near Future

Supply of all necessary components and start of facility construction. Pretests of prototype heaters. Specification and order of an X-ray cinematographic device for continuous measurement of tube expansion.

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

Work Completed

After the difficulties encountered in commissioning the electronic data recording system and the interface for the computer controlled development of blowdown had been overcome, test operation started at the end of the first half-year.

Also the special measurement techniques allowing pyrometric measurement of the cladding tube temperature during the transient and, above all, the true-mass-flowmeter (TMFM) for direct measurement of the transient two-phase mass flow had been developed so as to be ready for operation under blowdown conditions.

The computer program intended for evaluation was completed and tested. Additional programs were set up for data conversion and graphical representation of the measured values. The first blowdown tests were evaluated to the extent possible.

Essential Results

In the first 12 computer controlled tests a valve actuating program was iterated to simulate a 2F rupture in the cold line between the pump and the reactor pressure vessel. In these tests the fuel-rod-simulator containing Al_2O_3 annular pellets proved to be fully performing. Fuel-rod powers exceeding 700 W/cm were managed without difficulties.

The results measured in these tests show that the plant and control concept chosen allows to set specified reactor typical test conditions in the test section. The pressure and cladding tube temperatures transients were satisfactorily adapted to the reference plots.

Plans for the Near Future

The test rod for measurement of heat transfer coefficients will be completed and put in operation. Parallel with test operation the development of the simulating fuel rod containing ThO_2 pellets will be continued. In addition to the evaluation of current tests theoretical work will concentrate on the elaboration of control programs for different break-parameters.

4237 Investigations on Fuel Rod Behaviour in the Second Heatup Phase
 of a LOCA; In-pile Tests with Single Rods in the DK Loop of the
 FR2 Reactor
 (B. Räßple, E. Karb, RBT-IT)

Work Completed

A BSS test series (BSS 07) was run in order to check BSS design and loop hardware modifications, and to narrow down the scatter band of the temperature correction values.

The devices for assembling and instrumenting preirradiated nuclear test rods were completed, and, after extensive testing, successfully used with five F rods (burnup 20.000 MWd/t_U). The transient tests with these rods were run according to schedule.

During BSS 07 experiments multiple test runs were made with the steam bypass. The resulting transient temperature histories were compared to those calculated by IKE, Stuttgart, and to histories measured when no bypass was used.

Preirradiation of two rigs with 6 rods each was continued towards a target burnup of 35.000 MWd/t_U.

Out of a total of 14 rods transferred to the Hot Cells 8 rods were examined nondestructively; preparations were made for metallographic examination.

Comparative calculations using data of BSS 05 tests were continued at IKE and documented in quarterly reports.

Essential Results

The new steam mixer design was adopted after successful testing; it was used with the F tests.

The cladding temperature correction value of 75 K at 50 W/cm linear rod power rate (electrical) has been confirmed. The maximum deviation from this value amounted to ± 15 K as compared to the ± 35 K used up to now.

With three 0,5-mm TC's embedded in grooves at the same axial position of the rod the circumferential cladding temperature variation at the undeformed simulator was determined to be less than 10 K.

Burst temperatures and burst pressures as well as the histories of cladding temperature and internal pressure measured during the tests with preirradiated rods did not show any significant differences to the results obtained with fresh fuel rods. The fuel pellets, already cracked during preirradiation, disinte-

grated during transient tests within those rod sections where major clad lifting or ballooning occurred.

A modification of the 'gap heat transfer model in the WALHYD-2D code (IKE) resulted in an improved agreement between calculated and measured clad temperature histories of the BSS 05 tests.

Plans for the Near Future (January - June 1978)

Another BSS experiment will be performed to test a modified TC attachment method with direct welding of the platinum sleeve.

Assembling and instrumenting of 5 rods preirradiated to a burnup of 35.000 MWd/t_U and transient tests with these samples are planned.

Preirradiation of the second rig towards its target burnup of 35.000 MWd/t_U will be continued.

- 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

The experimental program is carried out in a number of consecutive series of experiments starting from single rod experiments in a steam atmosphere and finishing with bundle flooding experiments of bundle assemblies including at least 5x5 rods.

All experiments are accompanied by basic experiments on separate effects and by theoretical studies.

Essential Results

The single rod experiments conducted on shortened fuel rod simulators in a steam atmosphere were based on temperature transients of the type computed for a double ended cold leg break. The temperature curves were simulated by means of power control. One typical characteristic of the series of experiments was the balancing out of azimuthal differential temperatures on the cladding at 300°C and 600°C, respectively, before the initiation of heating.

The first bundle experiment carried out under these experimental conditions furnished the following results and trends:

- The generation of typical cladding tube deformations is decisively influenced by the correct simulation of the following parameters as a function of time and position:
 - . the amount of heat generated inside the fuel rod simulator and heat transport over the gap to the cladding;
 - . the external cooling conditions in the different phases of a loss-of-coolant accident.
- The changing gap greatly influences the development of the cladding tube temperature throughout the flooding phase.
- Pronounced lifting of the cladding leads to earlier quenching, less pronounced lifting to later quenching.
- Under the experimental conditions chosen, only 2 out of the 9 zircaloy claddings maintained under internal pressures of 70 bar were ruptured.
- The asymmetrical shape of deformation of the ruptured cladding tubes seems to indicate major azimuthal differential temperatures at the rupture point, which lead to the low rupture strains of 25 and 31 %, respectively.
- The maximum hoop strains of the unruptured cladding tubes were between 8 and 32 %.
- Because of increased local cooling activity, the spacers prevent major strains in the area of the spacers.
- In the bundle experiment described above the maximum of the strains was shifted between the spacers in the direction of the flow towards the next spacer.

- The cladding tube deformations generated under the set boundary conditions of the experiment indicated a pattern of hardly disturbed cooling channel geometries in rod bundles and did not show a negative impact on the cooling capability.

Plans for the Near Future

Further single rod experiments to be applied to equations of state for plastic deformation of zircaloy in r-geometry.

Studies of the influence of anisotropy effects and of bowing of zircaloy cladding tubes in the α -phase.

Further bundle experiments with later onset of flooding and higher rod power, respectively.

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

Work Completed

Tests have been performed with the 5 rod row using grid plates as blockage simulators. To complete this step, rods with sleeve blockages have been prepared. In preparation of the tests with 25 rod bundle heater rods and test section have been ordered.

The evaluation of the tests performed was continued and the heat transfer analysis code completed.

A method has been developed which allows a good simulation of a fuel rod independently of the heater rod design. This can be achieved by using an one-line-computer.

Essential Results

The results obtained up to now by tests with a five rod row and plate blockages allow the following preliminary conclusion in comparing tests with the same subchannel mass flow:

Upstream of the blockage the heat transfer is unchanged compared with the unblocked case.

Downstream of the blockage the heat transfer is improved. Decreasing improvement was observed with increasing distance downstream of the blockage.

At lower flooding rates or lower system pressure the heat transfer decreases in general.

The evaluation of the simulation quality has shown that the used heater rods simulate the fuel rods well during the reflood phase.

Plans for the Near Future

Two main problems are investigated with the next experiments:

- Influence of the shape of the blockage on pressure drop and local heat transfer, to be investigated in the 5-rod row and the 25-rod bundle, all coolant channels partly blocked.

- Influence of the flow distribution on the local heat transfer in bundles with some partly blocked coolant channels surrounded by an undisturbed rod geometry.

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 second half of 1977 we have done bundle experiments in steam. The central rod of these bundles consisted of solid pellets. The earlier used arrangement of bundle experiments consisted of two circular rows of reflector rods and the central rod of solid pellets. Only temperatures of $1700^{\circ}C$ could be reached due to the electric power available. We therefore had to build an reflector with less radiation losses. We have used fiber ceramic. The inner cylinder consists of 2,5 cm ZrO_2 -fibers and the outer cylinder of 5 cm Alumina-Silica-fibers. This enables temperatures of more than $2000^{\circ}C$ at the central rod in steam atmosphere. The thermo-shock resistance of these reflectors is sufficiently high.

Inside the ceramic fiber reflector we have done experiments with different heating rates, with rods of various length and with and without spacers.

Essential Results

The fuel rod simulators with solid pellets, heated in the center of the bundle up to $2100^{\circ}C$, confirm that the attack of Zircaloy on the UO_2 in the case of solid pellets is the same as for ringpellets of a rod with a central tungsten heater. Comparing the penetration of the melt for a solid pellet rod and a ring pellet rod, standing side by side in the same bundle, one gets the larger penetration for the ring pellet. This is according to aspectance, for having the same temperatures at the outside of the rods, the temperature is increasing towards the inside of a ring pellet. Thus the general higher temperature enables a higher diffusion of Zircaloy into the UO_2 -pellet.

Concerning the stability of the solid pellet rods the following was found: For all heating rates (0,25 - 4°C/sec) in the shorter bundles (30 cm) as well as in the longer bundles (50 cm) the solid pellet rod remained as an intact column during heat up. For the shorter bundle the central solid rod stayed intact also during the cooling, in contrary to the longer rods, which were broken down at the end of this period.

During bundle experiments using spacers the break through of the melt took place in the region of the spacers in all cases, even if we have the protection by an oxidic layer of the can against the attack of the spacer material. This shows, that the region of the spacer is the weakest part of the rod.

Concerning the refreezing behaviour the experiments confirm the tendency of the melt to solidify between the rods. This tendency becomes stronger the more the rods are oxidized.

In the experiments with the longer rods we observed the formation of a lump of molten material between the rods at the lower end of the hot region without dropping down of remarkable amounts of melt.

Plans for the Near Future.

In the next reporting period the bundle experiments are continued. In particular we want to see the influence of the conditions in the emergency core cooling region on the beginning of core melting. We have planned experiments with ballooned cans.

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

(H. Albrecht, IRCH)

Work Completed

Experiments with 30 g of inactive Corium to investigate the melt behavior during induction heating in a ThO_2 crucible and to measure the release-fractions of the main components of the melt (Fe, Cr, Mn, Ni, Zr, U) as a function of temperature, atmosphere, and pressure.

Experiments with 30 g of Corium containing activated steel and Zircaloy for preparation of tests with active Fission and to measure release-fractions of those elements which can not be analyzed precisely in the tests with inactive Corium (e.g. Sn, Zr).

Release experiments with masses of 30 g - 3 kg Corium containing slightly active Fission with simulated burn-up in the range of 10.000 - 50.000 MWd/t; same parameters as mentioned above.

Release experiments with Fission-Corium and additions of CaO , SiO_2 , concrete, and other materials.

Essential Results

The release-fractions of the elements Cs, Se, Te, Cd, Mo, and Sb as a function of temperature form curves which were gained from 2 melting tests with 16 g steel, 3 g Zircaloy and 10 g Fission in air (1.5 bar). More than 70 % of the released activity was found on the membrane filters in a distance of about 1 m from the melting crucible. In previous experiments, the elements Fe, Cr, Co, Zr, and U were found to deposit predominately on the glass vessel directly above the crucible. That means that in the course of a core melt accident only a small fraction of the released low volatile species will be transported over longer distances from the melt - an aspect which is especially important for Pu and the othertransuranium elements.

The size distribution of the aerosols was found to be trimodal with maxima of 0.17 μm , 0.30 μm and 0.73 μm . The structure of the particles of the first and third maximum was compact, and their shape was nearly spherical. The particles of the middle maximum, however, had a complicated structure. They were generated by a coagulation process following the primary condensation.

The X-ray microanalysis gave the qualitative result that, in spite of the different geometric forms, the particles of all three maxima contained all main elements of the corium melt: Fe, Cr, Mn, Ni, and U.

Plans for the Near Future

- The most important work to be done in the near future will be
- additional release experiments with a broader spectrum of fission products and variation of the parameters atmosphere, heating velocity, maximum temperature
 - experiments with larger melt masses including also concrete.

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

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

Work Completed

- Experimental tests at definite conditions were conducted to check the loss by vaporization of core components of a corium E melt.
- Further investigations were performed on the partition of the fission products in the melt as a function of the degree of oxidation.
- Crucible melting experiments were done to investigate the reaction behaviour within the complex system consisting of core melt, fission products and concrete.

- Samples from thermite melt poured into concrete crucibles (large scale/ \sim 100 kg melt) were examined after cooling and cutting the crucibles.

Essential Results

- The melting point of corium E is higher than it was assumed till now. At a temperature of 3000 K the loss of weight by vaporization after 5 minutes is \sim 2 %, after 10 minutes \sim 4 %. These values are much lower than reported earlier.
- The sequence of the oxidation of the fission products and core components could slightly change as a result of reactions within the core melt. Fe is at least partially oxidized previous to Mo because it is combined with Cr in the melt, whereas the oxidation of Mo in metallic solution is retarded as a result of its affinity for the Pt-metals.
- Experiments in the complex system consisting of core melt, fission products and concrete have supported the findings obtained in the partial systems. Additional knowledge was obtained about the behaviour of the fission products during the solidification of the oxide melt. Depending on the type of concrete aggregates used either a homogeneous partition of the f.p. in the glass (silicate aggregates) or a heterogeneous partition to different crystalline phases containing U and Zr (limestone aggregates) was observed.
- The examination of thermite test materials has shown that the oxide thermite melt has taken up considerable amounts of MgO from the lining material of the boiler in which it was ignited. By the oxidation of the metallic melt in the concrete crucible essentially Cr-oxide, just a little Fe-oxide, but no Ni-oxide was produced. The oxide thermite melt has taken up about \sim 17 % to 45 % crucible materials (molten concrete).

Plans for the near future

- Investigations concerning the vaporization behaviour of core components and fission products in melts which do or do not contain concrete; the parameters are: chemical composition, degree of oxidation, temperature.
- Reaction experiments with corium and concrete in oxidizing atmosphere.
- Further examinations of specimens taken from large-scale melt tests with concrete crucibles (~ 100 kg of melt).

4246 Experiments on the Interaction between Steel Melts and Concrete.
Concrete Crucible Tests with Thermite Melts
(D. Perinic, B. Kammerer, H. Knauß, A. Mack, B. Stuka, RBT/IT)

Work Completed

Work was performed on the evaluation of the thermite tests and the results were summarized in a final report.

Also investigations were continued into the technical feasibility of tests involving large melts.

Essential Results

Evaluation of Concrete Crucible Tests with Thermite Melts

The asbestos-cement tubes did not rupture in any of the tests. By contrast, the concrete crucibles broke up irregularly at several points. The crack width on the external surface of the crucible was 2 mm at the maximum. All the upper faces as well as the inner wall of the crucibles were covered with solidified material which had been ejected. The surface of this layer mainly contained oxide superimposed at some points by well visible metallic splashes.

The line of interfaces was measured between the regulus, the molten up anthracite colored layer, the dehydrated grey layer, the partly dehydrated yellow-brownish layer, and the uncolored concrete. The irregular shrinking behavior gave rise to the formation of an approximately 5 mm wide gap between the metal regulus and the concrete. The interface between the metal melt and the concrete was formed by a 2 - 3 mm thick molten up, glassy layer of anthracite color. The dehydrated layer was not strong mechanically and crumbled at contact. Its axial thickness was 25 to 60 mm, whilst the radial thickness amounted to 70 mm. By its color the partly dehydrated layer differed clearly from the dehydrated layer and from the rest of concrete. Its axial thickness was 30 to 132 mm, its radial thickness more than 35 mm.

The temperature plots of the thermocouples embedded in the concrete allowed to determine the velocities of advancement of the 100°C and 800°C isothermal lines and of the melting front. The values lay between 2.6 and 148 mm/min for the 100°C isotherm, between 1.5 and 42.0 mm/min for the 800°C isotherm, and between 2.9 and 40 mm/min for the melting front and were strongly dependent on the temperature of the melting pool.

4247 Hydrodynamical and Thermal Models for the Interaction of a core melt with concrete

(H. Alsmeyer, W.B. Murfin, M. Reimann IRB)

Work Completed

- Generalization of the quasi steady-state heat conduction model for the decomposition of Silicaceous and lime-stone concrete.
- Implementation of the INTER code; development of the WECHSL code based on INTER; inclusion of the film model for horizontal surfaces in WECHSL;
- Check calculations of the thermite experiments with WECHSL;
- expansion of the film model to inclined walls.

Essential Results

When the calculated results of the concrete decomposition model are compared with experiments the concrete decomposition enthalpy is found to be in good agreement for silicaceous concrete. For lime-stone concrete, however, a considerable discrepancy exists which needs further investigation.

The evaluation of thermite experiments (topic o6.01.12) showed that the transient erosion of a horizontal concrete surface and the time dependent surface temperature of the melt agrees in tendency with the WECHSL calculations. The starting time of solidification processes as well as the maximum erosion depth also agree in order of magnitude with the experimental observations.

The results of the extended film model for the heat transfer to inclined walls was checked with model experiments (subliming dry ice slabs in water).

Plans for the Near Future

After the extended film model has been included in WECHSL cavity formation will be precomputed for the interaction of the melts with the concrete crucibles in the simulation experiments.

4300 DISTRIBUTION AND REACTOR PROCESSES OF NUCLEAR CONTAMINANTS
IN MAJOR INCIDENTS, THEIR DEPENDENCE ON TIME AND THEIR
MEASUREMENTS

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 Aero-
sols in LWR-Containments

(H. Bunz, C. Sack, W. Schöck, LAF I)

Work Completed

The assembly of the NAUA facility has been completed and the instrumentation has been installed and tested. The first series of experiments on steam condensation with aerosol at 100°C was conducted.

Essential Results

During a 17 Days' continuous test of the facility the performance of all systems was checked. Especially the operation of the adiabatic expansion system was tested and the underlying calculations were verified.

A series of condensation experiments at 100°C was carried out, using platinum oxide as an aerosol. The experimental data agree very well with the calculations before and after the very short transition phase from solid particles to droplets, indicating the validity of the condensation model. On the other hand the results show the expected deviation from the model calculations during the transition phase. It is possible, however, to fit the model to the data by means of a single parameter. This will be done when additional data at other temperatures have been obtained.

Plans for the Near Future

The condensation experiments will be continued covering the temperature range up to 150°C. The experiments will be carried out with UO₂-aerosol and soluble aerosols as well.

4320 Theoretical and Experimental Investigation 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 short-range (up to about 15 km distance from the source) six diffusion experiments have been performed using chemical tracers. Two tracer substances have been emitted simultaneously at two different heights from the meteorological tower. 3 of the experiments were carried out at night, when a stable stratification of the atmosphere had been established (emission height 60 and 100 m).

To investigate the transport and diffusion in the meso-scale (> 15 km distance) tetroons are started and tracked by radar. The radar-tracking is essentially improved by equipping the tetron by a transponder. Several tetron flights have been performed at Philippsburg (Rhine Valley) and at Bremen. These flights showed the limitations of radar tracking without transponder and the possible improvement by transponders. The development of transponder test samples, which can be tracked by the MBVR 120 radar, is initiated.

A 15 m high meteorological mast with a data-logging station is operated in a pasture area of small surface roughness (grade II). The collected data of turbulence parameters are compared to those generated in the KfK (roughness grade III).

Essential Results

The diffusion parameters for 100 m emission height have been confirmed by theoretical considerations. The influence of the evaluation method, the sampling time and the ground roughness has been investigated. The diffusion parameters of the KfK (Karlsruhe) and of the KFA Jülich have been combined into a common curve family.

The turbulence parameters measured over pasture area (roughness grade II) are compared to those measured over the forested ground in the KfK (roughness grade III) and showed to be essentially lower, especially during instable stratification.

The radiation exposure of the population living around the Karlsruhe Reprocessing Plant, being calculated with conservative assumptions as is customary in licensing procedures, is compared to that one calculated with realistic assumptions. It showed to be strongly overestimated by at least one order of magnitude, especially the ingestion doses.

Plans for the Next Future

The tracer experiments will be continued and concentrated on emission heights above 100 m.

Tetron flights will be performed in the Rhine Valley after the development of a lightweight transponder has been successful.

Field measurements are continued in 1978.

432o -TUH Modeling of Pollutant Dispersion in the Atmosphere
under Varying Conditions in Large Regions
(H. Schultz, E. Voelz, C.D. Wüneke, TU Hannover)

1. Work completed

The program XPIC was extended by introducing a particle fall velocity and an automatical plotting of isopleths of the concentration time integral and its computation-time was shortened by optimum programming.

Dispersion calculations have been performed with turbulent diffusion-coefficients, which have been appropriately derived from wind-fluctuations measured in the Kernforschungszentrum Karlsruhe. Using the new dispersion data from Pasquill (1974) different surface roughnesses have been included.

Finally investigations have to be performed to simplify the calculation of the concentration time integral by introducing a suitable substitute velocity.

2. Essential results

Combining the version A and B of XPIC inhomogeneities can now be handled in larger regions.

The diffusion coefficients, derived from fluctuation measurements at Karlsruhe, resulted in concentration time integrals, which agreed better to measured values than calculations made with other assumptions. Using the new data from Pasquill better simulations of realistic situations could be achieved.

3. Plans for the near future

Completion of programming for an easier handling of XPIC. Preparing a final report to the contract SR 21 with the BMI. Further the following activities are considered to be useful:

- Continuing the test calculations to the measurements at Karlsruhe.
- More exact calculations of isopleths of the external gamma-dose in inhomogeneous parts of the pollutant clouds respectively in areas with very different population densities.
- Impact of surface roughness on the concentration time integral.
- Investigation of a more realistic simulation of the dispersion near the surface.

433o Investigation of the Radiological Impact of Reactor Accidents
under Probabilistic Aspects

(W. Hübschmann, S. Vogt, ASS;
A. Bayer, K. Burkart, M. Schückler, INR;
F. Horsch, PNS/PL)

Work Completed and Essential Results

In the framework of the German Reactor Safety Study the consequence model is developed.

For the selected accident "late overpressure failure" the activity concentrations and health effects at a model site were calculated using the long range atmospheric diffusion model. The results were presented at the GRS review meeting in November 1977 in Munich.

For the calculation of the total risk for Germany the FRG was divided into 4 meteorological regions.

Various possibilities were investigated for the connection of direction independently calculated local doses with the population distribution. For the long distance part of the consequence model a proposal was developed.

The coordinates for the consequence model were slightly changed in order to take into account the decrease of the nuclide concentration in air by $\frac{1}{R^a}$ ($1 < a < 1.5$) for not too small distances from the source.

In the final version of the German Reactor Safety Study the probability distribution for genetic defects will be replaced by the genetically significant dose. Therefore, a proposal for the calculation of the genetically significant dose from the dose to the testes was derived.

Plans for the Near Future

Depending from a basic decision about the degree of independence of the German Reactor Safety Study from WASH-1400 the models and parameters will be revised and changed where necessary. The meteorological data for the 4 typical regions will be compiled and updated. Further accidents will be calculated as soon as their release data are delivered from the GRS.

4400 CONFINEMENT AND ELIMINATION OF THE CONSEQUENCES OF INCIDENTS

4410 Isolation and Removal of Contamination

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

Work Completed

The essential experiments are the preparation of contaminated standard samples, variation of decontamination paste composition, study of the paste effectiveness in relation to composition and of the behaviour of their components on waste treatment and solidification and estimation of waste production rates in comparison to liquid decontamination chemicals followed by the development of an application technique in thin layers for the paste. Basically the same experiments are carried out with molten salts. Optimization experiments are to be started for better cleansing effectiveness with a liquid cleanser and decontamination chemicals.

Essential Results

Optimization of a liquid cleanser

Base material for a liquid cleanser have been selected by DT analysis with respect to their thermal stability. With the most stable types cleansers have been mixed with foam regulating agents. To this basic mixtures complexing agents have been added and the decontamination effectiveness was tested.

The above mentioned mixtures show a definitely better thermal stability in comparison to currently used liquid contamination cleansers. Up to now the decontamination results compared with those of the Papan-Dekopan cleanser are better with respect to Ru-106, practically the same with respect to Cs-137, and poorer with respect to Co-60.

The turbidity in the optimized, alkaline cleansers could be eliminated by additives based on neutral phosphoric acid esters. There is no influence of this substance on foam generation, thermal stability and decontamination effectiveness. Comparative tests with 25 mixtures showed, that only three of them are effective and cause no disturbance on waste treatment and solidification for disposal.

Optimization of the Decontamination of Components

Experimental results show that decontamination results are better at a working temperature of 80°C. With respect to effectiveness and amount of waste generated 4 m nitric acid is the best choice. HNO₃/HF 4 concentration can be reduced by a factor of 2, leaving the effectiveness unchanged. The same result is found for the concentration of alkaline KMnO₄ solution; the removal of Ru-106 with it is excellent. Regarding organic acids the 1 % oxalic acid and the 0.2 citric acid/0.3 m oxalic acid mixture are the most effective.

Decontamination experiments with an AP-process as pretreatment showed the following results:

- The optimum combination in AP-solution (3 g KMnO₄ + 9 g NaOH per liter) and oxalic acid (1%);
- the reduction on waste mounts up to about 50 % with respect to other decontamination processes;
- to use this decontaminant in form of pastes gives worse results with samples contaminated in a reactor;
- decontamination results are poor using AP-solution together with various concentrations of citric acid;
- the same results are gained by addition of EDTA (Na-salt);
- in general, with respect to the Apox, CitroX and the N CitroX processes there is a reduction possible of the concentration of the chemicals applied.

Plans for the Near Future

Optimization of a liquid cleanser; the R&D-work is completed.

Optimization of the decontamination of components; the R&D-work is completed.

4412 Migration of long lived transuranium isotopes (Pu-239, Am-241)
in soil and geological formations

Relation of PuO₂-mobility to soil physical properties

(A. T. Jakubick, ABRA)

Work carried out

Three undisturbed soil profiles were used for the estimation of the dependence between mobility of particular PuO₂ and soil physical properties.

The sampling sites can be characterized as:

- 1) sandy soil (quarz, calcite)
- 2) loamy soil (quarz, chlorite, illite, feldspat, calcite)
- 3) clay-organic soil (quarz, chlorite, illite, mixed-layer clayminerals, feldspat, calcite).

The Pu-239 depth distribution (from the atmospheric nuclear tests) was estimated in the soil profiles.

By using the known Pu-239 input function and a mathematical model of migration, the residence time of PuO₂ in 2 cm thick soil layers was calculated. In the same course the relevant physical properties of these soil layers were determined and to correlation with the residence time investigated.

Results obtained

The following correlations were obtained:

- 1) residence time, τ in years - specific surface, s in m²/g

$$\tau = 0,214 s + 4,169$$

range 0,5 - 20 m²/g

2) residence time, τ in years - ionexchange capacity, T in mval/100 g

$$\tau = 0,137 T + 3,503$$

range 5 - 30 mval/100 g

3) residence time, τ in years - org. carbon, C in %

$$\tau = 0,583 C + 4,009$$

range 0,1 - 8 %

The correlation coefficients are about 0,50 - 0,53. This is quite adequate for in situ field investigations. However further measurements are needed for an interpretation of the correlations obtained.

Future work

This project is terminated.

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. Kaempffer, 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)

Entwicklung eines Tropfenabscheiders für Störfallbedingungen

Zur schnellen Abscheidung von Spaltjod und radioaktiven Schwebstoffen aus der Atmosphäre von Reaktor-Sicherheitsbehältern können Störfall-Umluftfilter eingesetzt werden. Diese Filter können sowohl nach kleinen Betriebszwischenfällen mit relativ geringer Aktivitätsfreisetzung als auch nach großen Störfällen betrieben werden. Sie bestehen aus Tropfenabscheider, Schwebstoff- und Jod-Sorptionsfilter.

Nach erfolgreichem Abschluß der Arbeiten am Jod-Sorptionsteil wurden Untersuchungen an einem von der Industrie speziell angefertigten Ganzmetall-Prallblechabscheider durchgeführt, die zeigten, das dieser Abscheider, selbst bei hohem Druckabfall, nur als Vorabscheider eingesetzt werden könnte.

Da die Spezifikationen eines für Optimierungsversuche geeigneten variablen Metallfaserabscheiders:

1. Einbaumaße entsprechend dem Techn. Prüfstand TAJFUN,
2. Probenahmestellen an jeder Einzelmatte,
3. Matten verschiedener Faserdicken in beliebiger Reihenfolge kombinierbar

von keinem industriellen Anbieter erfüllt wurden, mußte im LAF II ein geeigneter variabler Tropfenabscheider konstruiert werden. Abb. 4111-1 zeigt den Versuchsaufbau. Jeweils vier ca. 3 mm starke Lagen einer Faserstärke werden zu einer ca. 12 mm starken Einzelmatte zusammengefaßt, in einem Rahmen eingespannt und mit eigenem Wassersammelkasten und Ablauf versehen, um über die Messung der abgeschiedenen Wassermengen differentielle und integrale Abscheidegrade ermitteln zu können.

Zur Durchführung der experimentellen Arbeiten wurde mit einem neuen Teilchen-Meßgerät auf der Basis von weißem Streulicht das in TAJFUN erzeugte Tropfengrößenspektrum ermittelt. Hierbei zeigte sich eine gute Reproduzierbarkeit des Spektrums und eine mittlere Tropfengröße von ca. 2 - 5 μ . Die Spraydüsen erzeugen zwei ausgeprägte Maxima, die Randstrahlen liegen bei 2 μ , die Kernstrahlen bei ca. 4 - 5 μ m (Abb. 4111-2).

Abscheidungsuntersuchungen

Bei den ersten Versuchsreihen waren die Faserplatten nach fallendem Faserdurchmesser angeordnet. Ziel der Arbeiten ist es, mit möglichst wenig Faserplatten und niedrigem Druckabfall ausreichende Abscheidewirkung zu erzielen.

In Tab.4111-1 sind für Faserplatten aus bis zu 4 Platten mit Fasern verschiedener Stärke Abscheidegrade und Druckabfälle angegeben. Die Abscheidegrade erreichen hohe Werte bereits bei relativ geringem Druckabfall.

Die Abscheidegrade der hinteren Platten scheinen geringer zu sein als die vorgeschalteten gröberen Platten. Das liegt im weitaus geringeren Tropfenanteil begründet, wie Versuche mit vertauschten Platten zeigten.

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

In Zusammenarbeit mit der beauftragten Ingenieurfirma wurden die Konstruktionsarbeiten für den Einbau des Aerosolgenerators in TAJFUN abgeschlossen. Der Plasmagenerator und das für den Einbau notwendige Anschlußstück wurden im IV. Quartal 1977 geliefert. Nach Fertigstellung einer Versuchsbühne wurden die Plasma-Aerosolerzeugungsanlagen für Vorversuche aufgebaut, um vor Einbau in den Filterprüfstand weitere Erfahrungen für den Betrieb des Generators unter erhöhtem Druck sowie die Pulverdosisierung unter diesen Bedingungen zu gewinnen. Nach Abschluß dieser Versuche kann der Aerosolgenerator in TAJFUN eingebaut werden.

Die Entwicklungsarbeiten an den Störfallumluftfiltern sind somit bis auf den Tropfenabscheider und Schwebstofffilter-Teil abgeschlossen. Die dazu noch notwendigen Versuche werden im Rahmen des neuen Vorhabens zur Entwicklung störfallresistenter Abluftfilter durchgeführt.

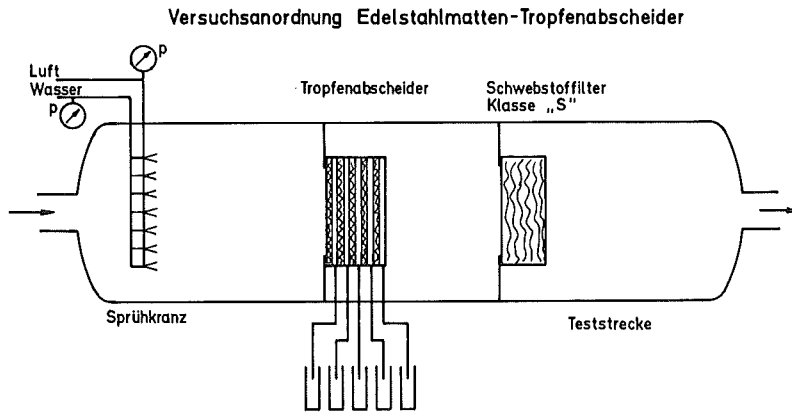
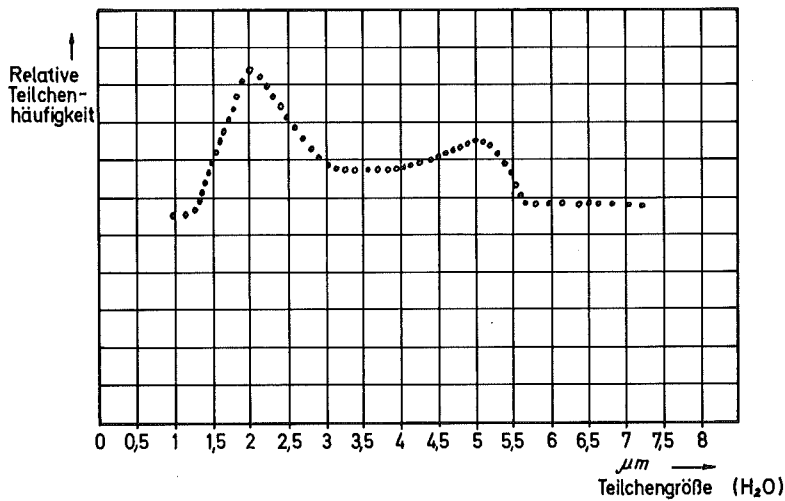


Abb. 4111-1:



Gemessenes Tropfenspektrum der Abscheiderversuche

Abb. 4111-2:

Tab. 4111-1: Abscheidegrade von Metallfaserpacks unterschiedlichen Aufbaues (Tropfenspektrum 2 - 5 μm) bei Raumtemperatur

Durchsatz Trägerluft [m ³ /h]	Aerosol- Massen- konzentration [g/m ³]	V _{1 in} [m/s]	Gesamt- Druck- Abfall [Pa]	Integraler Abscheidegrad η _i in %				Differentieller Abscheidegrad η _d in %			
				Faserpack aus Matten mit Faser-φ von				Faserpack aus Matten mit Faser-φ von			
				22 μ	22+12μ	22+12+8μ	22+12+8+4μ	22μ	12μ	8μ	4μ
200	63	0,23	700	97,88	99,00	99,61	99,96	97,88	53	61	90
300	31	0,34	900	99,46	99,914	99,98	≥ 99,99	99,46	84	77	≥ 50
400	110	0,46	1200	99,67	99,987	≥ 99,99	> 99,99	99,67	96	≥ 23	-
250	54	0,29	900	99,34	99,90	99,977	≥ 99,99	99,34	85	77	≥ 57
300	89	0,34	1000	99,33	99,90	≥ 99,99	> 99,99	99,33	85	≥ 90	-
400	68	0,46	1400	99,24	99,86	99,966	≥ 99,99	99,24	82	76	≥ 71
200	87	0,23	700	98,57	99,24	99,77	≥ 99,99	98,57	77	70	≥ 96
300	116	0,34	1200	99,45	99,90	99,983	≥ 99,99	99,45	82	83	≥ 41
400	96	0,46	1400	99,52	99,96	99,99	≥ 99,99	99,52	92	75	-

4112/1 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen

Prototypische Auflöser-Abgas Filterstrecke PASSAT

(J. Furrer, R. Kaempffer, E. Rudolf, M. Tuzek, LAF II;
K. Jannakos, A. Naschwitz, G. Potgeter, RBT/IT)

Der Aufbau der PASSAT-Anlage befindet sich vor der Fertigstellung. Die erste Versuchsphase umfaßt die Erprobung und Optimierung der prototypischen Komponenten für AZUR zur verbesserten WAK-Abgasreinigung in kalten Teststandversuchen.

Im Berichtszeitraum wurden in Zusammenarbeit mit RBT die Detailkonstruktionen der einzelnen Filterkomponenten erarbeitet, vom TÜV geprüft und an die Industrie zum Bau vergeben.

Die Aerosol-Abscheidekomponenten nach dem Kondensator des Auflöser wurden nach folgenden Gesichtspunkten ausgewählt:

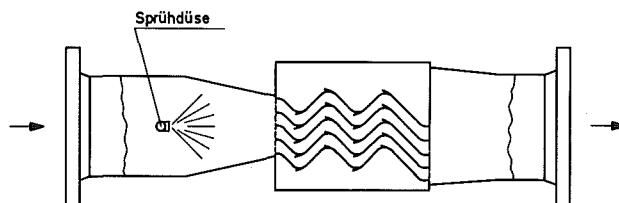
1. Tropfen-Aerosole müssen möglichst quantitativ abgeschieden werden, so daß die Flüssigkeit wieder in den Prozeß zurückgeführt werden kann. Der Anteil der Aerosole, die am Schwebstofffilter der Klasse S abgeschieden werden, soll so gering wie möglich gehalten werden.
2. Um hohe Abscheidegrade über lange Betriebsperioden aufrecht zu halten, dürfen nur Feststoff-Aerosole an den Schwebstofffiltern der Klasse S abgeschieden werden; Tropfen-Aerosole sollen in den vorangehenden Filterstufen durch geeignete Abtrenneinheiten zurückgehalten werden. Tropfen, die durch den Grobtropfen- und Nebelabscheider hindurchgehen, müssen einen so geringen Durchmesser aufweisen, daß sie leicht durch Erhitzen und Verdampfen beseitigt oder in Feststoff-Aerosole umgewandelt werden, bevor sie das Klasse S Filter erreichen.
3. Die Aerosolbeladung des Jod-Sorptionsfilters soll so gering wie möglich sein, so daß das beaufschlagte Jod-Sorptionsfilter möglichst ohne zusätzliche Abschirmung gehandhabt werden kann.

Ferner sollen die austauschbaren Abscheidekomponenten folgende vom späteren Betreiber gestellten konstruktiven Bedingungen erfüllen:

1. Die Hauptkomponenten müssen alle mit dem gleichen Fernbedienungsmechanismus betätigt werden können.
2. Die Komponenten sollen gleiche Außenabmessungen und gleiches Deckelsystem mit klappbarem, notbedienbarem Deckel besitzen.
3. Die Filtereinsätze sind in 200 l Abfallfässer zu lagern.
4. Alle Deckelöffnungen sollen sich auf gleicher Höhe mit dem dekontaminierbaren Boden befinden.

Da die Hauptkomponenten sehr unterschiedliche Funktionen besitzen, war die konstruktive Berücksichtigung der gesetzten Auflagen schwierig.

Die 1. Komponente ist ein Grobtropfenabscheider, der wartungsfrei und mit sehr hoher Standzeit arbeiten soll. Dieser Abscheider wird direkt in die Abgasleitung eingeflanscht. Er besteht aus gewellten Formblechen, auf deren Krümmung senkrecht zur Luftströmung verlaufende Fangrillen angebracht sind. Die Tropfen $> 10 \mu\text{m}$ prallen bei hoher Gasgeschwindigkeit durch ihre Trägheit auf die Formbleche und vereinigen sich zu einem Flüssigkeitsfilm, der durch die Luftströmung in die Fangrillen geschoben wird. In den Rillen vereinigt sich der Film zu Tropfen, die durch ihre Schwerkraft nach unten abgeleitet und in das Auflösesystem zurückgeführt werden (Abb. 4112-1)



GfK
LAFIL 52 1977

Abb. 4112-1: Fangrillenabscheider (Draufsicht) Passat Komponente I Abscheidung von Tropfen $> 10 \mu\text{m}$

Dieser Abscheider wirkt selbstabreinigend. Falls Salzverkrustung auftritt, wird in kurzen Sprühgängen über die am Gaseintritt liegende Sprühdüse eineinrichtung Wasser bzw. Salpetersäure versprüht, die die Verkrustung wieder ablösen. Im Versuchsprogramm wird die Beladung mit Salzen bzw. Lösungen und die Grenztropfengrößen durch chemische und physikalische Messungen untersucht.

Weiterhin wird die Abscheidung bei verschiedenen Tropfengrößenspektren und Massenkonzentrationen, der Temperatureinfluß, die Durchflußgeschwindigkeit und die jeweiligen Freispülraten untersucht.

Hinter dem Fangrillenabscheider befindet sich der fernbedienbare Faser-
mattenabscheider (Abb. 4112-2).

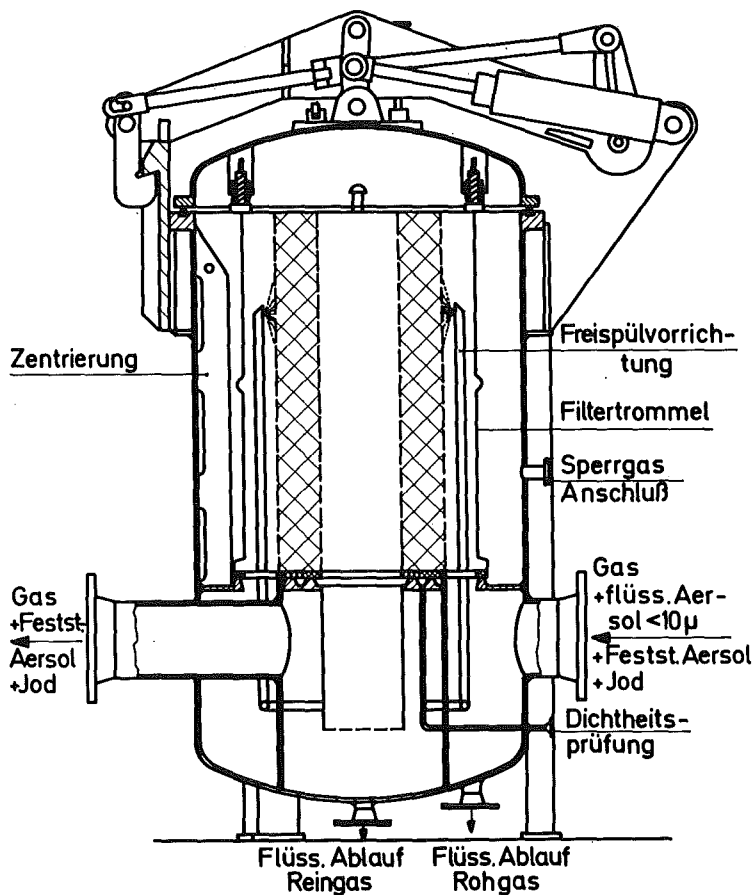


Abb. 4112-2: **Fasermatten-Abscheider Passat-Komponente II** Abscheidung von Tropfen $>10\mu$

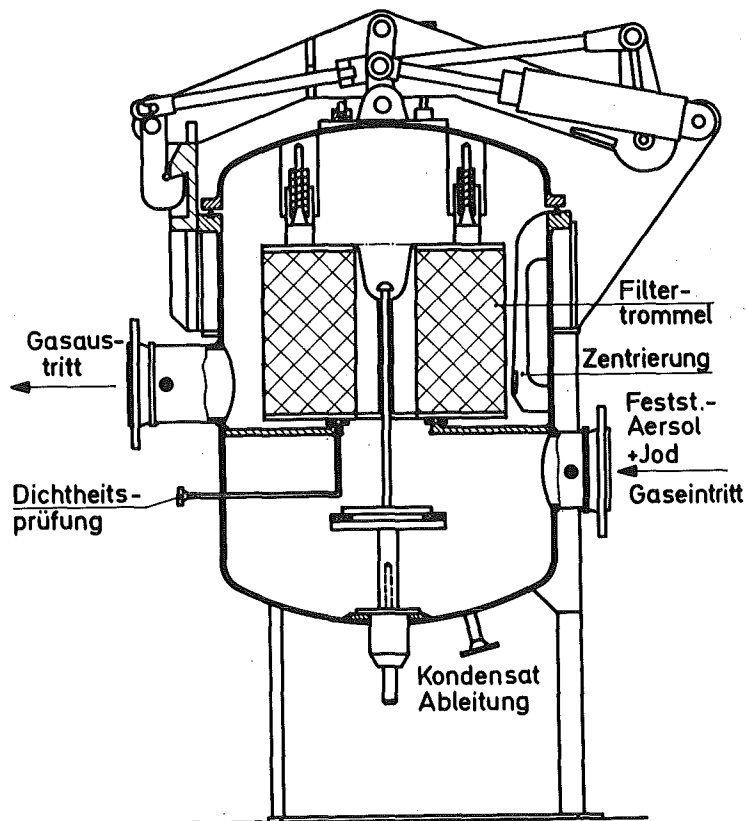
Er soll Flüssigkeitstropfen $< 10 \mu\text{m}$ mit einem Abscheidegrad $> 99 \%$ abscheiden. Weiterhin soll er als Grobfilter für Feststoffe verwendet werden, um die Standzeit des nachfolgenden Schwebstofffilters der Klasse S zu erhöhen. Nach Vorversuchen im Labor und an der Schwebstofffilterstrecke HAUCH am Head end Prüfstand wird die Durchströmung des Faserpaketes von außen nach innen bevorzugt (Größeres Außenflächenangebot und bessere Drainage).

Der eigentliche Abscheider besteht aus statistisch ausgerichteten Glasfasern von $20 \mu\text{m}$ Durchmesser. Beim Auftreffen von Tropfen werden diese von den Fasern zurückgehalten, vereinigen sich zu größeren Tropfen und wandern durch die Schwerkraft und die Druckdifferenz über das Faserpaket von außen nach unten innen zu dem entsprechenden Sumpf. Bei Verkrustung der Faserschicht mit Salzen wird die Freispülvorrichtung betätigt, so daß die in der Faserschicht kristallisierten Salze wieder gelöst und in den Auflöseprozeß zurückgegeben werden können.

Erste Versuche an einem von der Fa. Monsanto gelieferten Fasermattenabscheider mit einem Packungsdurchmesser von 150 mm und spezieller Packungsdichte, erbrachten an HAUCH für Tropfen zwischen 3 und $10 \mu\text{m}$ einen DF von 75.000 , der über die Nachweisgrenze bei bekannter Massenkonzentration errechnet wurde; die Abscheidewirkung des Fasermattenabscheiders für Feststoff-Aerosole mit Partikelgrößen zwischen $0,1$ und $1 \mu\text{m}$ ergab einen Abscheidegrad von $> 99 \%$.

In PASSAT wird die Optimierung des fernbedienbaren Einsatzes in Hinblick auf Packungsdurchmesser, Packungsdichte, Abscheidegrad und Druckabfall durchgeführt. Es wird die Beeinträchtigung der Abscheidewirkung durch Fremdsalzbeladung (lösliche und unlösliche Salze, GWK/KEWA-Forderung) sowie der Einfluß einer kontinuierlichen bzw. diskontinuierlichen Fremdreinigung durch Besprühung untersucht. Die Messung der Abscheidung von Tropfen erfolgt mit dem Streulichtverfahren.

Die 3. Komponente in PASSAT ist das Schwebstofffilter der Klasse S, Abb. 4112-3. Messungen des LAF II- und der WAK in den Auflöserabgasen des SAP Marcoule und der WAK zeigen, daß die üblicherweise angenommene Abscheideleistung von Schwebstofffiltern der Klasse S mit Abscheidegraden von $\geq 99,97$ für Aerosole im Submikronbereich für die Reinigung des Auflöserabgases nicht gelten.



OFK LAF II.52 1977

**Abb. 4112-3: Schwebstoff-Filter Passat-Komponente III
Abscheidung von Feststoff-Aerosolen**

Abscheideversuche mit Schwebstofffilterpapieren der Klasse S in Marcoule bzw. im Auflöserabgas der WAK ergaben Abscheidegrade der Papiere zwischen 99 und 99,4 % in Kurzzeit- und Langzeitversuchen. Im Fließschema der WAA müssen deshalb z. Z. noch zwei hintereinandergeschaltete Schwebstofffilter der Klasse S vorgesehen werden, wie sie bereits heute in abgeänderter Form in der WAK eingebaut sind. Zur Zeit bestehen Kontakte des LAF II zur Industrie, um mit einem modifizierten Filtereinsatz das beschriebene Problem zu lösen und die geforderten Abscheidegrade zu erreichen.

Als ein bereits in Wiederaufarbeitungsanlagen erprobtes Schwebstofffilter (WAK, Mo1) wurde das Hochleistungs-Schwebstoff-Kesselluftfilter der Firma CEAG-Dominit AG, Dortmund, ausgewählt. Diese Konstruktion, deren Filtereinsatz und Gehäuse bereits in der Weiterentwicklung sind, erlaubt einen

fernbedienten Wechsel ihres Filtereinsatzes mit erprobten Fernbedienungseinrichtungen. Anpassungen und Verbesserungen sollen in den einzelnen Versuchsphasen vorgenommen werden.

Folgende Untersuchungen sind vorgesehen:

- Untersuchung der Funktionstüchtigkeit der Gesamtkomponente.
- Weiterentwicklung und Vereinfachung des Filtereinsatzwechsels.
- Erprobung des weiterentwickelten Filtereinsatzes und Gehäuses.
- Untersuchung des Standzeitverhaltens (Korrosion der Bauteile, Alterung der Dichtungsmaterialien und des Filtervlieses).

Weiterhin soll ein integrales Leckprüfverfahren mit Testaerosolherzeugung durch Uranylнитratversprühung entwickelt werden, das als Vor-Ort-Prüfung in WAA eingesetzt werden kann.

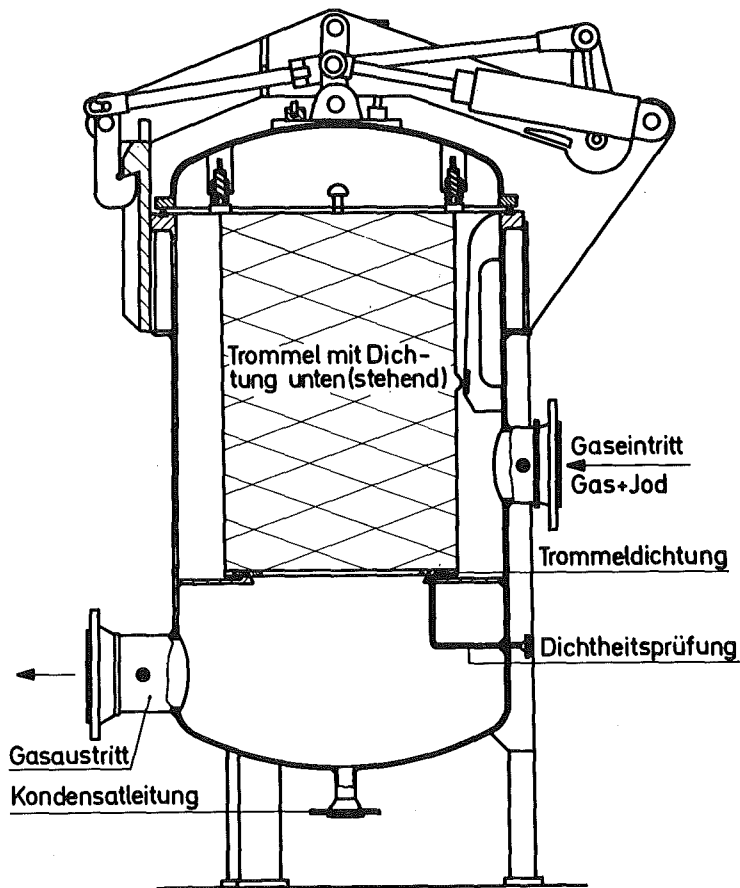
Die 4. und 5. PASSAT-Komponenten sind die zwei hintereinandergeschalteten Jod-Sorptionsfilter. Ziel der Erprobung der Jod-Sorptionsfilter ist der Nachweis der Funktionstüchtigkeit und der problemlosen Fernbedienung (Abb. 4112 - 4). Die Erprobung und Anpassung des Jod-Sorptionsmaterials erfolgt unabhängig in begleitenden Laborversuchen im LAF, in denen Abscheidegrad, Kapazität und Standzeit unter allen in einer Wiederaufarbeitungsanlage bekannten Parametern getestet werden (Abgaszusammensetzung, Abgastemperatur, Feuchte und Unterdruck). Parallel zu den Laborversuchen wird das Material einem Dauertest in einer neu vom LAF an der WAK aufgestellten Versuchsanlage unterzogen.

Die Untersuchung der Jod-Sorptionsfiltereinheit beschränkt sich in der Hauptsache auf die Prüfung der maschinenbautechnischen Ausführung der Anlage und der verwendeten Materialien. Bedingt durch die hohen Kosten des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120/H₁ sind nur zwei Beladungsversuche vorgesehen, wobei ein Filterwechsel vorgenommen wird, die Probennahme und die Funktionsfähigkeit der Halogensonde nachgewiesen werden soll.

- Prüfung der Dichtheit der Anlage.
- Prüfung der Funktion und Handhabung, ggf. Verbesserung.
- Überprüfung der Ausschleus- und Umsetztechnik.

- Überprüfung des Adsorptions- und Desorptionsverhaltens des Jodes.
- Ermittlung der Spülluftmengen und Spülzeiten.
- Prüfung der Eignung eines Anzeigerätes zum Filterwechsel bei voller Beladung der 1. Filterstufe (hierzu werden z. Z. Reihenuntersuchungen im Labormaßstab und an der WAK durchgeführt).

Voraussetzung für das Versuchsprogramm ist die Auslegung, Konstruktion und Bau eines Generators zur Aufgabe größerer Jodmengen, getracert mit I-131. Mit diesem Gerät soll die Auflöserjodabgabe simuliert werden. Schwierigkeiten bereitet die Handhabung von Jod in kg-Mengen und die kontinuierliche Einleitung von elementarem Jod in die Anlage. Die neu entwickelte Anlage wird z. Z. erprobt.



GfK LAF II. 52 197

Abb. 4112-4: Jodfilter Passat-Komponente IV+V Abscheidung von gasförmigen Jod-Verbindungen

Jod-Rückhaltung aus dem Auflöserabgas einer großen Wiederaufarbeitungsanlage mit dem Jod-Sorptionsmaterial AC 6120/H₁ bei hohen linearen Luftgeschwindigkeiten

(J. Furrer, R. Kaempffer)

Bei der Vorstellung des Fließbildes der Auflöserabgasstrecke der Wiederaufarbeitungsanlage mit einem Durchsatz von 1400 t/a Uran wurden die maximal zu erwartenden Abgasmengen im head end Auflöserabgas angegeben. Die Jodabscheidung an AC 6120/H₁ bei einsträngiger Abgasführung und der daraus resultierenden hohen Abgasgeschwindigkeit durch das Trommelfilter wurde im Labortest simuliert.

1. Annahmen für das Jod-Sorptionsfilter der GWA:

Technische Daten der Filtertrommel:

Durchmesser: 500 mm

Höhe : 690 mm

Volumen : 135,5 l

Daten des Auflöserabgases (nach Vorprojekt):

Abluft (max. hinter Auflösern) : 210 Nm³/h

Abluft für Jodstripper : 80 Nm³/h
+ 25 % Sicherheitszuschlag

Gesamtabgas am Jodfilter (berechnet): 362,5 Nm³/h

Annahme (max.) : 375 Nm³/h

anstehender Druck vor Jodfilter P_b : 0,7 bar

Temperatur am Jodfilter T_b : 423 °K

Durchfluß am Jodfilter V_b : 773,4 m³/h

Verweilzeit : 0,63 s

Bei kurzen Verweilzeiten der Abgase und hohen linearen Luftgeschwindigkeiten in den Jod-Sorptionsfiltern kann bei den hohen Jodkonzentrationen im Abgas einer GWA nicht ohne weiteres mit einer vollständigen Chemisorption des Jodes gerechnet werden.

2. Zur Bestimmung der Grenzanströmgeschwindigkeit wurden die Versuche bei folgenden Bedingungen durchgeführt:

Lineare Luftgeschwindigkeit im Filterbett:	v_1 : 63 cm/s	v_2 : 55 cm/s
Testbett-Temperatur	: 423 °K	
Testbett-Länge	: 76 cm	
Taupunkt	: 55°C	
Vorströmzeit	: 20 h	
Beaufschlagung	: 4 h	
Nachströmzeit	: 20 h	
Beladung	: 18,1 g I ₂ mit 1,0 mCi I-131	
Verweilzeit	: 1,2 s (bei v_1); 1,39 s (bei v_2)	
Material	: AC 6120/H ₁ (12 % Ag)	

Bei linearen Luftgeschwindigkeiten > 63 cm/s traten Störungen im Abscheidungsprofil des AC 6120/H₁ auf (Beispiel: gestrichelte Kurve in Abb.4112-5. Bei Reduzierung der linearen Anströmgeschwindigkeit auf ≤ 55 cm/s konnten die bisher gemessenen Abscheidungsprofile reproduziert werden (Abb.4112-5 durchgezogene Kurve).

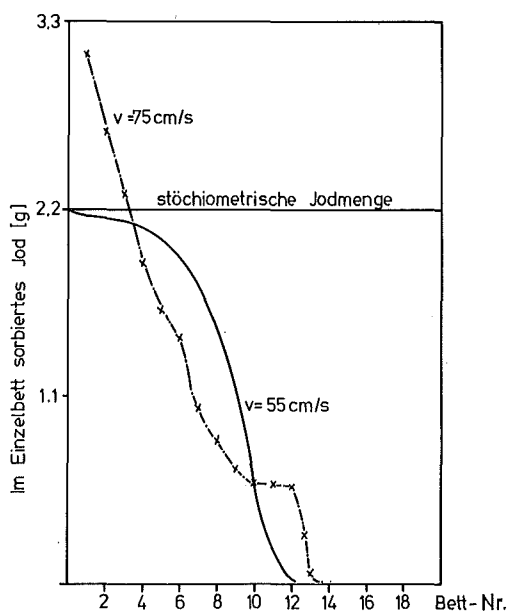


Abb. 4112-5: Abhängigkeit der I₂ Beladung eines AC 6120/H₁ Filterbettes von der Anströmgeschwindigkeit.

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

1. Prototyp-Abgasfilteranlage PASSAT

Gemäß dem Terminplan der PASSAT-Anlage wurde im 2. HJ 1977 mit den Montage- und Installationsarbeiten begonnen. Die Rohrleitungen sowie ein Teil der Hilfseinrichtungen und die Schaltwarte einschließlich Wartenschranke, Pult und Blindschaltbild wurden termingerecht geliefert und installiert. Die Einzelkomponenten wie Pumpen, Regelventile, Behälter, Kühler, Erhitzer wurden gemäß Prüfplan abgenommen. Die elektrische Verkabelung ist weitgehend abgeschlossen.

Für die TÜV-Begutachtung zur Erteilung einer Betriebsgenehmigung nach §3 der SSV sowie für die TÜV-Abnahme nach UVV ist ein Sicherheitsbericht erstellt worden. Mit diesem wird nachgewiesen, daß Vorsorgemaßnahmen getroffen sind, so daß beim Auftreten eines Störfalls weder das Betriebspersonal noch die Umgebung gefährdet werden.

Die TÜV-Prüfung der eingereichten Unterlagen sowie die TÜV-Abnahme der Einzelgeräte beim Hersteller sind abgeschlossen.

2. Filtergehäuse (Kesselbauweise)

Für die Rückhaltung der bei der Wiederaufarbeitung von bestrahlten Kernbrennstoffen freiwerdenden Aerosole und Jod wurde ein fernbedienbares Filtergehäuse entwickelt. Abb. 4112-6

Das Gehäuse ist in Druckbehälter-Bauweise ausgeführt und wird mit einem hydraulisch betätigten, klappbaren Deckel nach außen gasdicht verschlossen. Es eignet sich sowohl für die Aufnahme von Jodfiltertrommeln (Jodfilter) als auch für die Aufnahme von Filterpatronen für die Naßaerosol- und Schwebstoffrückhaltung (Fasermatten- und Schwebstofffilter)

Beim Ausfall der hydraulischen Fernbedienungseinrichtung des Filtergehäuses ermöglicht eine Notbedienungs Vorrichtung das Öffnen und Schließen des Filterdeckels, so daß ein Filterwechsel immer gewährleistet ist.

Sämtliche Unterlagen für die Fertigung, TÜV-Prüfung und -Abnahme wurden erstellt. Die TÜV-Vorprüfung ist bereits abgeschlossen. Mit der Fertigung von zwei Jodfiltern für den Einsatz in der PASSAT-Anlage wurde begonnen.

3. Fernbedienungseinrichtungen für das Auswechseln der Filter

Die Fernbedienungseinrichtungen dienen zur Handhabung von kontaminierten bzw. strahlenden Filtereinsätzen in der Filterzelle. Zu den Fernbedienungseinrichtungen gehören die Einrichtungen zur Bedienung der Zellen Schleuse und der Faßdeckelverschraubungseinrichtung sowie die Transporteinrichtungen und der Zellenkran.

Bei der Konzeption und Auslegung der genannten Einrichtungen wurde besonders Wert auf die Zuverlässigkeit und Funktionstüchtigkeit gelegt. Sie sind nach den einschlägigen Vorschriften und Normen sowie nach den KTA-Regeln 3902 gebaut.

Die Fernbedienungseinrichtungen sind mit Notbedienungs Vorrichtungen ausgestattet, so daß ein begonnener Wechselvorgang stets zu Ende geführt werden kann, auch wenn eine der genannten Einrichtungen während des Wechselvorganges ausfällt.

Die Filterzellenschleuse mit der Transporteinrichtung und die Faßdeckelverschraubungseinrichtung, die schon in den PNS HJ-Berichten 1976/2 und 1977/1 erläutert wurden, sind bereits gefertigt und werden an der PASSAT-Anlage zur Erprobung und Weiterentwicklung installiert.

Der Zellenkran ist bestellt. Er ist so ausgelegt, daß die Bedienung jeweils vom Bedienungspult der Filterposition vorgenommen werden kann, bei der ein Filterwechsel stattfinden soll. Die Standard-Bedienung erfolgt halbautomatisch. Für die Notbedienung der Filtergehäuse (Öffnen und Schließen des Filtergehäusedeckels beim Ausfall der hydraulischen Fernbedienung) ist eine Notsteuertafel vorgesehen. Sie kann jeweils an den entsprechenden Stecker der Filterposition angeschlossen werden, die notbedient werden muß. Die halbautomatische Kransteuerung ist dann außer Betrieb gesetzt.

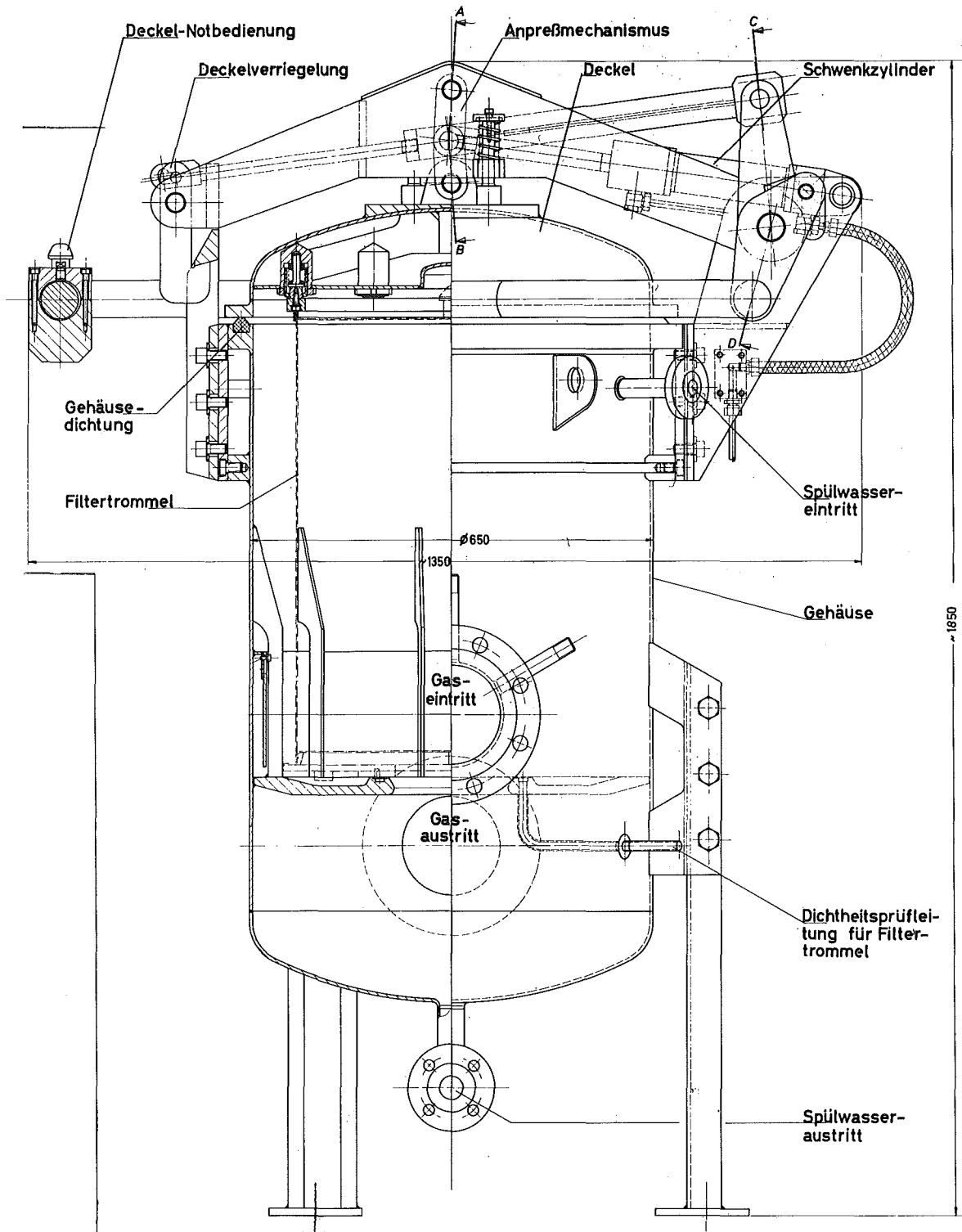


Abb.4112 - 6 Fernbedienbares Filtergehäuse mit Jodfiltertrommel
TÜV-Prüfzeichen 116-597/2-3.5.3-2004

4114/1 Abluftfilterung an Reaktoren

Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien

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

Frühere Arbeiten des LAF II zeigten, daß der schnelle Verlust an Abscheideleistung von Jod-Sorptionsfiltern auf die Schadstoffbeladung der Aktivkohle zurückzuführen war. Zur Erreichung längerer Filterstandzeiten wurde das MWS-Filter (Mehrweg-Sorptionsfilter) entwickelt.

Nach zweimonatigem Einsatz von Jod-Sorptionsbetten zur Simulation des MWS-Filtern im Abluftsystem des KKW Biblis B (s. KFK 2500, S. 116) liegen die Ergebnisse der ersten Untersuchungen vor.

1. Gaschromatographische Analyse auf Filterschadstoffe:

- a) Untersuchungsmaterial: Jod-Sorptionskohle SA 1565, 1 % KJ-imprägniert, angeordnet in zwei Schichten (entsprechend dem MWS-Filter), aus experimentellen Gründen aufgeteilt in je 10 Betten mit einer Einzelbett-Tiefe von 2,5 cm.

Die Jod-Sorptionskohle wurde 2 Monate mit der Anlagenraumabluft beaufschlagt, wobei die Verweilzeit berechnet für 50 cm Bett-Tiefe 1 s betrug.

Für die GC-Analyse wurden jeweils zwei der 20 Aktivkohlebetten zusammengefaßt und mit 60 ml p. A. Tetrachlorkohlenstoff 24 h in einer Soxhlet-Apparatur extrahiert. Zum Vergleich wurde frische, noch nicht eingesetzte Jod-Sorptionskohle derselben Charge herangezogen. Der Extrakt wurde mit p. A. Tetrachlorkohlenstoff auf 100 ml aufgefüllt und in den Gaschromatographen eingespritzt.

b) Arbeitsbedingungen am Gaschromatographen (FID):

Säule: 1,8 m; 1/8" Edelstahl

stationäre Phase: 2,5 Gew.% Apiezon M

Trägermaterial : Chromosorb G AW-DMCS, 80 - 100 mesh

Einspritzmenge : 1,0 µl

Trägergas : 25 ml N₂/min

Heizgas : 30 ml H₂/min; 240 ml synth. Luft/min

Temperaturen: FID 250°C

Einlaß: 200°C

Temperaturprogramm: 80 - 140°C

c) Ergebnis der GC-Analyse auf Filterschadstoffe:

Bett-Tiefe [cm]	Gesamt-Lösungs- mittel [mg]	Lösungs- mittel bezogen auf Kohle- einwaage [Gew. %]	Anteil Xylol [%]	Anteil Decan [%]	Anteil Kohlenwasser- stoffe (KW) mit hoher Retentionszeit [%]
5	477	5,96	7,6	-	92,4
10	501	6,26	39,3	7,1	53,6
15	501	6,26	69,8	3,5	26,7
20	482	6,02	90,7	0,9	8,4
25	448	5,60	97,2	0,3	2,5
					Rest ⁺⁾
30	339	4,24	98,7	-	1,3
35	377	4,71	98,6	-	1,4
40	303	3,79	98,8	-	1,2
45	232	2,90	97,8	-	2,2
50	139	1,74	94,0	-	6,0

⁺⁾ überwiegend KW mit niedriger Retentionszeit

Das Chromatogramm der GC-Analyse zeigte eine Beladung der Jod-Sorptionskohle mit organischen Lösungsmitteln mit den Hauptbestandteilen: Toluol, o-, m-, p-Xylol, Decan und Essigsäure-Estern, wie sie bei handelsüblichen Lackfarbenverdünnern (Nitroverdünner) verwendet werden. Die Vergleichskohle derselben Charge zeigte keinerlei Verunreinigung.

Aus der Schadstoff-Verteilung geht hervor, daß das Xylol während des Prüfstandbetriebes völlig durchgeschlagen ist, das Dodecan und andere KW mit hoher Retentionszeit aber durch die erste Schicht eines MWS-Filters praktisch vollständig zurückgehalten wurden.

2. Messung der γ -Aktivität:

Die Messung der γ -Aktivität der eingesetzten Jod-Sorptionskohle mit dem Ge(Li)-Detektor erbrachte nur einen dreifachen Nulleffekt, so daß auf eine Auswertung verzichtet wurde.

3. Messung des Abscheidegrades (η) von Jod-Sorptionskohlen:

Die Auswertung der Kontrollrohre zeigte infolge der Lösungsmittelbeladung einen geringen Verlust an Abscheideleistung in der ersten Aktivkohleschicht.

Bett 1 - 10: $\eta = 99,40\%$ (beladen)
 $\eta = 99,98\%$ (unbeladen)

Die durch Voradsorption geschützte zweite Schicht zeigte einen geringeren Verlust an Abscheideleistung. Durch nachfolgende Desorption der Schadstoffe von der vorbeladenen Aktivkohle konnte keine Verbesserung beobachtet werden:

Bett 11 - 20: $\eta = 99,94\%$ (beladen, kein zusätzlicher Desorptionsschritt)
 $\eta = 99,93\%$ beladen (5 h bei 90°C desorbiert).

Als Ursache dieses Effektes und des relativ geringen Verlustes an Abscheideleistung kann angenommen werden, daß die Lösungsmittelbeladung, die zum überwiegenden Teil aus Xylol bestand, bereits während der zur Vorbefeuchtung der Aktivkohle notwendigen 16 h Vorströmzeit im Abscheidungsversuch wieder durch den Luftstrom desorbiert wurde. Kontrollversuche mit 1 h Vorströmzeit sollen diese Frage klären. Hier handelt es sich eventuell um einen Effekt, der eine Modifikation des Standard-Prüfverfahrens für Kontrollfilterkohle nötig macht.

4. Überprüfung der Gewichtszunahme:

Nach einem Einsatz von zwei Monaten im Anlagenraum-Abluftsystem zeigte die Jod-Sorptionskohle eine durchschnittliche Gewichtszunahme von 20 Gew.%. Die über diesen Zeitraum gemessene Temperatur betrug; 26°C , die relative Feuchte: $\sim 65\%$. Durch 5 h Desorption bei 90°C wurden 90 % der Beladung entfernt.

In den nachfolgenden Desorptionsversuchen wird die ausgetragene Luft mit einem CaCl_2 -Rohr getrocknet und durch eine Kühlfalle geleitet werden, um das Lösungsmittel auszufrieren. Über den danach möglichen Gewichtsvergleich wird eine zusätzliche Information über die quantitative Zusammensetzung des adsorbierten Lösungsmittel-Wasser-Gemisches erreicht.

Ausblick:

Eine optimale Auslegung für ein MWS-Filter ist zu ermitteln und die Auslegungsdaten sollen dem Lizenznehmer (Fa. Krantz) zur Verfügung gestellt werden.

Versuchsprogramm 1978:

1. on line Bestimmungen der organischen Schadstoffe im KKW Biblis B mit einem kontinuierlich messenden Gaschromatographen,
2. Vor-Ort-Einsatz von Sorptionsbetten zur Bestimmung der Retentionszeiten der Filtergifte zwecks Optimierung der Auslegung des MWS.Filters,
3. Versuche zur Optimierung von Regenerationszyklen der Aktivkohlefilter,
4. Untersuchungen zur Bestimmung der Strömungslinien im MWS-Filter mit dem Ziel der optimalen Auslegung gegen Strömungskurzschlüsse.

4114/2 Bestimmung von Jodkomponenten in der Abluft kerntechnischer Anlagen

1. Vor-Ort-Versuche

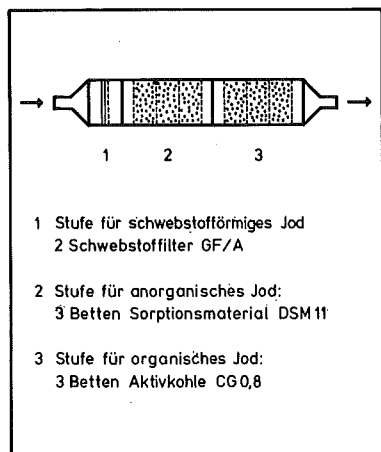
(H. Deuber)

Die Ablagerungsgeschwindigkeiten der Jodkomponenten anorganisches Jod (I_2), aerosolförmiges Jod und organisches Jod (CH_3I) verhalten sich bei Weidepflanzen etwa wie 100 ; 10 ; 1. Zur Berechnung der Ingestionsdosen, die aus der Abgabe von Radiojod in die Umgebung von kerntechnischen Anlagen resultieren, sind die Anteile der Radiojodkomponenten in der Kaminabluft zu bestimmen. Zur Verbesserung der Lüftungskonzepte von kerntechnischen Anlagen ist eine Bestimmung der Radiojodkomponenten in den relevanten Abluftströmen vorzunehmen.

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

Im vorhergehenden Berichtszeitraum wurden kontinuierlich Messungen mit diskriminierenden Jodsammlern zur Bestimmung der ^{131}I -Komponenten in der Kaminabluft zweier Kernkraftwerke (SWR 2, DWR 2) und eines Forschungsreaktors (FR) durchgeführt. Als I_2 -Sorptionsmaterial wurde DSM 11 eingesetzt, das im Vergleich zum I_2 -Sorptionsmaterial DSM 10 eine verbesserte Rückhaltung des I_2 in schadstoffhaltiger Abluft (Kaminabluft des FR) gezeigt hatte. Außerdem wurden Vergleichsmessungen mit weiteren I_2 -Sorptionsmaterialien (DSM 12 bis DSM 16) aufgenommen (KFK 2500, S. 119).

Im vorliegenden Berichtszeitraum wurden die Vergleichsmessungen abgeschlossen. Messungen mit diskriminierenden Jodsammlern unter Verwendung des als Standardmaterial ausgewählten DSM 11 wurden in der Kaminabluft des DWR 2 fortgesetzt und in der Kaminabluft sowie Digestorienabluft eines weiteren Kernkraftwerks (DWR 3) begonnen. (DWR 2 und DWR 3 sind von gleichem Bautyp.)



Diskriminierender Jodsammler

Abb. 4114-1

Es wurde der bereits beschriebene, in Abb.4114-1 wiedergegebene diskriminierende Jodsammler (mit ggf. anderem I_2 -Sorptionsmaterial) verwendet. Der Durchsatz betrug 3,6 bzw. $7,2 \text{ m}^3/\text{h}$ bei einer Verweilzeit von 0,05 s pro Bett. Die Sammelperioden umfaßten 1 Woche.

1.1. Messungen zum Vergleich verschiedener I_2 -Sorptionsmaterialien

Die Versuche wurden derart durchgeführt, daß parallel zum Sammler mit DSM 11 ein (oder mehrere) Sammler mit dem zu vergleichenden I_2 -Sorptionsmaterial unter gleichen Bedingungen betrieben wurde. Der Einsatz der Sammler erfolgte in der Kaminabluft des FR und in der Zuluft des Anlagenraumabluftfilters des DWR 3.

Die Ergebnisse sind in Tab.4114-1 verzeichnet. Tab. 4114-1 enthält ebenfalls die Resultate einer früher in der Kaminabluft des FR durchgeführten Vergleichsmessung mit DSM 10 und DSM 11 (KFK 2435, S. 127). Es zeigt sich, daß die bei Einsatz verschiedener I_2 -Sorptionsmaterialien festgestellten Leistungsindizes und Anteile des anorg. ^{131}I praktisch übereinstimmen, mit Ausnahme von DSM 10 und DSM 16 im Falle der Kaminabluft des FR.

Die Versuche bestätigen die Belastbarkeit der Ergebnisse von Messungen, in denen diskriminierende Jodsammler mit DSM 11 als I_2 -Sorptionsmaterial verwendet werden. DSM 11 wird auch weiterhin in diskriminierenden Jodsammlern eingesetzt, obwohl, abgesehen von DSM 10 und DSM 16, auch die anderen untersuchten Materialien zur selektiven Abscheidung von I_2 geeignet sind.

Tab. 4114-1: Vergleich verschiedener I₂-Sorptionsmaterialien (Einsatz in parallel betriebenen diskriminierenden Jodsammlern)

Einsatz- stelle	I ₂ -Sorptions- material	Leistungs- index (K) ⁺ [s ⁻¹]	Anteil des ¹³¹ I ₂ ⁺⁺ [%]
FR, Kamin- abluft	DSM 10	9	79
	DSM 11	16	89
	DSM 11	13	90
	DSM 12	11	88
	DSM 11	17	86
	DSM 13	17	86
	DSM 11	13	86
	DSM 14	15	85
	DSM 11	14	89
	DSM 15	15	88
	DSM 11	13	91
	DSM 16	9	88
DWR 3, Zuluft des Anlagenraum- abluft- filters	DSM 10	19	41
	DSM 11	22	40
	DSM 12	16	41
	DSM 11	16	9
	DSM 13	15	8
	DSM 14	15	10
	DSM 15	12	10
	DSM 16	13	10

⁺ 1. Bett (Verweilzeit 0,5 s); $K = \frac{\log DF}{t}$ [s⁻¹]
 DF = Dekontaminationsfaktor; t = Verweilzeit [s]

⁺⁺ 3 Betten (gesamte I₂-Stufe)

1.2. Bestimmung der Jodkomponenten in der Abluft von Druckwasserreaktoren

Die Ergebnisse der Messungen, die mit diskriminierenden Jodsammlern unter Verwendung von DSM 11 als I₂-Sorptionsmaterial durchgeführt wurden, sind in den folgenden Tabellen und Abbildungen wiedergegeben.

In den Tabellen ist die Nachweisgrenze der ¹³¹I-Komponenten (Nettozählrate gleich Standardabweichung der Nettozählrate) in Prozent, bezogen auf die insgesamt gemessene ¹³¹I-Aktivität, angegeben. (Die Nachweisgrenze kann also in den einzelnen Sammlerperioden verschiedene Werte annehmen.) Die Zehnerpotenzen der Werte für die ¹³¹I-Konzentration sind durch die Exponenten in Klammern wiedergegeben. In den Abbildungen wird noch das ältere Symbol für Jod verwendet.

Die Tab. 4114-2 und 3 sowie die Abb. 4114-2 bis 5 zeigen die Ergebnisse der Messungen in der Kaminabluft des DWR 2. Zur besseren Übersicht sind die im vorigen Berichtszeitraum, d. h. in den Sammlerperioden 6 bis 22 erzielten Resultate mit aufgeführt. Während 2 Wochen (Sammelperioden 38 und 39) konnten die Messungen aus technischen Gründen nicht einwandfrei durchgeführt werden.

Es ist folgendes zu entnehmen:

- a) Die ¹³¹I-Konzentration, die anfangs zwischen 10⁻¹³ und 10⁻¹² Ci/m³ lag, fiel zunächst ab und erhöhte sich in der Sammlerperiode 12 wieder auf einen Wert zwischen 10⁻¹³ und 10⁻¹² Ci/m³, der bis zum Beginn der Revision größenordnungsmäßig unverändert blieb. Während der Revision nahm die ¹³¹I-Konzentration fortlaufend ab und blieb nach dem Ende der Revision zwischen 10⁻¹⁴ und 10⁻¹³ Ci/m³.
- b) Schwebstoffförmiges ¹³¹I war in sehr geringen relativen Mengen vorhanden (meistens < 1 %).
- c) Der Anteil des anorg. ¹³¹I, der (bei Überschreiten der Nachweisgrenze) anfangs unter 10 % lag, stieg in der Sammlerperiode 12 auf fast 80 % an und sank in den folgenden Wochen auf Werte zwischen ca. 20 und 40 %. In diesem Bereich lag der Anteil des anorg. ¹³¹I bis zum Beginn der Revision. Zu dieser Zeit stieg er auf über 90 % an. Im weiteren Verlauf der Revision schwankte er zwischen ca. 10 und 50 %, Nach dem Ende der Revision fiel der Anteil des anorg. ¹³¹I auf Werte unter 20 %.

Der Mittelwert errechnet sich zu 31 %. (In dieser Rechnung ist für die Sammelperioden 8, 10 und 11 als Anteil des anorg. ^{131}I 0 % verwendet worden. Setzt man stattdessen der Nachweisgrenze entsprechende Werte ein, so ergibt sich ein Mittelwert des Anteils des anorg. ^{131}I von 32 %.)

Der Anstieg der Konzentration des ^{131}I und des Anteils des anorg. ^{131}I in der Sammelperiode 12 fällt mit einer Zunahme der ^{131}I -Konzentration im Kühlmittel nach einer kurzen Abschaltung des Reaktors zusammen. Der hohe Anteil des anorg. ^{131}I in der Sammelperiode 31 läßt sich auf das Öffnen des Reaktordruckbehälters zurückführen. (Dieser wurde in der Sammelperiode 31 geöffnet und in der Sammelperiode 36 wieder geschlossen.) Daß nach Öffnen des Reaktordruckbehälters keine höhere ^{131}I -Konzentration festgestellt wurde, dürfte darauf beruhen, daß während der Zeit der Revision das Spül-Luftfilter in Betrieb war.

Aus den Messungen in der Kaminabluft des DWR 3 geht folgendes hervor (Tab. 4114-4, Abb. 4114-6 und 7):

- a) Die ^{131}I -Konzentration, die zunächst etwas oberhalb von 10^{-12} Ci/m³ lag, stieg in der Sammelperiode 16 auf über 10^{-11} Ci/m³ an und fiel dann fortlaufend ab.
- b) Der Bruchteil des schwebstoff ^{131}I war meistens < 1 %.
- c) Der zeitliche Verlauf des Anteils des anorg. ^{131}I entsprach in etwa demjenigen der ^{131}I -Konzentration. Der Anteil des anorg. ^{131}I schwankte zwischen ca. 40 und 80 % und betrug im Mittel 59 %.

Der Anstieg der Konzentration des ^{131}I und des Anteils des anorg. ^{131}I in der Sammelperiode 16 koinzidiert mit einer Abschaltung des Reaktors zu Beginn dieser Sammelperiode. Am Ende der Sammelperiode 17 wurde der Reaktor wieder eingeschaltet.

Die Messungen in der Digestorienabluft des DWR 3 zeigen folgendes (Tab. 4114-5, Abb. 4114-8 und 9):

- a) Die ^{131}I -Konzentration schwankte zwischen ca. 10^{-11} und 10^{-10} Ci/m³.

- b) Der Prozentsatz des schwebstoff. ^{131}I lag meistens unter 1 %.
- c) Der Anteil des anorg. ^{131}I bewegte sich zwischen ca. 70 und 100 %.
Er betrug durchschnittlich 82 %.

Der Beitrag der Digestorienabluft zur Kaminabluft hinsichtlich der ^{131}I -Komponenten geht aus Tab. 4114-6 hervor. In den Sammelperioden 12 bis 14 lieferte die Digestorienabluft mehr als 70 % des anorg. ^{131}I . In den Sammelperioden 16 bis 18, in denen die ^{131}I -Konzentration in der Kaminabluft, verursacht offensichtlich durch einen anderen Abluftstrom, erhöht war, trug die Digestorienabluft zu weniger als 10 % zum anorg. ^{131}I bei, während sie in den Sammelperioden 19 und 20 mehr als 30 % des anorg. ^{131}I lieferte.

Nimmt man für die Sammelperiode 15, in der die Werte für den Beitrag der Digestorienabluft offensichtlich ungenau sind, einen Anteil des anorg. ^{131}I der Digestorienabluft am anorg. ^{131}I der Kaminabluft von 100 % an, so ergibt sich, daß die Digestorienabluft durchschnittlich 49 % des anorg. ^{131}I lieferte. Trotz des geringen Volumenstroms stellt die Digestorienabluft infolge des hohen Prozentsatzes des anorg. ^{131}I eine wesentliche Quelle für das in die Umgebung freigesetzte anorg. ^{131}I dar. Diese kann mit geringem Aufwand beseitigt werden.

Die Messungen mit diskriminierenden Jodsammlern werden in den genannten sowie beim DWR 3 in weiteren Abluftströmen bis zum Erreichen einer Meßdauer von jeweils 1 Jahr (in der Kaminabluft) fortgesetzt.

Tab. 4114-2: ^{131}I -Konzentration und Anteil der ^{131}I -Komponenten in der Kaminabluft des DWR 2

Zustand der Luft; schwebstoffgefiltert, teilweise jodgefiltert

Sammel- periode	^{131}I -Konzentration [Ci/m ³]	Anteil der ^{131}I -Komponenten [%]			NG ⁺ [%]
		schweb- stoff. ^{131}I	anorg. ^{131}I	org. ^{131}I	
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
23	1,6 (- 12)	< 1	27	73	< 1
24	1,7 (- 12)	< NG	27	73	< 1
25	1,0 (- 12)	< NG	24	76	< 1
26	7,3 (- 13)	< NG	36	64	< 1
27	9,5 (- 13)	< NG	25	75	< 1
28	7,6 (- 13)	< NG	35	65	< 1
29	3,5 (- 13)	< NG	43	57	< 1
30	3,8 (- 13)	< NG	33	67	< 1
31	1,1 (- 12)	< NG	93	7	< 1

+ Nachweisgrenze der ^{131}I -Komponenten

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

(Fortsetzung von Tab. 4114-2:

Zustand der Luft: schwefelstoffgefiltert, teilweise jodgefiltert

Sammel- periode	^{131}I -Konzentration [Ci/m ³]	Anteil der ^{131}I -Komponenten [%]			NG ⁺ [%]
		schweb- stoff. ^{131}I	anorg. ^{131}I	org. ^{131}I	
32	9,4 (- 13)	3	28	69	< 1
33	5,7 (- 13)	< NG	40	60	< 1
34	2,0 (- 13)	< NG	51	49	< 1
35	1,9 (- 13)	< NG	8	92	< 1
36	6,6 (- 14)	< NG	18	82	2
37	2,4 (- 14)	< NG	39	61	5
38	-	-	-	-	-
39	-	-	-	-	-
40	4,9 (- 14)	< NG	46	54	3
41	9,9 (- 14)	< NG	28	72	1
42	4,9 (- 14)	< NG	9	91	2
43	5,8 (- 14)	< NG	18	82	2
44	8,3 (- 14)	< NG	14	86	2

+ Nachweisgrenze der ^{131}I -Komponenten

Tab. 4114-4: ^{131}I -Konzentration und Anteil der ^{131}I -Komponenten in der Kamin-abluft des DWR 3

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

Sammel- periode	^{131}I -Konzentration [Ci/m ³]	Anteil der ^{131}I -Komponenten [%]		
		schweb- stoff. ^{131}I	anorg. ^{131}I	org. ^{131}I
10	1,7 (- 12)	< 1	62	37
11	1,3 (- 12)	< 1	58	42
12	4,1 (- 12)	5	82	14
13	1,2 (- 12)	< 1	46	53
14	1,5 (- 12)	< 1	49	51
15	1,0 (- 12)	< NG	46	54
16	2,5 (- 11)	< 1	78	22
17	1,4 (- 11)	< 1	68	31
18	6,1 (- 12)	< 1	59	40
19	2,7 (- 12)	< NG	49	52
20	2,0 (- 12)	< 1	54	45

Tab. 4114-5: ^{131}I -Konzentration und Anteil der ^{131}I -Komponenten in der Digestorienabluft des DWR 3

Zustand der Luft: nicht gefiltert
 Nachweisgrenze (NG) der ^{131}I -Komponenten: < 1 %

Sammel- periode	^{131}I -Konzentration [Ci/m ³]	Anteil der ^{131}I -Komponenten [%]		
		schweb- stoff. ^{131}I	anorg. ^{131}I	org. ^{131}I
12	1,2 (- 10)	< 1	97	3
13	2,3 (- 11)	< 1	76	24
14	2,5 (- 11)	2	87	11
15	2,9 (- 11)	2	88	11
16	7,9 (- 11)	< 1	77	23
17	5,8 (- 12)	< 1	73	27
18	1,5 (- 11)	< 1	83	16
19	1,9 (- 11)	< 1	85	14
20	2,1 (- 11)	9	75	16

Tab. 4114-6: Anteil der ^{131}I -Komponenten der Digestorienabluft an den ^{131}I -Komponenten der Kaminabluft (DWR 3) ⁺

Sammel- periode	Anteil [%]		
	anorg. ^{131}I org. ^{131}I	anorg. ^{131}I	org. ^{131}I
12	84	95	17
13	49	80	22
14	42	76	10
15	72	(139)	14
16	8	8	9
17	1	1	1
18	7	9	3
19	19	33	5
20	24	37	10

⁺ berechnet aus den jeweiligen Quellstärken der ^{131}I -Komponenten unter Verwendung folgender Volumenströme:

Kaminabluft : 165.000 m³/h

Digestorienabluft: 4.300 m³/h

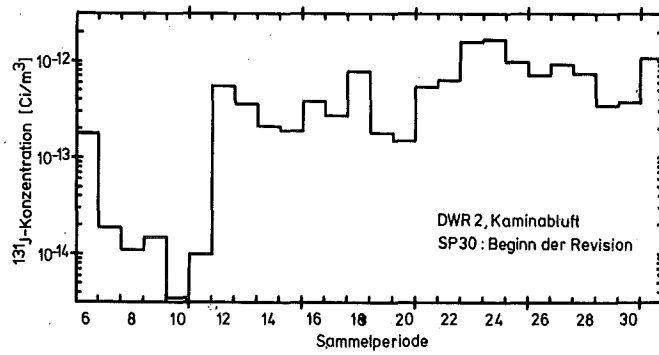


Abb. 4114-2

Zeitlicher Verlauf der ¹³¹J-Konzentration

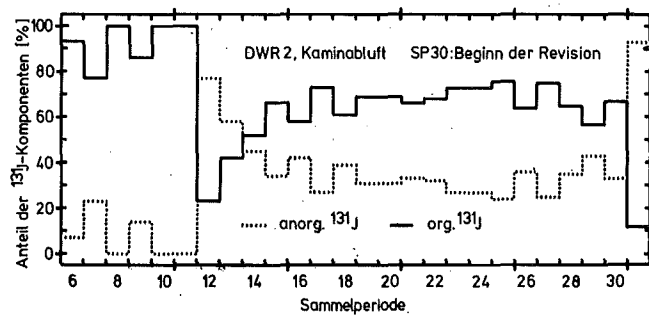


Abb. 4114-3

Zeitlicher Verlauf des Anteils der ¹³¹J-Komponenten

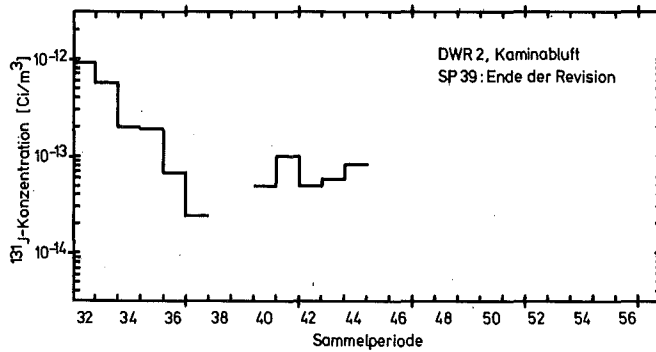


Abb. 4114-4

Zeitlicher Verlauf der ¹³¹J-Konzentration

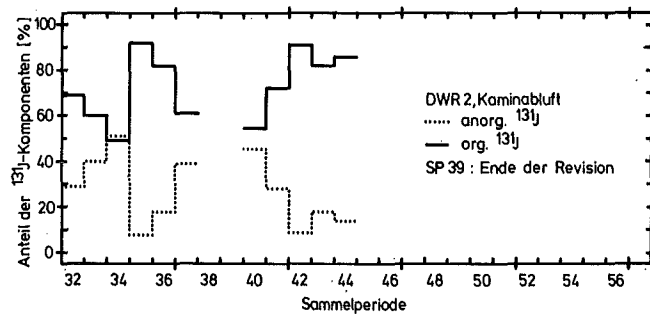


Abb. 4114-5

Zeitlicher Verlauf des Anteils der ¹³¹J-Komponenten

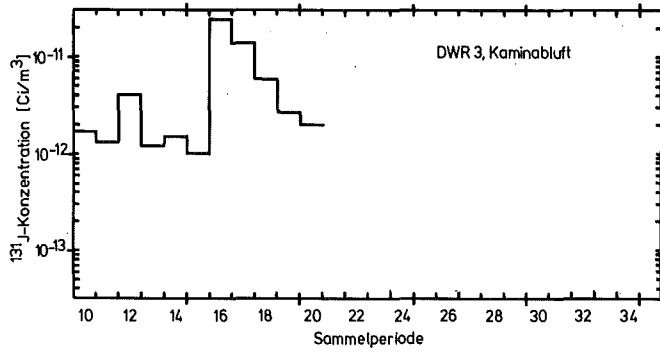


Abb. 4114-6

GRK LAF II 142377

Zeitlicher Verlauf der ^{131}I -Konzentration

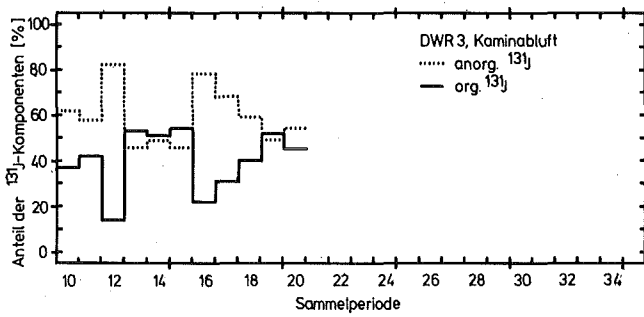


Abb. 4114-7

GRK LAF II 142377

Zeitlicher Verlauf des Anteils der ^{131}I -Komponenten

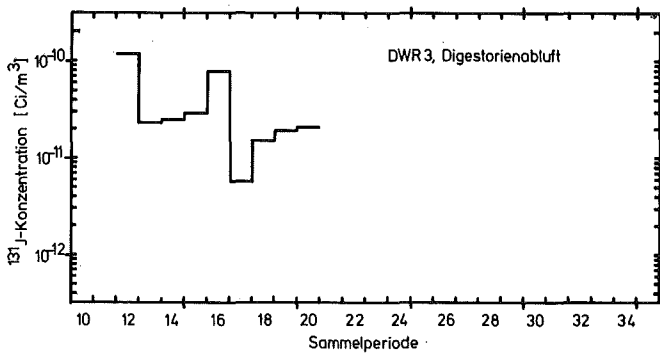


Abb. 4114-8

GRK LAF II 142477

Zeitlicher Verlauf der ^{131}I -Konzentration

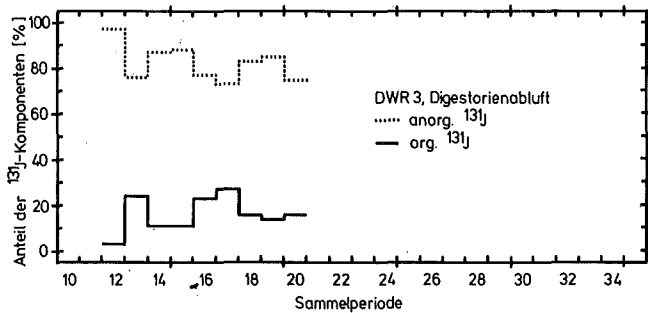


Abb. 4114-9

GRK LAF II 142577

Zeitlicher Verlauf des Anteils der ^{131}I -Komponenten

2. Laborversuche

2.1. Abscheidung von ^{131}I in Form von I_2 und CH_3I an verschiedenen Jod-Sorptionsmaterialien

(H. Deuber)

Das I_2 -Sorptionsmaterial DSM 11 war hinsichtlich der Abscheidung von ^{131}I in Form von I_2 bei mittlerer Temperatur und Feuchte (40°C , 50 % r.F.) geprüft worden. Es hatte sich bei 0,1 s Verweilzeit ein Abscheidegrad von > 99,9 % ergeben (KFK 2435, S. 127).

Im Berichtszeitraum wurde die Sorption von ^{131}I in Form von I_2 an DSM 11 im gesamten relevanten Temperatur- und Feuchtebereich geprüft. Außerdem wurde bei mittlerer Temperatur und Feuchte die Abscheidung von ^{131}I in Form von I_2 an den Materialien IPH und AC-HOI, die als Sorptionsmaterialien für HIO (hypoiodige Säure) auf dem Markt sind, bestimmt, da von den Herstellern keine genauen Angaben gemacht werden.

Die Resultate gehen aus Tab. 4114-7, Abb. 4114-10 und 11 bzw. Tab. 4114-8 hervor. Sowohl bei 10°C als auch bei 70°C liegt im untersuchten Feuchtebereich der Abscheidegrad von DSM 11 für I_2 bei 0,1 s Verweilzeit über 99,9 %. Die relativ geringe Abscheidung in größerer Bettiefe ist auf Vorliegen von geringen Anteilen an schwerer abscheidbaren Jodkomponenten (< 0,1 %) zurückzuführen. Die Sorptionsmaterialien IPH und AC-HOI scheiden I_2 bei mittlerer Temperatur und Feuchte (40°C , 50 % r.F.) und 0,1 s Verweilzeit zu mehr als 99 % ab.

Die Sorption von ^{131}I in Form von CH_3I an DSM 11 und AC-HOI war bereits im gesamten relevanten Temperatur- und Feuchtebereich geprüft worden. Es hatte sich bei 0,1 s Verweilzeit ein Abscheidegrad von < 0,5 bzw. 5 % ergeben (KFK 2500, S. 127). Bei IPH wurde im Berichtszeitraum bei 40°C , 50 % r.F. und 0,1 s Verweilzeit ein Abscheidegrad von < 0,01 % für CH_3I festgestellt.

Die Ergebnisse der Sorptionsversuche mit ^{131}I in Form von I_2 und CH_3I zeigen also, daß DSM 11 im gesamten relevanten Temperatur- und Feuchtebereich zur selektiven Abscheidung von I_2 geeignet ist. Weiterhin ist festzustellen, daß zur selektiven Abscheidung von HIO an IPH und AC-HOI eine Vorabscheidung von I_2 erforderlich ist. Bei AC-HOI kann die Selektivität der HIO-Abscheidung außerdem durch CH_3I -Abscheidung eingeschränkt werden.

Tab. 4114-7: Abscheidegrad von DSM 11 für ^{131}I in Form von I_2

Trägerkonzentration: 10^{-3} g/m^3

Vorströmzeit : $\geq 20 \text{ h}$

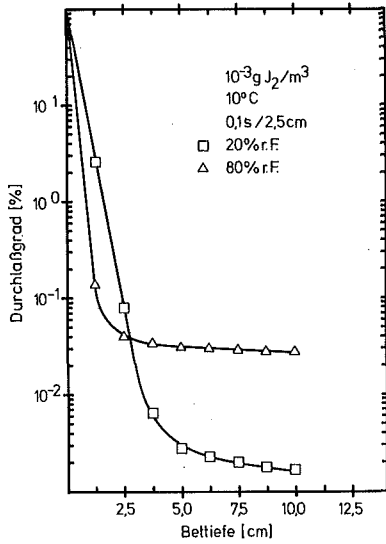
Verweilzeit : $0,1 \text{ s}/2,5 \text{ cm}$

Nachströmzeit: 2 h

Beaufschlagungszeit: 1 h

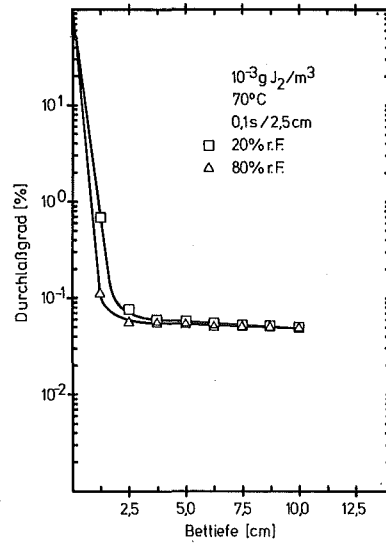
Bett-temp. [°C]	Luftfeuchte [%]	Bettiefe [cm]	Abscheidegrad integral [%]	Abscheidegrad differentiell ⁺ [%]
10	20	1,25	97,4	97,3
		2,50	99,919	96,9
		3,75	99,9934	91,8
		5,00	99,9972	57,0
		6,25	99,9977	18,3
		7,50	99,9980	13,2
		8,75	99,9982	10,3
		10,00	99,9983	6,8
	80	1,25	99,86	99,86
		2,50	99,961	72,9
		3,75	99,966	13,1
		5,00	99,969	7,6
		6,25	99,970	4,4
		7,50	99,971	2,1
70	20	1,25	99,30	99,30
		2,50	99,923	89,0
		3,75	99,940	22,5
		5,00	99,944	5,6
		6,25	99,946	3,8
		7,50	99,948	3,1
		8,75	99,949	2,8
		10,00	99,950	2,5
	80	1,25	99,900	99,900
		2,50	99,943	43,8
		3,75	99,946	4,9
		5,00	99,947	2,7
		6,25	99,948	1,8
		7,50	99,949	1,3
8,75	99,950	1,1		
10,00	99,950	0,9		

⁺ Abscheidegrad eines Bettes von 1,25 cm Tiefe



Durchlaßgrad von DSM 11 für ¹³¹I in Form von J₂ bei verschiedenen Luftfeuchten

Abb. 4.114-10



Durchlaßgrad von DSM 11 für ¹³¹I in Form von J₂ bei verschiedenen Luftfeuchten

Abb. 4.114-11

Die Sorption von ¹³¹I in Form von HIO an den genannten Materialien wird im nächsten Abschnitt behandelt.

Als Fortsetzung der Arbeiten werden selektive Jod-Sorptionsmaterialien für diskriminierende Jodsammler entwickelt, die in der stickoxidhaltigen Abluft von Wiederaufarbeitungsanlagen eingesetzt werden können.

Tab. 4114-8 Abscheidegrad verschiedener Jod-Sorptionsmaterialien für ¹³¹I
in Form von I₂

Trägerkonzentration: 10^{-3} g/m³
 Betttemperatur : 40 °C
 Luftfeuchte : 50 %
 Verweilzeit : 0,1 s/2,5 cm
 Beaufschlagungszeit: 1 h
 Vorströmzeit : \geq 20 h
 Nachströmzeit : 2 h

Jod-Sorptionsmaterial	Bettiefe [cm]	Abscheidegrad integral [%]	Abscheidegrad differentiell ⁺ [%]
IPH ⁺⁺	1,25	99,54	99,54
	2,50	99,55	0,9
	3,75	99,55	0,1
	5,00	99,55	0,1
	6,25	99,55	0,1
	7,50	99,55	0,1
	8,75	99,55	0,1
	10,00	99,55	0,2
AC-HOI ⁺⁺⁺	1,25	99,08	99,08
	2,50	99,14	6,4
	3,75	99,18	4,2
	5,00	99,19	2,1
	6,25	99,20	0,9
	7,50	99,21	0,4
	8,75	99,21	0,2
	10,00	99,21	0,1

⁺ Abscheidegrad eines Bettes von 1,25 cm Tiefe

⁺⁺ 20 - 40 mesh, 10 % 4-Jodophenol; Fa. NES, Rockville, USA

⁺⁺⁺ Fa. Aircont, West Hill, Kanada

2.2. Nachweis von gasförmiger unterjodiger Säure (HIO) und Entwicklung eines Prüfverfahrens mit ¹³¹I-markierter HIO

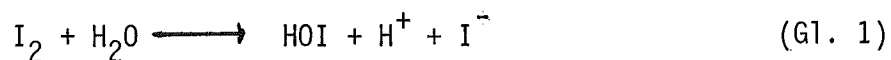
(G. Birke)

Die bisher im LAF durchgeführten Untersuchungen machen die Existenz einer gasförmigen Jodverbindung HIO wahrscheinlich, die zuerst von F.O. Cartan u.a. 1968 als Spaltjodbestandteil vermutet worden war. Da bisher nur an einigen Punkten (z. B. pH-Abhängigkeit) eine Korrelation der experimentell gefundenen Durchlaßprofile mit den chemischen Eigenschaften von HIO untersucht wurde, waren weitere Versuche zur Sicherung der Existenz von gasförmiger HIO notwendig.

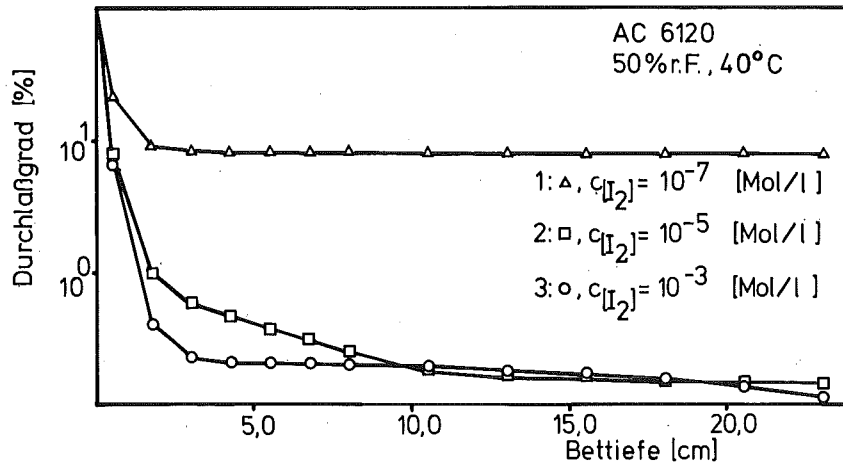
2.2.1. Sicherung der Existenz von gasförmiger HIO

In Ergänzung der im vorhergehenden Berichtszeitraum ermittelten experimentellen Daten (PNS-Halbjahresbericht 1/77) zum Nachweis von HIO in der Gasphase wurde eine Reihe von Versuchen durchgeführt, die das Reaktionsverhalten von elementarem Jod bzw. HIO in verdünnten wäßrigen Lösungen mit den Durchlaßprofilen korrelieren sollten.

Aufgrund des Hydrolysegleichgewichts von elementarem Jod (Gl. 1) ist bei starker Verdünnung der Lösung ein relativ größerer Anteil von HIO im Gleichgewicht zu erwarten. Dies sollte zu einem wachsenden Anteil auch an der verflüchtigten Jodmenge führen.



Dieser Zusammenhang ist aus Abb. 4114-12 nur zum Teil ersichtlich. Es ist dort die Durchlaßprofile von Versuchen aufgetragen, in denen bei sonst gleichen Darstellungs- und Beaufschlagungsbedingungen (Erzeugung von I₂ in JG (siehe Abb. 4114-16) durchleiten durch eine schwach alkalische Vorlage bei Zimmertemperatur; Beaufschlagung bei 40°C, 50 % r.F.) die Konzentration des elementaren Jodes im Gefäß JG variiert wurde. (Die Konzentration des Jodes in der Vorlage war nach Ende des Beaufschlagens ca. um den Faktor 10 kleiner als im JG.)



HIO-Erzeugung als Funktion der Jodkonzentration in JG

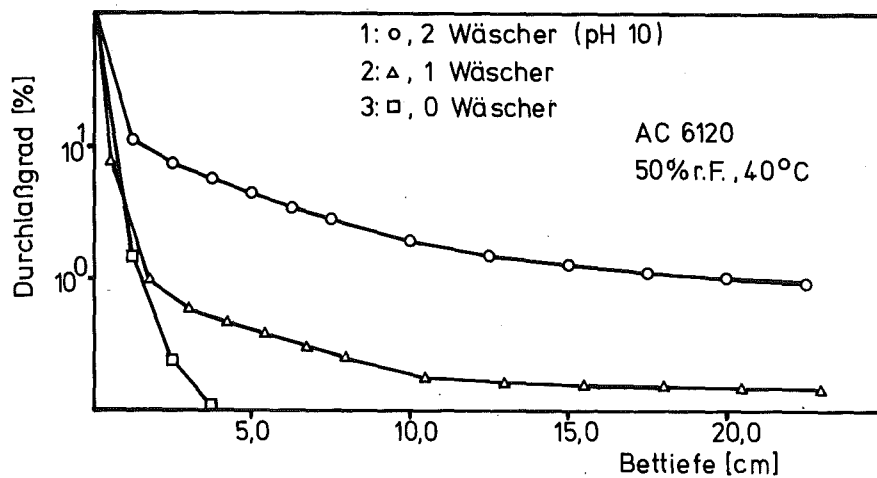
Abb. 4114-12

Zwar ist beim Übergang von $c_{I_2} = 10^{-3}$ Mol/l zu 10^{-5} Mol/l das Auftreten eines Bestandteils zu beobachten (Kurve 2), der im Bereich von 2 - 10 cm Bettiefe den Verlauf des Durchlaßprofils bestimmt. Dieser Bestandteil wurde in früheren Versuchen als HIO identifiziert.

Ein Anwachsen dieses Bestandteils beim Übergang zu $c_{I_2} = 10^{-7}$ Mol/l ist dagegen nicht festzustellen. (Kurve 1.) Ein größerer Anteil an HIO (> 2 - 3 %) ist aus dem Verlauf des Durchlaßprofils nicht zu erkennen; der gegenüber den Kurven 2 und 3 im Bereich von 0 - 1 cm Bettiefe flachere Verlauf der Kurve 1 läßt zudem vermuten, daß in diesem Fall kein oder nur wenig I_2 vorhanden war. Das Durchlaßprofil erklärt sich deshalb so, daß Methyljodid (und ähnliche organische Verbindungen) zu ca. 90 % vorliegen; der Rest sind Verbindungen unbekannter Zusammensetzung, die aus Verunreinigungen entstehen und bei den untersuchten Bedingungen von AC 6120 nicht absorbiert werden.

Dieser Befund kann auf die Randbedingungen der Versuche (Reinheit und Alter des ^{131}I -Präparates, Reinheit der Reagenzien, des Wassers usw.) zurückgeführt werden. Bei diesen geringen I_2 -Konzentrationen reagieren solch große Anteile des I_2 zu CH_3I und anderen leichtflüchtigen Verbindungen, daß ein Studium des Hydrolysegleichgewichts so nicht mehr möglich ist.

Da das Hydrolysegleichgewicht (Gl. 1) von elementarem Jod im alkalischen Bereich zugunsten HIO verschoben wird, sollte durch mehrfaches Waschen mit alkalischen Lösungen eine Anreicherung des HIO im Gasstrom erreicht werden können. Dies wurde experimentell bestätigt. (Abb. 4114-13) zeigt Durchlaßprofile von Versuchen (40°C , 50 % r.F.), bei denen das erzeugte elementare Jod ($c_{\text{I}_2} = 10^{-5} \text{ Mol/l}$ im JGG) durch 0, 1 bzw. 2 Wäscher durchgeleitet wurde, die mit verdünnter Natronlauge (pH 10) beschickt wurden.



HIO -Erzeugung mit alkalischen Wäschern

Abb. 4114-13

Der Anteil von $\text{HI}0$ an der verflüchtigten Jodmenge steigt von ca. 1 % bei Benutzung eines Wäschers auf ca. 15 % bei Zuschalten eines weiteren Wäschers an.

Zusammengefaßt sprechen folgende Gründe für die Existenz von gasförmiger $\text{HI}0$:

- die Durchlaßprofile von gasförmigem Jod im Sorptionsmaterial AC 6120 zeigen flache Kurvenverläufe, die durch alleinige Anwesenheit von I_2 und CH_3I nicht erklärt werden können. Der Anteil der entsprechenden Jodverbindung verändert sich nicht mit dem Alter der Jodlösung. Dies ist bei der Vorbildung des $\text{HI}0$ durch eine Gleichgewichtsreaktion zu erwarten.
- Die Menge dieser Jodverbindung im Gas ist vom pH-Wert der Lösung abhängig und zeigt ein Maximum im alkalischen Bereich. Durch alkalische Wäscher läßt sich der Anteil dieser Verbindung steigern. Soweit experimentell möglich, ließ sich eine Konzentrationsabhängigkeit vom Jod in der Lösung verifizieren.

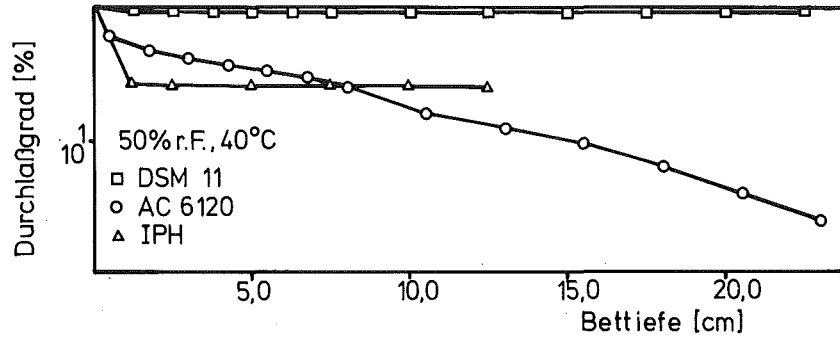
Die experimentellen Ergebnisse stehen deshalb mit dem Hydrolyseverhalten von $\text{I}_2/\text{HI}0$ in Übereinstimmung.

- Große Anteile an $\text{HI}0$ in der verflüchtigten Menge erhält man durch Umsetzung von I_2 mit Reagenzien wie HgO oder Ag_2O , die zur Umsetzung von Halogenen zu Hypohalogeniden im makrochemischen Bereich eingesetzt werden.

2.2.2. Entwicklung eines Prüfverfahrens für $\text{HI}0$

Ziel ist es, gasförmiges $\text{HI}0$ möglichst großer Reinheit bei guter Reproduzierbarkeit für die Beaufschlagung von Sorptionsmitteln darzustellen. Geeignet dafür ist deshalb die Methode, die Wäscher mit HgO oder Ag_2O zu beschicken, da schon bei einem Wäscher hohe Ausbeuten an $\text{HI}0$ erzielt werden können.

Abb. 4114-14 gibt die Durchlaßprofile von Versuchen wieder (40°C , 50 % r.F.), bei denen elementares Jod mit einem Stickstoffstrom durch 3 Wäscher, die mit Ag_2O beschickt wurden, durchgeleitet wurde.



KIK LAF II 14.58 77

Abb. 4114-14: Durchlaßprofile von $I_2/CH_3I/HIO$ -Gemischen in DSM 11, AC 6120 und IPH

Der anfänglich stärkere Abfall des Profils von AC 6120 läßt annehmen, daß sich im Gemisch noch ca. 30 % I_2 und CH_3I befinden. Bestätigt wird dies durch Versuche mit anderen Sorptionsmaterialien. Aus dem Durchlaßprofil von DSM 11 (einem spezifischen Sorptionsmaterial für I_2 , das CH_3I praktisch nicht absorbiert und auch - wie ersichtlich - HIO praktisch nicht unter den gewählten Bedingungen) läßt sich ein Anteil von 10 % I_2 entnehmen. Entsprechend kann aus dem Durchlaßprofil von IPH (IPH ist ein amerikanisches Sorptionsmaterial, spezifisch für HIO) der Anteil des organisch vorliegenden Jodes zu 25 % abgeschätzt werden.

Durch zusätzliches Vorschalten von einigen Betten Katalysatorträger AC 6111, imprägniert mit ausgefälltem Ag_2O (in Zukunft wird dieses Sorptionsmaterial i/1 benannt), wurde versucht, das restliche I_2 und CH_3I selektiv zu absorbieren bzw. in HIO umzuwandeln. Abb. 4114-15 gibt die Durchlaßprofile zweier

Versuche wieder. Beide Versuche unterscheiden sich durch unterschiedliche Beaufschlagungs- und Nachströmzeiten.

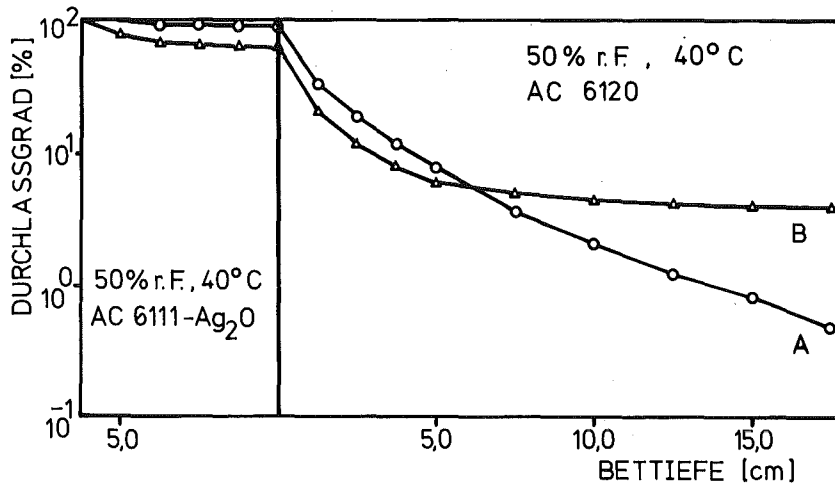


Abb. 4114-15: HIO-ERZEUGUNG MIT Ag₂O-IMPREGNIERUNG

Kurve A (1 Stunde Beaufschlagen, 1 Stunde Nachströmen) zeigt ein fast reines HIO an mit nur noch geringen Anteilen an Verunreinigungen (wahrscheinlich Methyljodid). Kurve B (2 Stunden Beaufschlagungszeit, 2 Stunden Nachströmzeit) zeigt gleichfalls hohe Anteile an HIO an, aber ebenso größere Anteile (4 %) an Verunreinigungen, die an AC 6120 nicht absorbiert werden sowie von I₂/CH₃I. Auffällig ist die bei Kurve B wesentlich größere (40 % gegenüber 10 %) Absorption von ¹³¹I-Aktivität auf den Ag₂O-impregnierten Betten.

Diese Ergebnisse legen den Schluß nahe, daß - wie erwartet - I₂ und/oder CH₃I zumindestens teilweise von i/1 absorbiert und als HIO desorbiert werden.

Dieser Desorptionsprozeß ist eine Zeitreaktion, wodurch sich die beiden unterschiedlichen Durchlaßprofile A und B erklären.

Wegen der durch dieses Reaktionsverhalten bedingten Unsicherheit bezüglich Reinheit und Reproduzierbarkeit des HIO wurde der Versuch einer Optimierung des Verfahrens auf diese Weise vorläufig eingestellt, weil eine andere Variante der HIO-Herstellung ähnlich gute Resultate (praktisch kein elementares Jod mehr im Gasgemisch) bei guter Reproduzierbarkeit ergibt.

2.2.3. Prüfung von Sorptionsmaterialien mit HIO

Mit dem im vorhergehenden Abschnitt beschriebenen Gemisch der ungefähren Zusammensetzung: I₂: 10 %; HIO: 65 %; CH₃I: 25 % wurden einige Sorptionsmaterialien beaufschlagt, um das Verhalten gegen HIO zu erforschen bzw. selektive HIO-Sorptionsmaterialien zu finden. Die Versuchsbedingungen waren generell 40°C, 50 % r.F. und 0,1 s Verweilzeit bei 2,5 cm Bettiefe.

Die Ergebnisse sind in der Tab.4114-9 zusammengestellt. (Die Sorptionsmaterialien werden nach Spezifität gegenüber I₂ und CH₃I unterschieden.)

Tab. 4114-9: Abscheidegrad eines Bettes von 2,5 cm Länge der in der 1. Spalte angegebenen Sorptionsmaterialien gegenüber den in der 1. Zeile aufgeführten 3 Jodverbindungen

Material	η [%]	η [%]	η [%] ⁺
	I ₂	CH ₃ I	HIO
DSM 10	> 99,9	< 0,1	< 10
DSM 11	> 99,9	< 0,1	< 1
DSM 17	> 99,9	< 0,1	< 1
IPH	> 99	<< 0,1	~ 99
AC-HIO	> 99	~ 1-2	~ 40
AC 6120	> 99,9	> 99	~ 60
CG 0,8	> 99,9	> 99	> 90

⁺ η: Abscheidegrad eines Bettes von 2,5 cm Länge

Es zeigt sich, daß einige spezifische Sorptionsmaterialien für elementares Jod (DSM 10, 11, 17), die auf der Basis des anorganischen Katalysatorträgers AC 6111 aufgebaut sind, für HIO, wie für CH_3I , geringes Sorptionsvermögen haben.

Sorptionsmaterialien, die Methyljodid gut abscheiden, scheiden - mehr oder weniger gut - auch HIO ab. Gegenüber dem AgNO_3 -imprägnierten anorganischen Material AC 6120 dürfte die höhere Abscheideleistung der Aktivkohle CG 0,8 (KI-imprägniert) auf der größeren inneren Oberfläche der Aktivkohle beruhen.

Die spezifische Abscheidung von HIO durch das Material IPH wird durch die Versuche bestätigt. Eine Spezifität des Materials AC-HIO (kanadisches Sorptionsmaterial, wird als spezifisch für HIO angeboten) für die Abscheidung von HIO läßt sich ebenfalls nachweisen. Verglichen mit dem Material IPH fallen die gegenüber Methyljodid geringere Trennwirkung und der geringe Abscheidegrad von ca. 40 % (für 2,5 cm Bettiefe) für HIO auf.

2.2.4. Entwicklung einer Prüfapparatur für HIO

Abb. 4114-16 zeigt das Fließbild der für die Sorptionsversuche mit HIO entwickelten Prüfapparatur.

Die Prüfstrecken mit Schwebstofffiltern (Whatman GF/A), Testbetten, Schwebstofffiltern und Sicherheitsbetten (CG 0,8) wurden doppelt ausgelegt. Der Gasstrom wird über Ventile auf beide Sorptionsstränge verteilt und die relative Gasmenge durch jeden Sorptionsstrang an G 2 gemessen. Diese doppelte Auslegung hat den Vorteil einer größeren Versuchskapazität; zusätzlich ermöglicht sie die nahezu identische Beaufschlagung verschiedener Sorptionsmaterialien, was gerade bei diskriminierenden Messungen von Vorteil ist.

Abgesehen von der größeren Anzahl der Wäscher hat sich gegenüber der im Halbjahresbericht 1/77 beschriebenen Darstellungsweise von I_2 bzw. HIO nichts geändert.

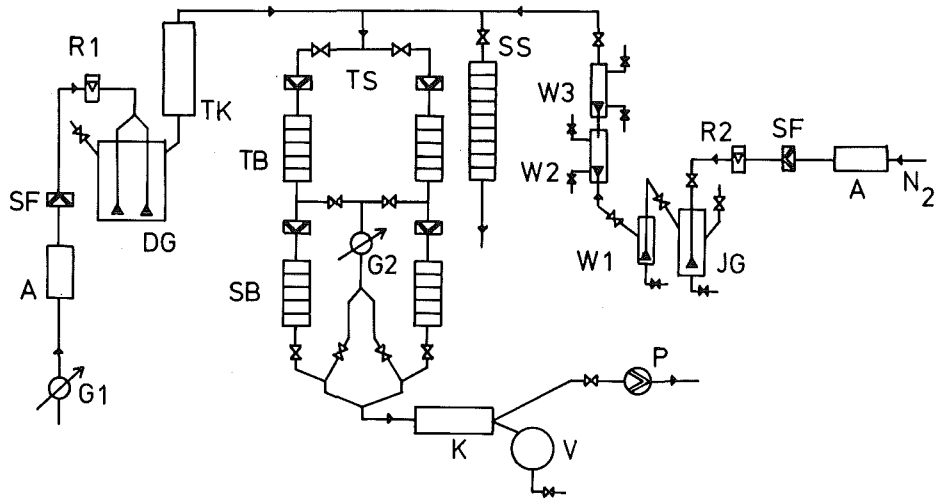


Abb.4114-16: Versuchsapparatur zur Darstellung von HIO

Zeichenerklärung:

- | | |
|------------------------|-----------------------|
| TS: Teststrecken | TB: Testbetten |
| SS: Sicherheitsstrecke | SB: Sicherheitsbetten |
| G : Gasuhr | K : Kühler |
| A : Aktivkohlepatrone | V : Vorratsgefäß |
| SF: Schwebstofffilter | JG: Jodgenerator |
| R : Rotameter | W : Wäscher |
| DG: Dampfgenerator | P : Pumpe |
| TK: Taupunktkühler | |

2.2.5. Weiterer Gang der Untersuchung

Nachdem die Entwicklung eines Prüfverfahrens mit gasförmiger HI0 weitgehend abgeschlossen wurde, steht nun die Untersuchung des Abscheideverhaltens dieser Jodverbindung an verschiedenen Sorptionsmaterialien im Vordergrund. Entsprechend den Auslegungsbedingungen des im LAF entwickelten diskriminierenden Jodsammlers im Bereich von 10 - 70°C und 20 - 80 % r. F. muß die Abscheidung von HI0 an den Materialien DSM 11 und IPH in diesem Bereich bekannt sein, um den Jodsammler um eine Stufe HI0 erweitern zu können. Ferner bleiben das Abscheideverhalten von Aktivkohlen und insbesondere Desorptionserscheinungen zu untersuchen.

4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten in Reaktor-
kreisläufen

4123 Reduktion der Aktivierung und Kontaminierung von Reaktorkreisläufen

I. Michael, R. Melcher

Die Untersuchungen der Metallabgabe von Dampferzeugerrohrwerkstoffen an Druckwasser (340° C, 150 bar) in Autoklaven hatte zum Ziel Trends zu erkennen, die bei Anwendung wasserchemischer Mittel eine Absenkung der Primärkreisaktivierung von Kernkraftwerken mit Druckwasserreaktoren erwarten lassen. Dazu war im letzten Teilbericht (KfK 2500, S. 140) der signifikante Einfluß des Sauerstoffgehaltes im Deionat auf den Metallgehalt im Druckwasser der Hauptlegierungskomponenten gezeigt worden.

Dieser Bericht präsentiert die Ergebnisse über die Metallgehalte im Druckwasser nach 300 Stunden, wenn einmal für INCOLOY alloy 800 eine Alkalisierung des Ausgangswassers (Deionat) bis zum pH9 erfolgt, und wenn andererseits ebenfalls beim pH9 ein Vergleich der Metallabgabe nach 300 Stunden von INCOLOY alloy 800 und NICROFER 3220, Werkstoff-Nr. 1.4876 (gültige für beide Werkstoffe) herangezogen wird.

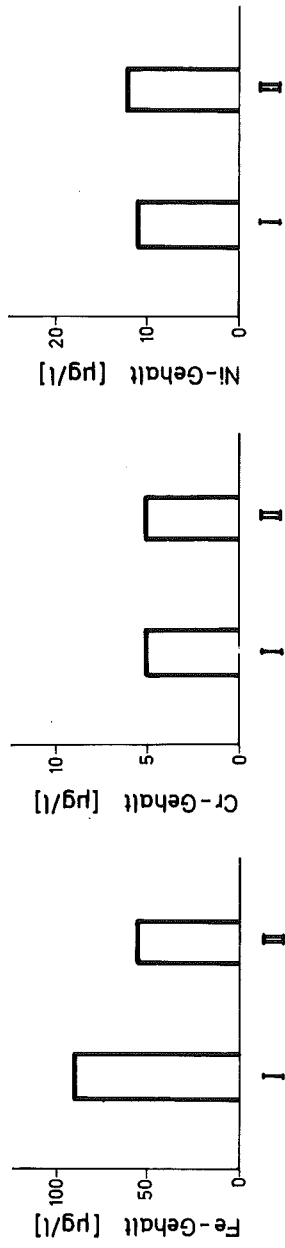
Schließlich wird der von NICROFER 3220 an Druckwasser abgegebene Metallgehalt gezeigt, wobei im Ausgangswasser die pH-Werte 7, 9 und 10,5 eingestellt worden waren.

Abb. 4123-1 zeigt die an das Druckwasser abgegebenen Hauptlegierungskomponenten von INCOLOY alloy 800, einmal von Deionat (pH7) ausgegangen und zum andern mit LiOH-Zusatz bis zum pH9 alkalisiert. Es ist für alle drei Elemente eine merkliche Abnahme der Konzentration zu erkennen.

Abb. 4123-2 zeigt den Vergleich zwischen INCOLOY 800 und NICROFER 3220 bei sonst gleichen wasserchemischen Bedingungen (pH9). Hier ist nur noch beim Eisengehalt ein deutlicher Unterschied mit niedrigeren Werten für NICROFER 3220 zu erkennen.

Abb. 4123-3 zeigt schließlich die von NICROFER 3220 abgegebenen Metallgehalte bei pH7, 9 und 10,5. Dabei fällt auf, daß sich der Eisengehalt nur noch ganz geringfügig ändert. Die Chrom- und die Nickelgehalte verhalten sich quasi komplementär.

Wenn davon ausgegangen wird, daß das INCOLOY 800 Probenmaterial kaltgewalzt und damit einen um 1/5 kleineren mittleren Korngrenzendurchmesser zeigte als das warmgewalzte NICROFER-Material, so drängt sich beim Betrachten dieser Ergebnisse auf, daß die Materialauswahl und vor allem die mechanisch-thermische Vorbehandlung der Werkstoffe für die Metallabgabe an Druckwasser von größerem Einfluß sind, als die wasserchemischen Maßnahmen. Es kann jedoch kein Zweifel darüber bestehen, daß beide Einflüsse beachtet und weiterverfolgt werden müssen.



Fe-, Cr- u. Ni-Gehalte in Druckwasser von INCOLOY 800-(I) u. NICROFER 3220-Proben (II) n. 300 Std., 340°C, 50ppb O₂, LiOH, pH 9

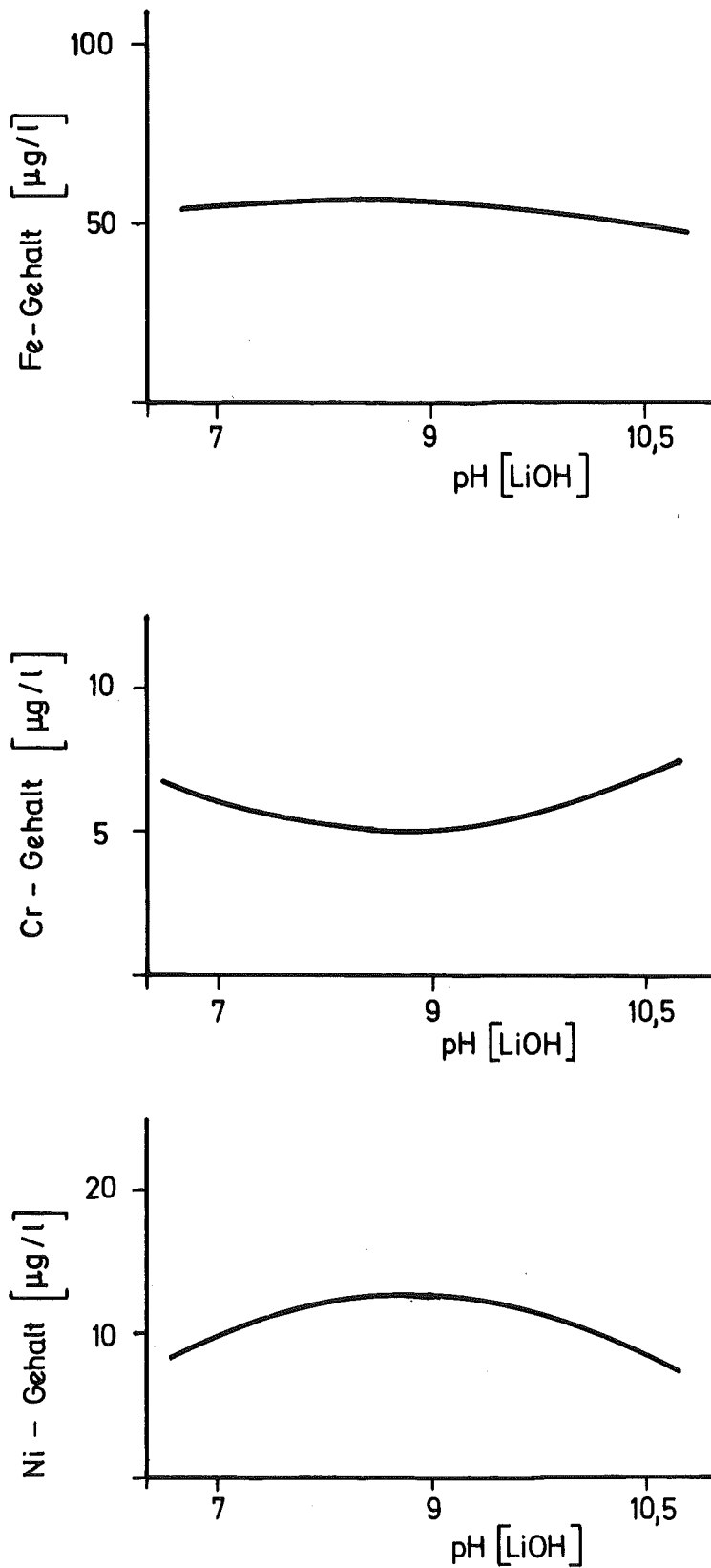
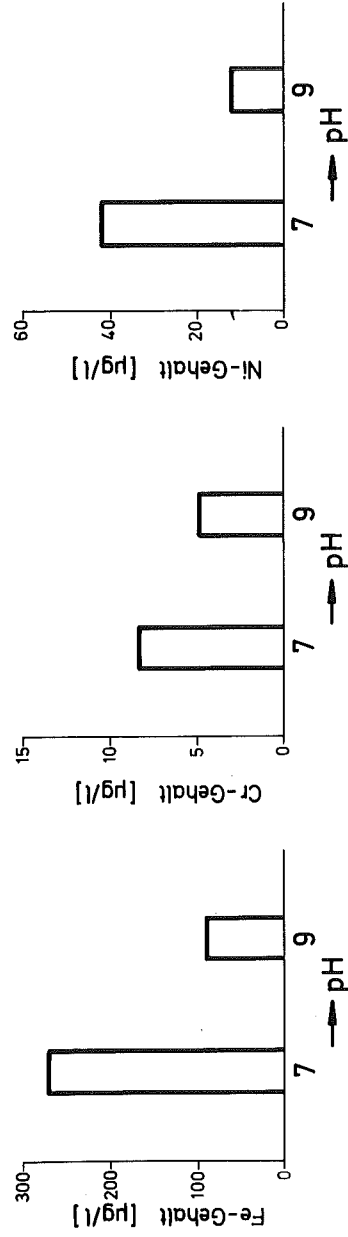


Abb. 4123-3

Fe-, Cr- u. Ni - Gehalte von NICROFER 3220 in Druckwasser (340 °C 150 bar) nach 300 Std. in Abhängigkeit vom pH Wert von LiOH (25 °C)



Fe-, Cr- u. Ni-Gehalte in Druckwasser von INCOLOY 800-Proben
n. 300 Std., 340°C, 50ppb O₂, LiOH, pH 7 u. 9

Abb. 4123-2

- 4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung
4132 Untersuchungen zur Radioökologie des J-129
(H. Schüttelkopf, ASS)

1. Die Bilanzierung des ^{129}J in der WAK

Um das Ausmaß möglicher Freisetzungen von ^{129}J aus einer Wiederaufarbeitungsanlage im Detail zu erfassen, wurde seit 1975 die Verteilung des ^{129}J in und die Abgabe aus der WAK gemessen. Dazu wurden chemische und meßtechnische Methoden entwickelt und in Zusammenarbeit mit der WAK ca. 3 000 ^{129}J -Bestimmungen in verschiedenen Probematerialien durchgeführt.

Von den zwischen November 1975 und August 1977 durchgesetzten ^{129}J wurden ≥ 99 % während der Auflösung in das Abgas freigesetzt. Der in der Speiselösung verbliebene Anteil von < 1 % verteilt sich auf das Konzentrat der hochaktiven Abfalllösung, die mittelaktiven organischen und wässrigen Abfalllösungen und die niedrigaktiven Abfalllösungen. Maximal 0,1 bis 0,3 % des ^{129}J -Durchsatzes gelangen mit dem Konzentrat der hochaktiven Abfalllösungen in den Lagerbehälter. Im Lagerbehälter selbst wurden nach 6-jährigem Betrieb der WAK 0,05 % des ^{129}J -Durchsatzes gefunden (Abb. 4132-1)

Mit den wässrigen mittelaktiven Abfalllösungen, den organischen mittelaktiven Abfalllösungen und den niedrigaktiven Abfalllösungen werden im Durchschnitt 0,4 %, 0,3 % und 0,13 % des ^{129}J -Durchsatzes der WAK zur Abwasserreinigung abgegeben. Die wässrigen Abfälle werden in der Abteilung Dekontaminationsbetriebe destillativ gereinigt. Dabei wird Jod mit einem Dekontaminationsfaktor von ca. 50 zurückgehalten. Die ^{129}J -Abgabe in den Altrhein mit den wässrigen Abfällen beträgt 0,04 % des ^{129}J -Durchsatzes der WAK. Mit der Abluft der WAK wurden im Durchschnitt 0,5 % des ^{129}J -Durchsatzes abgegeben. (Abb. 4132-2).

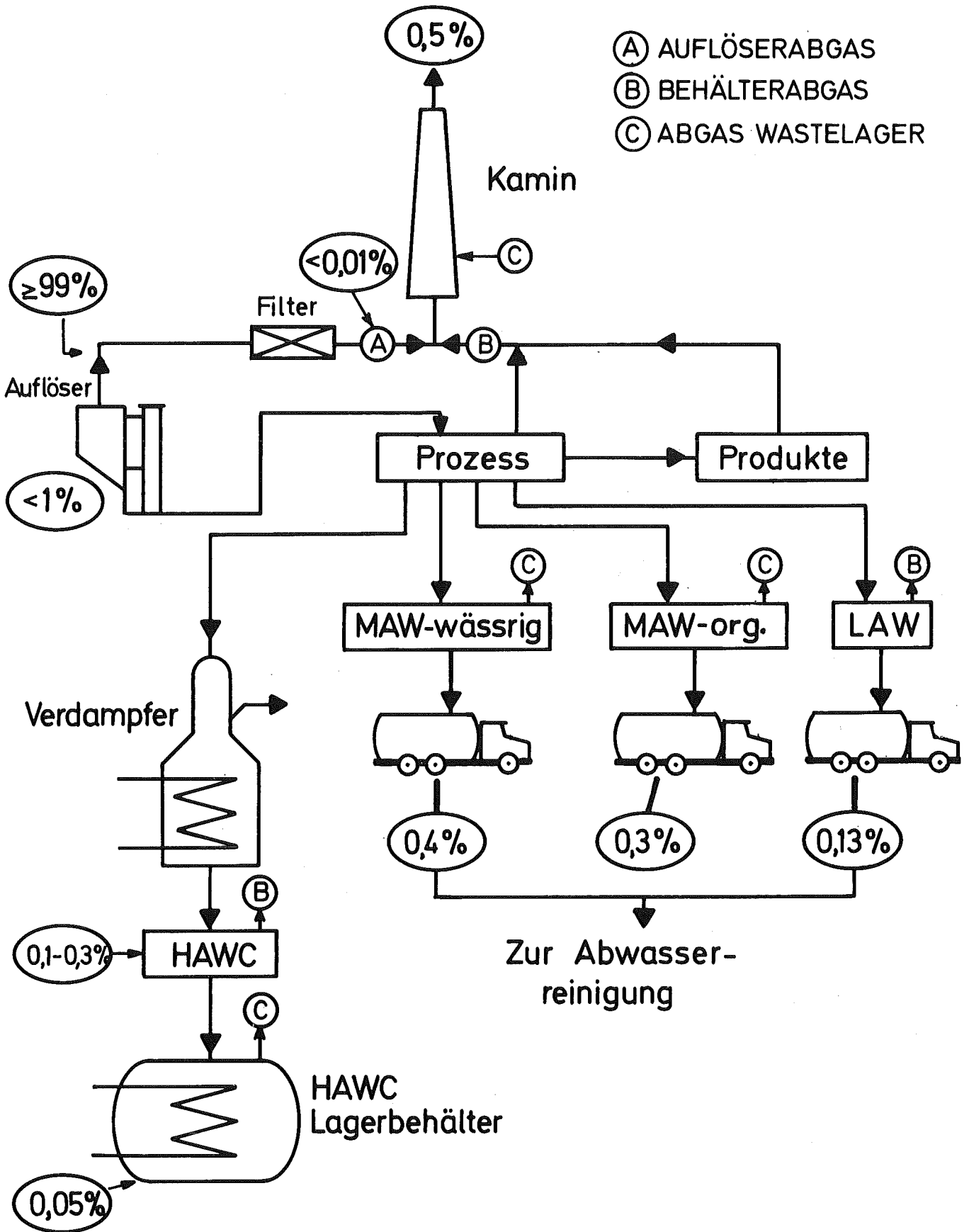


ABB.4132-1: Bilanzierung des ^{129}J -Durchsatzes der WAK. Ein- und Ausgänge von ^{129}J in % des ^{129}J -Durchsatzes der WAK.

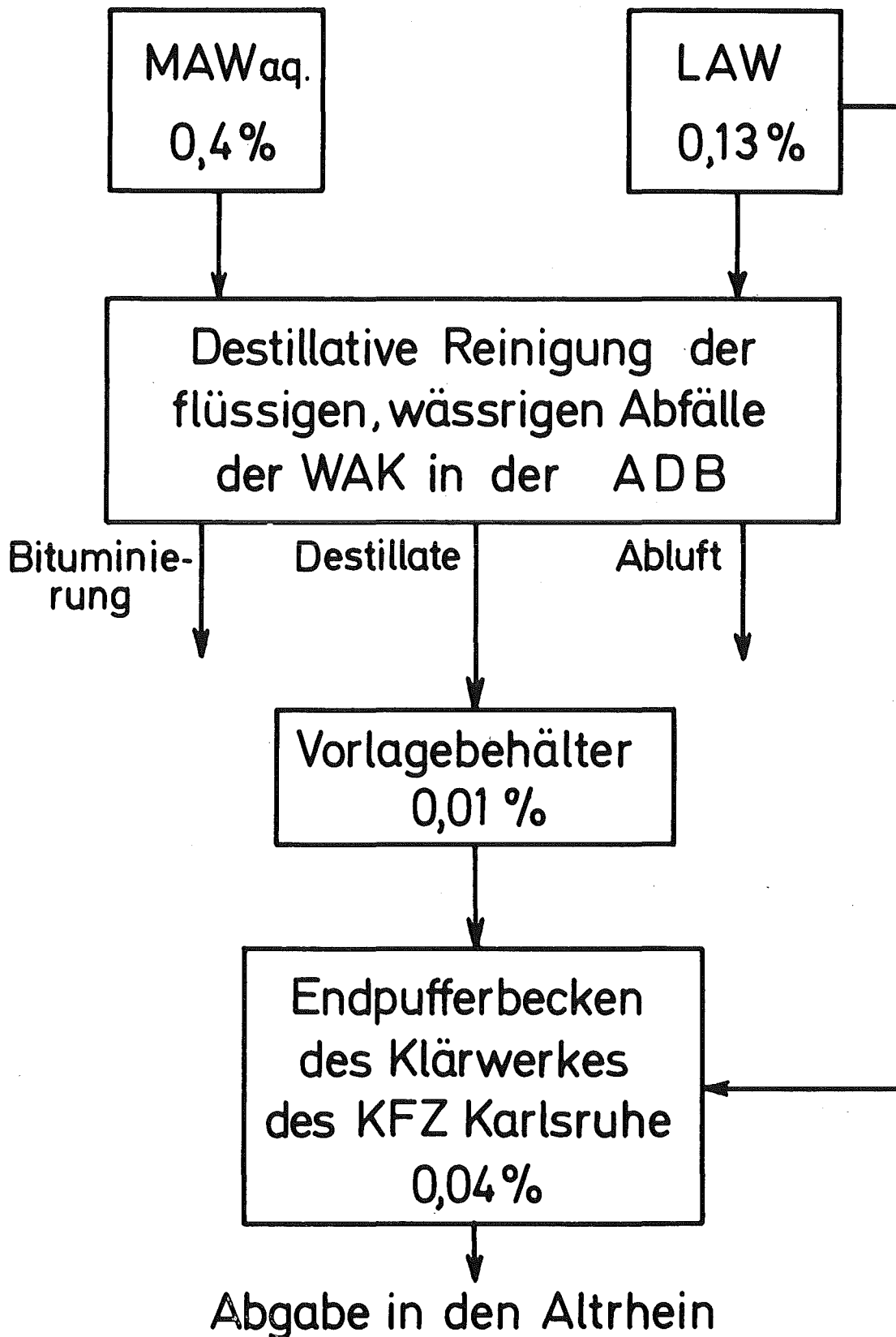


ABB.4132-2: Reinigung der mittel-und niederaktiven, wässrigen Abfallösungen der WAK im KFZ Karlsruhe. Ein- und Ausgänge von ^{129}J in % des ^{129}J -Durchsatzes durch die WAK.

2. Die chemische Zusammensetzung des ^{129}J in der Abluft der WAK

Zwischen Ende Februar 1977 und Anfang Juni 1977 wurde in der Abluft der WAK ein By-Pass-System zur ^{129}J -Probenahme installiert. Die Probenahme erfolgte nach der Vereinigung von Auflöserabgas und Behälterabgas und nach der Aerosolfilterung der Abluft der WAK. Das Probenahmesystem bestand aus einem HNO_3 -beständigen Aerosolfilter, einem NaOH -Wäscher und einer Aktivkohlepatrone. Bei der Prüfung dieses Systems mit $^{127}\text{J}^{131}\text{J}$ und mit $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ zeigte sich, daß elementares Jod zu > 99 % im NaOH -Wäscher zurückgehalten wurde und Methyljodid zu 99 % vom NaOH -Wäscher durchgelassen wurde und dann in der Aktivkohle quantitativ absorbiert wurde. Ein Teil der NaOH -Lösung, die Aktivkohle und das Aerosolfilter wurden mit ^{127}J -Träger versetzt und die Jodfraktion abgetrennt. Durch Neutronenaktivierung, chemische Reinigung der aktivierten Probe und nachfolgende γ -spektrometrische Messung des ^{130}J wurden die einzelnen ^{129}J -Anteile bestimmt.

Tab. 4132-1: Ergebnisse der Messungen zur chemischen Zusammensetzung von ^{129}J in der Abluft der WAK

Probenahmedatum von: bis:	anorganisch gasförmiger Anteil in %	organisch gasförmiger Anteil in %	aerosol- förmiger Anteil in %
18.2. - 21.2.	84,0	14,9	1,0
25.2. - 4.3.	76,4	23,3	0,4
4.3. - 11.3.	68,9	30,6	0,4
11.3. - 18.3.	20,6	-	0,04
18.3. - 28.3.	> 50,4	-	-
28.3. - 4.4.	84,7	15,2	0,1
4.4. - 12.4.	96,7	1,8	1,6
12.4. - 18.4.	81,4	17,3	1,3
18.4. - 26.4.	91,3	6,1	2,6
26.4. - 3.5.	61,2	24,7	14,1
3.5. - 10.5.	77,2	22,5	0,3
10.5. - 20.5.	45,6	54,4	0,1
20.5. - 26.5.	32,6	-	-
26.5. - 6.6.	60,0	7,4	0,04
6.6. - 10.6.	50,0	49,7	0,3
Mittelwert	74	24	2

Der anorganisch-gasförmige Anteil, der organisch-gasförmige Anteil und der Aerosolanteil des ^{129}J , der in der Abluft der WAK gemessen wurde, ist in der Tab. 4132-1 wiedergegeben. Im Mittel darf angesetzt werden, daß 74 % des ^{129}J anorganisch-gasförmig und 24 % organisch-gasförmig sind.

3. Die ^{129}J -Konzentration in Bodenproben aus der Umgebung der WAK

Ende 1975 wurde in das Auflöserabgassystem der WAK ein Jodfilter eingebaut, welches seit diesem Zeitpunkt mit hohem Abscheidungsgrad funktioniert. Um die zu diesem Zeitpunkt vorhandene Umgebungs-kontamination zu erfassen, wurde zwischen Februar und April 1976 ein umfangreiches Bodenprobenahmeprogramm durchgeführt. Bodenproben wurden genommen aus der Hauptwindrichtung auf jeweils 5 Strahlen in Abständen von 100 m, 200 m, 500 m und 1, 2, 5, 10 und 20 km. Auf einem ähnlichen Strahl in der Richtung der minimalen Windhäufigkeit wurden ebenfalls Proben genommen. Eine weitere Gruppe von Bodenproben wurde aus einem Kreisring um die WAK von 1 km Radius genommen. Analysiert wurden Erdproben von 0 bis 5 cm und von 5 bis 20 cm. Die Abtrennung des ^{129}J aus 100 g Bodenproben erfolgte durch Auskochen mit einer Na_2CO_3 -Lösung nach Zusatz eines geeigneten Reduktionsmittels und von $^{127}\text{J}^-$ -Träger. Die Reinigung der Jodfraktion erfolgte durch Anionenaustausch, AgJ -Fällung, Abtrennung des Ag^+ als Ag_2S und durch Adsorption des Jodes an 1 g Anionenaustauscher. Nach der Neutronenaktivierung folgt ein Extraktionszyklus. Die gereinigte Jodfraktion wird am $\text{Ge}(\text{Li})$ -Detektor gemessen. Im allgemeinen erfolgt die Messung der 538 keV-Linie des ^{130}J . Die Auswertung erfolgt durch Vergleich mit Eichproben bekannten ^{129}J -Gehalts.

In den obersten 5 cm der Erdproben wurden ^{129}J -Konzentrationen zwischen $\leq 0,03$ und 12,4 fCi/g Trockensubstanz gemessen. Die höchsten Kontaminationen wurden in Richtung der höchsten Windhäufigkeiten gemessen. In Richtung des Minimums der Windhäufigkeit lagen die ^{129}J -Konzentrationen ausnahmslos unter der Nachweisgrenze. Die ^{129}J -Konzentrationen in Bodenproben aus der 5-20 cm Schicht sind im allgemeinen kleiner als die aus der 0-5 cm-Schicht (Abb. 4132-3).

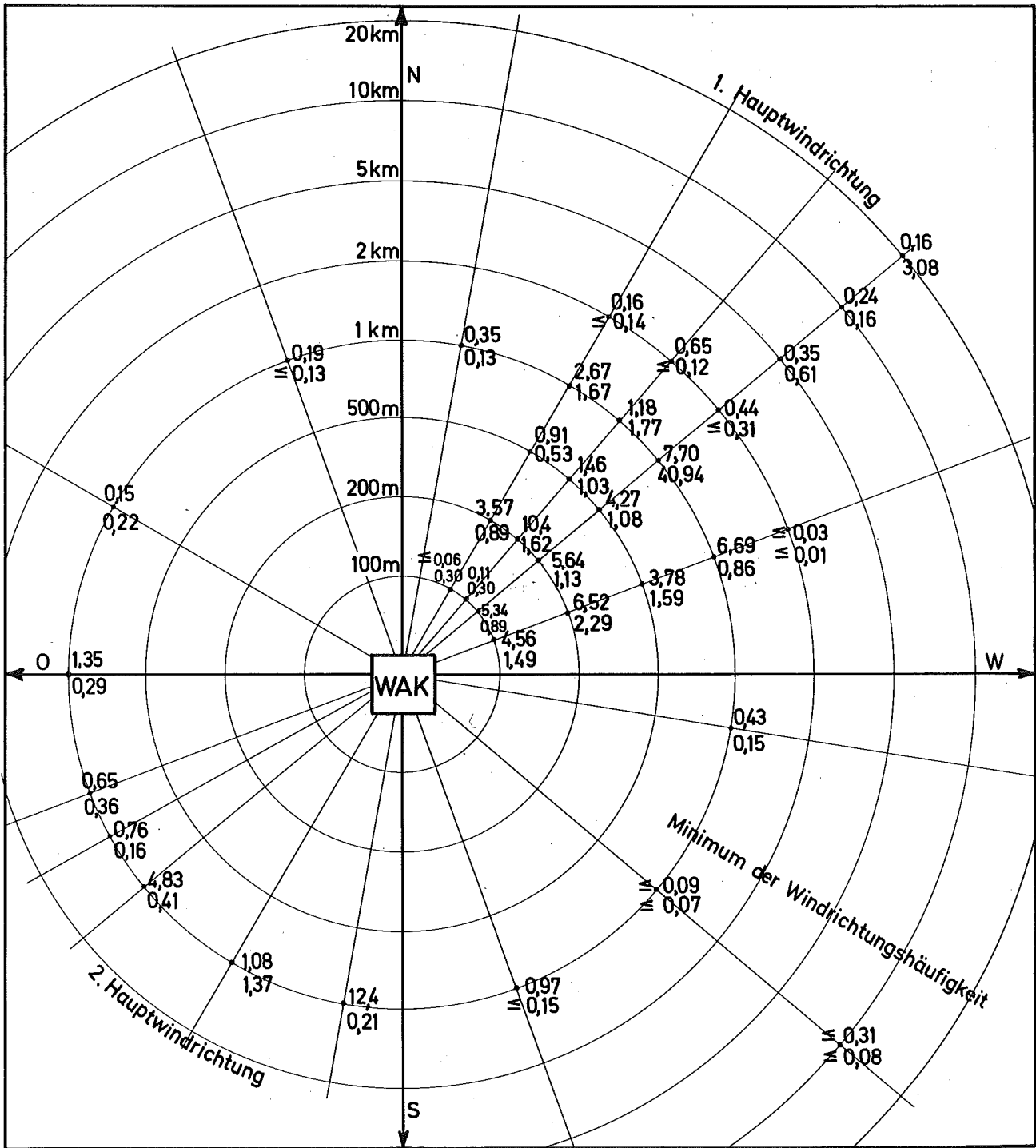


Abb.4132-3: ¹²⁹J-Konzentrationen in Bodenproben aus der Umgebung der WAK. Obere Zahl: fCi ¹²⁹J/g Trockensubstanz von 0-5 cm. Untere Zahl: fCi ¹²⁹J/g Trockensubstanz von 5-20cm. Die Bodenproben wurden zwischen Februar und April 1976 genommen.

4. Die ^{129}J -Konzentrationen in Ziegenmilch aus der Umgebung der WAK

Seit Mitte 1975 wurde ^{129}J in der Milch von Ziegen aus der Umgebung der WAK gemessen. Ein Milchvolumen von 1 bis 2 Liter wird mit 50 ml Anionenaustauscher nach Zusatz von stabilen Jod-Träger in Kontakt gebracht.

Trotz konstanter Emissionsrate von ^{129}J aus der WAK im Bereich von 2-3 mCi/Jahr hat die Konzentration von ^{129}J um ungefähr 2 Größenordnungen abgenommen. Als Ursache dieser Abnahme wird angenommen, daß die ^{129}J -Kontamination des Bodens an der Kontamination der Milch beteiligt ist und daß eine Abnahme der ^{129}J -Konzentration in der obersten Schicht des Bodens seit dem Einbau eines Jodfilters in das Auflöserabgassystem der WAK erfolgt ist. Um dies zu prüfen wurden 1977 und werden 1978 an den Stellen höchster Kontamination weitere Bodenproben genommen. Die Verteilung des ^{129}J mit der Bodentiefe wird zur Zeit gemessen. In jedem Fall liegt die gemessene ^{129}J -Konzentration in Milch wesentlich unter den mit den "Berechnungsgrundlagen" des BMI errechneten ^{129}J -Konzentrationen (Abb. 4132-4).

Die Messung von stabilem Jod in der Umgebungsluft

Die Kenntnis der stabilen ^{127}J -Konzentrationen in der Umgebungsluft ist radioökologisch von zweifacher Bedeutung. Einerseits wirkt stabiles Jod als Verdünnungsmittel für Radiojod; das heißt, daß die maximal mögliche Dosis durch ^{129}J um so kleiner ist, je höher die stabile Jod-Konzentration in der Umwelt ist. Für die Jodversorgung des Menschen spielt dabei die Konzentration in der Umgebungsluft eine wesentliche Rolle. Der zweite Grund für die Bedeutung der stabilen Jodkonzentration in der Umgebungsluft ist folgender: Das Weide-Kuh-Milch-Pfad-Modell berücksichtigt nicht die stabile ^{127}J -Konzentration in der Umwelt. In der Literatur findet man aber ^{127}J -Konzentrationen in der Luft zwischen 1 ng/m^3 und $10 \text{ } \mu\text{g/m}^3$. Sind diese Angaben richtig, ist die Verwendung des Weide-Kuh-Milch-Pfad-Modells in hohem Maße fragwürdig.

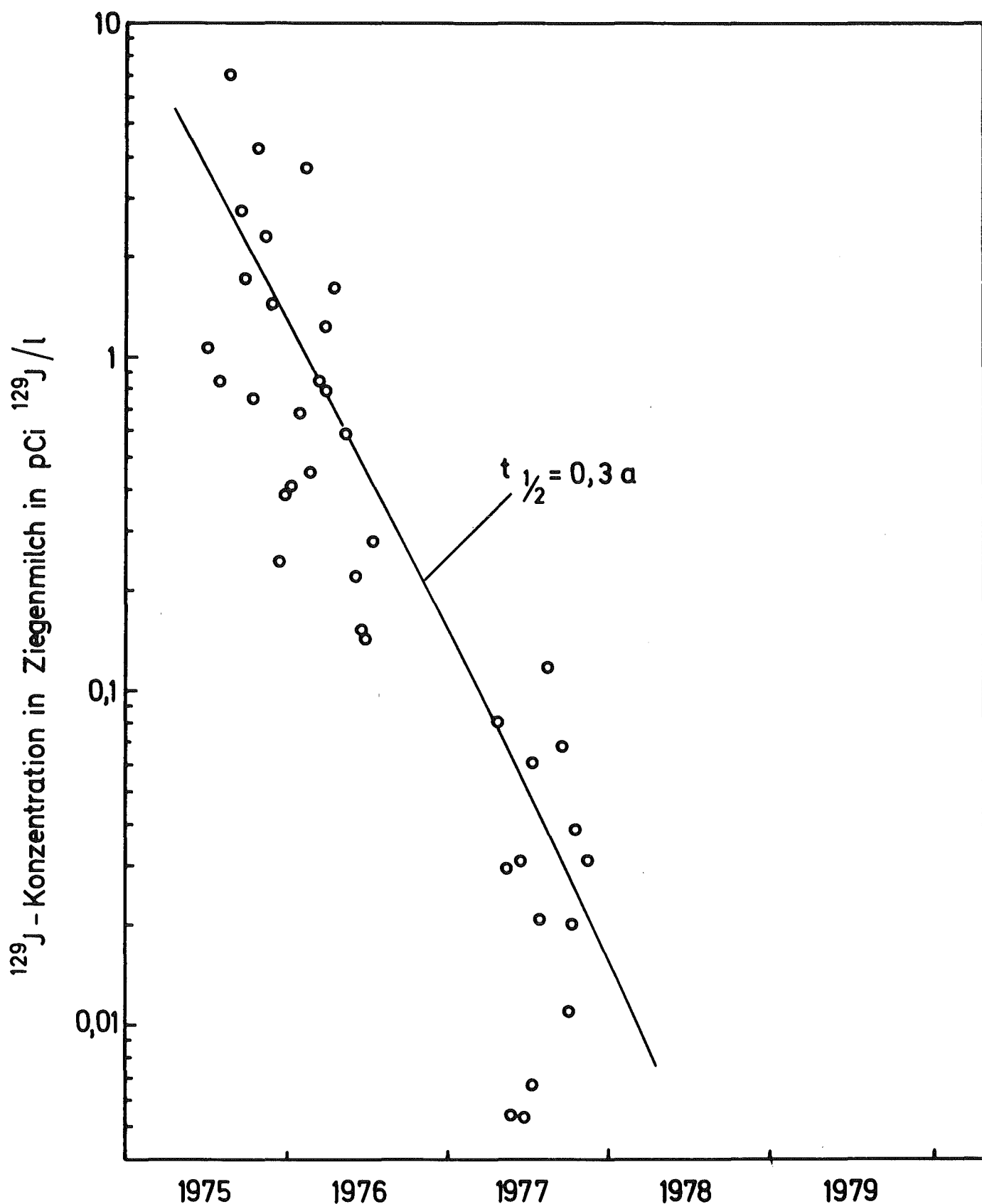


Abb.4132-4 : ^{129}J -Gehalt in Ziegenmilch gewonnen am Hauptbeaufschlagungsraum der Abluffahne der WAK

1976 wurde eine auf der Neutronenaktivierung beruhende Analyse-
methode für ^{127}J in Umgebungsluft entwickelt. Die Methode er-
möglicht eine kontinuierliche Probenahme und die getrennte
Messung von anorganisch gasförmigem und Aerosoljod. 1976 wurde
mit Messungen in der Umgebung des KfK begonnen. Diese Messungen
wurden 1977 fortgesetzt. Außerdem wurden jeweils ca. 3 Monate
lang Messungen in Kiel, Stade und Gundremmingen durchgeführt.
Messungen im Raum München wurden im Dezember 1977 begonnen.
Die Ergebnisse der Messungen werden getrennt nach anorganisch
gasförmigem und Aerosoljod als Mittelwerte der erhaltenen Meß-
ergebnisse in folgender Tabelle wiedergegeben.

Tab. 4132-2: Die Mittelwerte der Konzentrationen von stabilem
Jod in der Umgebungsluft von verschiedenen Orten
der Bundesrepublik Deutschland. Die Probenahme
erfolgte 1977.

Ort der Probenahme	Probenahme		Jodkonzentrationen in ng/m^3	
	von	bis	anorganisch gasförmig	aerosolförmig
Kiel	13.7.	2.11.	6,1	2,3
Stade	12.7.	1.11.	8,6	2,0
Karlsruhe	18.2.	13.10.	6,2	1,1
Gundremmingen	15.7.	7.11.	6,3	0,7

Die Konzentration von stabilem Jod ist im wesentlichen konstant
trotz des sehr unterschiedlichen Abstandes der Orte vom Meer. Die
Aerosoljodkonzentration nimmt von Norden nach Süden ab. Aus den
Ergebnissen darf geschlossen werden, daß das übliche Weide-Kuh-
Milch-Pfad-Modell in der BRD verwendet werden darf.

Abgasreinigung für Wiederaufarbeitung

4140 Entwicklung der Krypton- und Xenon-Abtrennung
(R.v. Ammon, W. Bumiller, H.-G. Burkhardt, G. Franz,
E. Hutter, G. Kimmig, G. Knittel, G. Neffe, R.D. Penzhorn)

4140/1 Untersuchung des Verfahrens (und der Analytik) der
TTR zur 85-Kr-Abtrennung

Für die Überwachung des Betriebs der Versuchsanlage KRETA und für die Auswertung der Versuchsergebnisse (erzielte Trennfaktoren, Produkt-Reinheiten bzw. -Anreicherungen etc.) von ausschlaggebender Bedeutung ist die analytische Instrumentierung. Diese hat sich in dem über einjährigen bisherigen KRETA-Betrieb nach einigen Modifikationen ausgezeichnet bewährt. Sie wird im folgenden beschrieben.

Die analytische Instrumentierung der TTR-Anlage KRETA

1. Allgemeines

Da in der ersten KRETA-Kolonnen das Dreikomponentensystem N_2 -Kr-Xe untersucht wird, müssen wechselnde Konzentrationen von Kr und Xe in N_2 analytisch erfaßt werden. Probenahmestellen sind dabei das Speisegas, Kopf- und Sumpfprodukt, sowie verschiedene Böden entlang der Kolonne. Die Edelgaskonzentrationen schwanken dabei von nahezu 100 % im Sumpf bis zu 100 Vol.-ppb im Kopfprodukt. Zur Lösung dieser Aufgabe kommen Massenspektrometrie oder Gaschromatographie in Frage. Hier wurde aus folgenden Gründen die letztere Methode gewählt:

- geringere Anschaffungskosten,
- leichtere Bedienungsweise,
- große Variationsbreite in der Anpassung an neue analytische Probleme,
- große Variationsbreite im Detektorsystem, auch hohe Empfindlichkeit möglich (Nachweisgrenze bis zu 100 Vol.-ppb).

Ein gewisser Nachteil ist die diskontinuierliche Meßweise; die Analysendauer kann aber bis auf ca. drei Minuten gesenkt werden, was für die allermeisten Meßprobleme an der Anlage KRETA ausreicht.

2. Auswahl der Geräte

Die Kolonne 1 wird von vier Gaschromatographen überwacht (siehe Abb.4140/1-1):

- a) Das Kopfprodukt, das nur noch aus N_2 mit Edelgasspuren besteht, wird von einem modifizierten Gerät der Fa. Air Liquide mit He-Jonisationsdetektor (Nachweisgrenze 100 Vol.-ppb) analysiert. Da die Kr-Konzentration im Speisegas größenordnungsmäßig 100 Vol.-ppm beträgt, ist somit ein Dekontaminationsfaktor (DF) $\leq 10^3$ erfaßbar. Im Einzelfall können auch Meßstellen des Kolonnenoberteils auf dieses Gerät gelegt werden.
- b) Das Speisegas und die Meßstellen an den verschiedenen Böden entlang der Kolonne werden von zwei Prozeßchromatographen der Fa. Beckman mit Wärmeleitfähigkeits-Detektoren (WLD) überwacht. Proben aus dem Kolonnenmittelteil, in dem die Edelgaskonzentrationen im Normalfall 10 Vol.- % nicht überschreiten, und wo eine höhere Empfindlichkeit gefordert wird, werden zweckmäßigerweise von dem einen Gerät erfaßt, während das andere die gasförmigen Proben des Kolonnenunterteils mit Edelgaskonzentrationen bis zu 100 % übernimmt.

- c) Das flüssige Sumpfprodukt wird nach einer speziellen Flüssigprobenahme (siehe unten) in einem vollautomatisierten Laborgaschromatographen (Hewlett-Packard) gemessen.

3. Aufbereitung der Proben

a) Gasförmige Proben

Das Gas, das in der Kolonne unter einem Druck von 5 bar steht, wird der Gasdosierschleife des Analysengeräts über Präzisionsdruckminderer, Druckkonstanthalter und Flußmesser zugeführt.

b) Flüssige Proben

Entscheidend für eine korrekte gaschromatographische Analyse flüssiger Gemische ist eine schnelle Verdampfung der gesamten Probe, um Entmischungsvorgänge auszuschließen (1,2). Demzufolge sehen wir (Abb. 4140/1-2) nach der Probeentnahme, die durch Sintermetallfritten erfolgt, eine augenblickliche Verdampfung in einem beheizten Kapillarrohr vor. In einem Pufferbehälter erfolgt Druckausgleich. Dadurch und durch einen by-pass ist gewährleistet, daß der Druck in der Gasdosierschleife niemals höher als in der Kolonne wird.

4. Analysenverfahren

a) Spurenanalysator

Infolge des ungünstigen Konzentrationsverhältnisses von N_2 (99.99 Vol.-%) und Kr (0.1 - 10 Vol.-ppm) und der ähnlichen Sorptionseigenschaften dieser Gase auf der Trennsäule ist eine genaue Analyse des Kryptons mit Hilfe des He-Jonisationsdetektors ohne Kunstgriff nicht möglich (Abb. 4140/1-3). Zur besseren Auflösung des Kr-Peaks muß die Hauptmenge des N_2 in einer Vortrennung gemäß Abb. 4140/1-4 beseitigt werden. Der

N_2 (Volumen V_1 in Abb. 4140/1-3) strömt dabei über Säule 1 bis kurz vor den Durchbruch der Edelgase nach außen. Eine Rückspülung befördert anschließend die Edelgase zur Trennsäule 2 (Porapak Q) und zum Detektor, der jetzt ein gut aufgelöstes Chromatogramm wiedergibt (Abb. 4140/1-5). Kr kann so mit einer Empfindlichkeit von 0.1 Vol.-ppm erfaßt werden.

b) Prozeßchromatograph

Das vorhin erwähnte Problem der Trennung N_2 / Kr tritt bei Verwendung des wesentlich weniger empfindlichen WLD-Detektors bei N_2 -Spülung (Trennsäule: Molekularsieb 13 X) nicht auf. Auf die Probenahme mit Druckreduzierventil und Druckkonstanthaltung muß jedoch ebenfalls große Sorgfalt verwendet werden. Der Chromatograph liefert in voll automatisierter Verfahrensweise etwa alle 11 Minuten ein Strichdiagramm ähnlich dem in Abb. 4140/1-6 gezeigten.

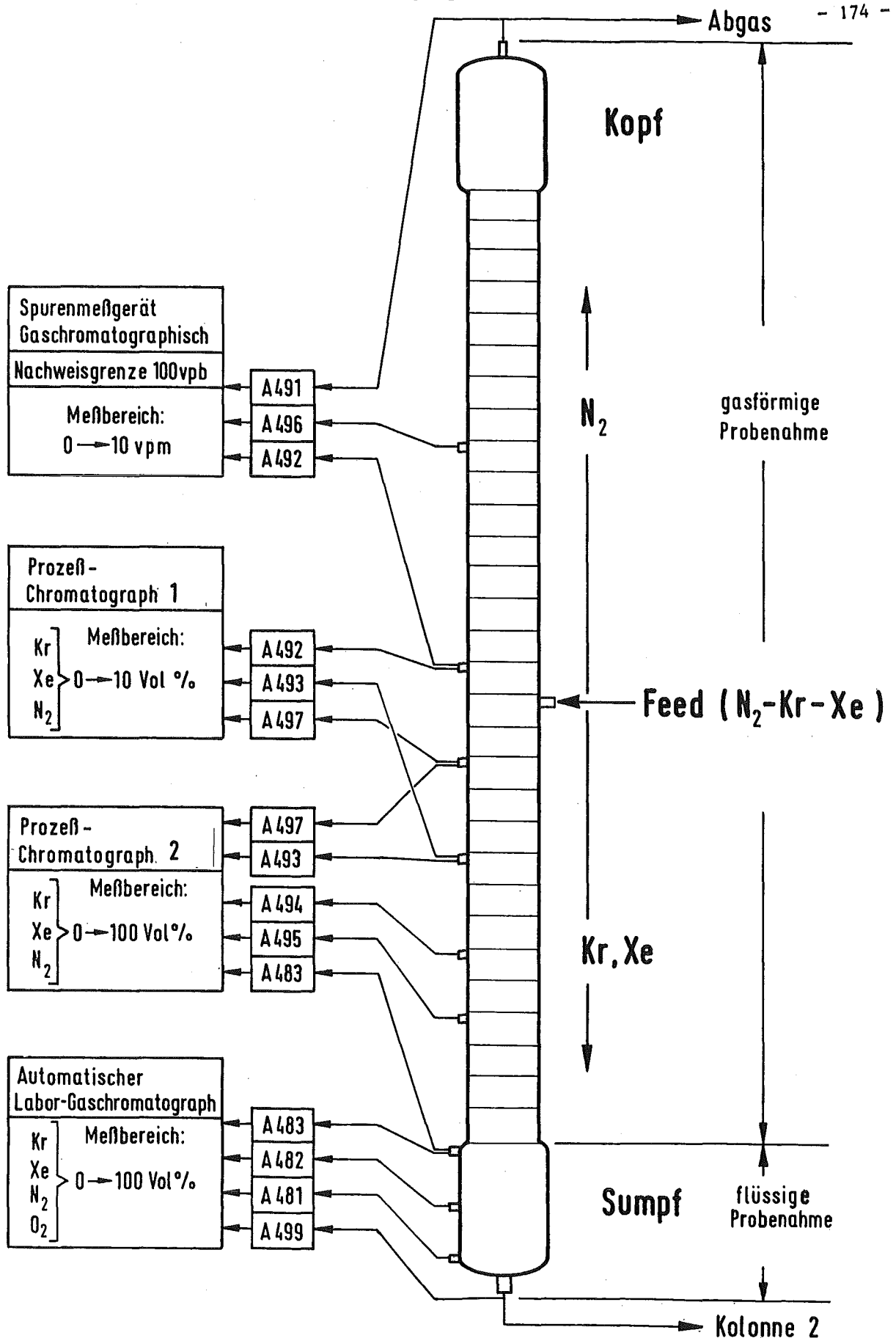
c) Laborchromatograph

Hier wird die gasförmige Probe (im Fall von Flüssigkeit nach Verdampfung) auf übliche Weise mit He als Trägergas über Porapak Q getrennt und am WLD-Detektor erfaßt. Die Auswertung der Peaks erfolgt mit einem Integrator. Da hier die höchsten Edelgas-Konzentrationen vorliegen, ist die erzielbare Empfindlichkeit von 100 Vol.-ppm voll ausreichend.

Literatur

- 1) D.M. Levins, R.W. Glass, M.M. Chiles und D.J. Inman, ORNL-TM 4596 (1975)
- 2) E. Karwat, Linde Berichte aus Technik und Wissenschaft 13 (1962) S. 12 - 18

Abb. 4140/1-1: Schema der Analysenstellen an der Kolonne 1 der Versuchsanlage KRETA und Schaltung der Meßleitungen auf die verwendeten Gaschromatographen.



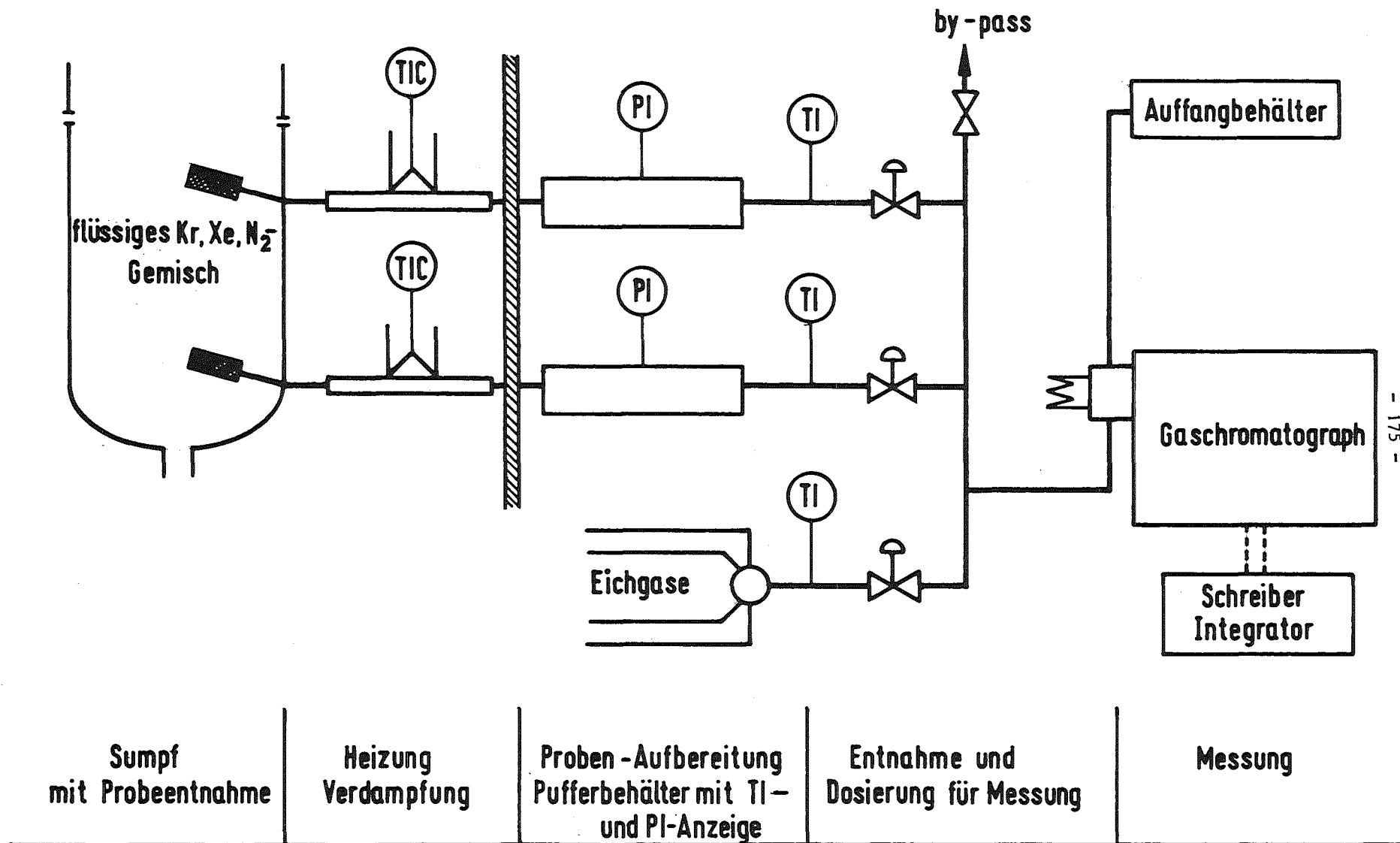


Abb. 4140/1-2: Schema der Entnahme und Aufarbeitung von flüssigen Proben aus dem Sumpf der 1. KRETA-Kolonne.

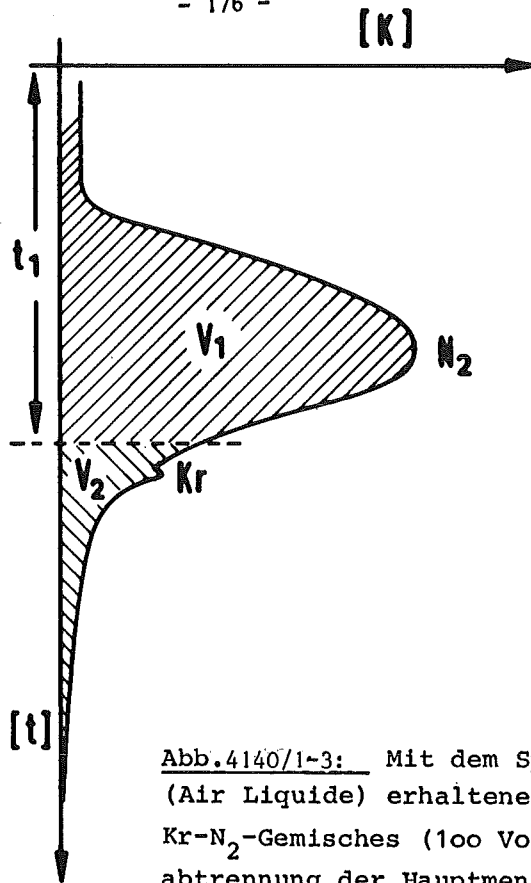


Abb.4140/1-3: Mit dem Spurenanalysator (Air Liquide) erhaltenes Chromatogramm eines Kr-N₂-Gemisches (100 Vol.-ppm Kr) ohne Vorabtrennung der Hauptmenge N₂.

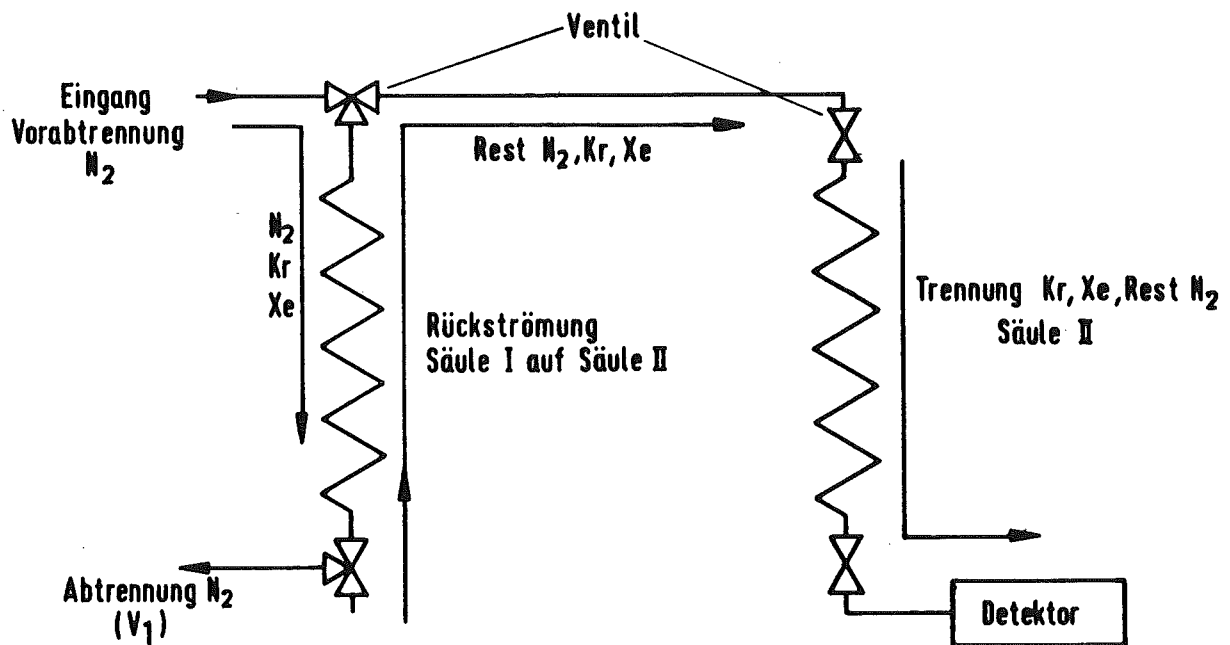
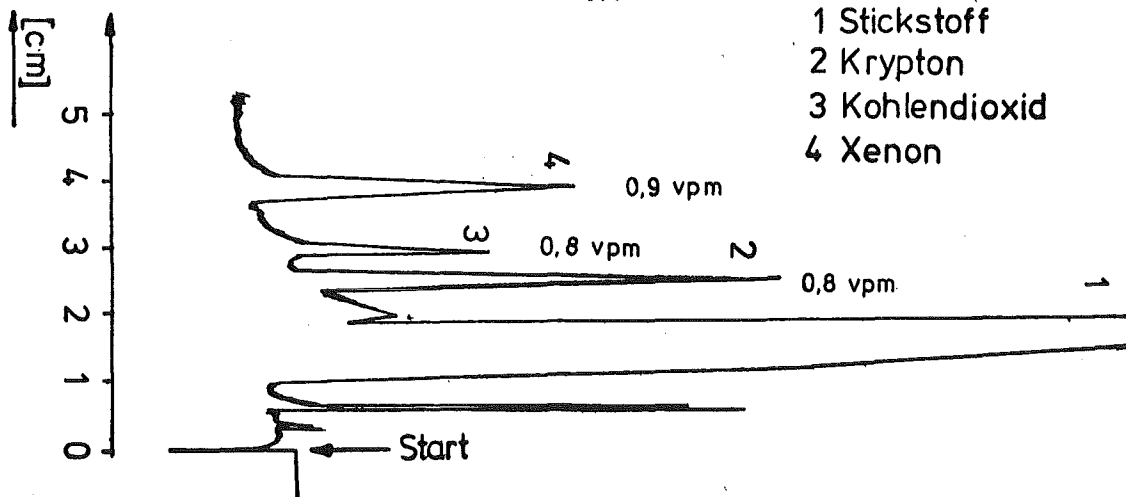


Abb. 4140/1-4: Schaltung der beiden Trennsäulen (Säule 1: Molekularsieb 13 X; Säule 2: Porapak Q) im Spurenanalysator (Air Liquide) zur Erfassung kleiner Kr-Konzentrationen mit dem He-Jonisationsdetektor.



Bedingungen:

Ofentemperatur: 50 °C Vorsäule: Molekularsieb 13X, 4,0m x 1/4"

Dosiervolumen: 1,0 ml Trennsäule: Porapak Q, 4,0m x 1/4"

Detektor: He - Ionisationsdetektor der Fa. Air Liquide

Rt₂ = 6.9 min.

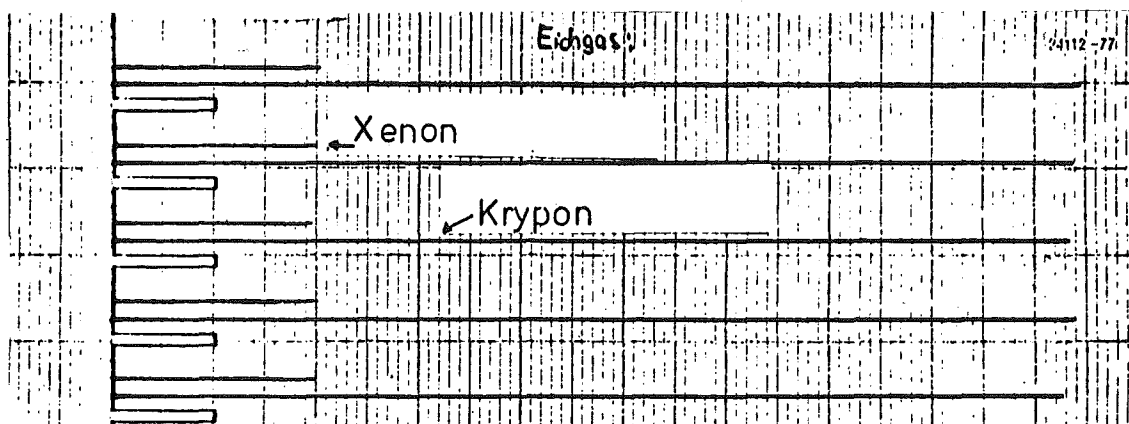
Rt₃ = 8.4 min.

Rt₄ = 11,25 min.

Abb. 4140/1-5: Mit dem Spurenanalysator (Air Liquide) erhaltenes Chromatogramm eines Eichgasgemisches nach Abtrennung der Hauptmenge N₂.

Strichdiagramm
Prozeßchromatograph

Meßbereich: Kr 0-10%
Meßbereich: Xe 0-10%



Applikation:

Säule: Molsieb 13X

Temperatur: 80 °C

Eichgas: Xe: 2%
 Kr: 9.4%

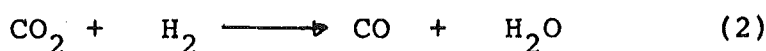
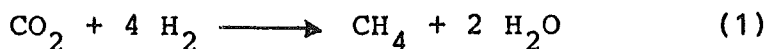
Abb. 4140/1-6: Mit dem Prozeßchromatographen 1 (Beckman) erhaltenes Strichdiagramm eines Eichgasgemisches (9.4 Vol.-% Kr, 2 Vol.-% in N₂).

4140/2 Entwicklung der NO_x- (und O₂-) Entfernung zur TTR-
Vorreinigung

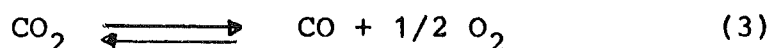
Für den Fall, daß eine Rückhaltung des im Auflöser freigesetzten ¹⁴CO₂ aus dem Abgas der Wiederaufarbeitungsanlage verlangt werden sollte, ist das Verhalten dieser Abgaskomponente am Reduktionskatalysator von Interesse. Während die adsorptive Rückhaltung des CO₂ an der anschließenden Molekularsiebstrecke keinerlei Probleme bereitet, wäre das bei einer Reduktion zu CO oder CH₄ nicht mehr gegeben. Beide Gase haben nämlich sehr niedrige Adsorptionskoeffizienten.

An einer kleinen Labor-Durchflußapparatur wurde daher die Reduktion des CO₂ mit H₂ an den beiden Katalysator-Typen 0,3 % Ru auf Al₂O₃, Spez. Oberfläche 9 m²/g (Doduco) und 0,13 % Pt auf Al₂O₃, 25 m²/g (KCE) in Abhängigkeit von der Temperatur und den Konzentrationen der Reaktionspartner und des Sauerstoffs untersucht.

Die in Tab.4140/2-1 aufgeführten Ergebnisse zeigen, daß bei den angegebenen Bedingungen am Pt-Katalysator ein mehr oder weniger starker Umsatz erfolgt. Die gaschromatographische Analyse der Reaktionsprodukte ergab CO und CH₄ zu etwa gleichen Teilen. Bei den Versuchen am Ru-Katalysator konnte nur CH₄ als Reaktionsprodukt nachgewiesen werden. Der Umsatz hängt qualitativ von den Konzentrationen der Reaktionspartner in dem Sinn ab, wie er nach den Reaktionsgleichungen (1) und (2) zu erwarten ist:



Abnehmender CO₂-Gehalt bzw. zunehmender H₂-Gehalt erhöhen den Umsatz. Zunehmender O₂-Gehalt verringert den Umsatz, was infolge der Teilnahme des Gleichgewichts (3) zu erwarten ist:



Die Umsatzerhöhung mit steigender Temperatur ist ebenfalls vereinbar mit publizierten Werten für die Gleichgewichtskonstanten der betreffenden Teilreaktionen (1). Eine quantitative Deutung der Versuchsergebnisse befindet sich in Arbeit.

Literatur

- 1) Dubbel: Taschenbuch für den Maschinenbau (F. Sass, Ch. Bouché und A. Leitner, Hrsg.), Band 1, S. 517, Springer 1970.

CO ₂ (Vol.-ppm)	H ₂ (Vol.-%)	O ₂ (Vol.-%)	T (°C)	Umsatz (%)
1435	0,4	-	400	13,6
1065	0,4	-	400	30,5
645	0,4	-	400	59,7
635	0,8	-	400	71,7
1035	0,4	-	400	26,6
1035	0,4	0,08	400	14,0
1025	0,4	0,16	400	10,7
1095	2,0	0,75	400	6,4
1050	0,4	-	300	8,6
1040	0,4	-	400	26,0
1025	0,4	-	500	48,3

Tabelle 4140/2-1: Reduktion von CO₂ mit H₂ am Pt-Katalysator KCO 3366 K/R; Abhängigkeit des Umsatzes von den Konzentrationen des Gasgemisches und der Temperatur. Katalysatorbelastung: 5 Nm³/l.h; Trägergas: N₂.

4140/3 Verfahrenstechnische Entwicklung der TTR zur 85-Kr-Abtrennung

Im Berichtszeitraum wurden mit der Tieftemperatur-Rektifikationsanlage KRETA im Verbund mit der vorgeschalteten Molekularsieb-Adsorptionsanlage ADAMO zwei Versuchskampagnen über je vier Wochen Dauerbetrieb durchgeführt. Nachdem Anlagenverbesserungen, insbesondere bei der meßtechnischen Ausrüstung der ersten Trennkolonne, aufgrund der Erkenntnis der vorangegangenen Versuche durchgeführt waren und die Betriebsweise verändert wurde (Arbeitszyklen von ADAMO verlängert; feinfühligere Kolonnenregelung), traten Störungen durch Verlegungen in der ersten Trennkolonne nur noch bei gezielter Annäherung an Grenzen des Verfahrens bzw. der Anlage bei den gerade vorgegebenen Betriebsdaten auf.

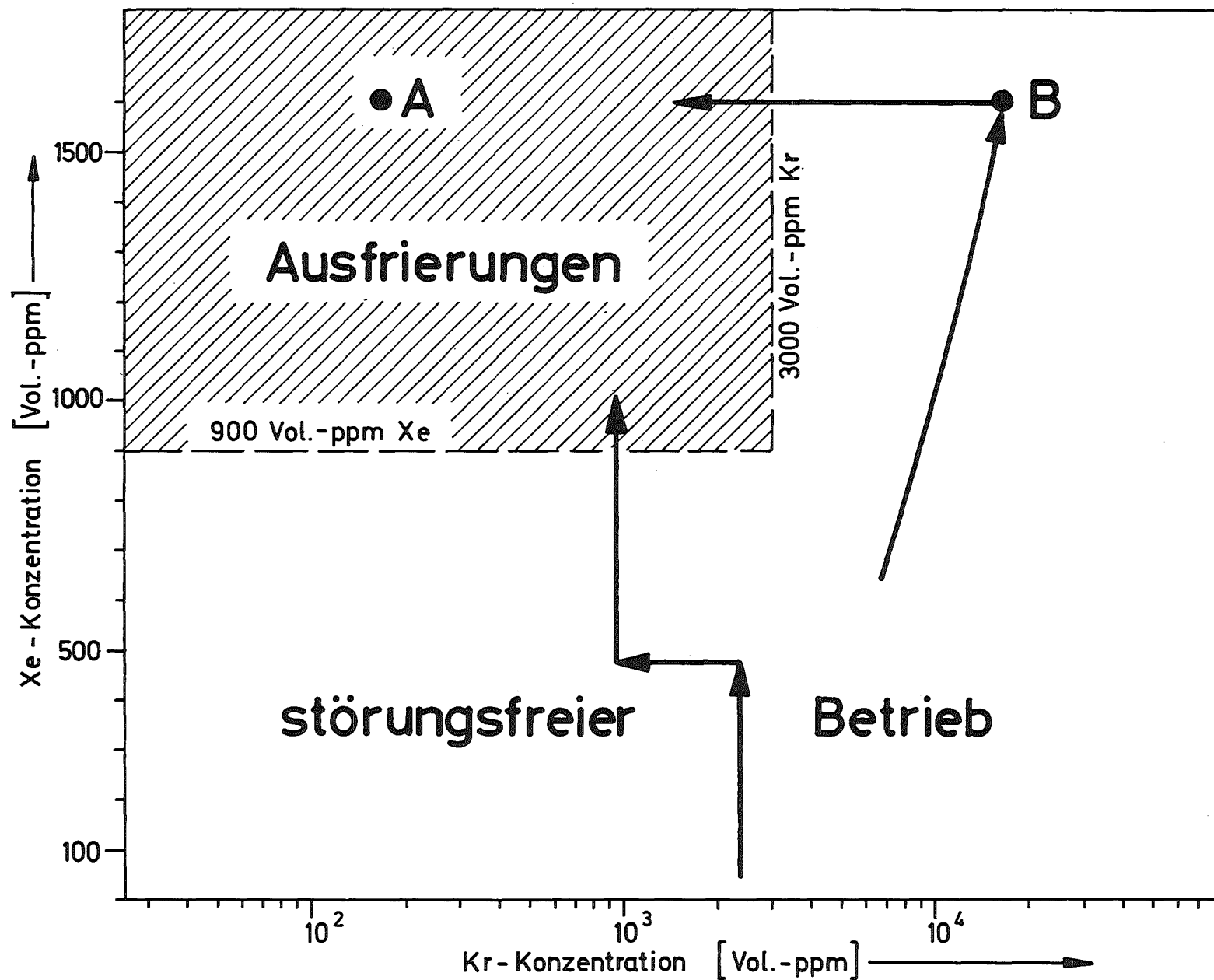
Die für die WAK geplante verbesserte Abgasreinigungsanlage AZUR sieht ebenfalls eine Edelgasabtrennung durch Tieftemperatur-Rektifikation vor, wobei das Problem der Xenon-Ausfrierungen durch erhöhte Krypton-Konzentration im Speisegas der ersten Trennkolonne gelöst werden soll. Basierend auf den Erfahrungen der Luftzerlegung wird durch Rückführung eines Teils des abgetrennten Kryptions das Verhältnis Krypton/Xenon wie es in der Luft vorhanden ist ($Kr/Xe = 10/1$) erzeugt, wogegen die aus den Brennelementen bei der Auflösung freigesetzten Edelgase etwa im umgekehrten Verhältnis stehen ($Kr/Xe = 1/10$).

Hauptziel der beiden Versuchskampagnen war, die erforderliche minimale Krypton-Rückführung zu bestimmen, da erhöhter Kryptonanteil im eintretenden Gasstrom erhöhtes Aktivitätsinventar in der TTR-Anlage und wegen der Wärmeentwicklung erhöhte Betriebskosten zur Kühlung bedeuten.

Es konnte ein Konzentrationsbereich der Edelgase im Speisegas eingegrenzt werden (Abb. 4140/3-1), außerhalb dessen ein störungsfreier Kolonnenbetrieb mit hohem Apparate-Dekontaminationfaktor ($DF \geq 10^3$) möglich ist. In keinem Betriebszustand wurden Ausfrierungen aus der flüssigen Phase festgestellt. Dies bedeutet, daß mit den gewählten Anfahr- und Betriebsweisen der rechnerisch ermittelte Unlöslichkeits-

bereich von Xenon im Dreikomponentengemisch N_2 -Kr-Xe bei 5 bar Kolonnendruck nicht berührt wurde und dieser somit nicht wesentlich ausgedehnter ist als mit den wenigen bekannten Stoffdaten errechnet wurde (Abb. 4140/3-2). Die beobachteten Verlegungen traten in der Nähe der Speisegas-Eintrittsstelle auf und können als Ausfrieren von Xenon aus der Gasphase (Desublimation) an kalten Flächen, z.B. dem ersten Siebboden über dem Speisegaseintritt erklärt werden. Das tatsächliche Eintreten der Xe-Desublimation ist wesentlich abhängig vom Speisegasdurchsatz, d.h. bei gleichbleibender Konzentration von der eingespeisten Xenon-Menge, die zu verarbeiten ist und der zur Lösung des Xenon an dieser Stelle zur Verfügung stehenden flüssigen Stickstoffs, d.h. von der Flüssigkeitslast und damit vom inneren Gas-Flüssigkeitsumsatz der Kolonne.

Die Edelgase werden bei der Brennelementauflösung nicht gleichmäßig, sondern in hoher Konzentration zu Anfang des Auflösevorgangs freigesetzt. Ein typischer Konzentrationsverlauf im Speisegas wie er in der WAK auftritt, wurde an KRETA simuliert und ohne Schwierigkeiten verarbeitet (Abb. 4140/3-3.)



Bereiche der Xe-Unlöslichkeit im Kr-Xe-N₂-System in Abhängigkeit vom Druck

mit Verlauf der Sumpfkonzentrationen
bei verschiedenen Fahrweisen zur
Umgehung dieses Bereichs bei 5 bar

verschiedene Fahrweisen
 --- mit Kr-Rückführschleife
 — mit Kr-Vorgabe
 - - - Versuche zur Kr-Reduzierung

--- gerechnet mit Stoffdaten der idealen Gase
 — gerechnet mit gemessenen Stoffdaten
 aus der Literatur (nicht verfügbar für N₂-Xe)

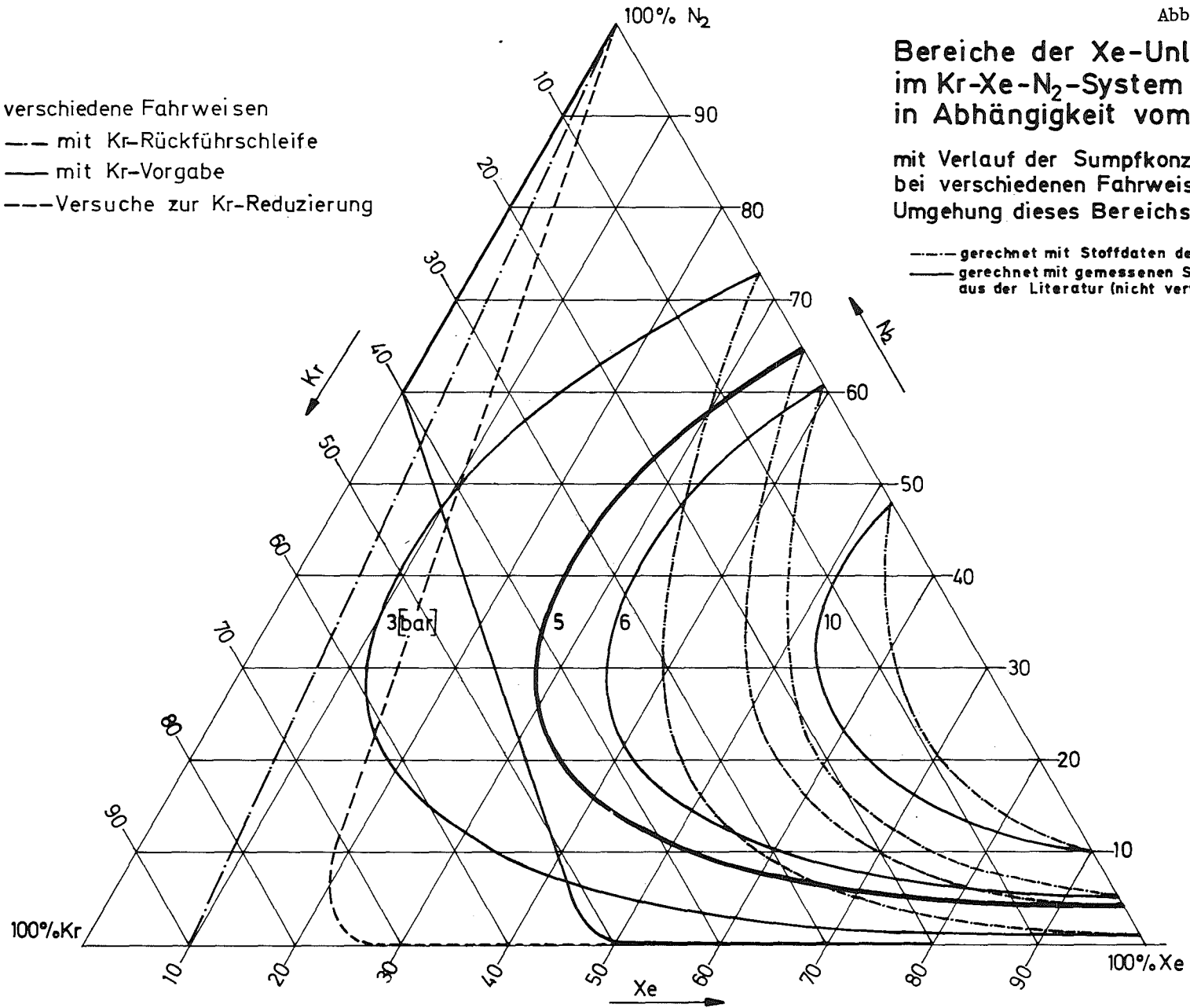
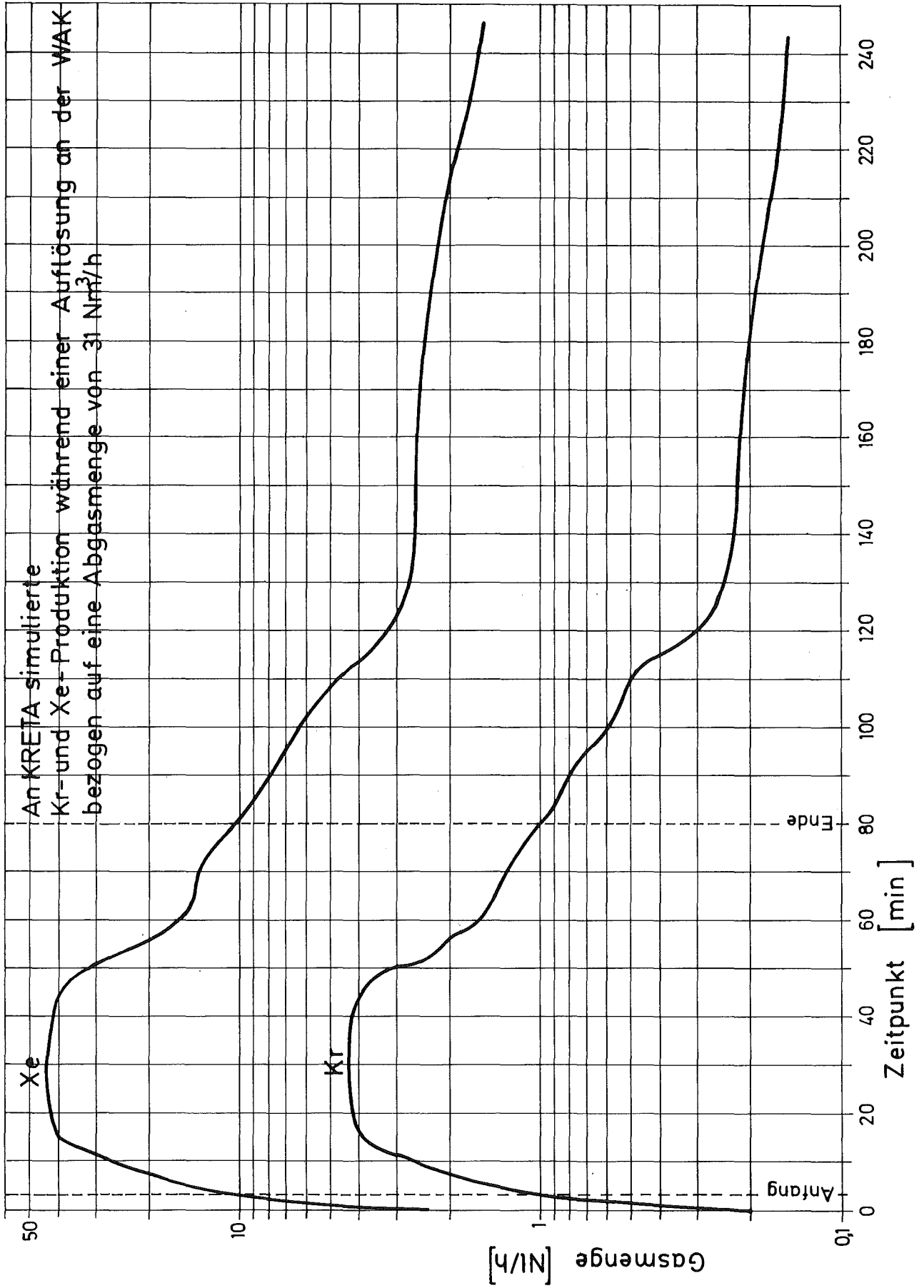


Abb. 4140/3-3



4140/4 Krypton Endlagerung

(R.-D. Penzhorn, H.E. Noppel, P. Schuster, IRCH; E. Hutter, E. Comper, M. Seeber, RBT).

1. Einleitung

In einer großen 1400 jato LWR-Wiederaufarbeitungsanlage, die Brennelemente mit 30-40 GWd/t-Abbrand aufarbeitet, fallen pro Jahr etwa 150-200 Nm³ Spaltkrypton an, dessen Aktivität etwa 15-20 MCi beträgt. Die durch den Zerfall verursachte thermische Leistung liegt bei etwa 30-40 kW. Um die lokale und globale Strahlenbelastung so gering wie möglich zu halten, sollen die Spaltedelgase Krypton und Xenon aus dem Abgas der künftigen WAA durch Tieftemperatur-Rektifikation aus dem Auflöserabgas abgetrennt, rektifiziert und anschließend das Krypton sicher gelagert werden.

2. Zur Auslegung des Kryptonlagerbehälters

Das nach dem Abtrennverfahren gewonnene Kr (ca. 70 % Kr-85) muß über Jahrzehnte gelagert werden; das Xe hingegen kann, sofern bei der Trennung ein ausreichend hoher Dekontaminationsfaktor erreicht wird, entweder an den Verbraucher weitergeleitet oder direkt in die Atmosphäre abgegeben werden. Im folgenden wird über die ersten Arbeiten und Überlegungen zur Auslegung eines Kr-Druckgasbehälters berichtet.

2.1. Zur Dimensionierung von Durchmesser und Wandstärke des Behälters

Unter Verwendung der bekannten Gesetze für den radioaktiven Zerfall, der idealen Gasgleichung, der Gesetze für den Wärmedurchgang durch zylindrische Körper, der Formeln zur Berechnung der Wärmeübergangszahlen und der Formel zur Berechnung

der Wandstärke dünnwandiger zylindrischer Behälter, läßt sich für die Wandstärke eines zylindrischen Kr-85-Lagerbehälters folgende allgemeine Gleichung aufstellen

$$s = \left[\frac{2 \cdot \sigma_{0,2} \cdot K \cdot f \cdot V}{1,3 \cdot 1,5 \cdot T \cdot (T_w - T_u) \cdot d_a \cdot F_a \cdot \alpha} + \frac{1}{d_a} \right]^{-1}$$

Es bedeuten dabei:

- s = Wandstärke
- $\sigma_{0,2}$ = Warmstreckgrenze (0,2-Dehngrenze) des Flaschenwerkstoffs
- K = $E \cdot \ln 2 \cdot L \cdot T_0 / T_{1/2} \cdot 22,4 \cdot V_K \cdot p_0$
 - E = mittlere β -Zerfallsenergie = 0,246 MeV
 - L = Loschmidtsche Zahl
 - T_0 = 273°K
 - $T_{1/2}$ = Halbwertszeit von Kr-85 = 10,76 Jahre
 - $22,4 \cdot V_K$ = Molvolumen
 - p_0 = 760 Torr
- f = Kr-85-Anteil im Abgas = 7 %
- V = geometrischer Inhalt des Behälters
- 1,3 = Sicherheitsfaktor gegen Werkstofffehler
- 1,5 = Sicherheitsfaktor gegen unsachgemäßes Abfüllen oder Lagern
- T = Temperatur des abgefüllten Abgases nach der Aufheizperiode im Behälter (°K)
- T_w = Flaschenwandtemperatur (°K)
- T_u = Umgebungstemperatur (°K)
- d_a = Flaschenaußendurchmesser
- F_a = Außenoberfläche des Behälters
- α = Wärmeübergangszahl

Für die durchgeführten Berechnungen wurden folgende Annahmen gemacht:

1. Aus der Literatur /1/ ist bekannt, daß waagrecht liegende Zylinder mehr Wärme abgeben als senkrecht stehende. Dadurch kann in waagrecht liegenden Flaschen bei gegebener Oberflächentemperatur mehr Kr-85 abgefüllt werden. Außerdem wurde angenommen, daß der Wärmeübergang von der Lagerflasche an das Umgebungsmedium nicht durch erzwungene Wärmeströmung erfolgt. Das hat den Vorteil, daß keine wartungs- und störfallgefährdeten Gebläse verwendet werden müssen.

2. Die Umgebungstemperatur T_u wurde mit 303°K angenommen. Damit ist ein Temperaturgefälle vom Flaschenlager an die Atmosphäre auch im Sommer garantiert. Künstliche Raumkühlung ist nicht erforderlich.
3. Bei der Bestimmung der Strahlungszahl $\epsilon_s \cdot C_s$ wurde von einer Einzelflasche in einem theoretisch unendlich großen Raum ausgegangen. Die Ergebnisse gelten deshalb eigentlich nur für eine Einzelflasche, wobei überschlägige Berechnungen jedoch ergaben, daß sich die Strahlungszahl bei mehreren nebeneinander befindlichen Flaschen in einem endlichen Raum nicht nennenswert verändert /2/. Beachtenswert ist jedoch der Einfluß mehrerer nebeneinander befindlicher Flaschen auf den konvektiven Teil der Wärmeübergangszahl. In der Literatur /1/ wird daraus resultierend eine Verschlechterung der Wärmeabgabe bis zu 20 % angegeben. Strahlung und Konvektion sind beim Wärmeübergang etwa je zu 50 % beteiligt.
4. Für die Temperatur T des abgefüllten Abgases nach Ende der Aufheizperiode wurde eine Übertemperatur von 15 grad angenommen. Das stellt eine Vereinfachung dar. Tatsächlich ist die Übertemperatur jedoch eine Funktion der Gastemperatur T und nimmt mit dieser zu.
5. Es wurde die ideale Gasgleichung verwendet, was bei reinem Kr/Kr-85-Gemisch nur eine geringe Abweichung gegenüber dem realen Gas darstellt. Erst bei zunehmender Verunreinigung durch Xe gewinnen die Kompressibilitätsfaktoren des realen Gases an Bedeutung /3/ (s. auch 2.3.). Um nicht mehr Kr-85 abzufüllen als erwünscht, muß dann der Einfülldruck niedriger gehalten werden als es die ideale Gasgleichung angibt.

Graphisch dargestellt ist obige Gleichung $s = s(T_w)$ bzw. $s = s(p)$ für eine Fläche vom Typ B50 ($V = 50$ l geometr. Inhalt) in Abb.4140/4-1 und vom Typ B10 ($V = 10$ l geometr. Inhalt) in Abb.4140/4-2. Als Parameter wirken die Warmstreckgrenzen $\sigma_{0,2}$ verschiedener Werkstoffe.

Es sind die Werkstoffe TiAl6V6Sn2, 34CrMo4 (1.7220), WSt E47 (1.8935), St 35.8 (1.0305), X5CrNi 18 9 (1.4301), X2CrNi 18 9 (1.4306) untersucht worden. Besondere Merkmale sind:

- TiAl6V6Sn2 hat ein geringes spezif. Gewicht, ist rost- und säurebeständig und hat nahezu konstante Warmstreckgrenzen bei Temperaturen bis 300°C.
- 34CrMo4 ist der gängigste Flaschenwerkstoff, mit den geringsten Kosten zur Flaschenherstellung, darf allerdings nicht höher als 80°C aufgeheizt werden.
- WSTE 47 ist ein gebräuchlicher warmfester Flaschenwerkstoff mit geringem Festigkeitsschwund bei höheren Temperaturen bis 400°C.
- St35.8 ist ein warmfester Werkstoff zur Herstellung nahtloser Röhre bis 450°C.
- X5CrNi189 und X2CrNi189 sind nichtrostende Stähle für den Behälterbau.

Sofort verfügbar für die Lagerung von Kr-85 aus der Wiederaufarbeitungsanlage wären Flaschen aus dem Werkstoff 34CrMo4 (1.7220). Da keine Warmstreckgrenzen über 80°C bekannt sind, ist für diesen Werkstoff das $\sigma_{0,2}$ bei 80°C ein entscheidendes Kriterium für die Belastbarkeit.

80°C Wandtemperatur entstehen bei einem Füllungsdruck von 95 bar. Benötigt wird dazu eine Wandstärke von $s = 3,2$ mm. Die handelsüblichen B50-Flaschen aus dem Werkstoff 34CrMo4, die zum Verkauf nicht selbsterhitzender Gase verwendet werden, können mit 200 bar beaufschlagt werden und haben deshalb auch größere Wandstärken ($s = 7,2$ mm). Bei Verwendung dieser Flaschen wäre ein Korrosionszuschlag von 4 mm gegeben.

Zu bemerken ist noch, daß der in den Diagrammen angegebene Druck der Gleichgewichtsdruck nach Selbsterhitzung durch das radioaktive Kr-85 ist. Den Druck, der den Abfüllvorgang beenden muß, erhält man aus der allgemeinen Gasgleichung

unter Berücksichtigung der Kompressibilitätsfaktoren zu Beginn und am Ende der Selbsterhitzungsphase.

Nimmt man 200 bar als Zieldruck, so kann man keine Flaschen verwenden, die schon in großen Mengen hergestellt werden, da Werkstoffe verwendet werden müssen, die bei 112°C noch belastbar sind. Von den untersuchten Werkstoffen wären dies TiAl6V6Sn2, WSTE47, St 35.8, 1.4301 und 1.4306. Die rostbeständigen Stähle 1.4301 und 1.4306 benötigen dabei schon Wandstärken, die im Bereich der dickwandigen Behälter liegen, die mit der eingangs aufgestellten Formel $s = s(T_w)$ nur näherungsweise beschrieben werden.

Ein besseres Verhältnis von Wandtemperatur zu Druck erhält man bei Verwendung von Flaschen des Typs B10 (V = 10 l geometr. Inhalt). In die Flaschen aus dem Werkstoff 34CrMo4 lassen sich beispielsweise 180 bar Enddruck abfüllen.

Den Zusammenhang von Flaschenenddruck, Oberflächentemperatur und Flaschenform zeigen die Abbildungen 4140/4-3 und 4140/4-4. Beschränkt man sich bei der Dimensionierung des Kr-Lagerbehälters nicht auf die eingeführten Formen und Volumina, kann in diesem Feld der optimale Behälter gefunden werden. Die Frage der Behälteranordnung im Lager ist dabei noch von Bedeutung und muß untersucht werden.

2.2. Untersuchungen über die Rb-Korrosion

Über allgemeine Aspekte der Korrosion von Alkalimetallen - sie sind in ihrem Verhalten durchaus vergleichbar - wurde bereits berichtet /4/. Es ist festzustellen, daß hinsichtlich der Gewichtsänderung eine Vielzahl von Werkstoffen bei Temperaturen unter 200°C gegenüber Na und Na-/K-Legierungen resistent sind /5/. So z.B. ergaben Versuche mit Edelstählen vom Typ 303, 304, 321, 347 und V2B bei 500°C, einer Sauerstoffkonzentration zwischen 0,005 und 0,01 Gew.-% und einer Versuchsdauer von ca. 1 Monat nur geringe Gewichtszunahmen, die zwischen 0,01 und 0,05 mg/cm²·Monat liegen. Nickel und

reine Legierungen zeigten hingegen nur zum Teil ähnlich gute Eigenschaften. Cr-/Mo-Stähle sind den Edelstählen bezüglich einer Korrosion durch Na und K gleichzustellen. Als besonders anfällig sind Aluminium und die meisten seiner Legierungen zu betrachten. Wird die O_2 -Konzentration im Alkalimetall auf weniger als 0,005 Gew.-% reduziert, so wird die Gewichtszunahme unter sonst gleichen Bedingungen um ca. den Faktor 10 geringer. Der Abtrag bei Aluminium und seinen Legierungen hingegen nimmt beträchtlich zu, was wahrscheinlich auf eine Änderung in der Schutzschicht zurückzuführen ist. Ein ähnliches Verhalten wurde bei Ni und seinen Legierungen beobachtet. Ni- und Co-haltige Legierungen neigen zusätzlich zur Spannungskorrosion /4/.

Im Vergleich zu Na und K ist Rb wesentlich reaktionsfreudiger und imstande beträchtlich mehr Sauerstoff aufzunehmen (ca. 100 mal mehr als Na). Es wurde daher ein Versuchsprogramm aufgestellt, indem unter Simulierung der voraussichtlichen Verhältnisse im Endlager dem Einfluß des Sauerstoffs (zugegeben in Form von Rb_2O) auf die mögliche Rb-Korrosion ein besonderes Augenmerk gewidmet wurde (s. Tab.4140/4-1). Die für die Versuche verwendeten Behälter sind aus den Werkstoffen 1.0305 und 1.4301 (US 304) hergestellt (s. auch 2.1.). Geprüft werden zusätzlich Teststreifen aus Werkst. Nr. 1.4306 und Schweißnähte aus dem Werkstoff Thermanit JE (Werkst. Nr. 1.4316). Die meisten Proben befinden sich schon seit 2 Monaten in Trockenschränken bei 150 und 200°C. Über die ersten Ergebnisse wird voraussichtlich im nächsten PNS-Halbjahresbericht berichtet werden.

2.3. Fugazitäten von Xe-Kr-Gemischen

Das ideale Gasgesetz gilt bekanntlich nur bei kleinen Drücken und hohen Temperaturen. Die Abweichungen, die in unterschiedlichem Ausmaß bei allen Gasen vorhanden sind, hängen von Temperatur und Druck ab. Für die Berechnung von PVT-Werten bei hohen Drücken sind eine Vielzahl von Zustandsgleichungen vorgeschlagen worden /6-10/. Anhand einer Gegenüberstellung mehrerer Zu-

standsgleichungen stellten Shah und Thodos /11/ fest, das - zumindest für Argon und n-Butan die Gleichung von Redlich-Kwong (RK) sehr zuverlässig und in ihrer Anwendung einfach ist. Diese Gleichung, die nur für Temperaturen gilt, die über der kritischen Temperatur liegen, lautet

$$p = RT/(V-b) - a/T^{1/2}V(V+b)$$

wobei a und b nach

$$a = \frac{0,4278 R^2 \cdot T_c^{2,5}}{p_c}$$

$$b = 0,0867 \frac{R T_c}{p_c}$$

direkt anhand der kritischen Temperatur (T_c) und des kritischen Drucks (p_c) ermittelt werden können. Basierend auf der Definition des Fugazitätskoeffizienten, φ ,

$$\ln \varphi = \int_0^p (Z-1) dP/P$$

und $\varphi = f/P$

wurden die Fugazitäten der reinen Gase Kr($f_{1,0}$) und Xe($f_{0,0}$) bei Drücken bis zu 200 bar und den Temperaturen 298, 393 sowie 473 K berechnet (s. Tabelle 4140/4-2). Für Systeme mit mehreren Komponenten, lassen sich a und b aus

$$b_m = \sum_{i=1}^n y_i b_i$$

und $a_m = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n y_i y_j a_{ij}$

ermitteln, wobei y_i der Molbruch des Komponenten i ist /10,11/.

Obwohl Chueh und Prausnitz (CP) /12/ für a_{ij} die eventuell genauere, jedoch kompliziertere Gleichung

$$a_{ij} = \frac{1}{4} (\Omega a_i + \Omega a_j) R T_c^{1,5} \frac{(V_{ci} + V_{cj})}{0,291 - 0,04 (W_i + W_j)}$$

mit

Ω_a	=	dimensionsloser RK-Koeffizient
v_c	=	kritisches Volumen (cm^3/mol)
T_{cij}	=	$\sqrt{T_{ci} \cdot T_{cj}}$ ($1 - k_{ij}$)
	=	kritische Temperatur
k_{ij}	=	Konstante für ij -Wechselwirkung
W	=	"acentric"-Faktor

angegeben, wurden die Fugazitäten nach RK berechnet, da für eine Edelgasmischung der Einfluß der Faktoren Ω_a , k_{ij} und W sich als unwesentlich erwiesen ($a_{ij} = 48,8$ nach RK und gleich $51,6 \text{ l}^2 \text{ atm Grad}^{1/2}/\text{mol}^2$ nach CP). Die für Kr/Xe-Mischungen, bei Temperaturen über der kritischen Temperatur beider Komponenten ($T_c(\text{Xe}) = 289,6 \text{ K}$ und $T_c(\text{Kr}) = 209,2 \text{ K}$) berechneten Fugazitäten sind in Tabelle 4140/4-2 und auf Abbildung 4140/4-5 zu sehen. Sie zeigen, daß für Xe/Kr-Mischungen die Abweichungen vom idealen Verhalten erst bei niedrigen Temperaturen zum tragen kommt.

2.4. Abschirmung einer Krypton-Abfüllflasche

Durch Rechnung wurden 3 Werkstoffe, Blei, Eisen und Beton ($\rho = 2,3 \text{ (g/cm}^3\text{)}$) auf ihre Brauchbarkeit zur Abschirmung einer mit Krypton gefüllten Druckflasche ($p_{\text{max}} = 100 \text{ atm}$) untersucht. Strahlungsquelle ist dabei das radioaktive Krypton-Nuklid Kr-85, das zu etwa 7 % in dem Krypton vorhanden ist.

Für die Berechnung wurde von folgender zylindrischen Stahlflasche ausgegangen

Durchmesser	$d = 200 \text{ (mm)}$
Länge	$l = 1500 \text{ (mm)}$
Wandstärke	$s = 6 \text{ (mm)}$
Fülldruck	$p = 100 \text{ (bar)}$.

Die β -Strahlung bzw. die daraus resultierende Bremsstrahlung trägt nur an der unabgeschirmten Flasche zur Dosisrate bei, sie ist dagegen bei den hier notwendigen dicken Abschirmschichten zu vernachlässigen, da sie schon auf den Relaxationslängen völlig absorbiert wird.

Die Rechnungen wurden in Zylindergeometrie mit zylindrischer Abschirmung durchgeführt, wobei die Streuung und Selbstabsorption im Quellmaterial berücksichtigt wurde. Es wurde eine isotrope Strahlung der im Zylinder homogen verteilten Quelle angenommen.

Die Ergebnisse der Rechnungen, die für eine normierte Quellstärke von $3,7 \cdot 10^{10}$ Bq Kr-85/m³ (1 Ci/m³) durchgeführt wurden, sind auf Abbildungen 4140/4-6, 4140/4-7, u. 4140/4-8 zusammengestellt. Der Aufpunkt liegt dabei an der Oberfläche der Abschirmung in halber Zylinderhöhe.

Referenzen

- /1/ VDI-Wärmeatlas (1963)
- /2/ Vogel, KTB, persönliche Mitteilung
- /3/ Neffe, RBT/IT-PA, persönliche Mitteilung
- /4/ R.-D. Penzhorn, KFK 2482 (1977)
- /5/ R.N. Lyon Ed., Liquid-Metals Handbook, 2nd Ed. (1952)
- /6/ J.J. Martin, C.Y. Hou, A.I.Ch.E.J. 1, 142 (1955)
- /7/ M. Benedict, G.W. Webb, L.C. Rubin, J. Chem. Phys. 8, 334 (1940)
- /8/ J.A. Beattie, O.C. Bridgeman, J. Am. Chem. Soc. 50, 3133 (1928)
- /9/ C.J. Pings, B.H. Sage, Ind. Eng. Chem. 49, 1315 (1957)
- /10/ O. Redlich, J.N.S. Kwong, Chem. Rev. 44, 233 (1949)
- /11/ K.K. Shah, G. Thodos, Ind. Eng. Chem. 57, 30 (1965)
- /12/ P.L. Chueh, J.M. Prausnitz, AIChE Journal 13, 1099 (1967)

Abb. 4140.4-1: Krypton 85 Lagerflasche B 50 ($d_a=229$ mm)

geometrischer Inhalt 50 l

Kr 85 - Anteil 7%

Beziehung zwischen Temperatur-Druck-Werkstoff-Wandstärke

Umgebungstemperatur $t_u=30^\circ\text{C}$

Werkstoffe: TiAl6V6 Sn2

34 Cr Mo 4 (1.7220)

WSTE 47 (1.8935)

ST 35.8 (1.0305)

X 5 Cr Ni 18 9 (1.4301)

X 2 Cr Ni 18 9 (1.4306)

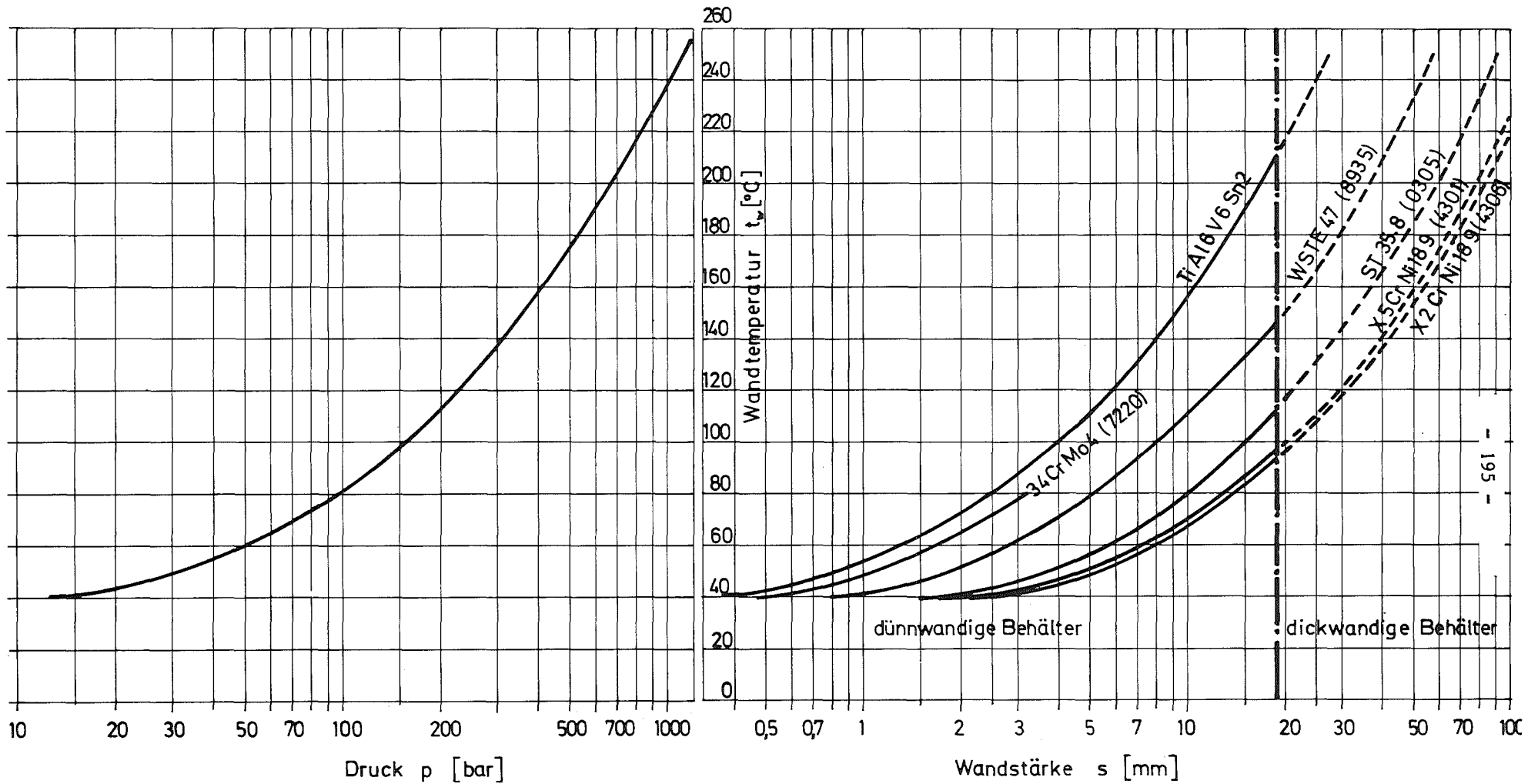
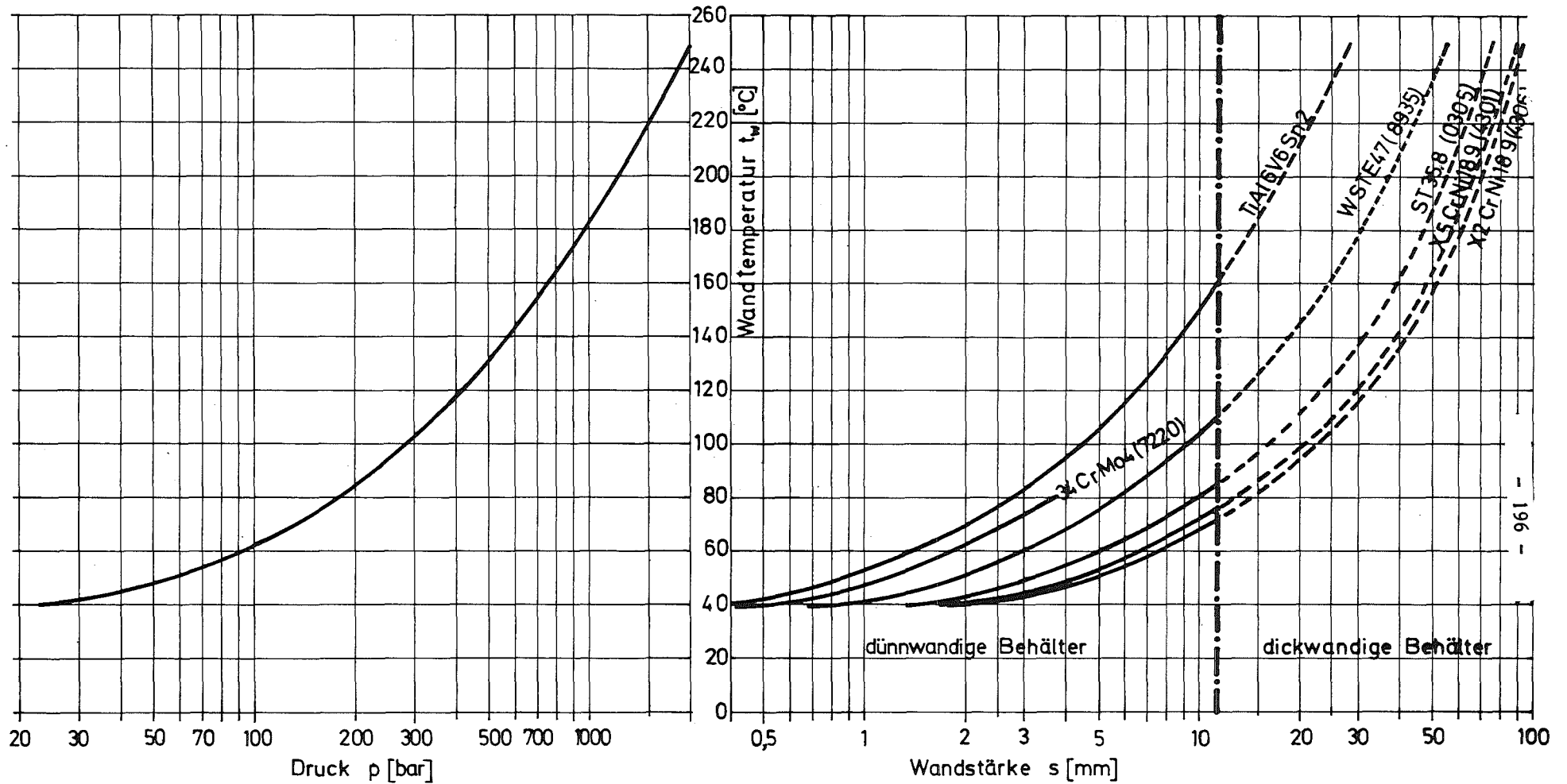


Abb. 4140/4-2: Krypton 85 - Lagerflasche B10 ($d_a = 140\text{mm}$)
 geometrischer Inhalt 10 l, Kr 85-Anteil 7%

Beziehung zwischen Temperatur-Druck-Werkstoff-Wandstärke

Umgebungstemperatur $t_w = 30^\circ\text{C}$

Werkstoffe: Ti Al6 V6 Sn2
 34 Cr Mo 4 (1.7220)
 WSTE 47 (1.8935)
 ST 35.8 (1.0305)
 X5CrNi 18 9 (1.4301)
 X2CrNi 18 9 (1.4306)



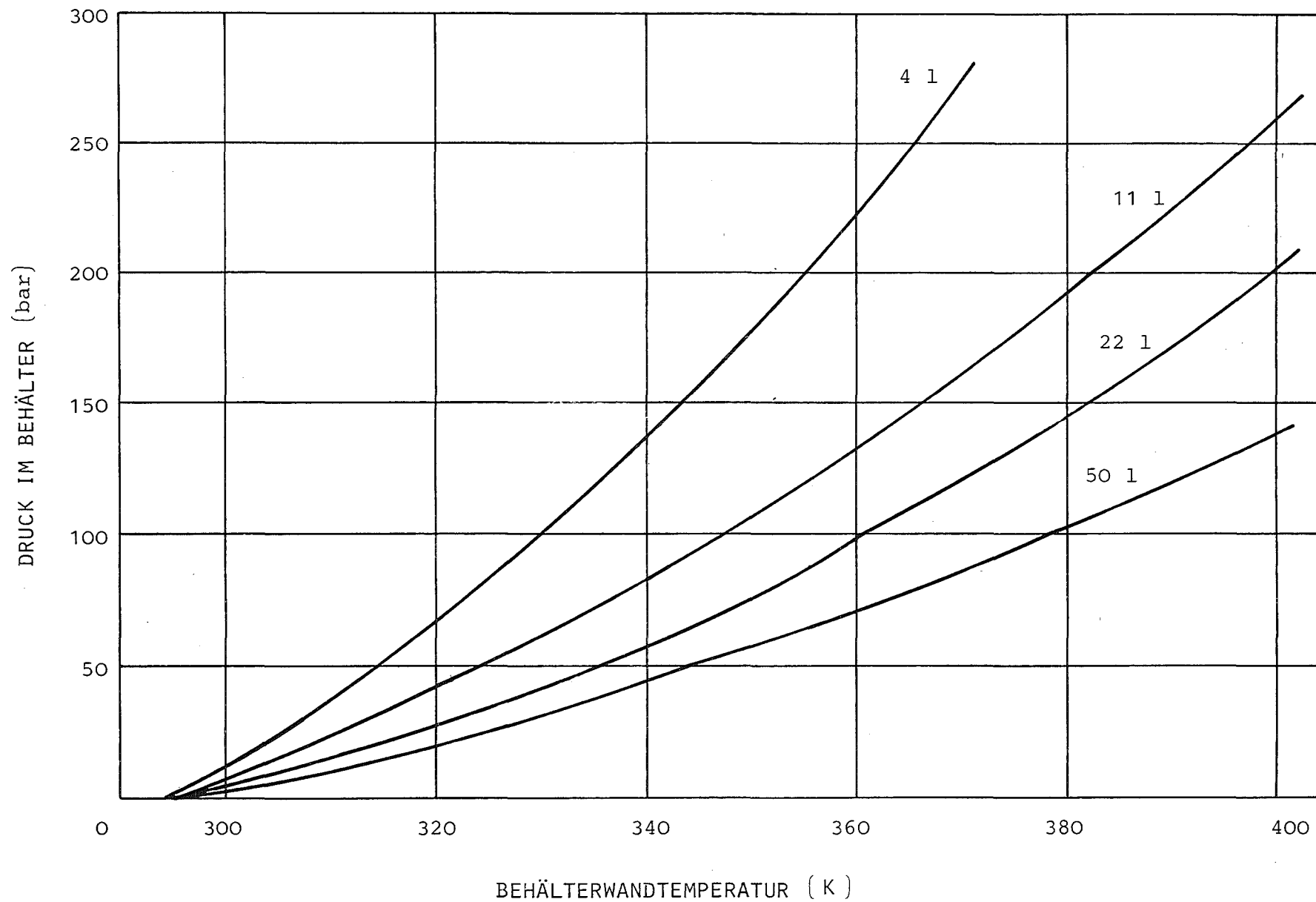


Abb. 4140/4-3:

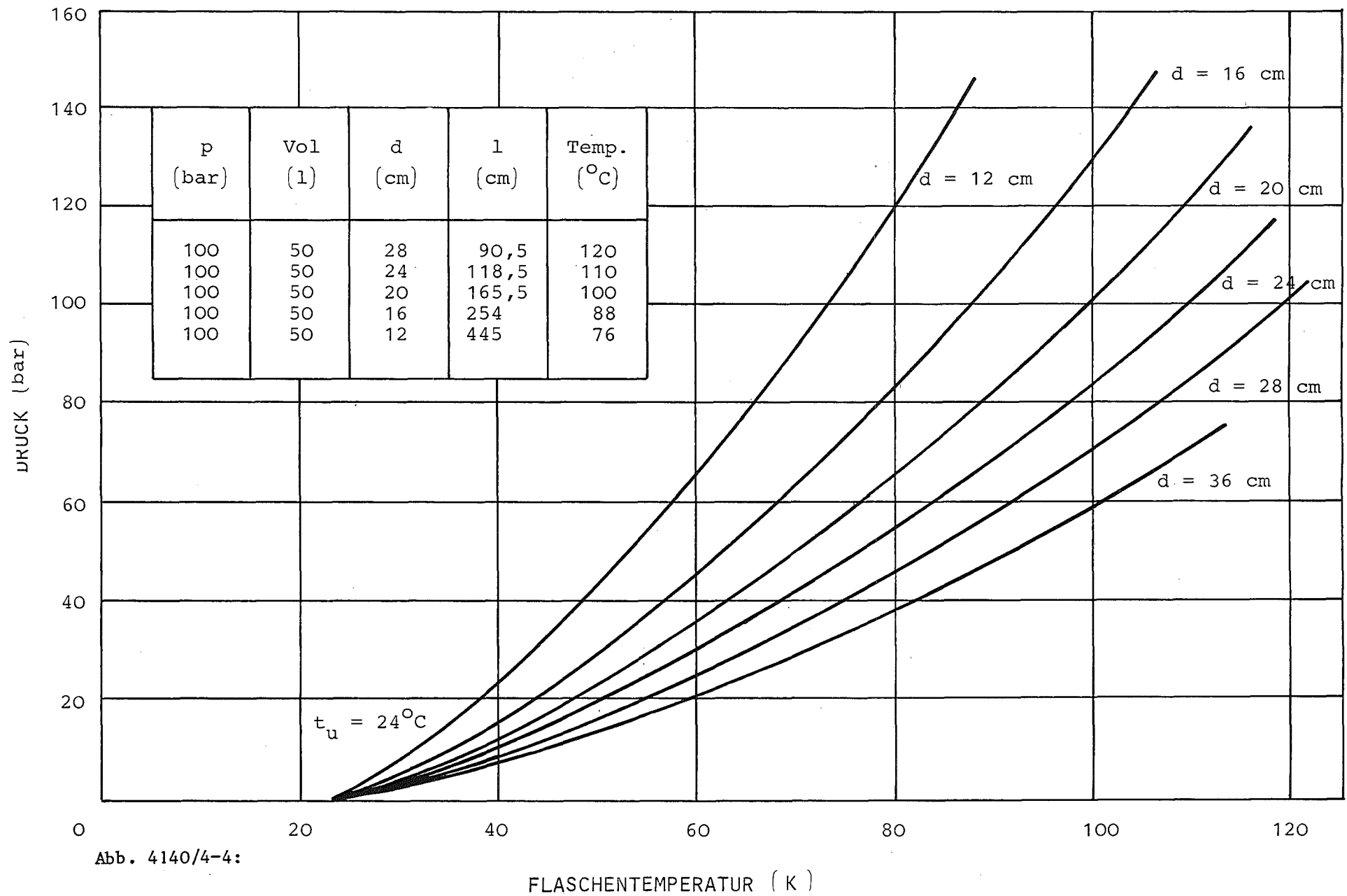


Abb. 4140/4-4:

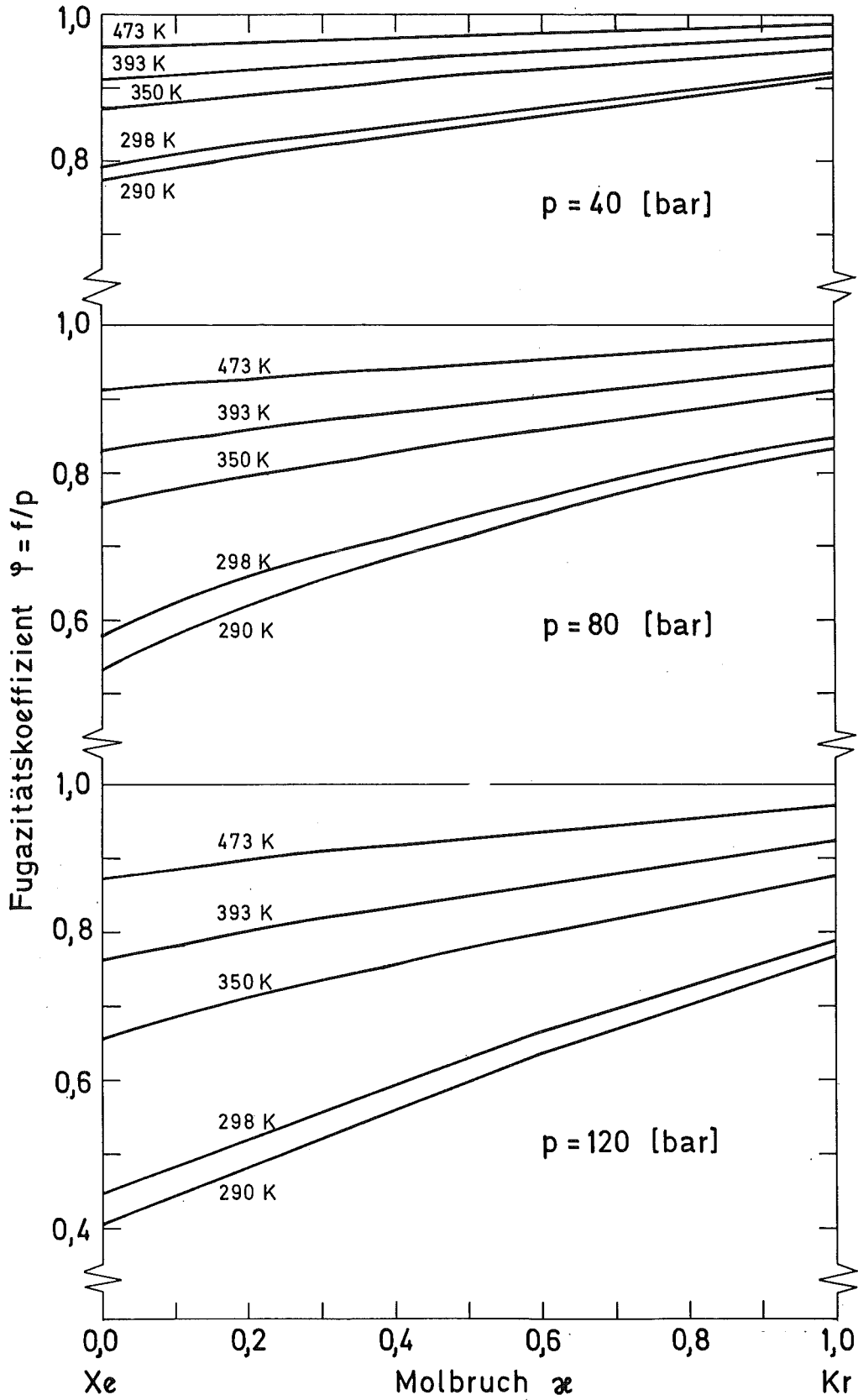


Abb. 4140/4-5:

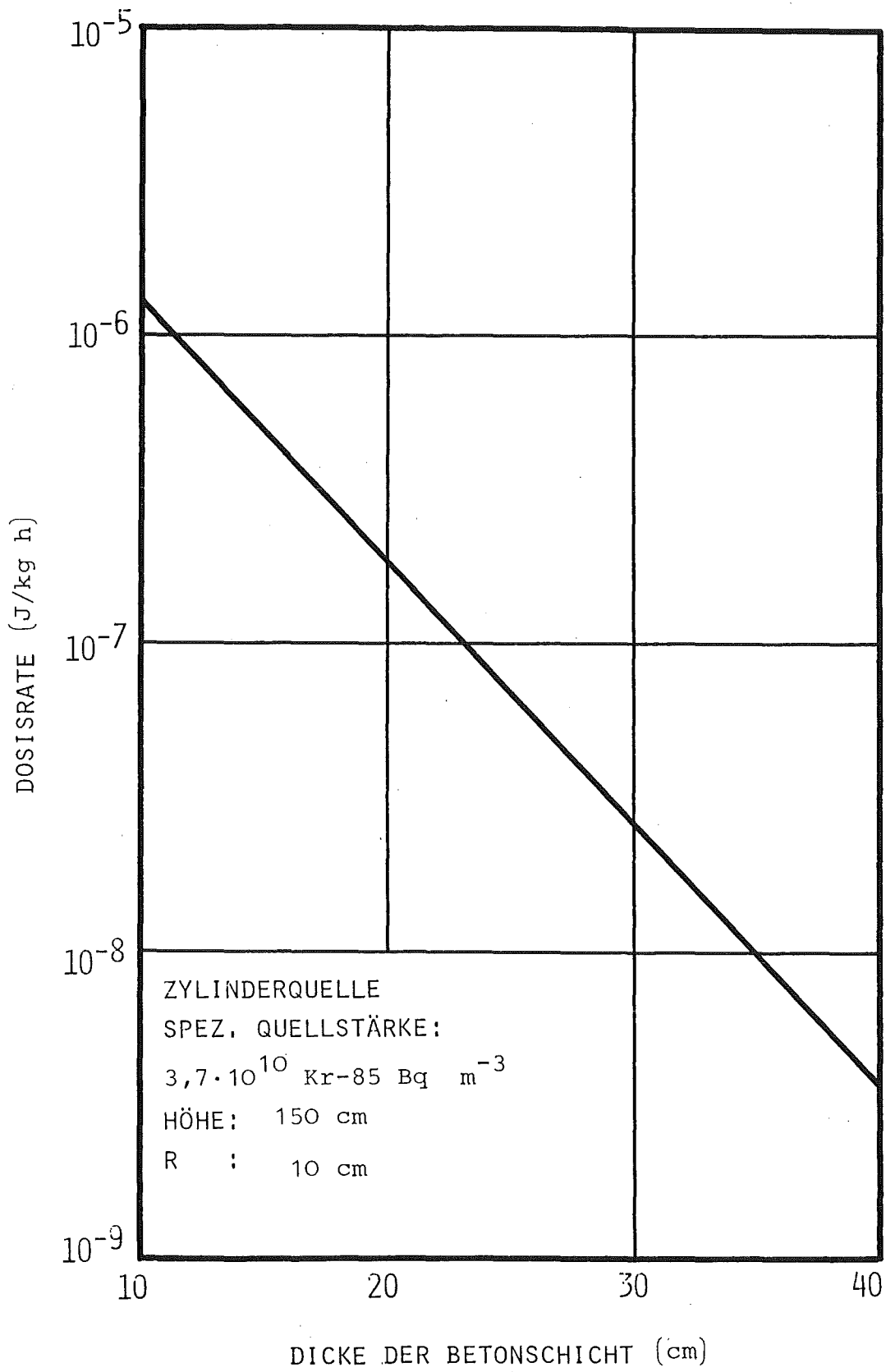


Abb. 4140/4-6:

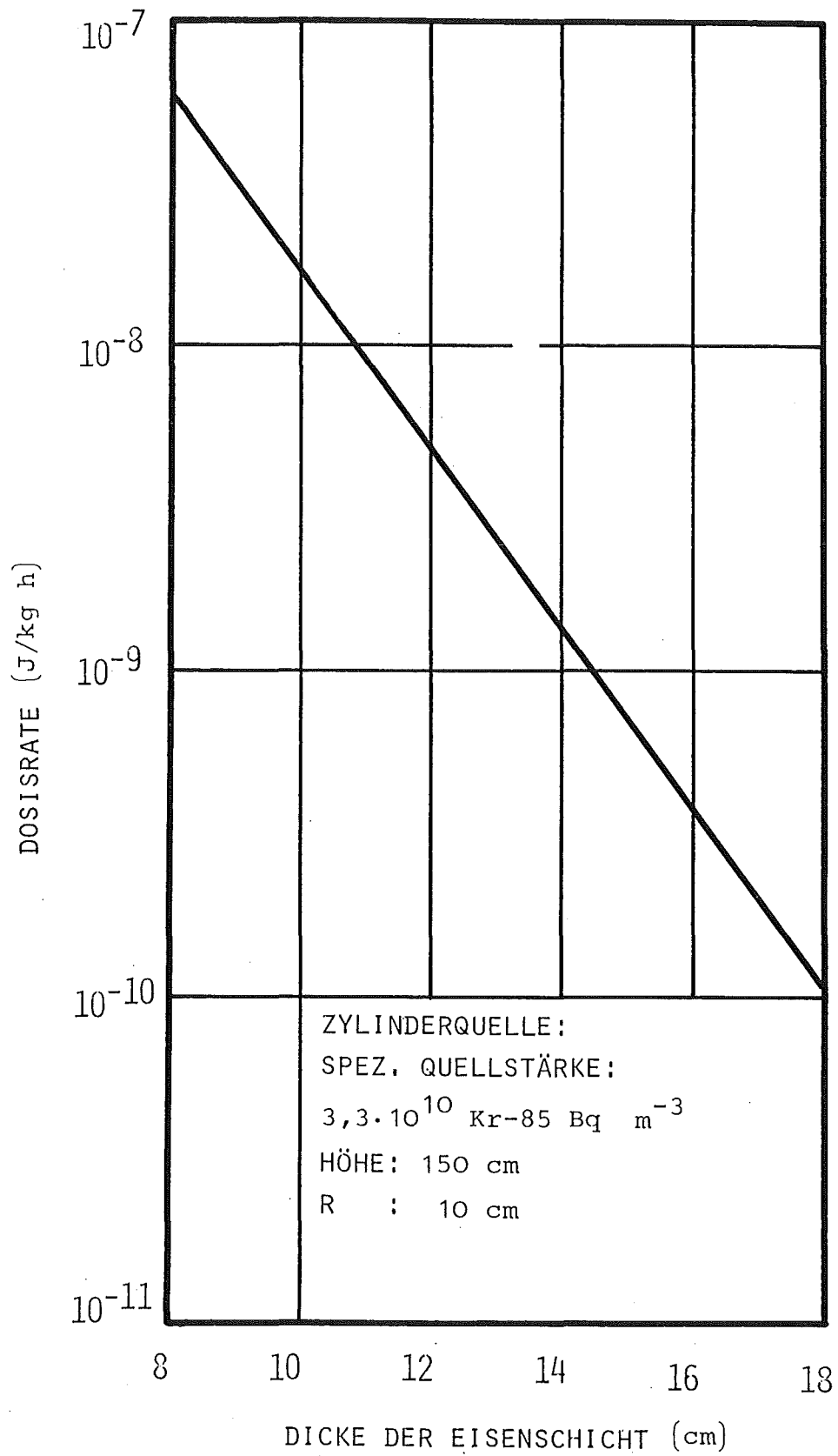


Abb. 4140/4-7:

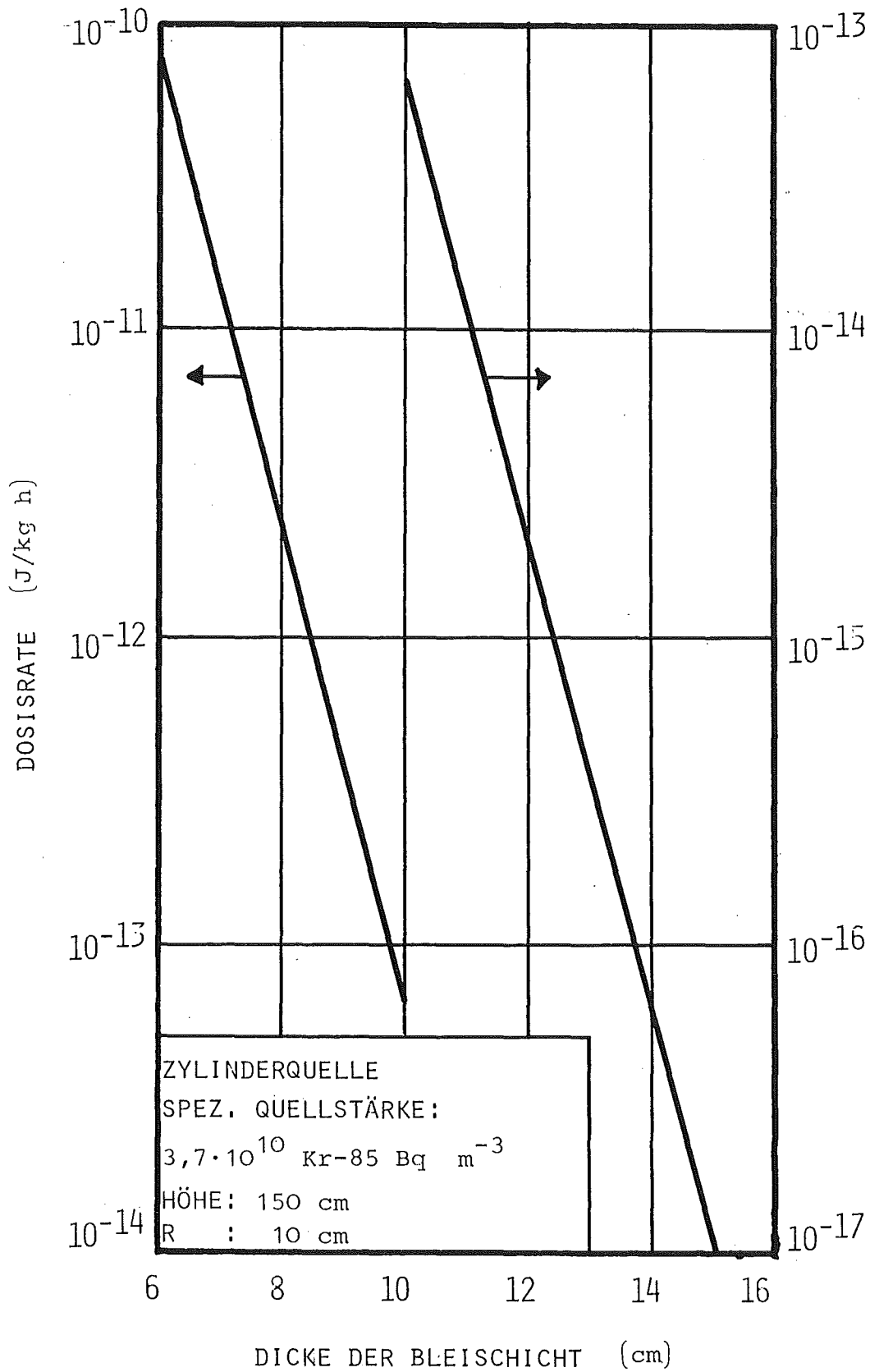


Abb. 4140/4-8:

Tab. 4140/4-1: ALKALIMATERIALKORROSIONSVERSUCHE IRCH/IMF (EDELGASDRUCK = 100 BAR)

		STAHLFLASCHENMATERIAL	A	B	B	B
		VERSUCHSDAUER	t ₁	t ₁	t ₂	t ₂
150°C	Ar	x	-	x	x	
	Ar/Rb	x	-	x	x	
	Ar/Rb/Rb ₂ O	x	-	x	x	
200°C	Ar	x	x	x	x	
	Ar/Rb	x	x	x	x	
	Ar/Rb/Rb ₂ O	x	x	x	x	
TEMPERATUR	PROBENZUSAMMENSETZUNG					

		A
		t ₁
Ar	x	
Ar/Na	x	
Ar/Na/Na ₂ O	x	
Ar	x	
Ar/Na	x	
Ar/Na/Na ₂ O	x	

t₁ = 2000 STUNDEN

t₂ = 6000 STUNDEN

A = WERKST. NR. 1.0305

B = WERKST. NR. 1.4301 + 1.4306

Tab. 4140/4-2: Fugazitäten im System Kr/Xe in Abhängigkeit von der Temperatur, Druck und Gaszusammensetzung

p (bar)	f _{0,0} ²⁹⁸	f _{0,0} ³⁹³	f _{0,0} ⁴⁷³	f _{0,8} ²⁹⁸	f _{0,8} ³⁹³	f _{0,8} ⁴⁷³	f _{0,9} ²⁴³	f _{0,9} ²⁹⁸	f _{0,9} ³⁹³	f _{0,9} ⁴⁷³	f _{1,0} ²⁴³	f _{1,0} ²⁹⁸	f _{1,0} ³⁹³	f _{1,0} ⁴⁷³
20	17,89	19,09	19,52	18,83	19,50	19,74	18,25	19,07	19,65	19,85	18,43	19,17	19,70	19,88
40	31,70	36,46	38,12	35,38	38,04	38,98	33,15	36,37	38,64	39,42	33,87	36,77	38,83	39,53
60	41,40	52,22	55,87	49,72	55,66	57,74	44,87	52,03	57,02	58,74	46,50	52,93	57,45	58,99
80	46,42	66,52	72,85	61,91	72,40	76,04	53,57	66,21	74,87	77,85	56,53	67,77	75,60	78,28
100	49,95	79,26	89,15	71,96	88,31	93,92	59,84	79,09	92,23	96,78	64,39	81,46	93,35	97,44
120	53,34	91,43	104,84	79,83	103,43	111,40	65,02	90,87	109,17	115,56	70,86	94,17	110,75	116,49
140	56,71	102,45	120,02	85,71	117,84	128,50	69,87	101,79	125,76	134,22	76,72	106,09	127,85	135,47
160	60,12	112,80	134,77	90,51	131,57	145,25	74,62	112,07	142,05	152,80	82,34	117,40	144,71	154,40
180	63,60	122,68	149,17	94,91	144,70	161,68	79,39	121,92	158,12	171,33	87,89	128,27	161,39	173,30
200	67,16	132,26	163,30	99,15	157,29	177,83	84,21	131,51	174,02	189,85	93,46	138,87	177,93	192,22

$$f_{\chi}^T = \text{Fugazität bei der Temperatur } T \text{ (K) und Molbruch } \chi = \chi_{\text{Kr}} / (\chi_{\text{Kr}} + \chi_{\text{Xe}})$$

4140/5 Ozonzerstörung unter kryogenischen Verhältnissen

(R.-D. Penzhorn und K. Günther, IRCH)

1. Einleitung

Im Hinblick auf Störfälle bei der Krypton- und Xenon-Abtrennung wird an der Entwicklung von einem Verfahren für die Zerstörung von Ozon aus dem radioaktiven Sumpf einer Tieftemperatur-Rektifikationskolonne (TTR) gearbeitet. Grundsätzlich wurde in den bisherigen Versuchen die katalytische Zerstörung von Ozon nur bei Temperaturen zwischen 25 und 80°C erprobt. Es konnte gezeigt werden, daß unter der Voraussetzung einer geringen Stickoxidkonzentration mit dem Katalysator AG-RKO-1 die besten Ergebnisse erzielt werden können. In Anwesenheit von größeren Mengen an N_xO_y erwiesen sich die Katalysatoren PD-MKO-6 und PD-MKO-9 als optimaler. Die Versuche ergaben weiterhin, daß auf einem reduzierten Cu-haltigen Katalysator nicht nur O_2 sondern gleichzeitig auch Ozon quantitativ entfernt werden kann /2/. Abhängig von dem noch festzustellenden Umfang des, die Rubidiumkorrosion fördernden, Effektes des Sauerstoffs kann eine Kryptonreinigung vor der Endlagerung mit diesem Katalysator in Erwägung gezogen werden.

In allen bisherigen Arbeiten bleibt jedoch die Frage offen, ob Ozon auch unter kryogenischen Verhältnissen entfernt werden kann. Der Beantwortung dieser Frage wird im folgenden Bericht nachgegangen.

2. Apparatur

Die verwendete Versuchsanordnung ist im Wesentlichen in früheren Arbeiten beschrieben worden /1,2/. Lediglich der Katalysatorbehälter wurde neu entworfen, um eine verbesserte Kühlung und Temperaturüberwachung des Katalysatorbettes zu gewährleisten (s. Abb. 4140/5-1). Zur Kühlung des Katalysatorbehälters wurde

ein Ultra-Kryomat K-80 der Fa. Lauda verwendet. Die Bestimmung der Ozonkonzentration im Gasstrom vor bzw. nach dem Katalysatorbett war kontinuierlich und erfolgte in einer 1 cm Quarzzelle mit einem Cary 15 UV-Spektrometer bei $\lambda = 253,5$ nm.

3. Versuchsergebnisse

Im Hinblick auf das Ziel dieser Versuche, die Ozonzerstörung bei tiefen Temperaturen zu untersuchen, wurden vier sehr verschiedene Katalysatoren erprobt. Die Kenndaten dieser Katalysatoren, einschließlich der nach der BET-Methode bestimmten spezifischen Oberflächen vor und nach Behandlung mit Ozon, sind auf Tabelle 4625-1 zusammengestellt. Zur Erstellung eines Vergleichs der Wirksamkeit dieser Katalysatoren wurden systematische, kinetische Untersuchungen, hauptsächlich bei isothermen Bedingungen, durchgeführt.

3.1. AG-MKO-12-Katalysator

In einer genaueren Prüfung der chemischen und physikalischen Stabilität des AG-MKO-12-Katalysators wurde der Katalysator über längere Zeit einer hohen Ozonmenge (≈ 27 g O_3 /h) enthaltenen O_2 -Gasstroms ($0,5$ Nm³ (O_2+O_3)/h) ausgesetzt. Es zeigte sich, daß

- selbst nach 36 Betriebsstunden keine nennenswerte Abnahme der spezifischen Oberfläche auftritt (s. Tab. 4625-1) und
- der Wirkungsgrad des Katalysators zuerst geringfügig abnimmt, sich jedoch im weiteren Verlauf stabilisiert (s. Abb. 4625-2 a und b). Wie schon in einer früheren Arbeit berichtet wird offensichtlich auch bei niedrigen Temperaturen das metallische Silber, unter Bildung von einem, ebenfalls die Ozonzerstörung sehr aktiv katalysierenden, AgII-Oxid, von Ozon angegriffen.

Die Zerfallsgeschwindigkeit des Ozons an dem AG-MKO-12-Kataly-

Tab. 4140/5-1: Kenndaten der untersuchten Katalysatoren

Katalysator- Bezeichnung	Hersteller	Träger- material	Aktives Metall	Oberfläche (m ² /g)		Preßlinge: Durchmesser x Länge (nm)
				neu	nach O ₃ -Be- handlung	
AG-MKO-12	Heraeus	Al ₂ O ₃	5% Ag	99,8	98,3*	3,2·3,4
PD-MKO-9	Degussa	Al ₂ O ₃	0,5% Pd	263	268,9	3,7-2,8 ‡
BTS	BASF		Cu	202	113	4,3·1,0
PT-MKO-8	Heraeus	Al ₂ O ₃	0,5% Pt	113,6	111,7	3,2·3,4

* nach 36 Betriebsstunden

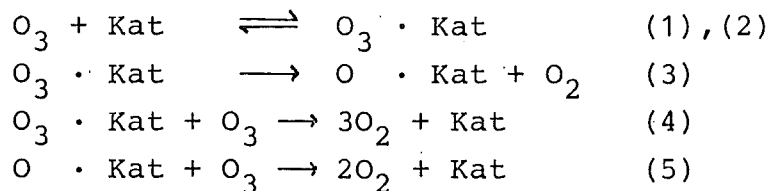
‡ Kugeln

sator ist bei den gemessenen Temperaturen (272 und 287,5 K), den Strömungsgeschwindigkeiten von 221 und 640 (l/h) und im O_3 -Konzentrationsbereich von 0,7 bis 28,5 (g O_3 /h) dem O_3 -Partialdruck proportional (s. Abb. 4140/5-2 c). Da bei diesen niedrigen Temperaturen ein Beitrag des thermischen, homogenen Ozonzerfalls ausgeschlossen werden kann, ergibt sich, daß der Ozonzerfall an diesem Katalysator nach der 1. Ordnung verläuft. Die Reaktionsgeschwindigkeitsgleichung lautet demzufolge

$$\frac{-dO_3}{dt} = k \cdot p_{O_3} \quad (I)$$

Dieser Befund stimmt mit den Ergebnissen anderer Autoren überein /3/.

Um zu einer Beziehung der 1. Ordnung zu gelangen, kann das folgende Reaktionsschema gewählt werden



Wir berechnen zunächst die stationären Konzentrationen ($O_3 \cdot Kat$) und ($O \cdot Kat$), der an der Katalysatoroberfläche chemisorbierten Ozonmoleküle und O-Atome, aus den Gleichungen

$$(O_3 \cdot Kat) = \frac{k_1 p_{O_3}}{k_2 + k_3 + k_4 p_{O_3}} \quad (II)$$

und

$$(O \cdot Kat) = \frac{k_3 \cdot k_1}{k_5 (k_2 + k_3 + k_4 p_{O_3})} \quad (III)$$

Setzt man nun in die Gleichung für die Abnahmegeschwindigkeit der Ozonkonzentration

$$\frac{-dO_3}{dt} = k_1 p_{O_3} + k_4 (O_3 \cdot Kat) \cdot p_{O_3} + k_5 (O \cdot Kat) p_{O_3} - k_2 (O_3 \cdot Kat) \quad (IV)$$

die in II und III errechneten Ausdrücke für ($O_3 \cdot Kat$) und ($O \cdot Kat$) ein, so ergibt sich der folgende Ausdruck

$$\frac{-dO_3}{dt} = 2 k_1 p_{O_3} \left[1 - \frac{k_2}{k_2 + k_3 + k_4 p_{O_3}} \right] \quad (V)$$

Da der Ozonzerfall im gesamten Temperatur- und Konzentrationsbereich nach der 1. Ordnung verläuft, muß $(k_2 + k_3) \gg k_4 p_{O_3}$. Dies bedeutet, daß der Reaktionsweg (4) praktisch nicht beschritten wird; eine Annahme, die für die hier verwendeten geringen O_3 -Teildrücken durchaus berechtigt erscheint. Mit dieser Annahme erhält man aus Gleichung V näherungsweise

$$\frac{-dO_3}{dt} \approx 2 k_1 \left[1 - \frac{k_2}{k_2 + k_3} \right] p_{O_3} \quad (VI)$$

und mit Gleichung I

$$k = 2 k_1 \left[1 - \frac{k_2}{k_2 + k_3} \right] \quad (VII)$$

Die jeweiligen, aus einer Meßreihe für die verschiedenen Temperaturen erhaltenen, Geschwindigkeitskonstanten des Ozonzerfalls wurden mit Hilfe der Arrheniusgleichung auf die Aktivierungsenergie ausgewertet (s. Abb. 4140/5-3). Diese Abb. verdeutlicht, daß der Wirkungsgrad des Katalysators mit der Betriebszeit abnimmt. Daß dabei die Aktivierungsenergie unverändert bleibt, ist ein Hinweis dafür, daß der Ozonzerfall immer nach dem gleichen Reaktionsmechanismus abläuft. Die Auswertung des Aktivitätsabfalls bei sinkender Temperatur im Bereich von 280 bis 370 K auf die Aktivierungsenergie ergibt $0,6 \pm 0,2$ (kcal/mol). Die hier ermittelte Aktivierungsenergie ist niedriger, jedoch von vergleichbarer Größenordnung als die, die an AgO (2,2 (kcal/mol)) von Schwab und Hartmann /4/ gemessen wurde.

Die Temperaturabhängigkeit des Ozonabbaus am metallischen Silber (AG-MKO-1) wurde ebenfalls gemessen. Berücksichtigt man, daß an einem solchen Katalysator Messung und Einstellung der Temperatur im Verhältnis zu einem auf Trägermaterial aufgetragenen ungenauer ist, so stimmt die für den AG-MKO-1-Katalysator im Temperaturbereich 278-317 K erhaltene Aktivierungsenergie von $1,1 \pm 0,6$ (kcal/ml) mit der an AG-MKO-12 gefundenen gut überein. Offen-

sichtlich ist der Reaktionsablauf an beiden Katalysatoren gleich.

Die Bedeutung der Katalysator-Betthöhe ist aus den auf Abbildung 4140/5-4 aufgetragenen Versuchsergebnissen ersichtlich. Am Beispiel der Kurven 1-4 ist zu erkennen, daß die aus der katalytischen Reaktion freigesetzte Wärme zu einem Anstieg der Temperatur des Trägergases führt. Bei konstant bleibender Gasströmungsgeschwindigkeit ist der Temperaturanstieg der zerstörten Ozonmenge leicht überproportional. Die Ozonzerstörung erfolgt, unter den verwendeten Versuchsbedingungen, zu einem hohen Prozentsatz sofort nach Eindringen in das Katalysatorbett (z.B. kann Ozon zu 91 % aus einem 26 g O₃/h Gasstrom auf 10 g Katalysator zersetzt werden (Kurve 4)), das Gas verläßt den Behälter jedoch bei einer erhöhten Temperatur. Bei ausreichender Katalysatorbettiefe kann das Gas in etwa auf die Temperatur des Kühlmediums des Kryobehälters gebracht und zusätzlich der O₃-Zersetzungsgrad auf mehr als 99 % gesteigert werden (Kurven 1-3). Daß die nahezu 100 %-ige Ozonzerlegung bei Temperaturen zwischen -70 und -80°C, Strömungsgeschwindigkeiten zwischen 0,15 und 0,5 (m³/h) und Ozonkonzentrationen zwischen 5 und 27 (g/h) an dem AG-MKO-12-Katalysator möglich ist, demonstriert Abb. 4140/5-5.

3.2. BTS-Katalysator

Schon Schwab und Hartmann /4/ stellten fest, daß Kupfer durch Ozon zu einem Kupferoxid oxidiert wird, das die gleiche katalytische Aktivität wie das Metall bei einer wesentlich geringeren Temperatur aufweist. Da die Wirksamkeit des Katalysators auf eine Wechselwirkung zwischen dem elektrophilen Charakter des Ozons und den Elektronendonator-Eigenschaften des Katalysators zurückzuführen ist, fördert das Hinzukommen des Sauerstoffs, der selber als Elektronendonator auftritt, durch die Bildung eines ionisierten Metalloxids die katalytische Leistung.

Auch der BTS-Katalysator eignet sich für die Beseitigung von Ozon bei tiefen Temperaturen. Was das Temperaturprofil im Kata-

lysator betrifft, so ist, bei konstanter Strömungsgeschwindigkeit die Temperaturerhöhung im Katalysatorbett der jeweils eingespeisten Ozonmenge in etwa proportional.

Das in Abbildung 4140/5-6 dargestellte Diagramm zeigt, daß bei niedrigen Strömungsgeschwindigkeiten ($0,14 \text{ (m}^3/\text{h)}$) das Ozon 100 %-ig beseitigt (Kurven 1-4) und das ausströmende Gas bis auf die Temperatur des Kühlmittels zurückgekühlt werden kann. Anders als beim AG-MKO-12-Katalysator beträgt, bei gleicher Katalysatormenge, der Zersetzungsgrad des Ozons bei höheren Gasdurchsätzen ($0,5 \text{ (m}^3/\text{h)}$), wenn die Konzentration des Ozons zwischen $7,8$ und 27 (g/h) (Kurven 5-8) liegt nur 92-96 %. Eine nennenswerte Abnahme der Katalysatorleistung bzw. der spezifischen Oberfläche (Tab.4140/5-1) konnte bei diesen Versuchen nicht festgestellt werden. Die Ozonzerlegung verlief bei 300, 250 und 233 nahezu nach der 1. Ordnung.

Zur Ermittlung der Aktivierungsenergie wurden die jeweiligen Temperaturen des Kühlbades über längere Zeit konstant gehalten, bis sich im gesamten System ein thermisches Gleichgewicht eingestellt hatte. Die im Temperaturbereich 280-330 K für den BTS-Katalysator (im oxydierten Zustand liegt das Cu als CuO vor) ermittelte Aktivierungsenergie von $1,9 \pm 0,3 \text{ (kcal/mol)}$ stimmt mit der von Schwab und Hartmann /4/ an CuO gemessenen ($2,2 \text{ (kcal/mol)}$) gut überein.

Überraschend ist, daß im Temperaturbereich von 210-250 K eine Zunahme der Ozonbeseitigungsgeschwindigkeit mit abnehmender Temperatur festgestellt werden kann. Werden die Ergebnisse in Arrheniusform aufgetragen, erhält man eine negative Aktivierungsenergie von $-0,3 \pm 0,2 \text{ (kcal/mol)}$. Welcher Schritt zu dieser Änderung im Reaktionsmechanismus führt ist noch nicht geklärt.

3.3. Die PT-MKO-8- und PD-MKO-9-Katalysatoren

Ebenso wie in den in 3.1. und 3.2. beschriebenen Versuchen über den Tieftemperatur-Zerfall von Ozon wurden auch Pd- und Pt-haltige Katalysatoren erprobt. Auch auf diesen Katalysatoren verläuft die Ozonzerlegung nach der 1. Ordnung. Dies steht

im Gegensatz zu den Ergebnissen von Emel'yanova, Lebedev und Kobozev /5/, die allerdings für die Zerstörung von flüsigem Ozon, wegen des Selbstvergiftungsprozesses des Katalysators durch den entstehenden Sauerstoff, ein kinetisches Verhalten nach der 3. Ordnung beobachteten.

Die ermittelten Aktivierungsenergien des Ozonzerfalls an dem PT-MKO-8- und dem PD-MKO-9-Katalysator sowie an den bereits diskutierten Katalysatoren sind in Tabelle 4625-2, zusammen mit Werten aus der Literatur, aufgeführt. Man kann feststellen, daß

- der PD-MKO-9-Katalysator um Größenordnungen effektiver als der PT-MKO-8 ist
- bei Temperaturen über 280 K der Ozonzerfall an den untersuchten Katalysatoren mit einer niedrigen Aktivierungsenergie abläuft
- an den BTS-, PD-MKO-9- und PT-MKO-8-Katalysatoren im Temperaturbereich von 210-260 K der Ozonzerfall mit einer scheinbaren negativen Aktivierungsenergie stattfindet.

4. Schlußfolgerungen

1. Gasförmiges Ozon kann katalytisch bei tiefen Temperaturen zerlegt werden. Die bisher erprobten äußersten Bedingungen unter denen 99,9 % des Ozons entfernt werden konnte waren

Durchsatz : 0,5 (m³/h)
Ozon : 27 (g/h)
Temperatur : 193 K
Katalysator: 35 g AG-MKO-12

2. Die Effektivität der Katalysatoren im Temperaturbereich 193-300 K verläuft

AG-MKO-12 > BTS PD-MKO-9 >> PT-MKO-8

3. Die Katalysatoren BTS, PD-MKO-9 und PT-MKO-8 zeigen zunehmende katalytische Wirksamkeit mit abnehmender Tempe-

ratur. Demzufolge ist vorauszusehen, daß auch bei Temperaturen unter 190 K und u.U. in der flüssigen Phase eine Ozonzerstörung möglich sein wird.

Tab. 4140/5-2: Aktivierungsenergien für den Ozonzerfall an verschiedenen Katalysatoren

Katalysatoren	Temp. Bereich K	ΔE (kcal/mol)	Literatur
Pt-Schwarz	77,4 - 90	0,5	6
	77,4 - 90	1,0	5
	310 - 380	3,8	4
Pt-MKO-8	280 - 370	$2,1 \pm 0,4$	diese Arbeit
	210 - 260	0	diese Arbeit
Pd-Schwarz	77,4 - 90	aktiv n.b.	6
Pd-MKO-9	280 - 330	$1,9 \pm 0,3$	diese Arbeit
	225 - 250	0	diese Arbeit
Ag-Schwarz	77,4 - 90	aktiv n.b.	6
Ag-MKO-12	280 - 370	$0,6 \pm 0,2$	diese Arbeit
AgO	290 - 360	2,2	4
Cu ₂ O	>353	aktiv	4
Cu, CuO	77,4 - 90	inaktiv	6
CuO	290 - 370	2,2	4
BTS	280 - 330	$1,9 \pm 0,3$	diese Arbeit
	210 - 250	0	diese Arbeit

Literatur

- /1/ K. Günther, P. Schuster, H.E. Noppel, R.-D. Penzhorn
KFK 2435, 164 (1976/2)
- /2/ R.-D. Penzhorn, P. Schuster, K. Günther, H.E. Noppel
KFK 2500 (1977/1)
- /3/ W.D. Ellis, P.V. Tometz
Atmospheric Env. 6, 707 (1972)
- /4/ G.-M. Schwab, G. Hartmann
Z. Phys. Chem., N.F. 6, 72 (1956)
- /5/ G.J. Emel'yanova, V.P. Lebedev, N.I. Kobozer
Kataliticheskie reaktsii v zhidkoi faze Trudy Vsesoyuznoi
konferentsii, Ahma-Ata, Okt (1962) KFK-tr-492 (1976)
- /6/ G.I. Emel'yanova, V.P. Lebedev, N.I. Kobozev
Vestnik Moskovskogo Universiteta, ser. II, khimiya, 4, 31
(1961), KFK-tr-494 (1976)

Legenden zu den Abbildungen

- Abb. 4140/5-1: Kryo-Katalysatorbehälter aus Edelstahl.
Thermoelemente: Fe/Konstanten
- Abb. 4140/5-2: Aktivitätsabfall des AG-MKO-12-Katalysators in Abhängigkeit von der Einsatzzeit des Katalysators (Abb. a und b). Abhängigkeit des $(O_3^O - O_3)/O_3^O$ -Verhältnisses von dem Ozonteildruck bei 272 K und 640 (l/h) (\square) sowie 287,5 K und 220 (l/h) (\odot) (Abb. c)
- Abb. 4140/5-3: Arrhenius-Auftragungen nach verschiedenen an dem AG-MKO-12 zersetzten Ozonmengen: 1. Katalysator neu, 2. nach 13, 2. nach 33 und 4. nach 40 g zersetztem Ozon
- Abb. 4140/5-4: Temperaturprofil während der Zerstörung von Ozon AG-MKO-12 in Abhängigkeit der Katalysatormenge, des Durchflusses und der Ozonmenge
- Abb. 4140/5-5: Temperaturprofil während der Zerstörung von Ozon an AG-MKO-12 in Abhängigkeit der O_2/O_3 -Durchflußgeschwindigkeit und der Ozonkonzentration
- Abb. 4140/5-6: Temperaturprofil im Katalysatorbehälter während der Tieftemperatur-Ozonzerlegung an den Katalysatoren BTS, PD-MKO-9 und PT-MKO-8. Die durchgezogenen Linien entsprechen 144 (l/h) und die gestrichelten 550 (l/h)
- Abb. 4140/5-7: Arrhenius-Diagramme für den katalytischen Ozonzerfall

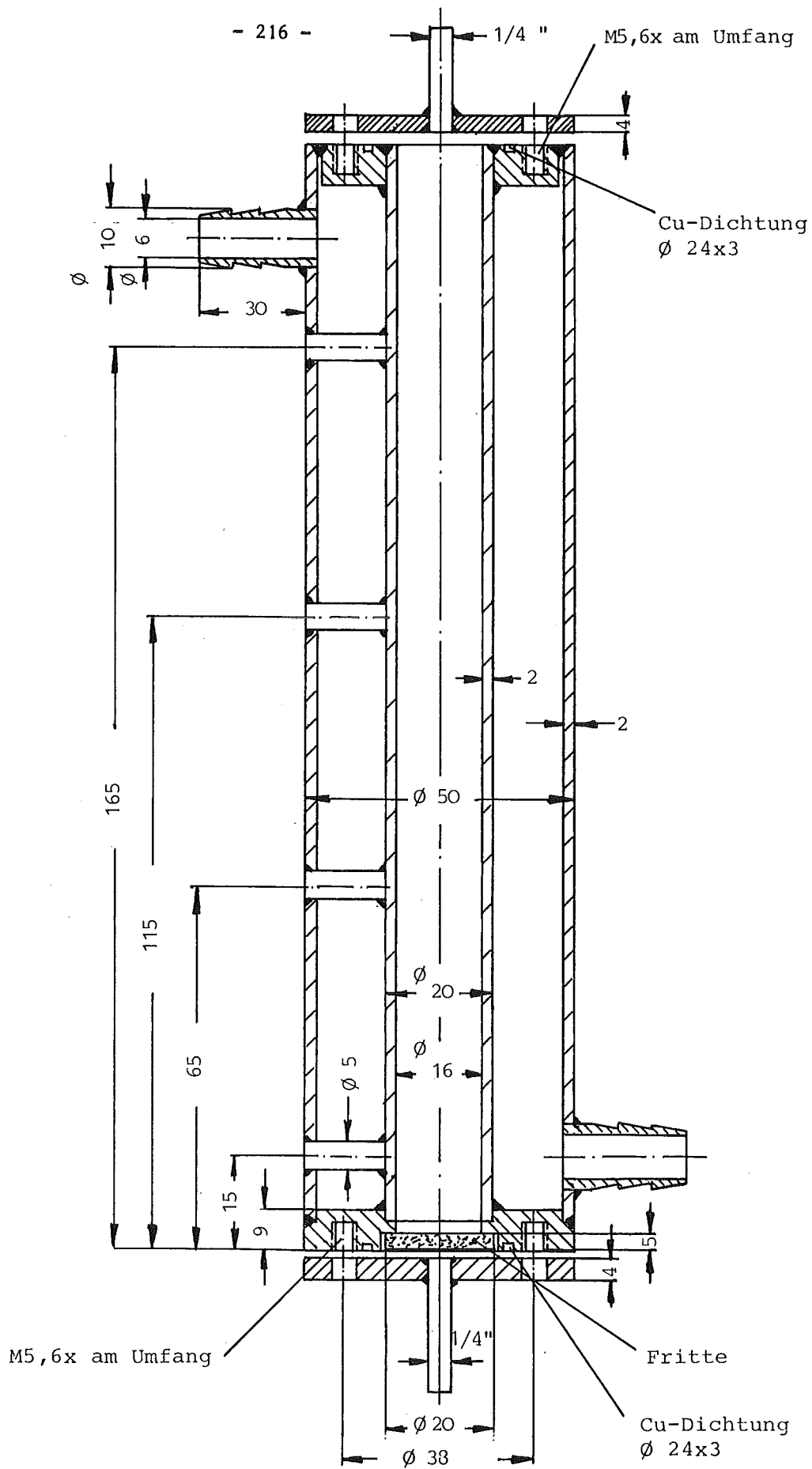


Abb. 4140/5-1:

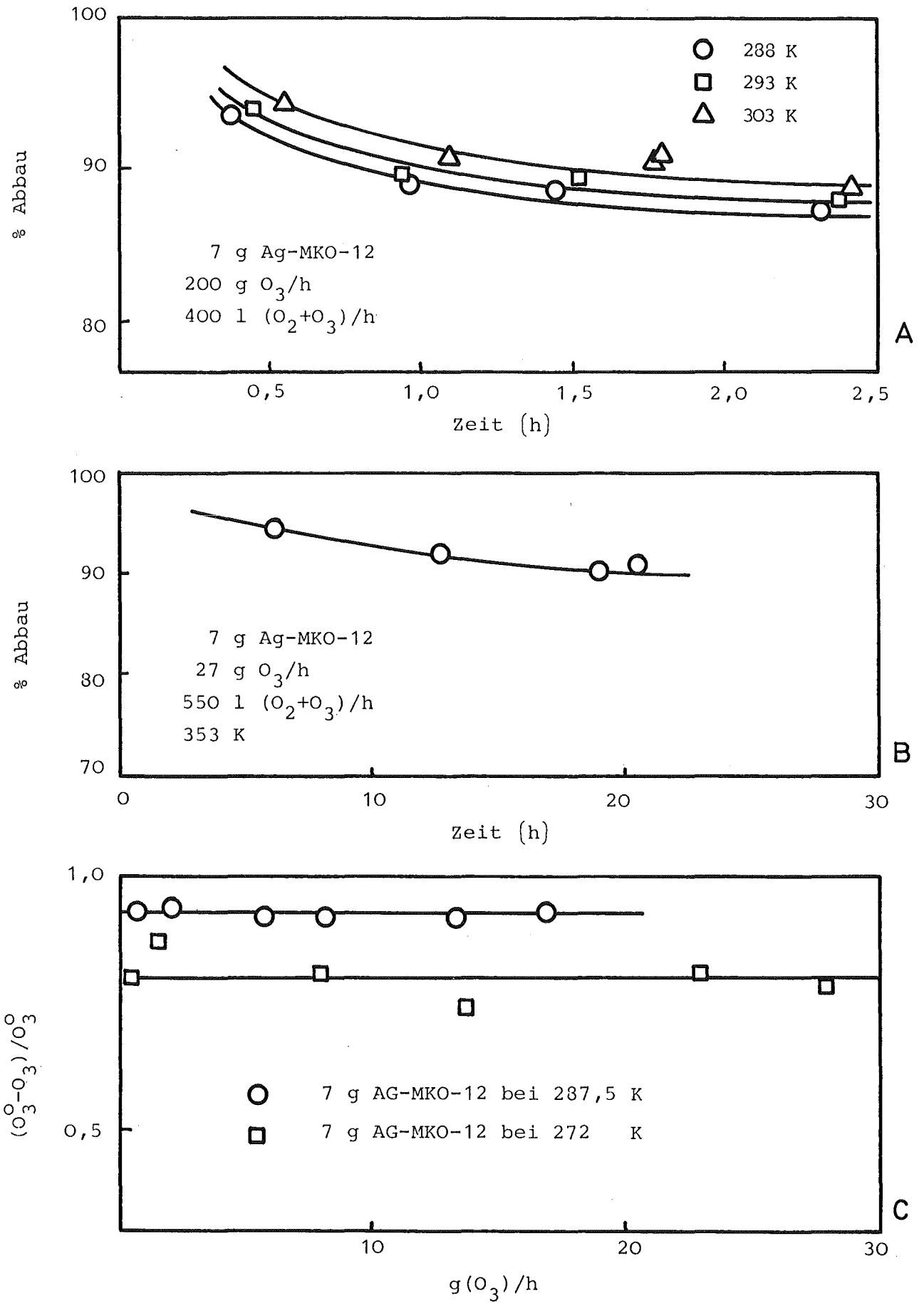


Abb. 4140/5-2:

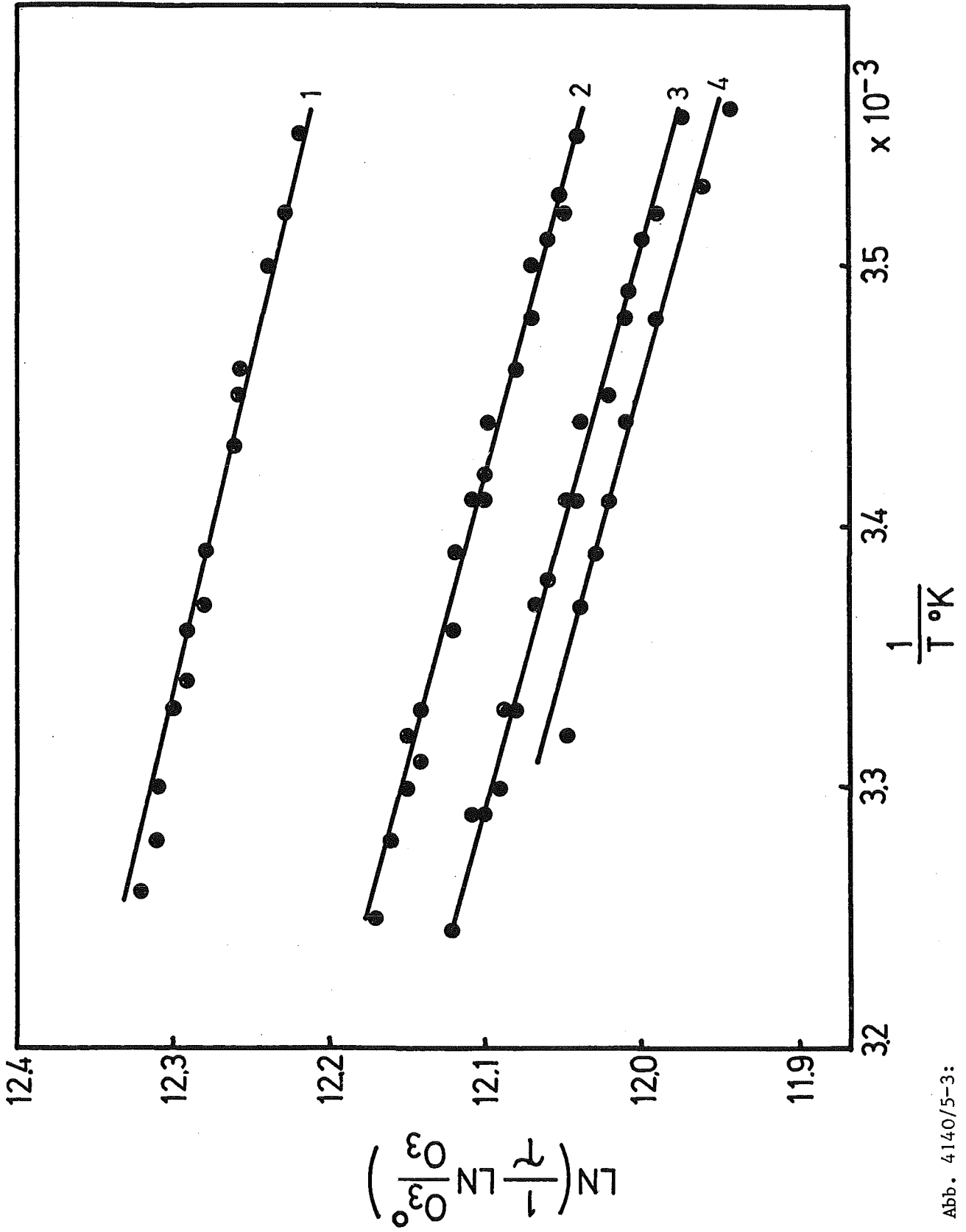


Abb. 4140/5-3:

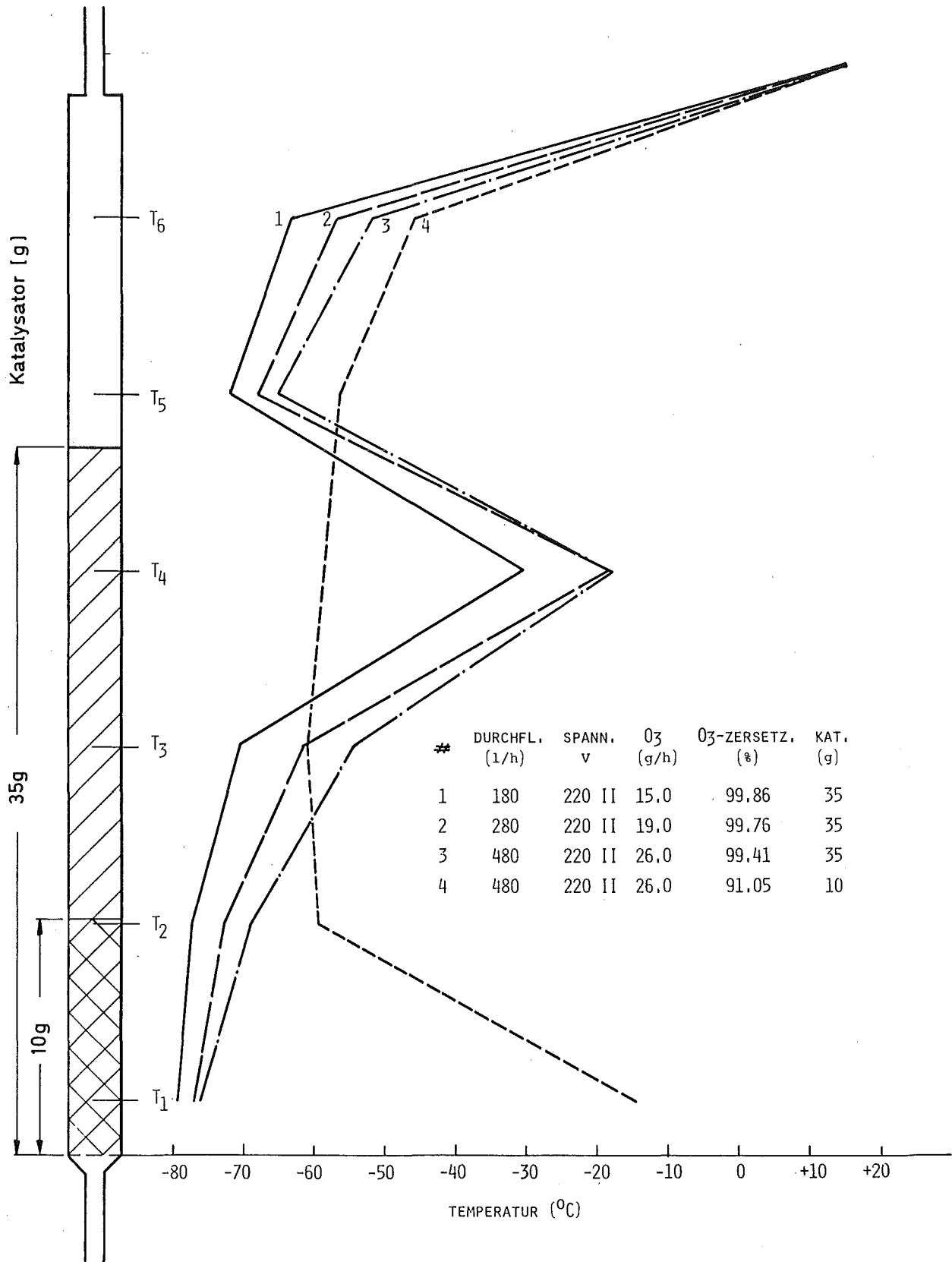


Abb. 4140/5-4:

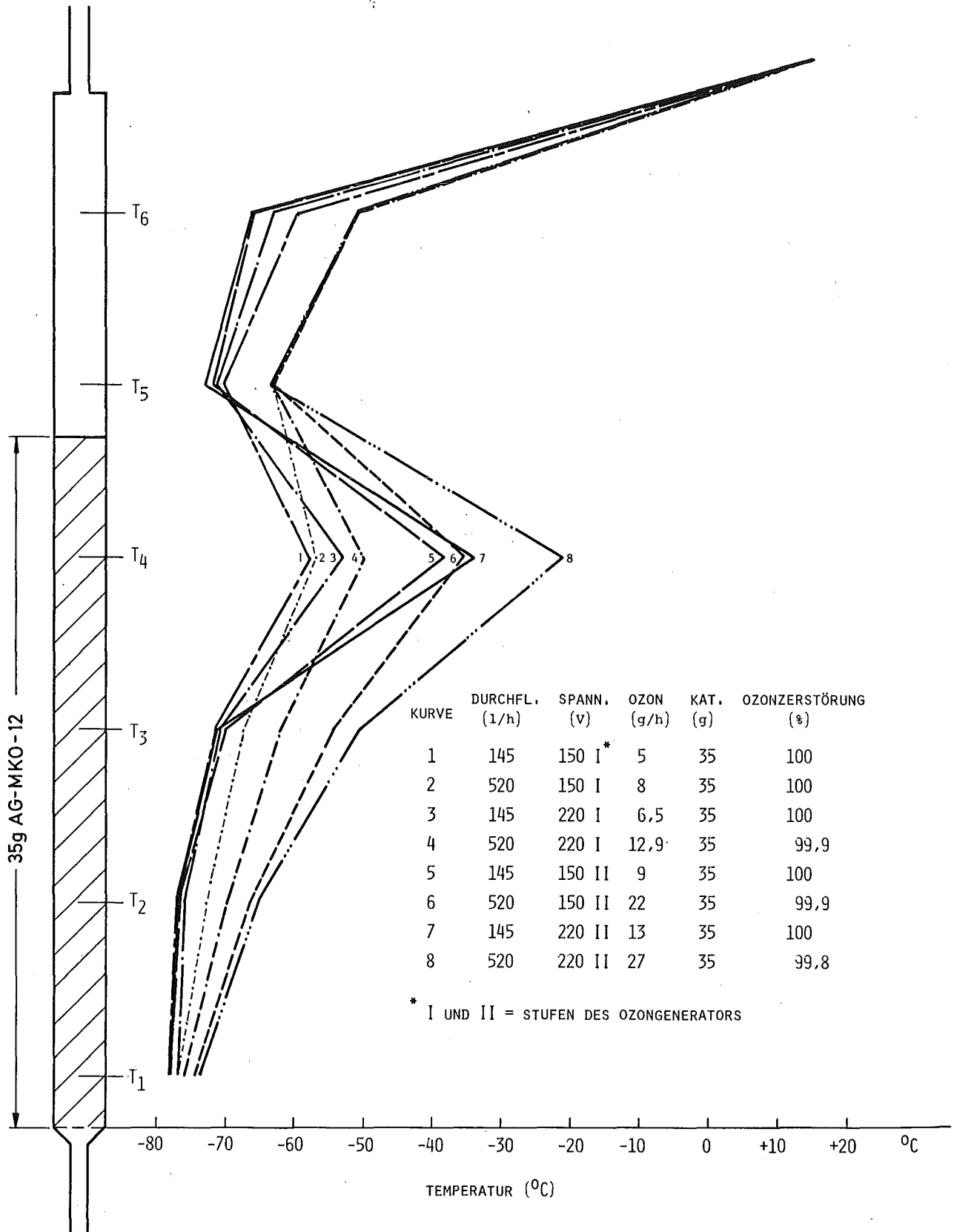
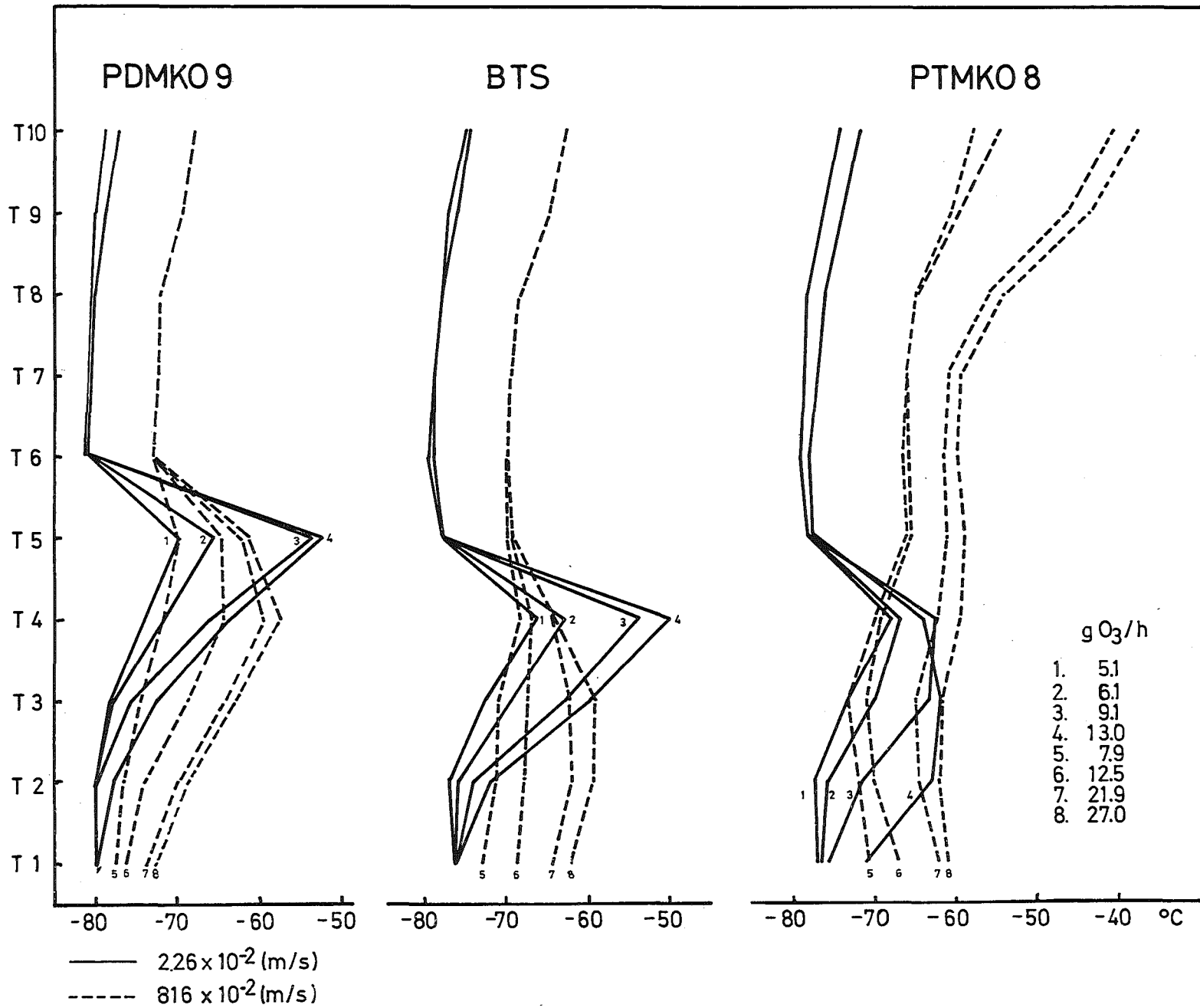


Abb. 4140/5-5:

Abb. 4140/5-6:



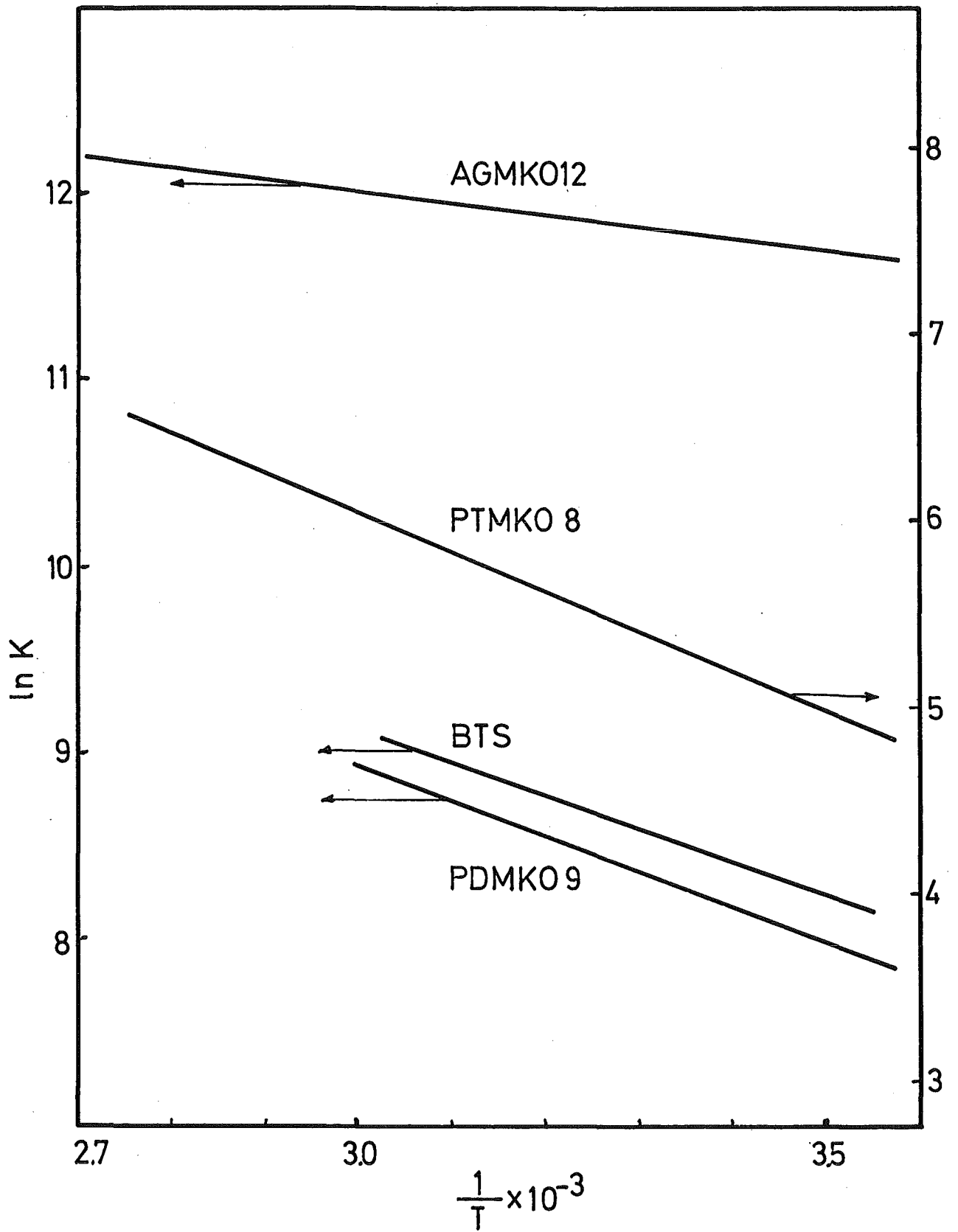


Abb. 4140/5-7:

4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN

4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen

4211 Dynamische Beanspruchung von LWR- Druckabbausystemen

Ziel des im Berichtszeitraum beendeten Vorhabens war die Ermittlung der in Druckabbausystemen von Siedewasserreaktoren im Falle eines Kühlmittelverluststörfalles auftretenden Kondensationsbelastungen und der dadurch hervorgerufenen dynamischen Beanspruchungen. Belastungen dieser Art waren bei der ursprünglichen Auslegung der Druckabbausysteme nicht im erforderlichen Umfang berücksichtigt worden.

Der Ablauf des seit 1972 laufenden Vorhabens orientierte sich zum Teil an den Erfordernissen der Genehmigungsverfahren für die deutschen Siedewasserreaktoren. Die durchgeführten Messungen und die begleitenden theoretischen Arbeiten haben den Charakter und die Höhe der auftretenden Belastungen und deren Abhängigkeit von den wichtigsten Parametern weitgehend aufgeklärt sowie das Verständnis über das dynamische Verhalten von Schalenkonstruktionen unter dem Einfluß derartiger Belastungen vertieft.

Die weitergehende Bearbeitung dieses Themas wird in Zukunft vor allem von den für den Bau und für die Lizenzierung von Siedewasserreaktoren zuständigen Institutionen vorgenommen werden. Das Schlüsselproblem der dynamischen Kopplung zwischen Containment- Wand und Wasserpool wird im IRE im Rahmen des PNS-Vorhabens 4223, das schwerpunktmäßig auf derartige Wechselwirkungen zugeschnitten ist, weiter verfolgt. Auch in den USA ist inzwischen ein sehr umfangreiches Forschungsprogramm auf diesem Gebiet in Gang gekommen.

Im Berichtszeitraum wurden die folgenden abschließenden Arbeiten ausgeführt:

1. Marviken- Blowdown- Experiment; experimentelle Arbeiten

(D. Barschdorff^x, E. Erb, M. Neumann^z, P. Philipp, E. Wolf)

Die abschließenden Dokumentationen über dieses Untervorhaben wurden erstellt. Die Entwicklung der Infrarot- Absorptionsmeßeinrichtung ist in /1/ und die

^x Dr.-Ing. Barschdorff ist wissenschaftlicher Rat und Professor und M. Neumann wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Thermische Strömungsmaschinen (ITS) der Universität Karlsruhe (TH)

bei Einsatz in Marviken damit gemachten Erfahrungen sind in /2/ beschrieben. Der letztgenannte Bericht enthält auch die Meßergebnisse von zwei ausgewählten Blowdown- Versuchen.

2. Kontrollmessungen im Großkraftwerk Mannheim

(G. Gering, T. Kuhn, E. Wolf)

Die Kontrollmessungen im Großkraftwerk Mannheim wurden im Auftrag und auf Rechnung des TÜV Baden, Mannheim, fortgesetzt. Die im Rahmen dieser Serie bisher durchgeführten 24 Versuche waren an der Auslegung und Geometrie des Druckabbausystems des Kernkraftwerkes Philippsburg orientiert. Ab Versuch 19 wurde die vom IRE eingebrachte Instrumentierung um einen Temperatur- und einen Druckaufnehmer am Einlauf in das Kondensationsrohr erweitert.

Alle Meßdaten wurden auf Magnetband aufgezeichnet, im IRE geplottet und dem TÜV Baden zugestellt.

Nach der derzeitigen Planung sind noch 8 weitere Versuche vorgesehen. Sie sollen auf die Bedingungen der neuen Siedewasserreaktor- Baulinie der KWU, d.h. des Kernkraftwerkes Grundremmingen II abgestimmt werden. Dies erfordert einen größeren Umbau der vorhandenen Versuchsanlage, so daß eine längere zeitliche Unterbrechung des Versuchsablaufes eintreten wird.

3. Berechnung dynamischer Containment- Beanspruchungen /3/

(B. Göller, G. Hailfinger, R. Krieg)

Das auf der Flügge'schen Schalentheorie basierende halbanalytische Rechenverfahren für die dynamische Verformung einer dünnwandigen Kugelschale wurde fertiggestellt und ein entsprechender Computer- Code SPHER1 entwickelt.

Die Anwendung auf das Druckabbausystem des Brunsbüttel- Reaktors beschränkte sich auf denjenigen Teil des kugelförmigen Containments, der die Außenwand der Kondensationskammer darstellt. Die Randbedingungen am oberen und unteren kreisförmigen Rand dieses Containment- Ausschnittes entsprachen in etwa einem freien Auflager. Hierbei durfte davon ausgegangen werden, daß fehlerbehaftete Randbedingungen aufgrund des "stark lokalen" Verhaltens der Kugelschale, das zuvor in Testrechnungen festgestellt worden war, nur einen geringen Einfluß auf das Ergebnis haben. Das Ergebnis einer Testrechnung mit einer lokalen Stoßbelastung ist in Abb. 4211-1 gezeigt. Der lokale Response breitet sich erst nach sehr vielen Zyklen auf andere Schalenteile

aus. Als dynamische Belastung des Containments wurden die bei Abblase- Versuchen im Wasserpool des Brunsbüttelreaktors gemessenen transienten Wanddrücke verwendet. Der mit SPHER1 berechnete dynamische Response des Containments stimmt recht gut mit den bei den gleichen Versuchen ebenfalls gemessenen radialen Containment- Oszillationen überein.

Eine Gegenüberstellung der berechneten und gemessenen radialen Auslenkung über der Zeit für einen Punkt der Kugelschale 4m unterhalb der Wasserpool-Oberfläche ist in Abb. 4211-2 gezeigt. Man achte besonders auf die gute Simulation von Oberschwingungen. (Die Ergebnisse lassen vermuten, daß bei den Messungen bzw. den zugehörigen Auswertungen ein Phasenfehler von insgesamt 10 - 15 msec aufgetreten ist) Ähnliche Rechnungen waren früher auch mit dem Finite Elemente Programm STRUDL/DYNAL durchgeführt worden. Die Übereinstimmung zwischen Meß- und Rechenwerten waren jedoch sehr viel dürftiger (Abb. 4211-3)

Obwohl mit SPHER1 die Schalendynamik des Containments nunmehr recht genau beschrieben werden kann, ist ein unmittelbarer Einsatz des Programms für Sicherheitsnachweise noch nicht möglich, da die transiente Druckbelastung durch den angrenzenden Wasserpool normalerweise unbekannt ist. (Liegen dagegen ausnahmsweise Experimente vor wie im Falle Brunsbüttel, so sind SPHER1- Rechnungen erst gar nicht nötig, weil die dynamischen Schalenverformungen unmittelbar gemessen werden können) Die transiente Druckverteilung hängt vielmehr wiederum vom dynamischen Verformungsverhalten des Containments ab, d.h. tatsächlich handelt es sich hier um ein gekoppeltes fluid- schalendynamisches Problem, das als ein Ganzes zu behandeln ist./4/

In einem vereinfachten Modell hierzu konnte bereits nachgewiesen werden, daß sich die Eigenfrequenzen des gekoppelten Systems von den Eigenfrequenzen der Schale allein sehr stark unterscheiden. Außerdem wurde gezeigt, daß der Einfluß der Wasser- Kompressibilität vernachlässigbar ist. Für eine Analyse des gekoppelten Problems mit einem Detaillierungsgrad der dem Code SPHER1 entspricht, ist jedoch ein aufwendiges Modell erforderlich - etwa der Code SING-S, der im Zusammenhang mit den HDR- Blowdown- Experimenten entwickelt wird. SPHER1 beschreibt dann den strukturdynamischen Teil in diesem gekoppelten Modell. Aus diesem Grunde wird das Spezialproblem der gekoppelten Fluid- Schalendynamik für Druckabbausysteme in Zukunft unter dem Vorhaben 06.01.02 weiter verfolgt.

4. Modellrechnungen zum Kondensationsvorgang
(G. Class, F. Eberle)

Auch hierfür wurde im Berichtszeitraum die abschließende Dokumentation erstellt. Das Rechenprogramm KONDAS /5/ wurde inzwischen von der Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS), München, übernommen. Ein Bericht über die mit den Programmen WELLA;AKUDYN ausgeführten Arbeiten ist in Vorbereitung. Die Ergebnisse dieser Arbeiten sind unmittelbar in die Genehmigungsverfahren der deutschen Siedewasserreaktor- Kernkraftwerke eingeflossen. Außerdem wurde in Vorträgen darüber berichtet /6;7/.

Literatur:

- /1/ Barschdorff, D., Neumann, M., Rabold, W., Weißhaupt, R., Erb, E., Philipp, P., Wolf, E.:
Entwicklung einer Meßeinrichtung zur Bestimmung der Einzelkomponenten in einer instationären Luft/H₂O- Zweiphasenströmung nach dem Infrarot-Absorptionsprinzip.
KFK 2550
- /2/ Barschdorff, D., Erb, E., Neumann, M., Philipp, P., Wolf, E.:
Einsatz einer Infrarot- Meßeinrichtung bei den Marviken II- Blowdown- Experimenten.
KFK 2578
- /3/ Göller, B., Hailfinger, G., Krieg, R.:
Vibrations of the Pressure Suppression System of a Boiling Water Reactor
Int. Conf. Vibration in Nuclear Plant, 9 - 12 May, 78, Keswick, UK
- /4/ Krieg, R., Zehlein, H.:
Coupled Problems in Transient Fluid and Structural Dynamics with Application to Nuclear Engineering.
Int. Symp. on Innovative Num. Analysis in Appl. Eng. Science, Versailles, May 77
- /5/ Class, G.:
Theoretische Untersuchung der Druckpulsentstehung bei der Dampfkondensation im Druckabbausystem von Siedewasserreaktoren. Rechenprogramm KONDAS.
KFK 2487 (Oktober 1977)
- /6/ Class, G.:
Das Verhalten von Siedewasserreaktor- Druckabbausystemen beim Kühlmittelverluststörfall.
Seminar über neuere Arbeiten auf dem Gebiet der Reaktortechnik, RWTH Aachen, 12.5.1977
- /7/ Müller, R.A., Class, G., Fränkel, E., Simon, U.:
Experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Belastung des SWR- Druckabbausystems.
Reaktortagung, Mannheim, 29.3. - 1.4.1977; Deutsches Atomforum e.V., Kerntechnische Gesellschaft im Deutschen Atomforum e.V., Leopoldshafen 1977 ZAED S.237- 40

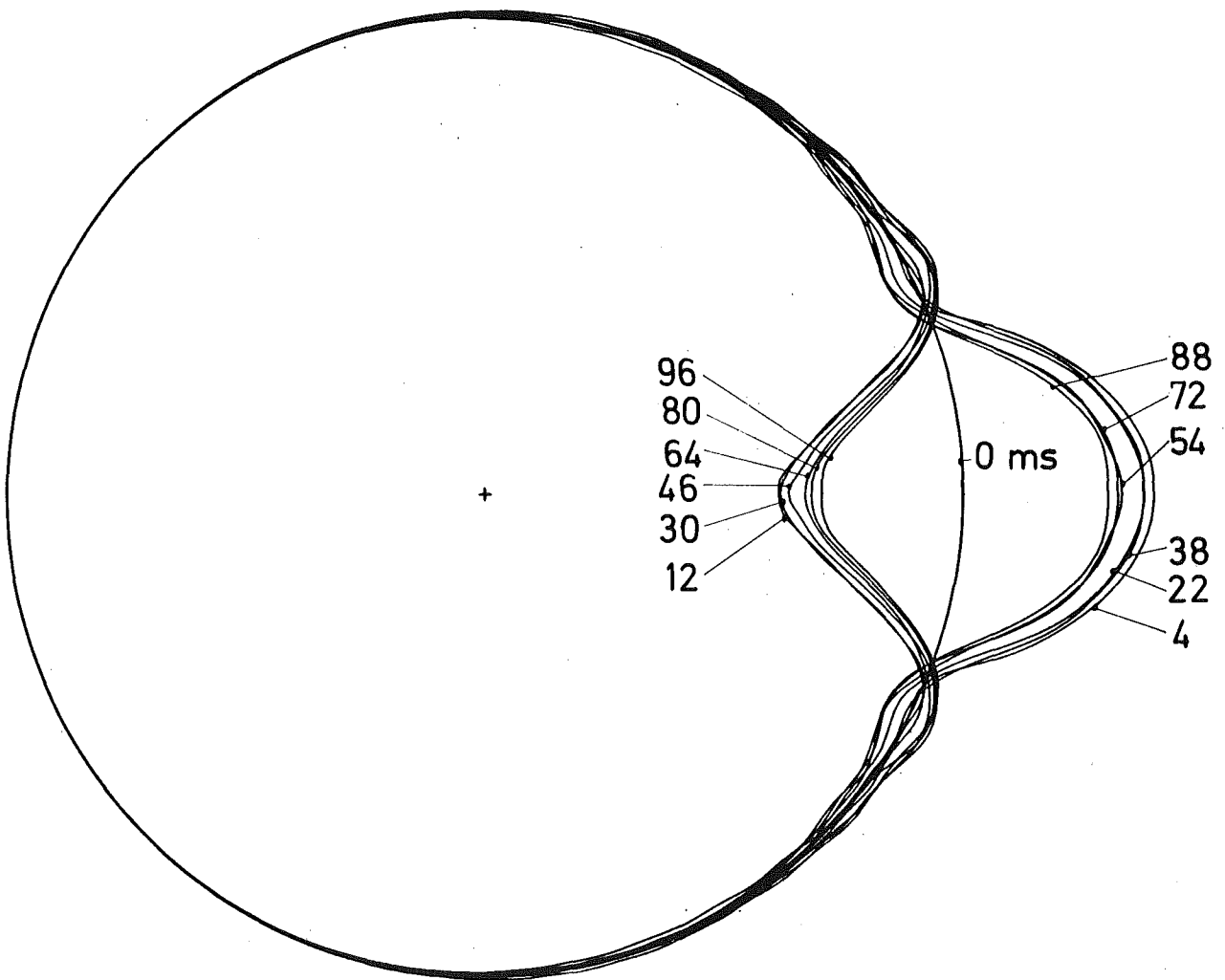
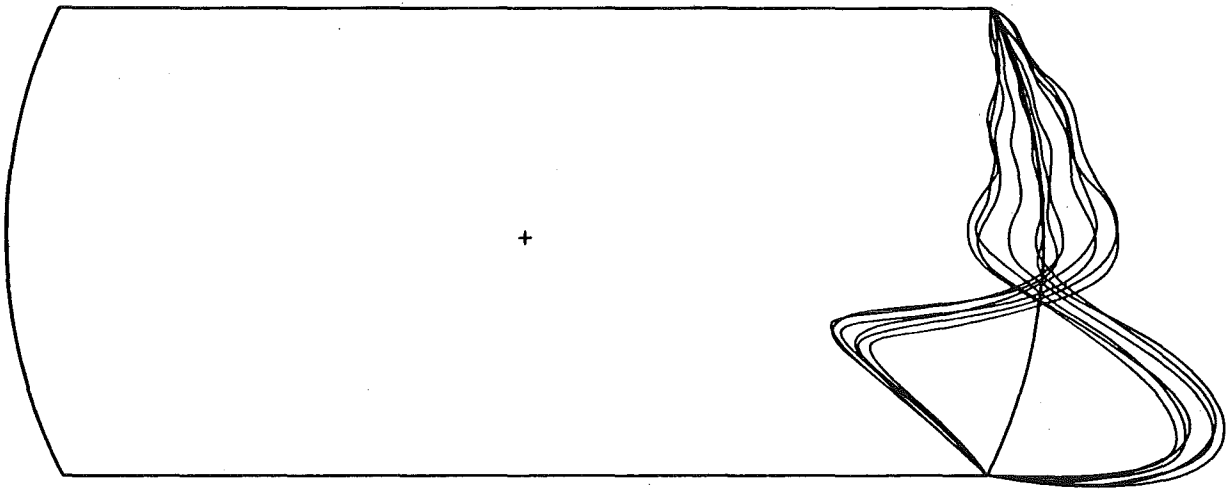


Abb. 4211-1: Dynamische Testrechnung mit lokaler Stoßbelastung

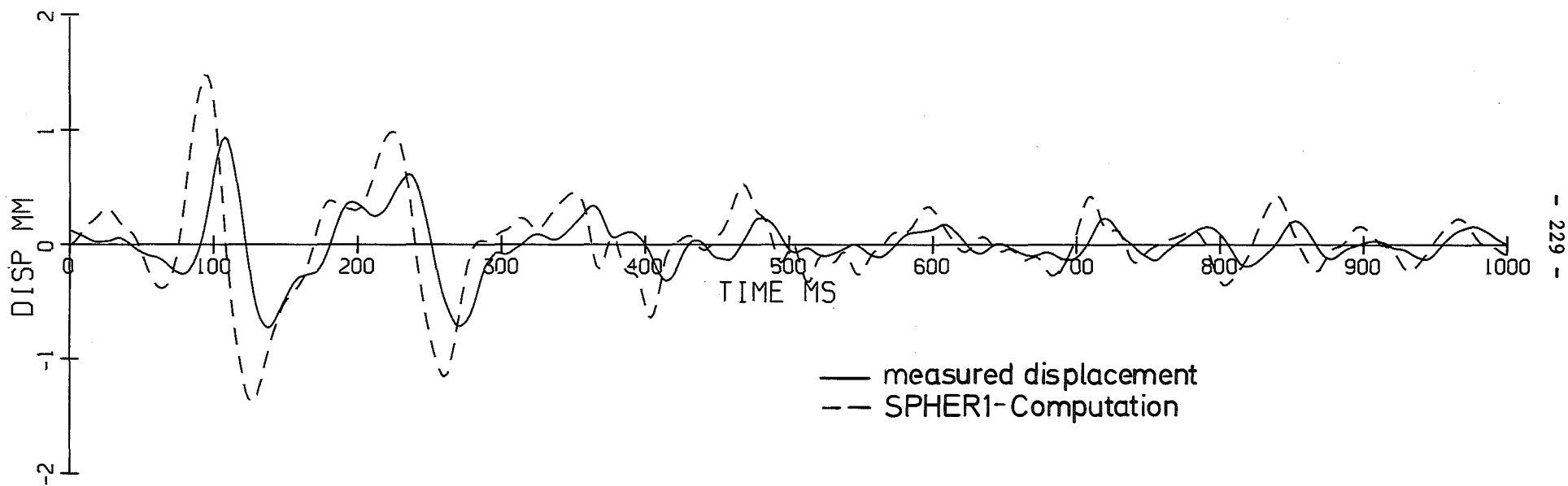


Abb. 4211-2: Vergleich Messung und SPHER1- Rechnung für eine Radialauslenkung am Brunsbüttel- Containment

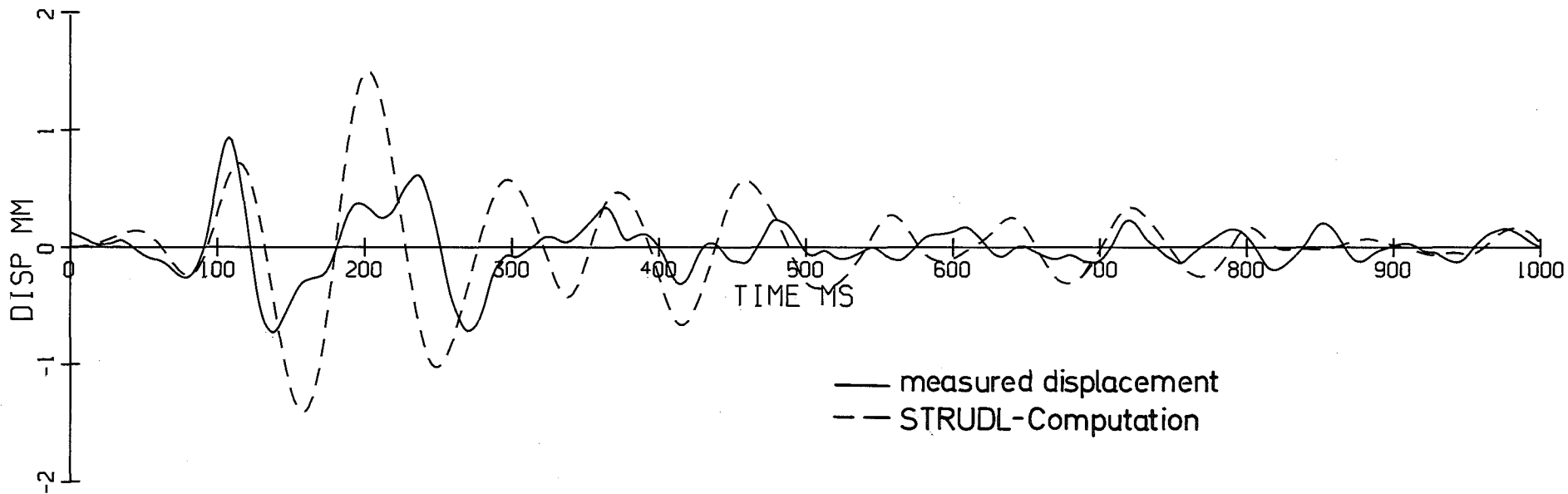


Abb. 4211-3: Vergleich Messung und SRUDL- Rechnung für eine Radialauslenkung am Brunsbüttel- Containment

4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrommessung in instationären Mehrphasenströmungen

(R. Löffel, H. Meichelböck, W. Nitz, S. Stiefel, D. Wolf, W.-D. Zeidler, LIT; W. Link, A. Suppan, RBT)

1. Durchgeführte Arbeiten

Am "Gemeinsamen Versuchsstand" des IRB (PNS 4215) wurden 250 Versuche im Bereich $p = 5$ bis 100 bar, $\alpha = 0$ bis 1 und $\dot{m} = 0$ bis 4 kg/s mit den Rohrenweiten 50, 65 und 100 mm durchgeführt. Die Mehrstrahl- γ -Absorptions-Dichtemeßeinrichtung konnte im 4. Quartal fertiggestellt und in Betrieb genommen werden. Das für die Großrechenanlage (IBM 370 bei ADI) konzipierte Auswerteprogramm zur Ermittlung der Zweiphasengeschwindigkeiten wurde Ende des Jahres fertiggestellt und erprobt. Damit konnte die Auswertung der bei den Marviken-II-Blowdown-Experimenten im Bruchstutzen durchgeführten Geschwindigkeits- und Dichtemessungen fortgesetzt werden.

2. Erzielte Ergebnisse

2.1 Experimente am Gemeinsamen Versuchsstand

2.1.1 Zweiphasengeschwindigkeitsmessung

Bei den bisher durchgeführten Zweiphasengeschwindigkeitsmessungen wurden Geschwindigkeiten von 0,1 bis 50 m/s für beide Phasen und Schlupffaktoren von 1,0 bis 7,0 gemessen (vgl. Abb. 1 - 4). Bis zur Fertigstellung und dem Einbau der Mehrstrahl- γ -Absorptionsdichtemeßeinrichtung in die Teststrecke wurde der Zweiphasenmassenstrom aus den mit der Radiotracermethode gemessenen Geschwindigkeiten des Dampfes und des Wassers sowie aus Druck, Temperatur und den "superficial velocities" errechnet. Die dabei ermittelten Werte zeigten eine gute Übereinstimmung mit den vom IRB angegebenen Bilanzmassenströmen.

Mit diesen bisher durchgeführten Zweiphasengeschwindigkeitsmessungen wurden folgende, für die Brauchbarkeit und Genauigkeit des Verfahrens notwendige prinzipielle Nachweise erbracht:

1. Der in die Zweiphasenströmung injizierte Flüssigtracer Mn-56 vermischt sich gut mit der Flüssigphase, bleibt in der Flüssigphase und verdampft nicht.
Der in die Zweiphasenströmung injizierte Gastracer Ar-41 vermischt sich gut mit der Gasphase, bleibt in der Gasphase und löst sich während der für die Messung erforderlichen Zeit nicht in der Flüssigphase.
2. Sowohl der Gas- als auch der Flüssigtracer vermischen sich innerhalb der vorgegebenen Anlaufstrecken ausreichend gut mit den betreffenden Phasen.

Darüber hinaus wurden zusätzliche Erkenntnisse über folgende Punkte gewonnen:

a) Größe der Anlaufstrecken

Die für die Beschleunigung und Vermischung der injizierten Tracer erforderlichen Anlaufstrecken sind abhängig sowohl vom Voidfaktor α , von der Zweiphasenströmung als auch von der Injektionstechnik. Nach den darüber inzwischen vorliegenden zahlreichen Ergebnissen und Erfahrungswerten betragen die notwendigen Anlaufstrecken für die Flüssigphase 0,3 m für den Bereich $\alpha = 0 - 0,5$ und $v = 0 - 100$ m/s bzw. 0,6 m für den Bereich $\alpha = 0,5 - 1,0$ und $v = 0 - 100$ m/s. Bei der Anwendung des Verfahrens wird die maximal erforderliche Anlaufstrecke gewählt.

b) Größe der Meßstrecke:

Die entwickelte schnelle Injektions- und Meßtechnik ermöglicht die Verkürzung der Meßstrecken auf bis zu 0,25 m.

Die Richtigkeit der unter Punkt 1 gemachten Aussage wird durch die Ergebnisse der bisher durchgeführten Experimente nachgewiesen. Die Monopeakform der Tracerverteilungskurven sowie die ermittelten Geschwindigkeiten beweisen, daß die injizierten Tracer vollständig in der jeweiligen Phase geblieben sind

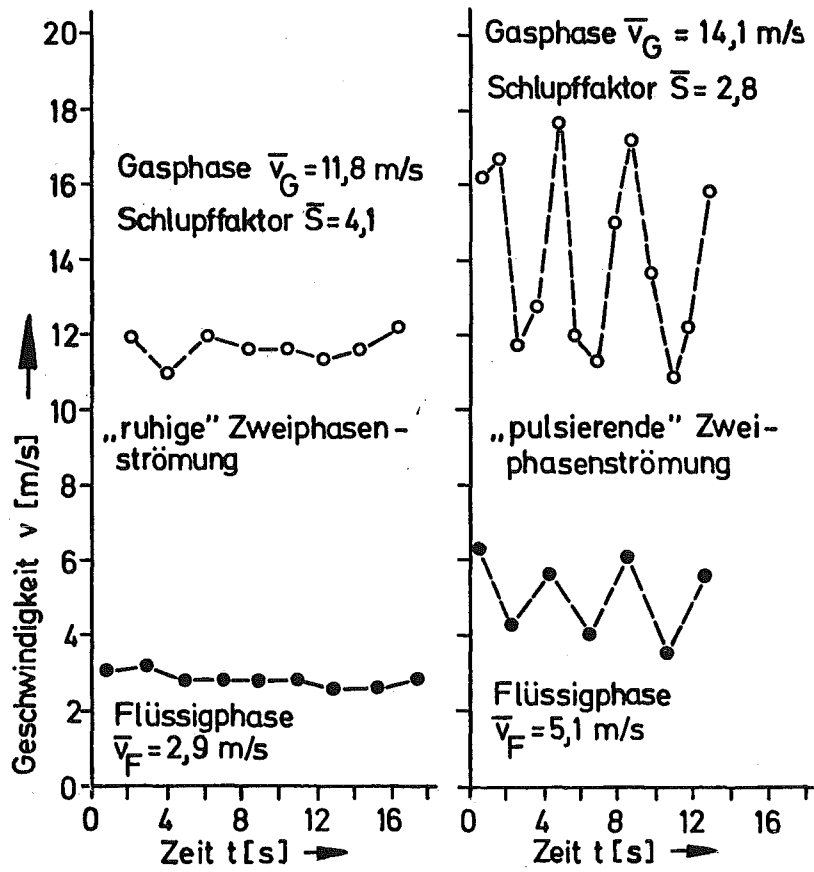
(vgl. Abb. 5), denn bei der in diesem Fall eingestellten Zweiphasenströmung mit großem Schlupf (Schichten-Wellenströmung mit $S \neq 4$) hätten sich Doppelpeaks bilden müssen, falls der Gastracer Ar-41 in die Flüssigphase und der Flüssigtracer Mn-56 in die Gasphase übergegangen wären. Die Richtigkeit und Genauigkeit der beiden ermittelten Geschwindigkeiten für die Gas- und Flüssigphase wird auch durch Kontrollrechnungen über die Massenbilanz belegt.

2.2.2 Mehrstrahl- γ -Dichtemessung

Die Dichtemessung erfolgt nach dem γ -Absorptionsverfahren. Dabei wird das Rohr mit mehreren γ -Strahlen durchstrahlt. Die je nach Zusammensetzung der Mehrphasenströmung unterschiedliche Absorption der γ -Strahlen wird von mehreren am Umfang des Rohres angebrachten Detektoren gemessen. Damit ist es möglich, die örtliche und über den Rohrquerschnitt gemittelte Dichte sowie die Phasenverteilung und Strömungsform zu bestimmen.

Die Einzelstrahlen sind so über den Rohrquerschnitt angeordnet, daß alle in der Praxis auftretenden Strömungsformen erfaßt werden (vgl. Abb. 6).

Die Meßsignale werden zur Zeit ausgewertet. Die Ergebnisse werden im nächsten Halbjahresbericht vorgestellt.



Geschwindigkeiten der Gas- und Flüssigphase bei zwei verschiedenen Versuchen

Abb. 4214-1:

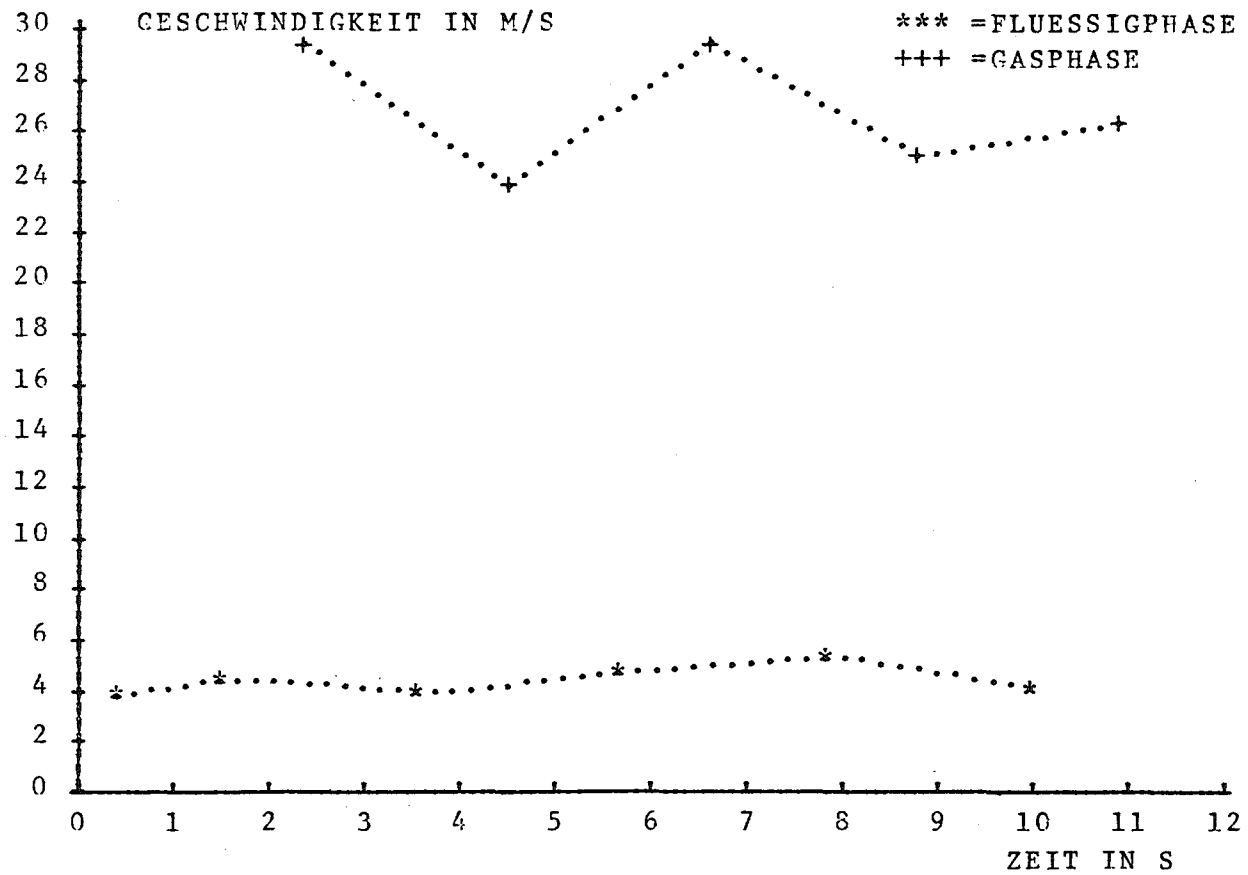


Abb. 4214-2: VERSUCH NR.1052: FLUIDGESCHWINDIGKEIT ALS FUNKTION DER ZEIT

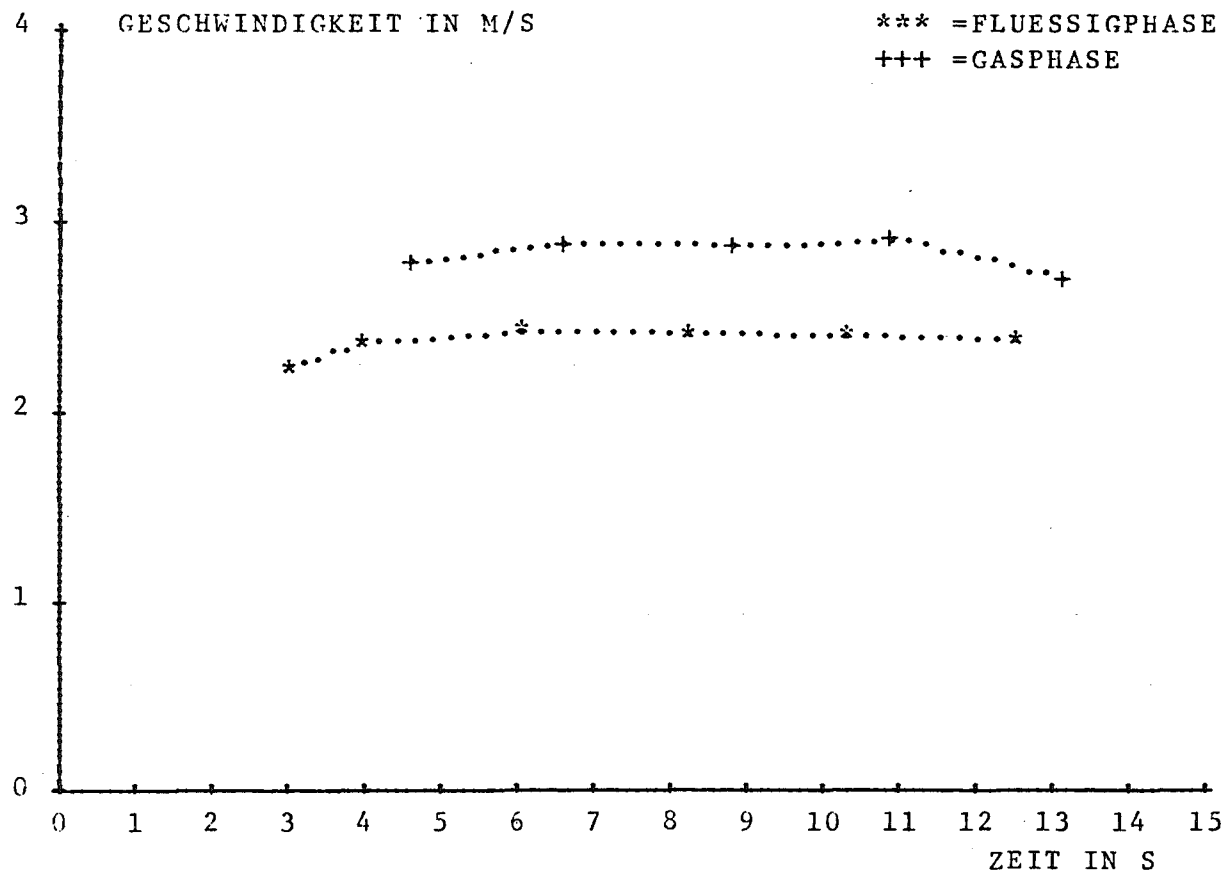


Abb. 4214-3: VEPSUCH NR.1205: FLUIDGESCHWINDIGKEIT ALS FUNKTION DER ZEIT

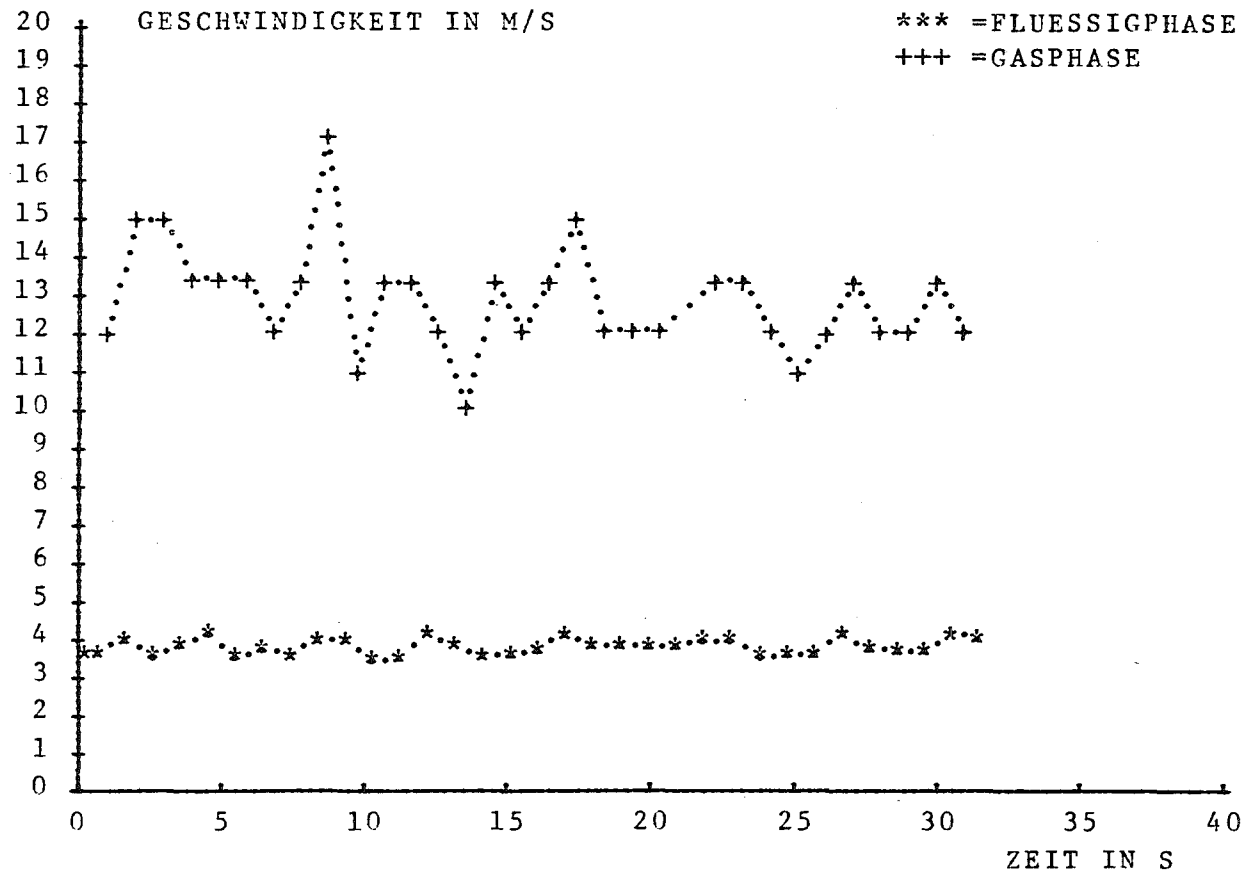


Abb. 4214-4: VERSUCH NR. 111A: FLUIDGESCHWINDIGKEIT ALS FUNKTION DER ZEIT

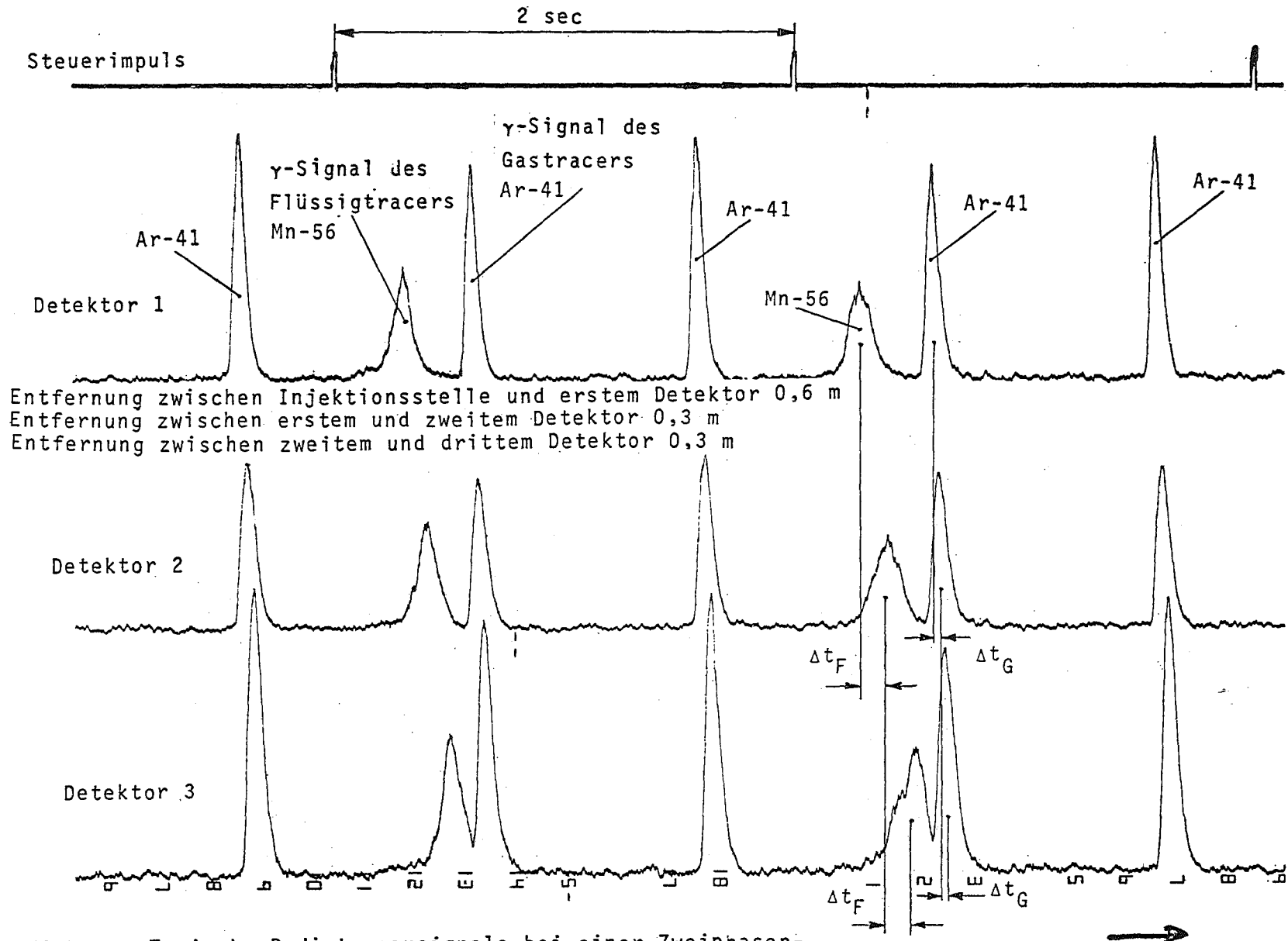
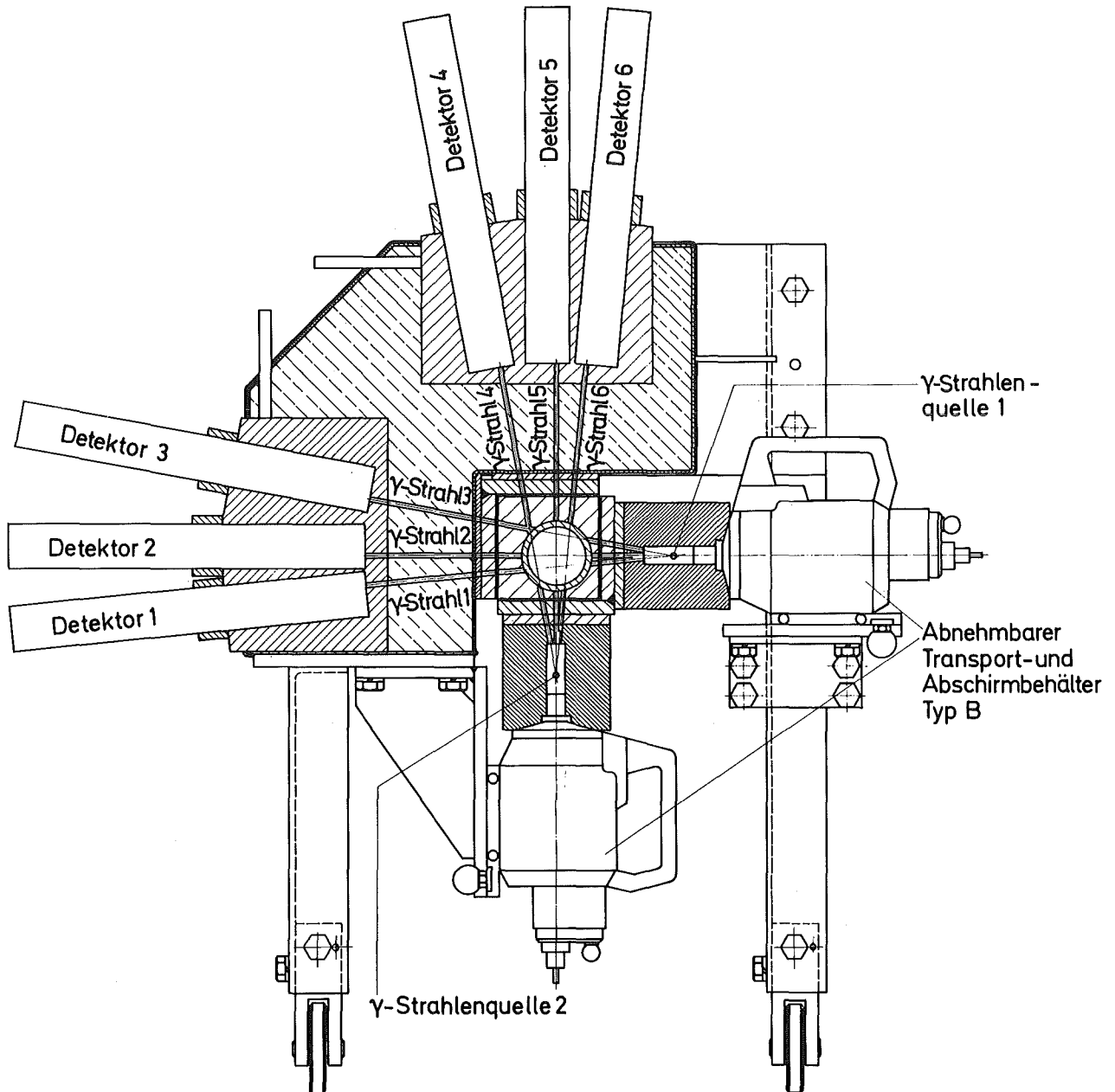


Abb. 4214-5: Typische Radiotracer-Signale bei einer Zweiphasenströmung mit Schlupffaktor $\bar{S} = 4,1$ (Ausschnitt aus Versuch 11)



6-Strahl- γ -Dichtemeßanlage
Übersichtsdarstellung

Abb. 4214-6:

4215 Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschiedener
Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren

(J. Reimann, A. Demski, U. Harten, H. John, A. Megerle, L. Pawlak,
E. Wanner - IRB)

Im Berichtszeitraum wurden in ausführlichen Versuchsserien Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren getestet, die vom BMFT gefördert werden und Verfahren, die im INEL (Idaho National Engineering Laboratory) entwickelt und in den LOFT- und Semiscale-Experimenten eingesetzt werden.

1. Test der BMFT geförderten Vorhaben

Folgende Meßverfahren wurden untersucht (in Klammer die entsprechenden Entwicklungsinstitution):

- Dragbody + Turbinendurchflußmesser + 2 Strahl- γ -Densitometer (Euratom Ispra: LOBI-Projekt, RS 109).
- Temperaturkorrelationsverfahren (TU-Berlin-IKT, RS 135).
- Dragbody (Battelle Frankfurt, RS 147).
- Radionuklid-Meßverfahren + 3 Strahl- γ -Densitometer (KfK-LIT, PNS 4214, RS 146).

Neben den erwähnten Densitometern war noch ein serielles 5-Strahl- γ -Densitometer (IRB-LIT-Entwicklung) eingesetzt. Eine Darstellung der Meßgeräte und ihre Anordnung in der waagerechten Teststrecke (50 mm Durchmesser) zeigt Abb. 1. Am Anfang der Teststrecke befanden sich je zwei Injektionsdüsen für die beiden Radiotracer (Mn 56, Ar 41), längs der Teststrecke mehrere Meßebenen, bestückt mit Detektoren zur Messung des Durchgangs der Aktivitätspulse. Zur Messung der Temperaturrauschsignale wurden verschieden angeordnete Mantelthermoelemente (0,25 und 0,34 mm Durchmesser) verwendet. Die für die Versuche bei 10 und 25 bar bevorzugte Anordnung ist in Abb. 4215-1 dargestellt.

Der Meßeinsatz von Euratom Ispra (RS 109) enthielt zwei Paare lokal messender (free field) Turbinenradzähler und Dragbodies mit Abständen von ca. 10 mm von der unteren bzw. oberen Mantellinie des Rohres.

Während die Dragbodies von Euratom Ispra, LOFT und Semiscale für die bei den jeweiligen Blowdownexperimenten zu erwartenden maximalen Massenströmen ausge-

legt sind, sollte der von Battelle eingesetzte Dragbody speziell auf den niedrigeren Betriebsbereich des gemeinsamen Versuchsstandes zugeschnitten sein. Der Dragbody versagte jedoch nach ersten Vorversuchen.

Ein typischer Versuchsablauf sei im folgenden kurz beschrieben: Nach Hochfahren der Anlage auf einen vorgegebenen Druck und Erreichen des thermischen Gleichgewichts wurde das Gemisch durch den Bypass geleitet, um einen Nullpunktabgleich für die Differenzdruckaufnehmer und Dragbodies durchzuführen. Anschließend wurde mindestens jeweils ein einphasiger Dampf- und Wasserbetriebspunkt gefahren und danach die zweiphasigen Betriebspunkte. Am Ende der Versuche bei einem bestimmten Druck wurden die Einphasen- und Nullpunktmessungen in der Regel wiederholt.

Durchschnittlich konnten ca. 15 Versuchspunkte (ein- und zweiphasig) pro Versuchstag erreicht werden. Die Referenzwerte (Druck, Massenstrom, Dampfgehalt, bzw. superficial velocities in der Teststrecke) wurden on line berechnet und ausgedruckt. Tab.4215-1 zeigt die Matrix der angesteuerten Versuche; Koordinaten sind die superficial velocities des Dampfes und der Flüssigkeit.

Ergebnisse aus dem Test der einzelnen Verfahren werden demnächst von den entsprechenden Vorhaben vorgestellt. Was die eigene Meßtechnik anbelangt, so ergaben sich Schwierigkeiten beim Betrieb des 5 Strahl- γ -Densitometers. Wegen Instabilitäten in der Szintillator-Fotomultiplier-Verstärkerkette waren zeitweilig die Dichtewerte nicht zuverlässig.

2. Test der LOFT- und Semiscale-Massenstrommeßverfahren

Diese Verfahren bestehen jeweils aus einer Kombination von Drag Disc (identisch mit Dragbody) und Turbinenflußmessern, kurz DTT (Drag Disc Turbine Transducer) genannt und einem Mehrstrahl- γ -Densitometer. Das DTT kann für lokale Messungen in einer Strömung eingesetzt werden (Free Field DTT) oder den ganzen Strömungsquerschnitt erfassen (Full Flow DTT). Abb.4215-2 gibt einen Überblick über den schematischen Aufbau und die Anordnung der Meßinstrumentierung. Abb.4215-3 zeigt einige Details der Instrumentierung. Es wurden folgende Variationen untersucht.

- Free Field DTT + 3 Strahl- γ -Densitometer (LOFT) bei Innendurchmessern der Teststrecke von 103 mm (5" Rohr) und 66 mm (3" Rohr).
- Full Flow DTT + 2 Strahl- γ -Densitometer (Semiscale) im 3"Rohr. Hierbei wurde für einen Großteil der Versuche anstelle eines Drag Disc ein Drag Screen ver-

wendet. Um zu untersuchen, welchen Einfluß eine geänderte Zuströmung in die Teststrecke auf Strömungsform und Signale der Meßgeräte ausübt, wurden Rohre verschiedener Durchmesser (50 und 80 mm) zwischen Mischkammer und Teststreckenanzug eingesetzt.

Neben der erwähnten Instrumentierung waren folgende Meßverfahren im Einsatz:

5" Teststrecke:

- das Radionuklid-Meßverfahren (PNS 4214)
- eine längs des vertikalen Durchmessers traversierbare Impedanz-Sonde (KfK-IRB) zur Bestimmung der Phasenverteilung).

3" Teststrecke:

- das Radionuklid-Meßverfahren + 6 Strahl- γ -Densitometer (KfK-LIT)
- 2 fest eingebaute Impedanz-Sonden (KfK-IRB) mit Abständen von ≈ 5 mm von der oberen bzw. unteren Kanalwand.
- ein scanning densitometer (INEL). Bei diesem Densitometer ist eine Cd-Quelle nahe dem Rohr angebracht, das in diesem Bereich aus einem Be-Ring besteht. Auf der anderen Seite des Rohres befindet sich ein schwenkbarer Ge-Si-Detektor mit der Cd-Quelle als Drehpunkt. Über einen Schrittmotor können in ca. 15 min. 65 verschiedene Positionen angesteuert werden.
- eine Storz-Linse. Mit diesem Linsensystem (ähnlich einem Endoskop) kann im Rohr die Strömung beobachtet werden. Mit Hilfe einer Fernsehkamera und einem Videobandrecorder wurden die optischen Signale aufgezeichnet.

Die Übergangsstücke zwischen Rohren verschiedener Durchmesser waren so ausgebildet, daß die unteren Mantellinien aller Rohre auf gleicher Höhe waren. Dadurch sollte, speziell im Fall stark geschichteter Strömung, die Störung der Phasenverteilung bei Querschnittsänderung klein gemacht werden.

Tabelle 2 zeigt die Matrix der durchgeführten Versuche. Die Versuchsdurchführung war ähnlich wie bei dem Test der anfangs beschriebenen Verfahren. Beim Test der amerikanischen Verfahren wurden vom INEL ebenfalls die elektrischen Signale der Meßwertgeber für die einphasigen Massenströme erfaßt, sowie Druck und Temperatur in der Teststrecke parallel gemessen und mit einem unabhängigen Dampf-Wasser-Programm die Betriebszustände in der Teststrecke berechnet. Die Abweichungen der auf 2 verschiedene Arten bestimmten Referenzwerte betrug im Mittel ca. 1%. Die Auswertung der Tests der Meßverfahren ist derzeit im Gange.

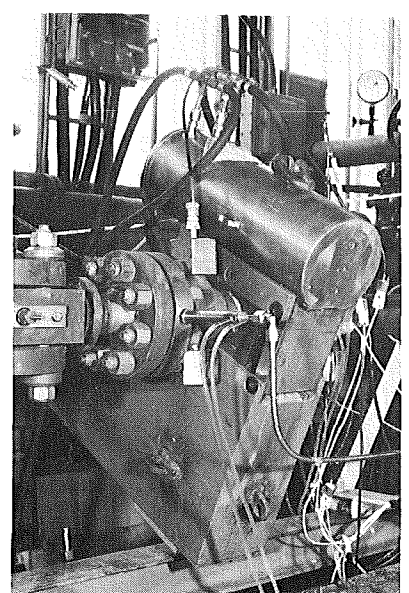
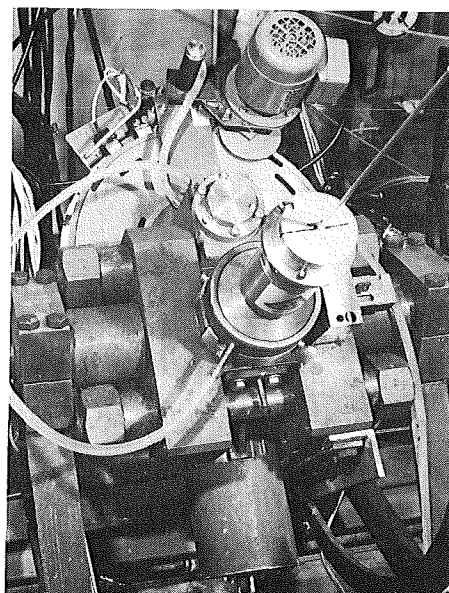
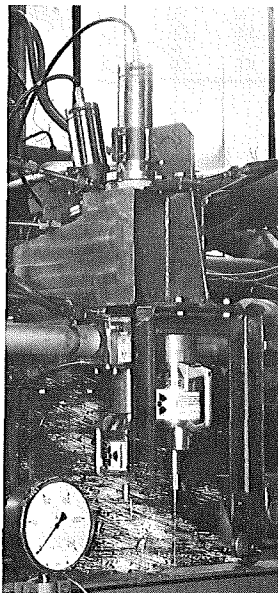
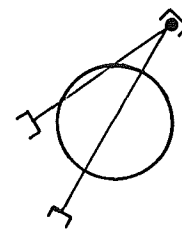
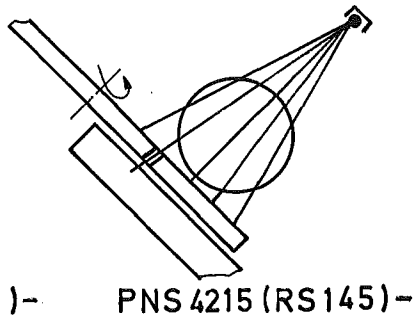
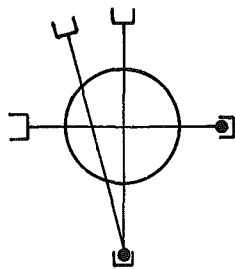
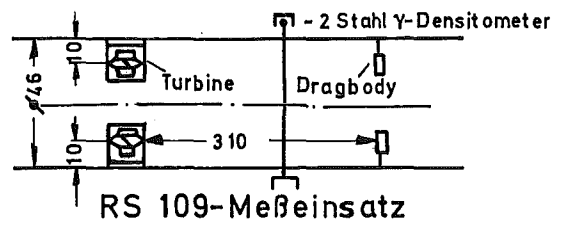
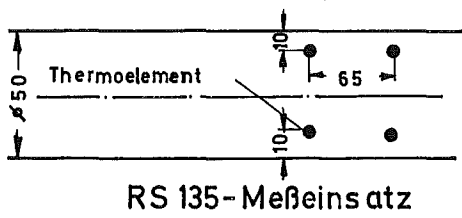
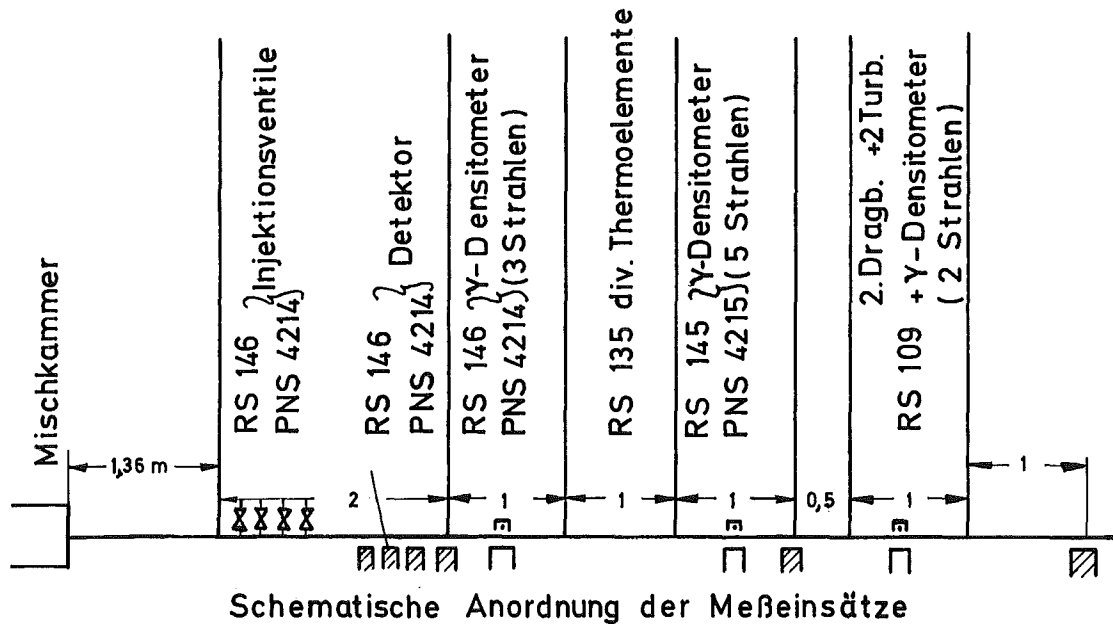


Abb. 4215-1: INSTRUMENTIERUNG DER TESTSTRECKE BEIM TEST DER BMFT-GEFÖRDERTEN MASSENSTROMMESSVERFAHREN.

c_d (m/s)	p = 10 bar c_w (m/s)				p = 25 bar c_w (m/s)					p = 50 bar c_w (m/s)				
	2,0	1,0	0,5	0	2,0	1,0	0,5	0,25	0	2	1,0	0,5	0,25	0
80						a,b	a,b	a,b						
60						a,b	a,b	a,b			a,b			
40	a,b,c	a,b,c	a,b,c			a,b	a,b	a,b	a,b		a ² ,b,c	a ² ,b,c	a,b	a,c
20	a ² ,b,c ²	a ⁴ ,b,c ⁴	a,b,c	a,b,c	a,b,c	a,b,c	a,b,c		a ² ,b,c	a ² ,b,c	a ² ,b,c ²	a,b,c	a,b	a ² ,b,c
10	a ² ,b,c ²	a ³ ,b,c ³			a,b,c	a,b,c	a,b,c			a ² ,b,c ²	a,b,c	a,b,c	a,b	
5	a,b,c	a,b,c			a,b,c	a,b,c	a,b,c			a,b,c	a,b,c	a,b,c	a,b	
2,5					a,b,c	a,b,c				a,b,c ²	a,b,c	a,b		
0	a ³ ,b,c ²				a ² ,b,c	a,b				a ³ ,b,c	a,b			
	p = 75 bar				p = 100 bar					beteiligte Meßverfahren: a:RS 109; b:RS 135; c:RS 146				
20		a,c	a,c	a,c		a	a		a	Indices: bei Reproduzierungstests: Anzahl der Versuche				
10	a,b,c	a,b,c	a,b,c	a,b,c	a,b,c	a,b,c			a,b,c	Parameter: superficial velocities c_w , c_d , Druck p				
5	a,b,c	a ² ,b,c ²	a,b,c		a,b,c	a,b,c								
2,5	a,b,c	a,b,c	a,b,c		a,b,c	a,b,c								
0	a,b,c				a,b,c				a					

Tab. 4215-1: TEST VON BMFT-GEFÖRDERTEN MASSENSTROM-MESSVERFAHREN IM GEMEINSAMEN DAMPF-WASSER-VERSUCHSSTAND (SEPT. 1977).

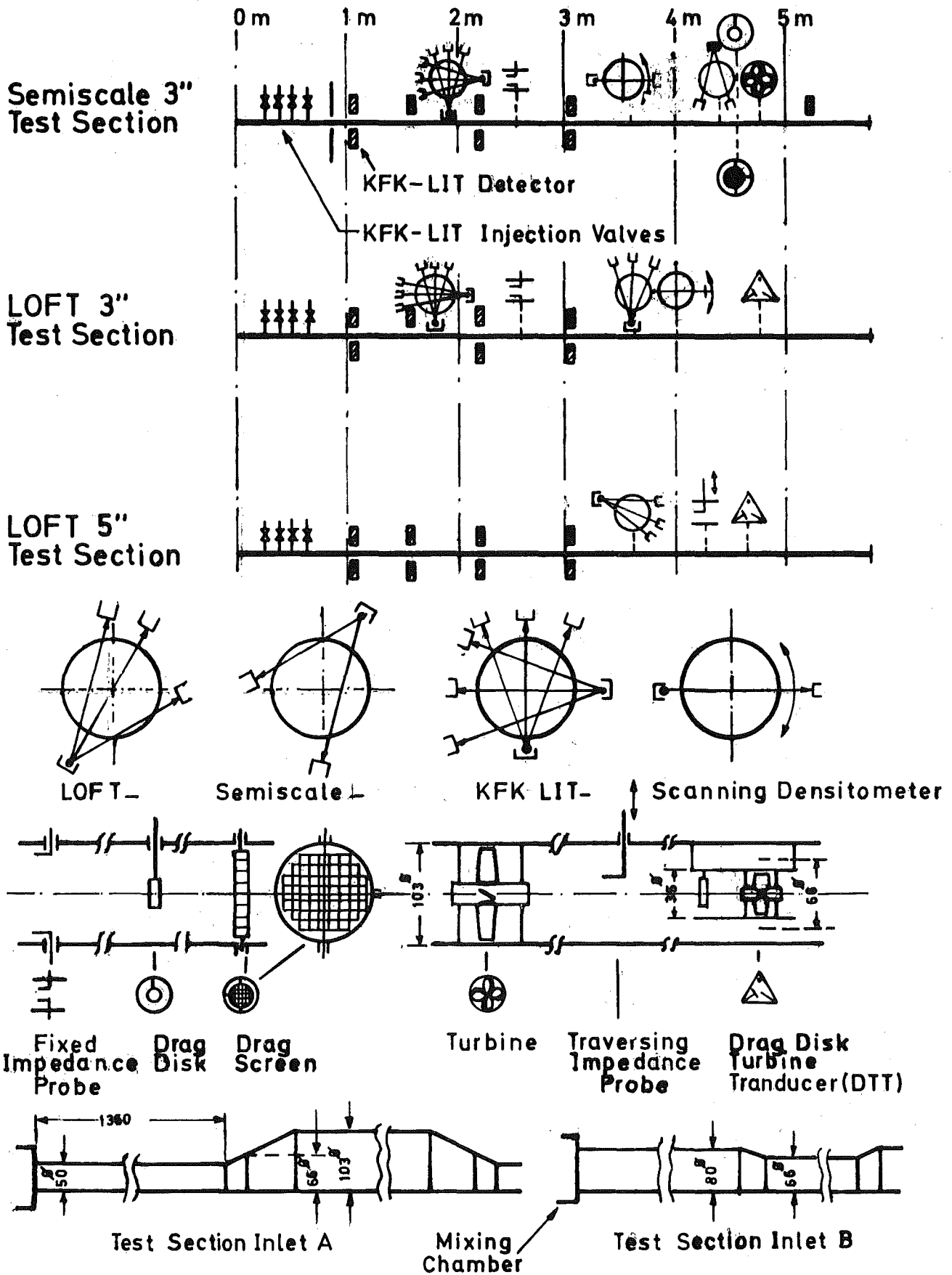


Abb. 4215-2: SCHEMATISCHE DARSTELLUNG DER VERSCHIEDENEN TESTKONFIGURATIONEN BEIM TEST DER LOFT- UND SEMISCALE-INSTRUMENTIERUNG.

C _w (m/s)	C _a (m/s)				C _s (m/s)				Air-Water-Tests	p=4 bar	p=10 bar	p=40 bar	p=75 bar	Steam-Water-Tests		
	0,5	1,0	2,5	5	10	20	40	50							60	80
	7,5		△													
5,0		△	△ △	△												
2,0		△	△ △	△			△									
1,0		△ △		△			△	△								
0,5	□	□ △	△	□ △	□		△									
0,25	□	□ □		□ □	□											
0,125	□			□	□											
0,05	□			□ □	□											
1,0				▲ ●	▲ ●		▲ ●	▲ ●	▲							
0,5		□		□ ▲ ●	▲ ●		▲ ●	▲ ●	▲ ●							
0,25		□		▲ ●	□ ▲ ●		▲ ●	▲ ●	▲ ●							
0,125		□		□	□											
1,0				◇	◇											
0,5				◇	◇											
0,25				◇	◇ △				△							
0,05									△	△						
1,8	□															
1,5	◇	◇ ³		◇												
1,2		◇ ² D ²		◇ ³ D	◇ ⁴ D			◇ ³								
1,0	▲ ● ▼ ●	◇ □ △ D ▲ ● ▼ ●	△ ² D △ D	◇ □ △ D ▲ ● ▼ ●	◇ □ △ D ▲ ● ▼ ●	◇ □ △ D ▲ ● ▼ ●	◇ □ △ D ▲ ● ▼ ●	◇ □ △ D ▲ ● ▼ ●								
0,5	□ △ D	□ □ △ D ▲ ● ▼ ●	▽ D	□ □ △ D ▲ ● ▼ ●	□ □ △ D ▲ ● ▼ ●	□ □ △ D ▲ ● ▼ ●	□ □ △ D ▲ ● ▼ ●	□ □ △ D ▲ ● ▼ ●	▲ ▼	▲						
0,25	△	□ ² □ ² ▲ ● ▼		□ ² □ ² D ▲ ● ▼	□ ² □ ² D ▲ ● ▼	□ ² □ ² D ▲ ● ▼	□ ² □ ² D ▲ ● ▼	□ ² □ ² D ▲ ● ▼	▲ ² ▼	△						
0,125		□ ² □	△	□ ² □ ² D ▲	□ ² □ ² D ▲	□ ² □ ² D ▲	□ ² □ ² D ▲	□ ² □ ² D ▲	△ ▲ ▼	△						
0,05		□ ² □		□ ² □	□ ² □	□ ² □	□ ² □	□ ² □	△	△						
0,03				□	□											
1,8	◇															
1,5	△	◇ ² D ² △ ²	◇ D △	△												
1,2		◇ D		◇ ³ D ³	◇											
1,0	△	◇ D △	◇ D △ ²	◇ △												
0,5	□, △	□, ◇ D, △, ▲, ▼ ²	□ △ △ △	◇ □ D ▲ ▼	◇, ▲, ▼	◇, ▲, ▼	▲, ▼	▲, ▼								
0,25		□ ² □, ▲, ▼		□ ² □, ▲, ▼	□, ◇ ² D, ▲, ▼	□, ◇ ² D, ▲, ▼	▲, ▼	▲, ▼								
0,125		□ ² □		□ ² □ ◇ D	□, ◇ ² D											
0,05		□ ² □		□ ² □	□											
0,03				□	□											

Symbol	Instrumentation	Test Section	Test Section Inlet
□	LOFT DIT	5"	A
◇	LOFT DIT	3"	A
△	Semiscale: Turb. + γ-Dens. + Drag Screen	3"	A
▲	Semiscale: Turb. + γ-Dens. + Drag Screen	3"	B
▼	Semiscale: Turb. + γ-Dens. + Drag Disc	3"	B
□	KFK-LIT: Radiotracer + γDens.	5"	A
D	KFK-LIT: Radiotracer + γDens.	3"	A
●	KFK-LIT: Radiotracer + γDens.	3"	B

Tab. 4215-2: TEST DER LOFT-, SEMISCALE UND KFK-LIT-INSTRUMENTIERUNG IM KFK-IRB-KREISLAUF (OKT. - DEC. 1977).

- 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.
- (H. Beutel, G. Götzbach, R. Krieg, A. Ludwig, H. Mössinger, W. Olbrich, H. Schnauder, U. Schumann, 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 (Blowdown) simuliert werden. Das Vorhaben umfaßt den Beitrag zur Vorbereitung, Durchführung und Auswertung der Versuche, wobei besonders die im Vorhaben 4.22.3 verfügbar gemachten Codes zum Einsatz kommen.

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

1. Kernmantel

Der Kernmantel wurde inzwischen am HDR-Reaktor angeliefert. Messungen vor Ort ergaben, daß aufgrund kleiner Fertigungsfehler mit einer gewissen nicht tolerierbaren Schrägstellung des Kernmantels relativ zur Achse des Reaktordruckbehälters zu rechnen ist. Es wurde deswegen vorgeschlagen bei den ohnehin erforderlichen Nacharbeiten am Sitz des Kernmantelflansches im Reaktordruckbehälter die Kernmantel-Schrägstellung durch eine entsprechende Schrägstellung des Sitzes zu kompensieren.

Zur genauen Feststellung der mechanischen Werkstoffdaten des Kernmantels wurde ein Plan zur Durchführung geeigneter Zugversuche ausgearbeitet.

2. Enthalpieschichtung

Für den Enthalpieschichtungsversuch wurde ein Fahrtdiagramm entworfen. Die dabei auftretenden thermodynamischen Systemzustände wurden vorausberechnet. Zum Zwecke der Spezifizierung der Versuchsaufzeichnung wurden Meßstellenlisten erstellt. Zur Darstellung der Temperaturprofile wurden für die Versuchsauswertung Diagramme vorbereitet.

Mit dem Programm TURBIT-2 wurde die Stabilität der Naturkonvektionsströmung untersucht. Es wurde festgestellt, daß radiale Temperaturunterschiede im HDR-Ringraum durch Turbulenz auf 25 % abgebaut werden. Ferner wurde eine Reihe von ad-hoc-Untersuchungen durchgeführt, die sich in Rahmen der Zusammenarbeit mit den anderen Partnern im HDR-Programm als notwendig erwiesen.

3. Snap-back-Versuche

Zur Untersuchung der Kernmantel-Dynamik, losgelöst von den Anregungen durch die komplexen Strömungsvorgänge beim Blowdown, wurden sogenannte Snap-back-Versuche konzipiert. Vor den Blowdown-Versuchen wird der Kernmantel durch eine hydraulische Spannvorrichtung ausgelenkt. Beim Überschreiten einer gewissen Kraft tritt in einem Zugelement ein Sollbruch auf und der Kernmantel kehrt schwingend in seine Ruhelage zurück. Die hierbei auftretenden Frequenzen und Schwingungsformen werden mit Hilfe der für die Blowdown-Versuche bereits eingebauten Wegaufnehmer gemessen. Die Meßergebnisse sollen zur Verifikation wichtiger Details der strukturdynamischen und der gekoppelten fluid-strukturdynamischen Rechenmodelle dienen. Aus diesem Grunde können die Snap-back-Versuche ohne und mit Wasserfüllung durchgeführt werden. Zwei hydraulische Spannvorrichtungen, eine für den Kraftangriff im oberen Drittel des Kernmantels, eine für Kraftangriff am unteren Flansch wurden in Fertigungsauftrag gegeben.

Mit der inkompressiblen Version von FLUX wurde einer der geplanten Snap-back-Versuche vorherberechnet. Abb. 4221-1 zeigt die ermittelte Kernmantelverformung bei diesem Versuch in Vakuum und Wasser. Auch die Möglichkeit einer periodischen Anregung wurde diskutiert. Es zeigte sich, daß bei harmonischer Anregung der Schale mit einer Kraftamplitude von 10^3 N meßbare Verformungen und Drücke auftreten, die besonders geeignet wären die Dämpfungscharakteristiken des Systems zu bestimmen.

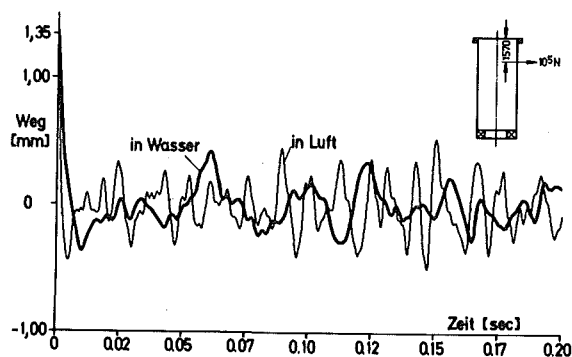
4. Meßdatentransfer

Es wurden erste Versuche durchgeführt, die am HDR mit der Meßdatenerfassungsanlage aufgezeichneten Meßsignale auf der IBM-Anlage des Kernforschungszentrums zu lesen. Diese Arbeiten sind als Vorbereitung der Auswertung der Meßsignale erforderlich. Unzulänglichkeiten der ersten Meßbänder veranlaßten eine Zurückstellung dieser Arbeiten. Sie werden Anfang 1978 wieder aufgenommen.

Geplante Weiterarbeit

- Im Zusammenhang mit der Montage des Kernmantels sind noch einige Abschätzungen und Überprüfungen notwendig (Dicke der Kalibrierplatten zwischen Kernmantelflansch und Behälterdeckel)
- Der Naturkonvektionstest wird ausgeführt und ausgewertet.
- Die hydraulischen Auslenkvorrichtungen für die Snap-back-Versuche werden getestet und eingebaut.
- Vorausberechnungen von HDR-Blowdownversuchen werden ausgeführt und dokumentiert.

Abb. 4221-1:
Radiale Schalenverformung
beim "Snap-back" Versuch



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

K.D.Appelt, F.Eberle, J.Kadlec, G.Lang, R.A.Müller, P.Philipp, IRE

Im Rahmen der Voruntersuchungen zur Einsetzbarkeit der Meßwertaufnehmer für die HDR-Reaktordruckbehältereinbauten-Blowdown-Versuche wurden vier Wegaufnehmer und drei Beschleunigungsaufnehmer in der Autoklav-Testanlage [1] des IRE getestet. Untersucht wurden die induktiven Wegaufnehmer Type W10TS, W10SS, F37/10/600 bzw. F36/6/400 und 501XS-ZTR und die Beschleunigungsaufnehmer auf piezoelektrischer Basis Type A52F und Z10315 sowie der Aufnehmer auf DMS-Basis Type UK 0184. Ziel der Untersuchung war die Überprüfung der Einsetzbarkeit der Aufnehmer unter HDR-Blowdown-Bedingungen (vollentsalztes Wasser, Anfangstemperatur 310 °C, Anfangsdruck 110 bar, max. Druckgradient bis 10 000 bar/sec, max. Temperaturgradient ca. 2-3 °C/s, sowie die experimentelle Bestimmung ihrer wichtigsten Übertragungseigenschaften (Linearität, Empfindlichkeit, Frequenzfunktion, Reproduzierbarkeit, Temperaturdrift des Nullpunktes und der Empfindlichkeit).

Parallel zu diesen Arbeiten wurden entsprechende Prüfverfahren und Rechenprogramme (zur Benutzung auf dem eingesetzten Prozeßrechner und Analysator TDA33) für die Versuchsmeßdatenerfassung und Auswertung erstellt. Neu aufgenommen wurde die Betreuung einer Hochtemperatur-Druckaufnehmerentwicklung auf induktiver Basis, deren erste Prototypen dem IRE ausgeliefert wurden. Erste Untersuchungen haben begonnen.

Zum Schwingungsverhalten des Modellkernmantels des HDR wurde ein Realisierungsvorschlag für Modaluntersuchungen ausgearbeitet [2].

Folgende Ergebnisse wurden bisher erzielt: Bei den Untersuchungen der induktiven Wegaufnehmer die im Mittelpunkt der Arbeiten standen hat der Aufnehmer Type F36/6 alle thermohydraulischen- und mechanisch-dynamischen Tests überlebt und befriedigende Meß- und Störgrößen-Übertragungseigenschaften ausgewiesen, die seinen Einsatz bei den geplanten HDR-Blowdown-Versuchen berechtigen.

Die Abb. 4222-1 zeigt ein Foto dieses Aufnehmers mit der entsprechenden Halterung wie sie am Kernmantel zum Einsatz kommt. In der Abb. 4222-2 ist ein typisches Diagramm zur Darstellung des Wegaufnehmerverhaltens unter

den thermohydraulischen Bedingungen des Blowdowns gezeigt. Um nur die reine Aufnehmerreaktion auf Druck- und Temperaturänderungen zu erhalten, wurde der Meßanker des Aufnehmers zu diesem Zweck im Gehäuse des Aufnehmers arretiert. Die obere Kurve in der Abb. 4222-2 zeigt den Druckverlauf im Autoklav beim Blowdown. Die Kurven darunter zeigen zwei Temperaturen, einmal im Fluid und einmal an der Wand des Aufnehmergehäuses. Die letzte Kurve darunter zeigt die Antwort des Wegaufnehmers auf die Druck- bzw. Temperaturänderungen. Dabei wird deutlich, daß der Aufnehmer keine Druckempfindlichkeit zeigt, das Signal stellt somit die thermische Drift des Nullpunktes dar. Zu beachten ist dabei, daß diese Reaktion des Aufnehmers quasistatisch ist und in den ersten Sekunden, die für die dynamischen Messungen relevant sind, nur ganz geringe Störampplituden von ca. $\pm 0,05$ mm ($\hat{=} 1$ % des Meßbereiches) aufweist. Das Aufnehmerverhalten bei mechanischer Anregung während des Blowdowns zeigt die Abb. 4222-3. Das Diagramm entspricht dem der Abb. 4222-2. Bei diesem Versuch wurde der Aufnehmer jedoch vor Start des Blowdowns im Autoklav sinusförmig mit 5 Hz und ca. 6,5 mm angeregt. Die Auslösung des Blowdowns erfolgte während der Anregung die bis ca. 30 sec nach Start des Blowdowns erfolgte. Die entsprechende Aufnehmerreaktion zeigt wieder die untere Kurve des Diagramms der Abb. 4222-3. Zur Erfassung der Linearität des Aufnehmers wurden neben statischen Kennlinien bei verschiedenen Temperaturen auch Kennlinien im Autoklav bei verschiedenen Temperaturen und Frequenzen gefahren. Die Abb. 4222-4 zeigt eine Kennlinie und die entsprechende Linearitätsabweichung des Aufnehmers im Autoklav bei 208 °C und einer Frequenz von 5 Hz. Die Bezugsgerade ist so in die Kennlinie (oberes Diagramm) hineingelegt, daß die Linearitätsabweichung (unteres Diagramm) im gesamten Bereich von ± 10 mm den geringsten Wert zeigt. Für einen kleineren Meßbereich verbessert sich die Linearität erheblich.

Die Abb. 4222-5 zeigt abschließend ein Diagramm zum dynamischen Übertragungsverhalten des Aufnehmers. Dargestellt ist der Frequenzgang des Aufnehmers nach Betrag (obere und mittlere Kurve) und Phase (untere Kurve) im Frequenzbereich von 10 Hz bis 500 Hz bei randomer Anregung. Die Einbrüche in der Kurve des Amplitudenganges sind zum Teil auf Resonanzen in der Meßvorrichtung zurückzuführen. Der Phasengang ist linear.

Dieser Aufnehmer erweist sich damit für die vorgesehenen Messungen grundsätzlich als geeignet, auch wenn er in einigen Punkten wie z.B. dem Linearitätsverhalten die angestrebten Werte nicht ganz erreicht. Alle anderen Prototypaufnehmer konnten sich bisher nicht qualifizieren und wurden zum

Teil den Herstellerfirmen zur Modifizierung zurückgegeben, Type WIOSS und WIOTS. Die Untersuchungen der Beschleunigungsaufnehmer mußten wegen Defekten an den Aufnehmern vorläufig eingestellt werden [3]. Der Aufnehmer Type 501XS-ZTR (auf DMS-Basis), wurde wegen grundsätzlicher Untauglichkeit zurückgegeben, neue Prototypen der anderen Aufnehmer bzw. neue Fabrikate sind bestellt.

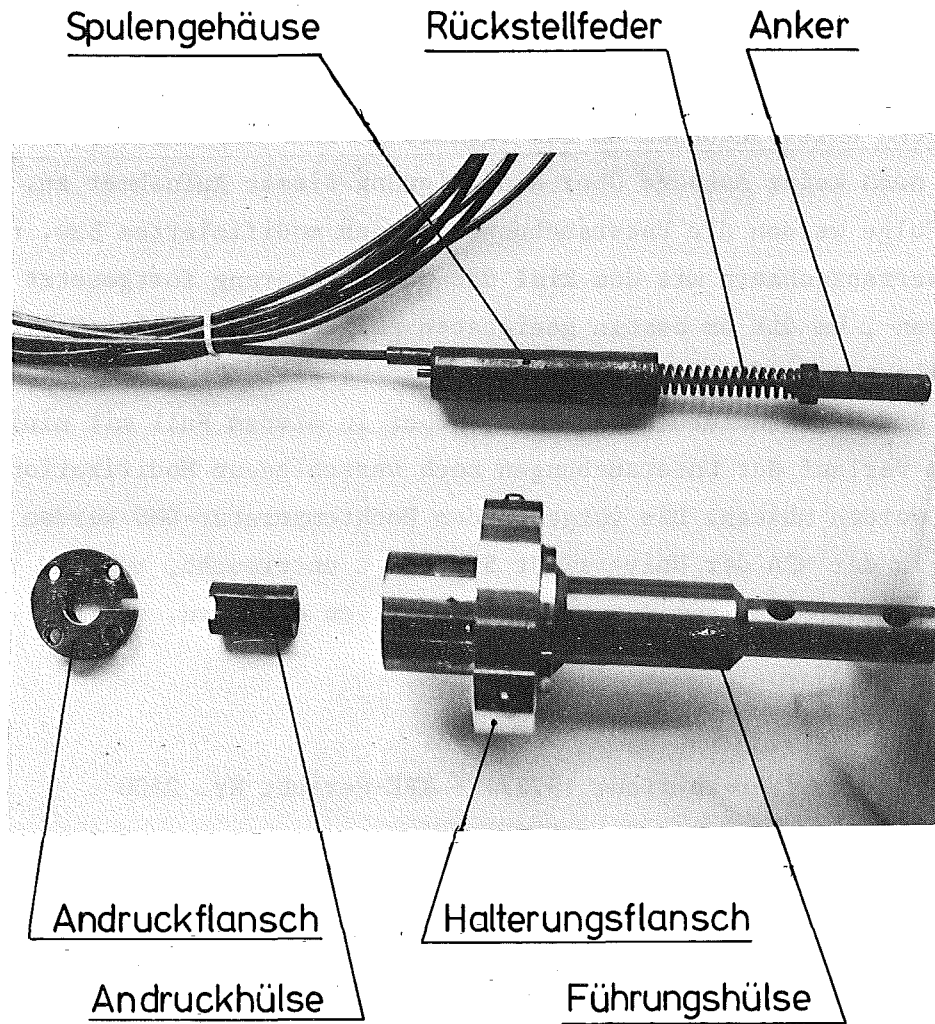
Die ersten Untersuchungen an den induktiven Hochtemperatur-Druckaufnehmern lassen noch keine Aussage über eine Eignung dieser Aufnehmer zu. In der weiteren Folge werden die Untersuchungen an den modifizierten bzw. neuen Prototypmeßwertaufnehmern mit dem Ziel der Qualifizierung fortgesetzt bzw. abgeschlossen, um die am besten geeigneten Aufnehmer schnellstmöglich bei den Herstellern in Auftrag zu geben. Das gleiche gilt für die Hochtemperatur-Druck- und Differenzdruckaufnehmer, wobei in diesem Fall mit einiger Sicherheit im Verlauf der Untersuchungen noch verschiedene Modifikationen vorgenommen werden müssen. Die vorgesehenen Hochtemperatur-DMS werden im wesentlichen in der MPA der Universität Stuttgart untersucht, es soll im IRE u.U. ein abschließender Test zum dynamischen Verhalten erfolgen.

Literatur

[1] PNS-Halbjahresbericht 1977/1 - KFK-Bericht Nr. 2500

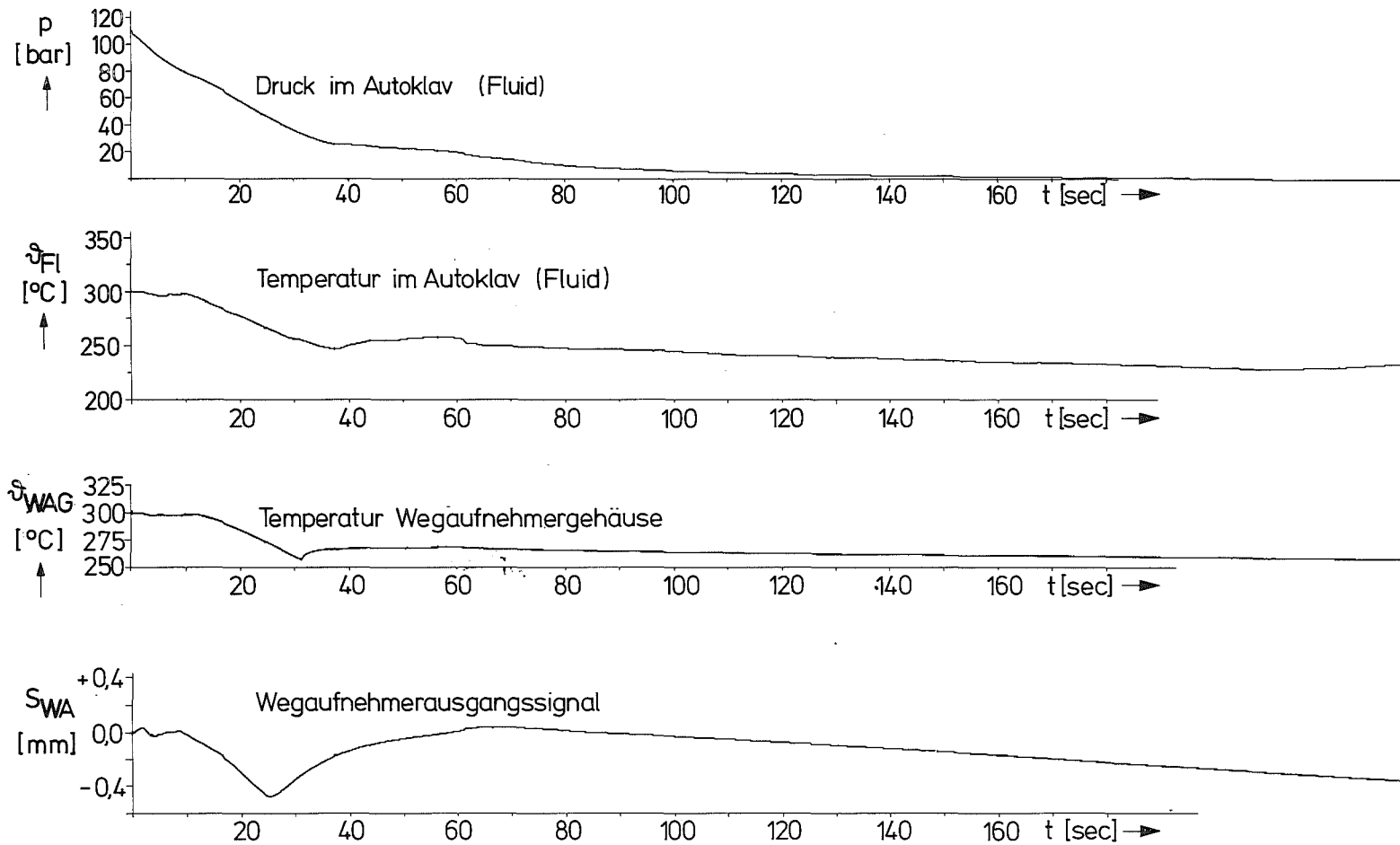
[2] Kadlec, J.:
Realisierungsvorschlag für die Modaluntersuchungen am HDR-Kernmantel mit der PRODERA-Anlage (unveröffentlicht)

[3] Appelt, K.D., Eberle, F., Lang, G., Philipp, P.:
Untersuchung des Hochtemperatur-Beschleunigungsaufnehmers Typ Z10315 der Fa. Kistler zur Qualifizierung für die HDR-Instrumentierung (unveröffentlicht)



GRK

Abb. 4222-1 : Wegaufnehmer F 36/6
mit Einbaugehäuse



**Abb.4222-2: Verhalten des Wegaufnehmers F 36/6 beim Blowdown
Versuch Nr.9 - Anker arretiert**

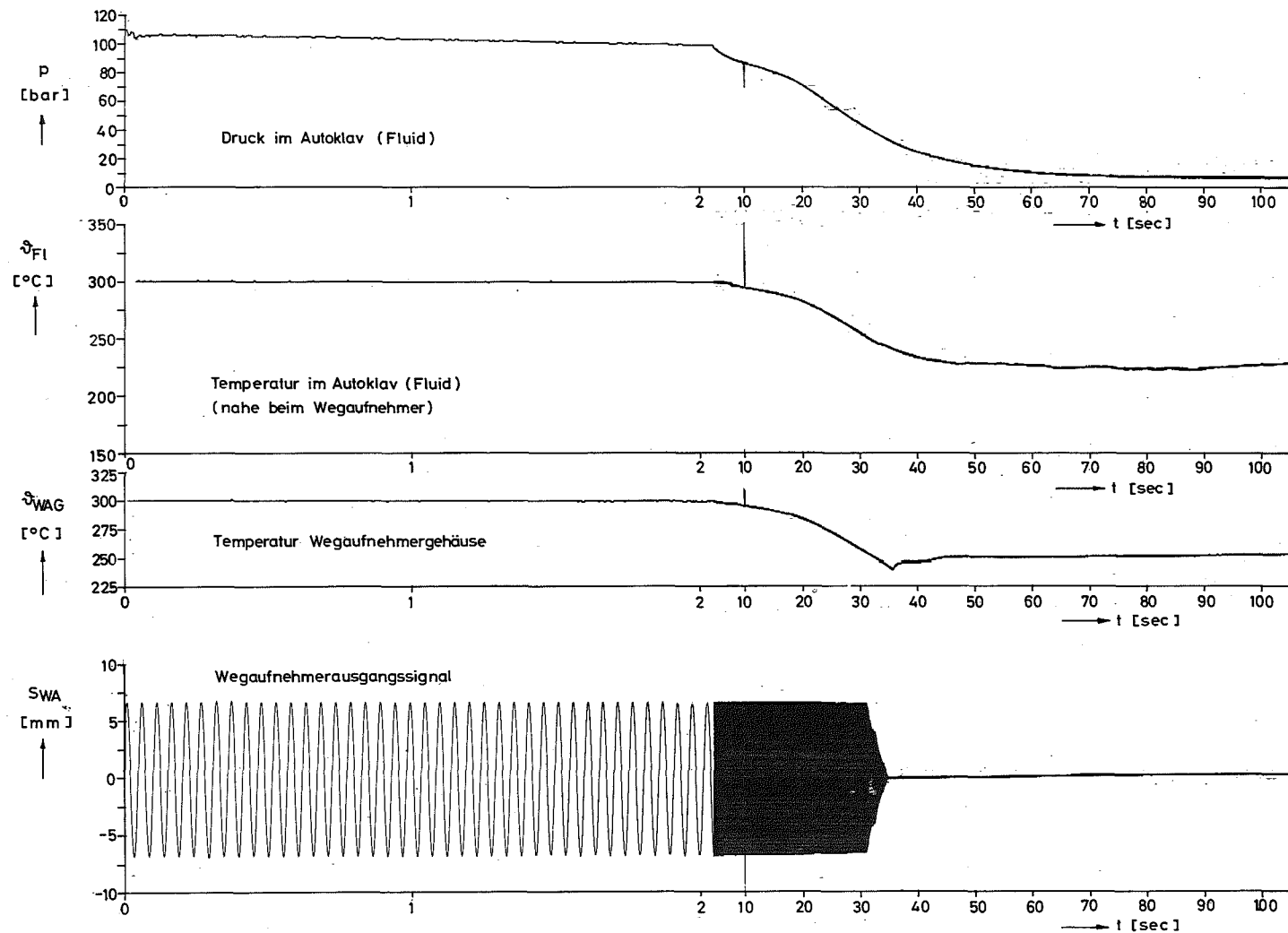


Abb. 4222-3: Verhalten des Wegaufnehmers F 36/6 beim Blowdown
 Versuch Nr. 3 - Anker angeregt mit 20 Hz

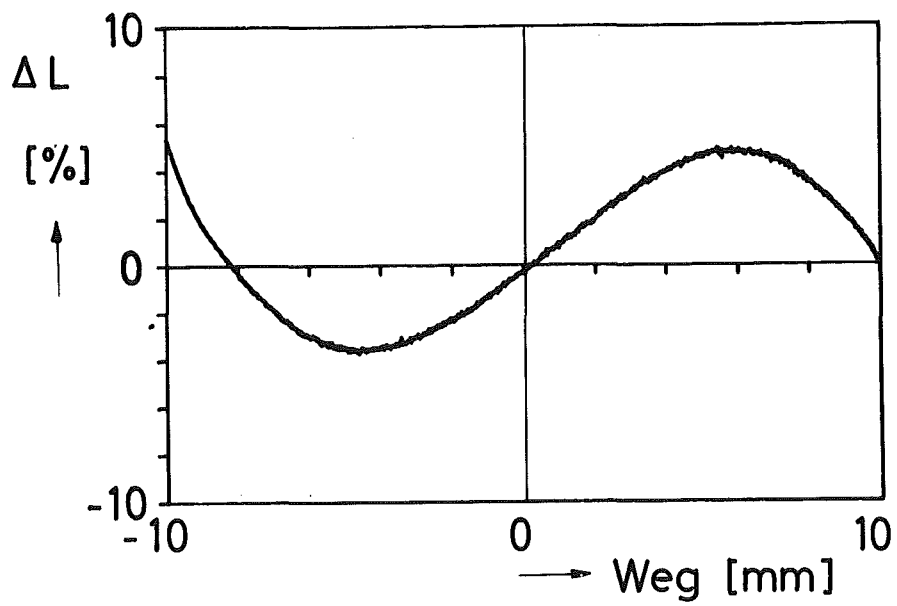
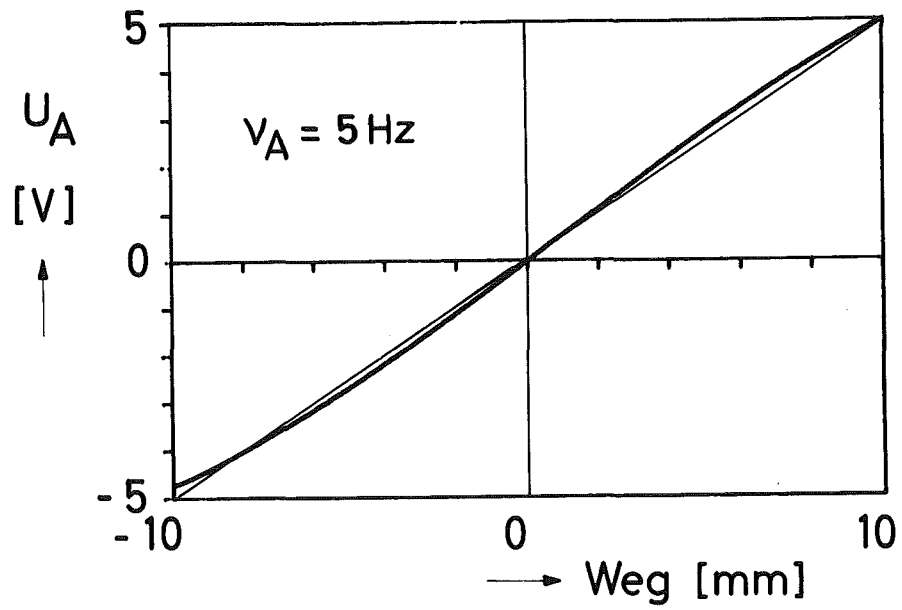
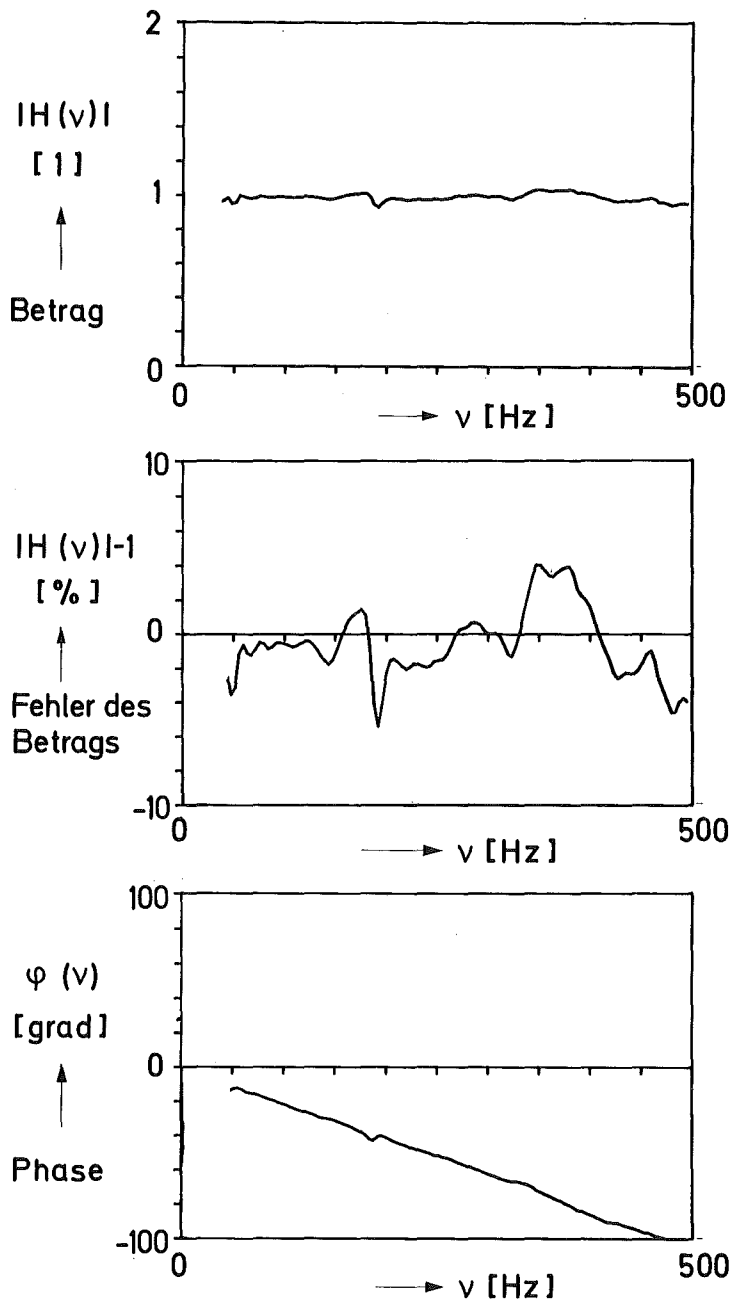


Abb. 4222-4: Linearitätsverhalten des Wegaufnehmers F36/6



GfK

Abb.4222-5: Frequenzgangfunktion des Wegaufnehmers F36/6

4223 Weiterentwicklung und Verifizierung gekoppelter fluid-
strukturdynamischer Codes zur Analyse der dynamischen
Spannungen und Verformungen von RDB-Einbauten bei Kühl-
mittelverluststörfällen in LWR.

H.H. Bechler, H. Beutel, G. Enderle, G. Hailfinger, F. Katz,
R. Krieg, A. Ludwig, H. Mössinger, W. Olbrich, E.G. Schlechtendahl,
U. Schumann, K. Stölting, IRE

Einleitung

Das Vorhaben umfaßt die begleitenden theoretischen Arbeiten zu den HDR-Blowdown-Versuchen (4.22.1, 4.22.2), insbesondere die Entwicklung fluid-struktur-dynamischer Codes sowie die Durchführung von ergänzenden Laborexperimenten.

Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

1. Fluidodynamik

Das Programm DRIX-2D zur Berechnung instationärer Zweiphasenströmungen wurde aufbauend auf den Modellvorstellungen im SOLA-DF (Los Alamos) zur Benutzungsreife weiterentwickelt.

Neben Blowdownproblemen in einfachen Rohren wurde ein Druckentlastungsvorgang am HDR für einen 5 m langen Blowdownstutzen mit angeschlossenem Außenbereich berechnet (Abb. 4223-1). Interessante Phänomene wie das Ausblasen der Verdampfungsfront (Abb. 4223-2) und der Übergang zur reinen Wasserströmung konnten nachgewiesen werden.

Es wurde die Möglichkeit vorgesehen, die Relativgeschwindigkeit anstatt durch die Drift-flux-Approximation durch die Integration der entsprechenden Differentialgleichung zu berechnen. Ein Vergleich zwischen beiden Methoden am Beispiel einer Blowdownströmung in einem einfachen Rohr zeigte, daß die Geschwindigkeitsfelder im Außenbereich nach einer gewissen Anlaufphase (ca. 30 ms) gut übereinstimmen. In der stark transienten Anlaufphase differieren dagegen die Geschwindigkeitsfelder erheblich. Dies ist auf die Vernachlässigung der Trägheitskraft bei der Berechnung der Relativgeschwindigkeit mittels der Drift-Flux-Approximation zurückzuführen (Abb. 4223-3).

Für den Code FLUST wurde die Kodierung des zweidimensionalen Modells abgeschlossen. Mit diesem Modell kann in verschiedenen aneinandergekoppelten rechteckigen Fluidbereichen eine kompressibele Strömung berechnet werden. Die Berücksichtigung einer homogenen Zweiphasenströmung im Gleichgewicht ist möglich. Durch die Verwendung einer genauen Zustandsgleichung $p = f(\rho, e)$ für Wasser [8] kann das Zweiphasengebiet erheblich besser als bisher modelliert werden. Die Ergebnisse von Testrechnungen für das bekannte Stoßrohrproblem stimmten mit der vorhandenen analytischen Lösung gut überein. Auch Vergleiche von Berechnungen des HDR-Blowdown-Versuches 1 für den Ringraum des HDR mit den Ergebnissen des Codes YAQUIR zeigen gute Übereinstimmung. Vorausberechnungen für die HDR-Versuche 1 und 3 mit FLUST, bei denen auch der Stutzen und ein Ausströmbereich modelliert ist, wurden begonnen.

Zur Überprüfung des Einflusses der Dimensionalität der Rechnung wurde ein in einem LASL-report behandeltes Düsenexperiment aufgegriffen und mit den Codes YAQUIR sowie STRUYA ein- und zweidimensional nachgerechnet. Es konnte keine Übereinstimmung mit den LASL-Ergebnissen erzielt werden. Die Ursachen stehen z.Z. noch zur Diskussion. Auch eine Reihe ergänzender Rechnungen mit einfachen Modellen zur Untersuchung des Einflusses numerischer Parameter (z.B. donor-cell-Faktoren, künstliche Zähigkeit) konnten die Abweichungen nicht klären. Als mögliche Ursache sind die unterschiedlichen Verfahren zur Darstellung schiefer Flächen zu sehen (schiefe Begrenzung in YAQUIR und STRUYA, Stufen in SOLA bzw. DRIX).

2. Strukturdynamik

Der schon früher entwickelte Code CYLDY2 zur Strukturdynamik des Kernmantels arbeitet mit Ansatzfunktionen, die bei den Balken- und Atmungsmodes gewisse Einschränkungen gegenüber den physikalischen Verhältnissen implizieren. Sie wurden für die vorgesehene Anwendung als unwesentlich eingeschätzt. Es war jedoch später nicht mit Sicherheit zu klären, ob diese Einschränkungen nicht doch einige unerwartete Effekte bei transienten Rechnungen verursachten. Außerdem lieferte eine von GRS München durchgeführte Rechnung mit dem Code SAP IV Eigenfrequenzen, die von den hier berechneten Werten so abwichen, daß eine über den bereits durchgeführten Vergleich mit STRUDL/DYNAL hinausgehende Bestätigung der CYLDY2-Ergebnisse geboten scheint.

Deshalb wurde im Berichtszeitraum der Eigenwertmodul eines verbesserten Kernmantel-Codes CYLDY3 in Angriff genommen. Hier werden die homogenen Differentialgleichungen von Flügge für dünnwandige Kreiszyinderschalen um translatorische und rotatorische Trägheitsterme erweitert und weitgehend analytisch integriert. Zusammen mit den kinematischen und dynamischen Randbedingungen für die beiden Schalenenden gewinnt man so ein nichtlineares Eigenwertproblem. Dessen iterative Lösung liefert neben den Eigenfrequenzen auch die Eigenschwingungsformen der Schale mit dem Gewichtsring am unteren Ende. Es sind also keinerlei Annahmen erforderlich, welche über die Voraussetzungen der linearen Schalentheorie hinausgehen. Der Nachteil der gegenüber CYLDY2 aufwendigeren Eigenwertberechnung wird ausgeglichen durch den Gewinn an Genauigkeit und durch die vollständige Orthogonalität der Eigenvektoren, die zur Modalzerlegung benutzt werden. Ein weiterer Vorteil ist darin zu sehen, daß mit vergleichsweise geringem Aufwand auch veränderte Randbedingungen eingeführt werden können.

Ein erster Gleichungssatz für die Eigenwertberechnung wurde hergeleitet und programmiert. Die durchgeführten Testrechnungen waren noch nicht zufriedenstellend. Eine Verbesserung der Resultate wird von einer Umstellung der Gleichungen erwartet, bei der die Gegebenheiten der numerischen Rechnung (endlicher Zahlenbereich; Rundungsfehler) stärker berücksichtigt werden.

3. Fluid-Struktur-Koppelung

Mit dem Programm STRUYA wurden für den HDR-Referenzversuch Nr. 3 gekoppelte Rechnungen mit Modellen unterschiedlichen Feinheitsgrades durchgeführt. Das Standardmodell löst den Ringraum in ca. 90 Maschen auf und hat 90 Strukturfreiheitsgrade, das feinere Modell besitzt ca. 180 Maschen und über 300 Strukturfreiheitsgrade. Die Ergebnisse zeigen ebenso wie die FLUX-Rechnungen die drastische Verlangsamung der Strukturbewegung aufgrund der Fluid/Strukturwechselwirkung; die Reduzierung der Verformungsamplituden ist jedoch deutlich geringer. Es wird vermutet, daß dies im wesentlichen daran liegt, daß die Druckbelastung langsamer aufgebracht wird als bei FLUX. Abb. 4223-4 zeigt die Bewegung des unteren Masserings mit und ohne Fluid/Strukturwechselwirkung (berechnet mit dem groben Modell). Abb. 4223-5

zeigt die Verformung des Kernmantels 10 msec nach Blowdown-Beginn (die Verformung ist gegenüber der Geometrie 250fach vergrößert). Neben der Bereitstellung der graphischen Ausgabe für Plotter und Filme wurde damit begonnen, für das gekoppelte System STRUYA/CYLDY2 eine Restart-Möglichkeit zu schaffen und die Datenstruktur im Hinblick auf Effektivitätsgewinne gründlich zu überarbeiten.

Das Programm FLUX zur dreidimensionalen Analyse der Wechselwirkung Kernmantelschale-Fluid beim Blowdown eines DWR wurde weiterentwickelt und angewandt. Die im letzten Bericht erwähnte Methode zur Bestimmung der Eigenschwingungen der Schale in Wasser und Vakuum wurde auf einen typischen 1200 MW-DWR angewandt [10]. In Tabelle 4223-1 sind die Eigenfrequenzen und Schwingungsformen für HDR und DWR gegenübergestellt. Im großen und ganzen sind die Eigenschwingungen in beiden Konfigurationen ähnlich.

Bei Verwendung der Last, die sich bei inkompressibler Potentialströmung einstellt, wurde die dynamische Reaktion des Kernmantels als Funktion der Zeit ermittelt.

Tabelle 4223-1: Eigenfrequenzen f [Hz]

Mode		H D R		D W R	
n	m	Vakuum	Wasser	Vakuum	Wasser
0	1	560.3	19.1	355.5	28.2
0	2	566.8	57.6	352.3	81.7
1	1	18.9	9.4	29.7	19.9
1	2	160.8	57.9	191.3	111.6
2	1	65.8	17.9	72.4	31.2
2	2	147.2	43.3	147.6	69.4
3	1	42.8	15.0	53.6	28.0
3	2	90.7	32.8	104.1	57.0
4	1	49.4	20.5	66.0	38.9
4	2	72.8	30.9	95.0	57.6

Es wurde gefunden, daß die Spannungen bei Berücksichtigung der virtuellen Wasser-Massen etwa 25 % kleiner sind als ohne Berücksichtigung dieser Koppelung zwischen Schale und Fluid.

Während in der inkompressiblen Version die dynamischen Gleichungen nach Hauptachsentransformation separat für jeden Mode mit einem halbanalytischen Verfahren sehr genau gelöst werden, ist in der kompressiblen Version ein relativ einfaches Schema notwendig. Das verwendete Verfahren ist abgestimmt auf Gleichungen vom Typ

$$M \ddot{y} + S y = q$$

und entspricht einem modifizierten Newmark-Verfahren [11]:

$$\begin{aligned} & \frac{M}{\Delta t^2} [y_{n+1} - 2y_n + y_{n-1}] \\ & + S [(\beta+\gamma) y_{n+1} + (1-2\beta) y_n + (\beta-\gamma) y_{n-1}] \\ & = (\beta+\gamma) q_{n+1} + (1-2\beta) q_n + (\beta-\gamma) q_{n-1} \end{aligned}$$

Dies Verfahren ist für $\gamma=0$ und $\beta \geq \frac{1}{4}$ bzw. für $\gamma=\frac{1}{2}$ und $\beta \geq 0$ stets stabil. Der Fall $\beta=\frac{1}{4}$, $\gamma=0$ entspricht dem Newmark-Verfahren, der Fall $\beta=\gamma=\frac{1}{2}$ ist ein vollimplizites Verfahren, das der ICE-Technik [12] entspricht, wenn man diese für akustische Probleme ansetzt. Es wurde festgestellt, daß die ICE-Technik hier zu einer starken numerischen Dämpfung der Amplituden mit hohen Frequenzen führt ($\sim -\omega_o^2 \Delta t^2 \dot{y}$), während das Newmark-Verfahren keine numerische Dämpfung impliziert. Die Auswirkung dieser Dämpfung wird anhand von Abb. 4223-6 deutlich. Die ungedämpfte Rechnung (D1) zeigt deutlich eine Schwingung mit ca. 500 Hz, die aus den hin- und herlaufenden Druckwellen im Bruchstutzen (Länge 1.1 m) resultieren. Diese Schwingung wird nur schwach gedämpft, wenn man physikalische Dämpfung infolge Rohrreibung im Stutzen und Strukturdämpfung (Dämpfungsmaß 1 %) berücksichtigt (D2). In der numerisch gedämpften Rechnung nach der ICE-Technik (ohne physikalische Dämpfung) (D3) ist diese Oszillation nach weniger Zeitschritten (hier $\Delta t = 0.5$ ms) verschwunden. Der Unterschied ist allerdings in den Drücken und Beschleunigungen am größten; in den Verformungen und in erster Näherung in den Spannungen ist er vernachlässigbar. Dies Ergebnis ist nur qualitativ, da eine relativ grobe Ortsdiskretisierung verwendet wurde.

Kompressible FLUX-Rechnungen mit feiner Diskretisierung lieferten erste Ergebnisse für den HDR. Abb. 4223-7 zeigt einen Vergleich der mit und ohne Koppelung berechneten Spannungen. In beiden Fällen wurde ohne physikalische und auch ohne numerische Dämpfung gerechnet. Man stellt hier fest, daß die Spannungen bei gekoppelter Rechnung in den ersten 40 ms etwa zwei mal kleiner sind als bei entkoppelter Rechnung. Später steigen die Spannungen bei der entkoppelten Rechnung weiter an, was physikalisch falsch ist und darin liegt, daß die Schale seitens des Druckfeldes mit periodischen Kräften angeregt aber nicht gedämpft wird. Dieser Effekt tritt nicht in Erscheinung, wenn das numerische Verfahren oder das Modell eine genügend große Dämpfung beinhaltet.

Zwecks Verifikation der FLUX-Ergebnisse wurde mit der Nachrechnung der RS16-Experimente begonnen. Die Analyse der Eigenschwingungen ergab, daß die anhand der Tangentialdehnungen des Kernmantels in Stutzenhöhe gefundenen Biegeschwingungen mit ca. 77 Hz aus einer Umfangsbiegung resultieren, da der niedrigste ovalisierende Schwingungsmodus etwa eine Eigenfrequenz von 74 Hz hat, während die niedrigste Eigenfrequenz der Balkenschwingung unterhalb 4.1 Hz liegt.

Zwecks Darstellung der von FLUX berechneten Felder wurde das Programm FLUXPLOT im Berichtszeitraum weiter verfeinert und angewandt [3,5,9]. Die kompressiblen Druckfelder und Kernmantelverformungen wurden auch in einem Film dargestellt, der aber noch verbessert werden muß.

Der gekoppelte fluid-strukturdynamische Code SING-S ist nicht speziell auf HDR- bzw. Druckwasserreaktor-Geometrie zugeschnitten, sondern auf weitgehend beliebige dreidimensionale Probleme anwendbar [6]. Das fluiddynamische Teilproblem (Code SING1) wird mit Hilfe eines fortgeschrittenen Singularitätenverfahrens (Andere Bezeichnungen: Boundary Integral Equation Method oder Panel-Verfahren) beschrieben. Die auf den Fluidrandflächen zu verschmierenden Singularitäten werden nicht wie in der Aerodynamik üblich durch Quell-Senken-Belegungen, sondern durch Dipolbelegungen dargestellt. Insbesondere bei Strömungsvorgängen in Behältern bringt dies entscheidende Vorteile: Im Gegensatz zur Quell-Senken-Belegung treten an

Oberflächenkanten nur geringe, lokale Leckverluste auf, Wände die beidseitig von Flüssigkeit besetzt sind, können dargestellt werden und die Gleichungssysteme werden besser konditioniert. Zur Durchführung der Rechnung wird die Fluidrandfläche in ebene rechteckige Elemente eingeteilt mit konstanter Dipolbelegung in jedem einzelnen Element. Die Gleichungen zur Beschreibung des dreidimensionalen Druck- und Geschwindigkeitsfeldes, hervorgerufen durch ein solches Element, sind bei der Dipolbelegung komplizierter als im Falle einer Quell-Senken-Belegung. Die Superposition der Felder aller Elemente ergibt das Druck- und Geschwindigkeitsfeld des vorgelegten Problems. Die Stärke der Dipolbelegungen der einzelnen Elemente ergibt sich aus den Randbedingungen, die jeweils im Mittelpunkt eines jeden Elementes exakt erfüllt werden. Neben dieser Standard-Version enthält der Code SING1 noch eine Reihe interessanter Optionen: Die Anzahl der Punkte, in denen die Randbedingungen exakt erfüllt werden, kann gegenüber der Anzahl der verwendeten Dipol-Elementen erheblich reduziert werden. Dadurch wird es möglich, auch recht komplexe Probleme mit tragbarem Computeraufwand zu behandeln. Die Dipole-Elemente können auch in einem gewissen Abstand von der Fluidrandfläche angebracht werden. Dadurch lassen sich gewisse Unstetigkeiten an den Element-Kanten vermeiden. Schließlich können neben den rechteckigen Dipole-Elementen auch punktförmige Quellen als Singularitäten verwendet werden. Abb. 4223-8 und 4223-9 zeigen Anwendungen des Codes SING1 auf einen 60° -Ausschnitt des Wasserpools eines Druckunterdrückungssystems für Siedewasser-Reaktoren. Die in der rechten Seitenfläche (Symmetrie-Ebene) liegende Quelle simuliert eine transiente Dampfkondensation im Wasserpool. Die sich ergebenden Druckverteilungen über den Pool-Randflächen werden durch Linien mit Querstrich, die sich ergebenden Fluid-Beschleunigungen (normal zur Randfläche) werden durch Pfeile dargestellt. Da die den Pool umgebenden Wände als starr angenommen wurden, ergeben sich in Abb. 4223-9 größere Beschleunigungen nur an der freien Wasseroberfläche. Die Beschleunigungen an den übrigen Randflächen stellen Fehler dar. Bei Berücksichtigung flexibler Wände, d.h. bei der Behandlung eines gekoppelten fluid-strukturmechanischen Problem (Code SING-S) sind für diese Wände Massen und Steifigkeitsmatrizen bereitzustellen. Normalerweise können hierfür die bekannten Finite-Elemente-Programme der Strukturmechanik eingesetzt werden. Für Sonderfälle reichen jedoch diese Standard-Methoden nicht aus. So mußte für die sehr dünn-

wandige Kugelschale des Siedewasserreaktor-Containments der Spezial-Code SPHER1 entwickelt werden (vgl. Vorhaben Nr. 4211).

Die Koppelung zwischen Fluid- und Schalendynamik wird dadurch erreicht, daß die unbekanntes Belastungsterme in den schalendynamischen Beziehungen mit Hilfe der fluiddynamischen Gleichungen substituiert werden. Dies führt zu einer simultanen Erfüllung der Interface-Conditions zwischen Fluid- und Schalendynamik (simultanes Kopplungsverfahren). Man erhält hierbei mathematische Beziehungen, die formal mit den strukturdynamischen Gleichungen identisch sind. Lediglich die Massen und Steifigkeitsmatrizen werden modifiziert. Der Code SING-S zur Durchführung dieser Rechnungen ist in seinen Hauptteilen fertiggestellt. Die Ergebnisse erster Testrechnungen sind befriedigend.

4. Laborexperimente zur instationären Zweiphasenströmung

Die experimentellen Einrichtungen zur Verifizierung von Nichtgleichgewichts-Zweiphasen-Rechenprogrammen wurden weiter komplettiert. Die Teststrecke (Düse) sowie ein Teil der Dichtemeßeinrichtungen (s. Abb. 4223-10) wurden in die Hauptwerkstatt gegeben. Die Umkonstruktion der γ -Dichtemeßstellen auf die verschiedenen Durchmesser konnte trotz zahlreicher technischer Probleme im Berichtszeitraum fast fertiggestellt werden.

Die Druckaufnehmer wurden bestellt und, soweit geliefert, auch kalibriert.

Der dem Düsenexperiment angepaßte stationäre Code auf der Basis der DRIX-2D Modelle wurde im Detail verbessert sowie durch Versionen erweitert, die die Berechnung einer Wasser-Luft-Strömung sowie einer Wasser-Dampf-Strömung mit unterkühltem Ausgangszustand erlauben. Abb. 4223-10 und 11 zeigen beispielhaft die Ergebnisse dieser neuen Code-Versionen.

5. Laborexperimente vom Blowdown-Type

Es wurden detaillierte Versuchskonzeptionen ausgearbeitet. Bei allen Versuchen soll ein Autoklav (300 mm Durchmesser) mit einem schnell

öffnenden Deckel [7] verwendet werden. Eine Zielrichtung sind die Blowdownvorgänge in Detailbereichen der Reaktordruckbehältereinbauten, d.h. die Beschleunigung des Fluids und die entsprechenden Strukturverformungen axial und radial in einem Brennelement (Pin-Bündel). Eine zweite Zielrichtung ist die Durchführung von Blowdowns in einer Geometrie, die gegenüber dem HDR im Maßstab von 1:10 verkleinert ist. Hierbei können Parametervariationen durchgeführt werden (z.B. andere Kernmantel-Wandstärke, anderen Stützendurchmesser und andere Position), die sich bei der Großanlage aus Kostengründen verbieten. Insbesondere sollen verschiedene Simulationen der in der HDR-Anlage nicht vorhandenen Einbauten studiert werden. Eine dritte Zielrichtung soll Spezialprobleme der Fluid-Struktur-Koppelung erfassen. Sämtliche Versuche sollen (zunächst) im kalten Zustand durchgeführt werden. Um ausreichend starke Blowdown-Effekte zu erzielen, sollen gewisse Gaspolster in der Anlage erzeugt werden (Simulation der Verdampfung bei Entspannung).

Geplante Weiterarbeit

Der Code DRIX-2D wird auf das (stationäre) Düsenexperiment angewandt werden, um den Einfluß der Dimensionalität zu prüfen (die oben geschilderten Rechnungen wurden mit einem stationären 1D-Code ausgeführt). Mit FLUST werden Blowdownrechnungen unter Einbeziehung des Freistrahls, des Stützens und des Innenraums durchgeführt. Es wird damit begonnen, das DRIX-2D in FLUST einzubauen.

Es ist eine Phase der Einarbeitung in den in LASL entwickelten Code TRAC vorgesehen. Ferner werden Untersuchungen zu den Grundgleichungen der Zweiphasenströmung unter Einbeziehung des Drallsatzes durchgeführt.

Die Entwicklung des schalendynamischen Codes CYLDY3 für den Kernmantel soll zunächst bis zur Berechnung der Eigenfrequenzen geführt werden. Anhand von Vergleichen mit CYLDY2 soll dann über das weitere Vorgehen entschieden werden.

Für die inkompressible FLUX-Version und für STRUYA ist eine Phase der Dokumentation vorgesehen. Beide Codes werden unter Verwendung der mit DRIX-2D ermittelten Druckentlastungskurven für HDR-Vorberechnungen eingesetzt, wobei das Schwergewicht auf FLUX verlagert

wird. Mit dem Code SING-S sollen weitere Testrechnungen und Anwendungsrechnungen auf die gekoppelte Fluid-Schalendynamik von Druckunterdrückungssystemen bei Siedewasserreaktoren durchgeführt werden. Außerdem werden Vorbereitungen zur Analyse lokaler Blowdownströmungen und Verformungen im Bereich einzelner Brennelemente getroffen.

Über die Durchführung der Laborversuche von Blowdown-Type ist zu entscheiden und Vorausberechnungen sind gegebenenfalls durchzuführen.

Literatur

- [1] 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), 419-435
- [2] A. Ludwig, R. Krieg:
Dynamic Response of a Clamped/Ring-Stiffened Circular Cylindrical Shell under Non-Axisymmetric Loading
Nucl. Eng. and Design 45 (1977), 437-453
- [3] R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, K.H. Scholl, U. Schumann:
Fuel-scale HDR blowdown experiments as a tool for investigating dynamic fluid-structural coupling.
Jaeger, T.A., Boley, B.A. (Hrsg.):
Transactions of the 4. Internat. Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, San Francisco, Calif., Aug. 15-19, 1977
Vol. B. Luxembourg: Commission of European Communities 1977
S.B. 5/1.1-11
- [4] 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.
Jaeger, T.A., Boley, B.A. (Hrsg.):
Transactions of the 4. Internat. Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, San Francisco, Calif., Aug. 15-19, 1977
Vol. B. Luxembourg: Commission of European Communities 1977
S. B. 5/2,1-10
- [5] U. Schumann:
Three-dimensional Poisson-solver for reactor-vessel geometry.
2. GAMM-Conference on Numerical Methods in Fluid Mechanics,
Köln, Oct. 11 - 13, 1977

- [6_] R. Krieg, H. Zehlein:
Coupled problems in transient fluid and structural dynamics
with application to nuclear engineering.
Internat. Symposium on Innovative Numerical Analysis in
Applied Engineering Science, Versailles, May 23-27, 1977
- [7_] H. Löffler:
Konstruktion und dynamische Auslegung einer Vorrichtung zum
schlagartigen Öffnen eines Druckbehälters.
Diplomarbeit, Univ. Karlsruhe, Institut für Reaktortechnik
1977
- [8_] D. Freuschle:
Programm zur Bestimmung von Temperatur, Druck- und Dampfge-
halt für Wasser in allen drei Phasen bei Eingabe der Inneren
Energie und der Dichte.
Studienarbeit, Universität Karlsruhe, 1977
- [9_] E.G. Schlechtendahl, R. Krieg, U. Schumann, C.W. Hirt:
Analyse der fluid-strukturdynamischen Wechselwirkung von
Druckbehältereinbauten beim Blowdown
PNS Jahreskolloquium 1977, KFK 2570, Seite 127-153
- [10_] A. Ludwig, U. Schumann:
Eigenschwingungen eines Druckwasser-Reaktor-Kernmantels in
Vakuum und Wasser.
Reaktortagung 1978
- [11_] N.M. Newmark:
A method of computation for structural dynamics
J. Eng. Mech. Div. ASCE 85(1959), 67-94
- [12_] F.H. Harlow, A.A. Amsden/
A numerical fluid dynamics calculation method for all flow
speeds.
J. Comp.Phys. 8(1971), 197-213
- [13_] R. Krieg, G. Hailfinger:
SING1 - ein Computercode zur Berechnung transienter, dreidi-
mensionaler, inkompressibeler Potentialströmungen nach dem
Singularitätenverfahren. KFK 2505

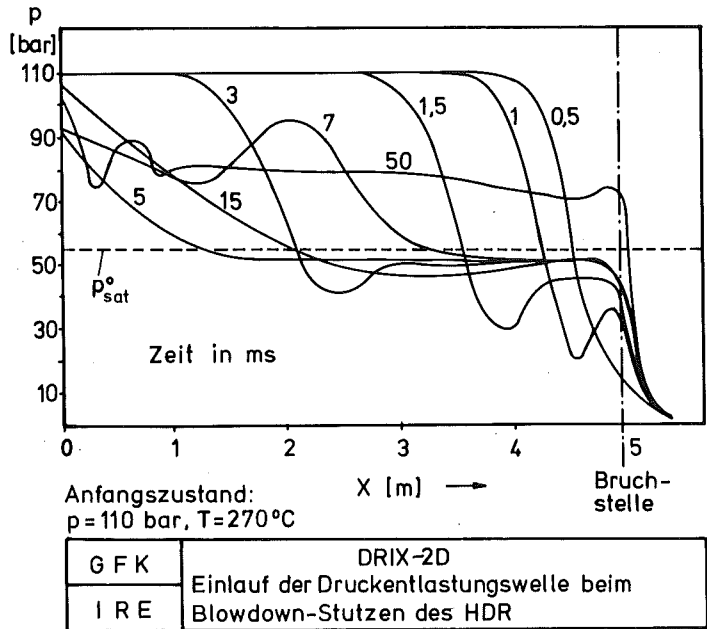
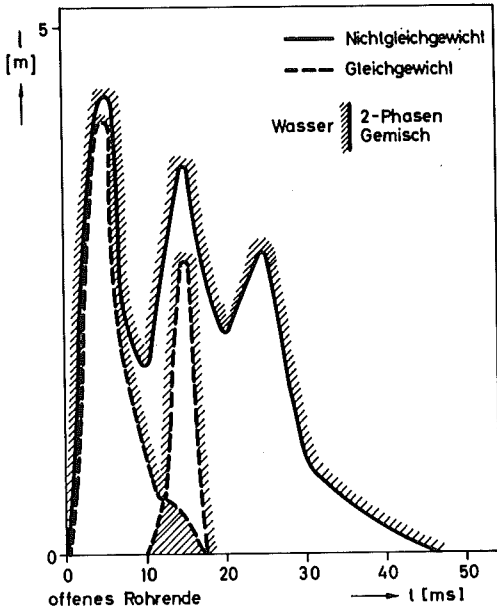
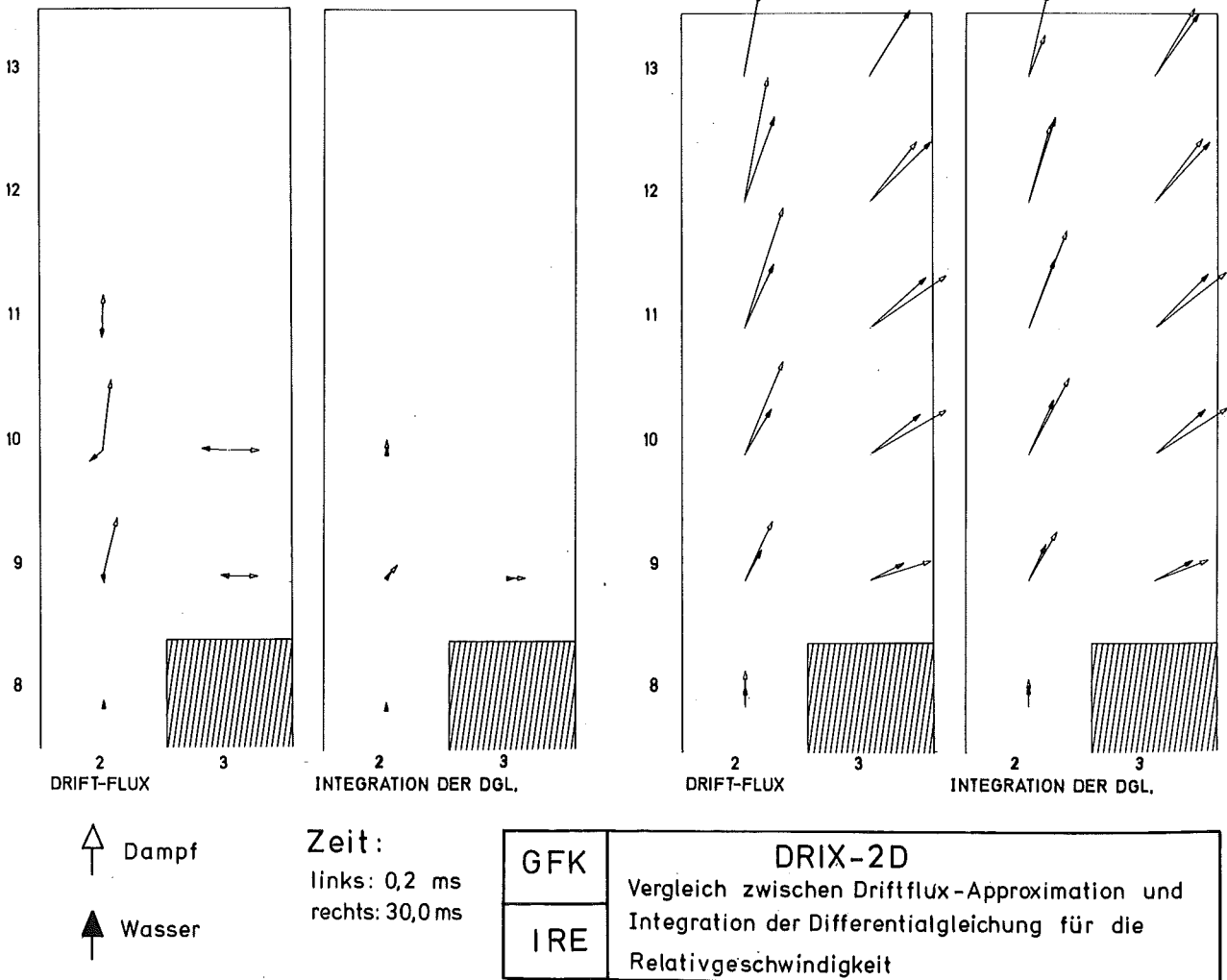


Abb. 4223-1



Abb. 4223-2

Abb. 4223-3



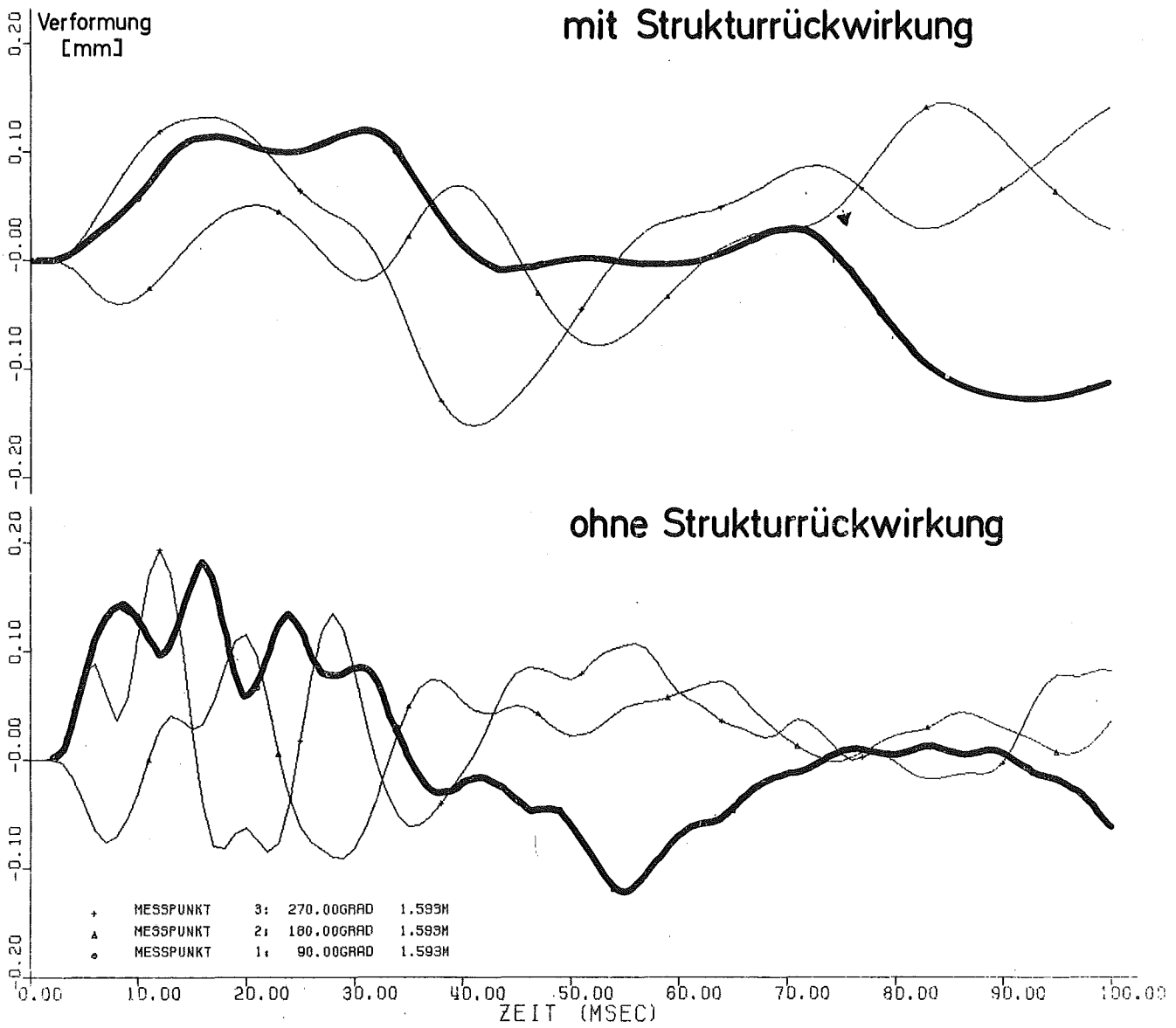


Abb. 4223-4 Verformungen des Kernmantels ca. 90 cm unter Stützen

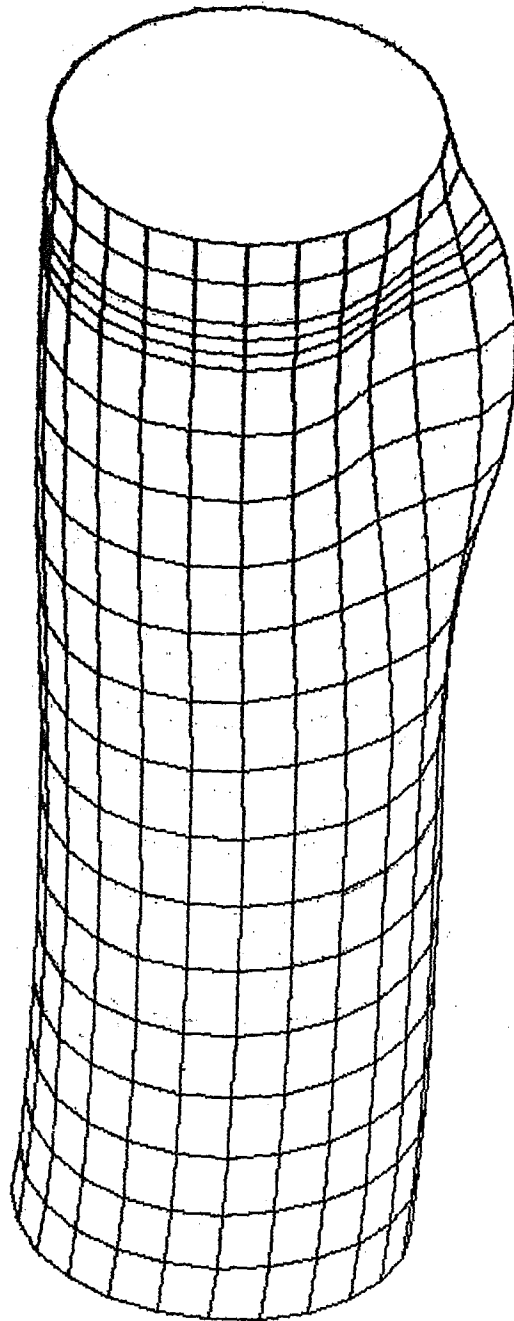
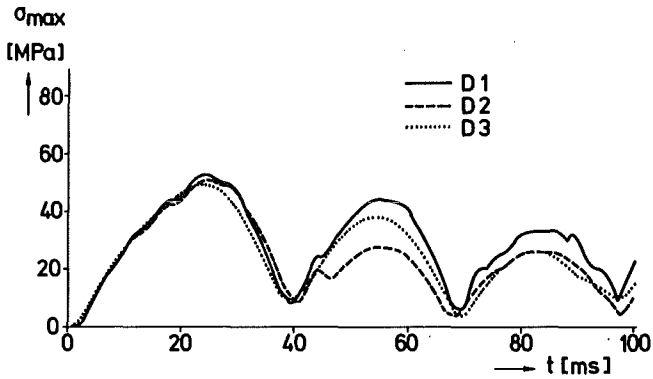
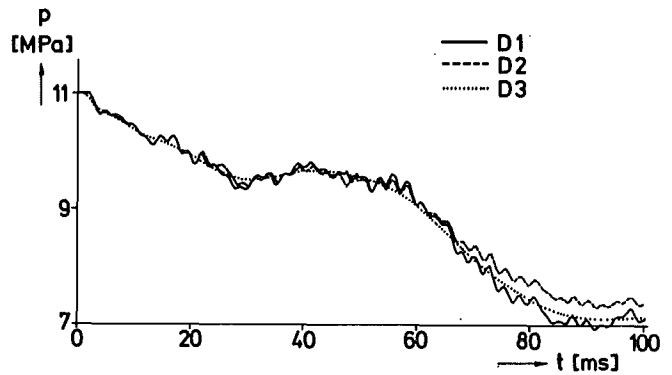
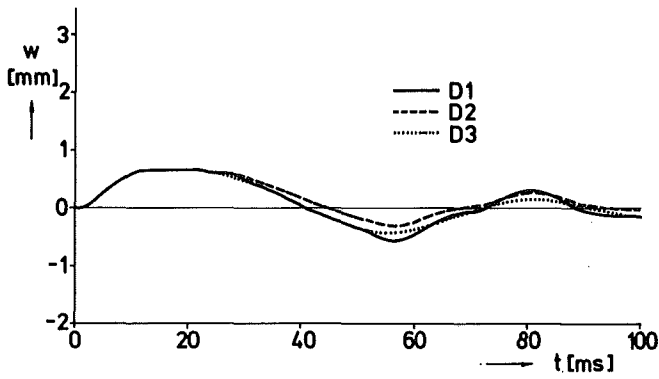


Abb. 4223-5 Kernmantelverformung 10 ms nach Blowdown-Beginn



- D1: Newmark, without physical damping
- D2: Newmark, with physical damping
- D3: ICE-technique, without physical damping

Fig. 4223-6 Core-Barrel displacement w and downcomer pressure p near the nozzle and maximum equivalent stress in the HDR core barrel for the short pipe (1.1 m) and experiment 3 using a coarse grid

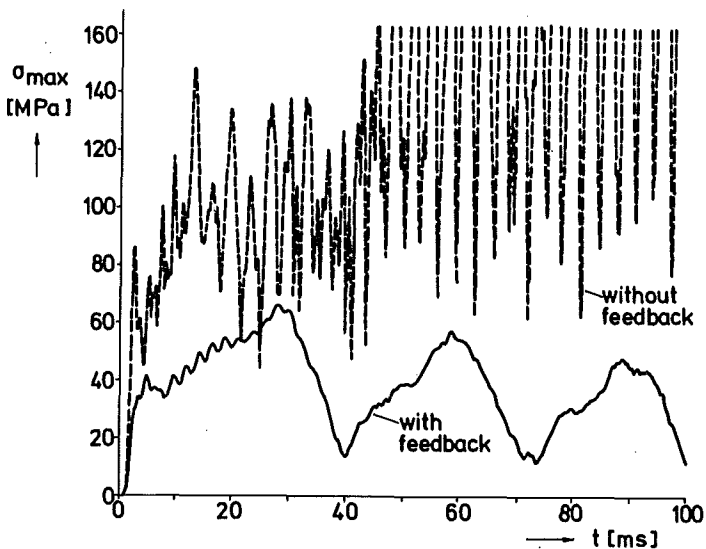
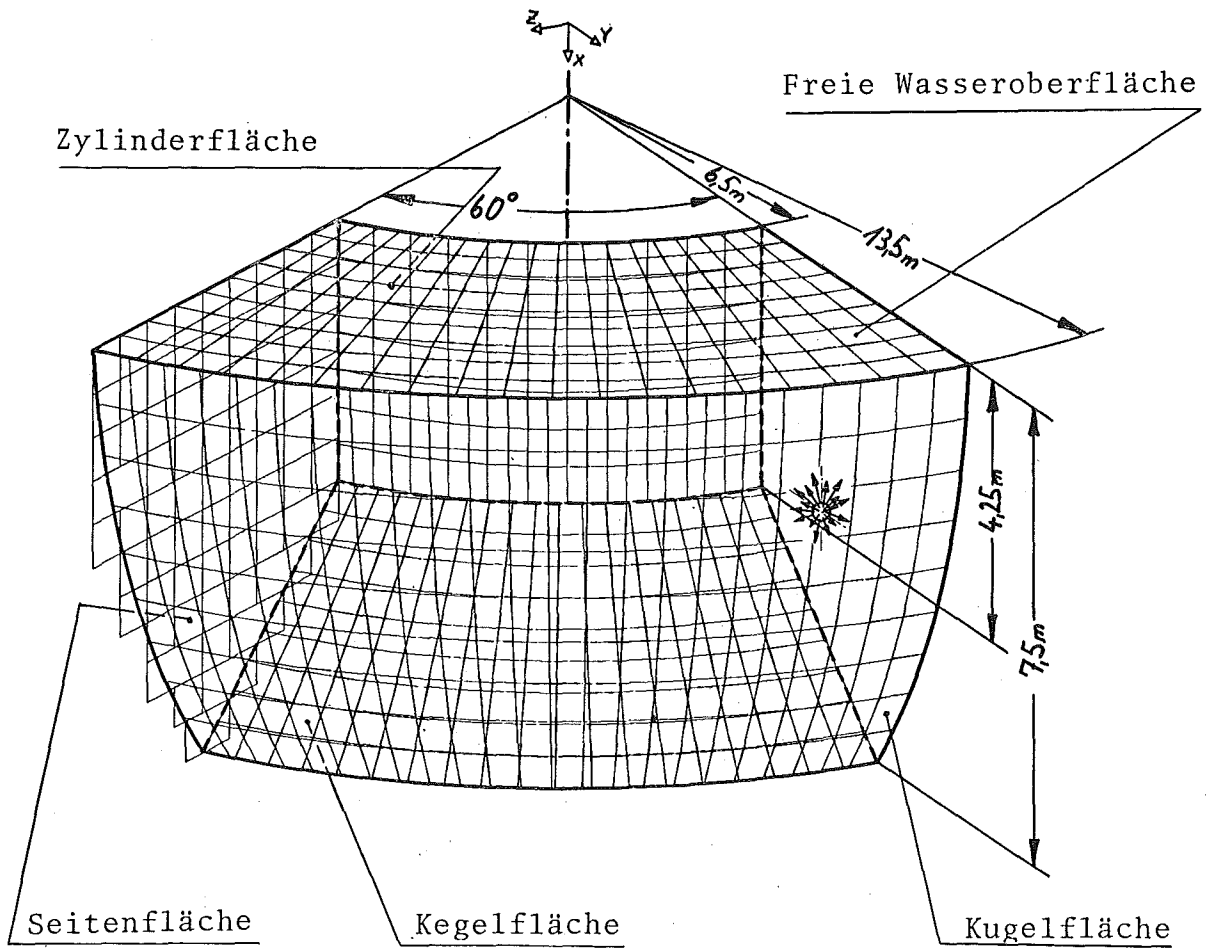
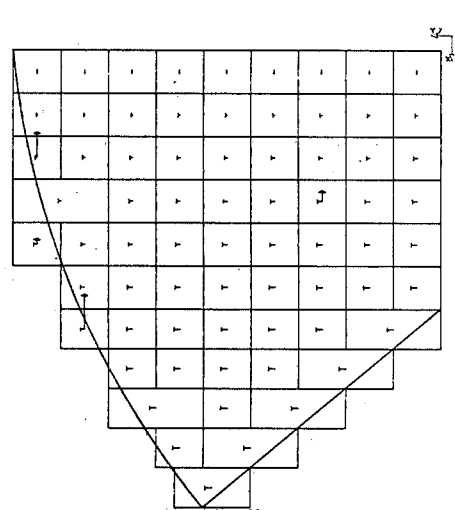


Fig. 4223-7 Maximum equivalent stress in the HDR core barrel (experiment 3, pipe length 1.1 m, Newmark without damping) for a medium fine grid (about twice as fine as the coarse one) with and without accounting for the feedback of the structural motions on the fluid motion

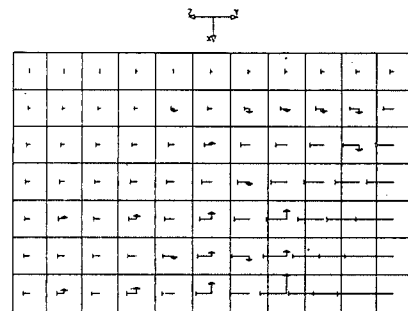


Die Quelle liegt in der Symmetrie-Ebene $Z=0$

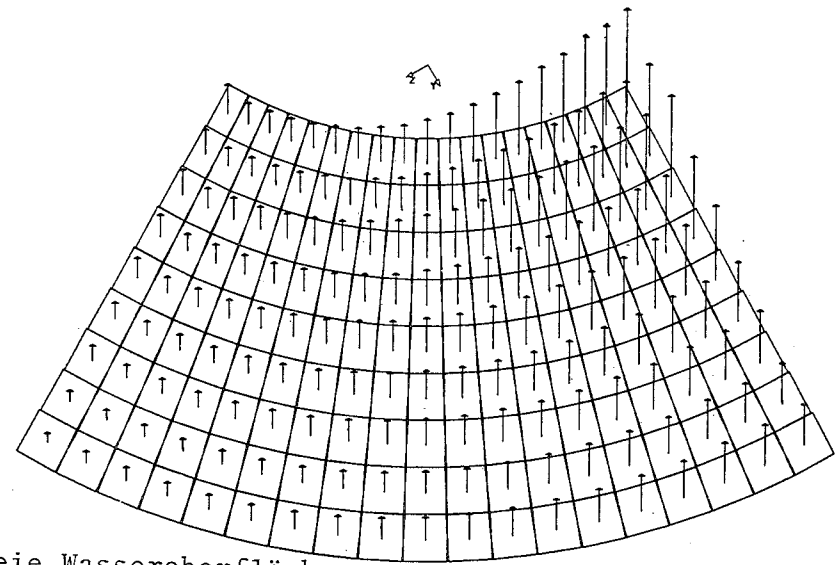
Abb. 4223-8 Oberflächendiskretisierung für einen 60° -Ausschnitt des Wasserpoools eines Druckunterdrückungssystems



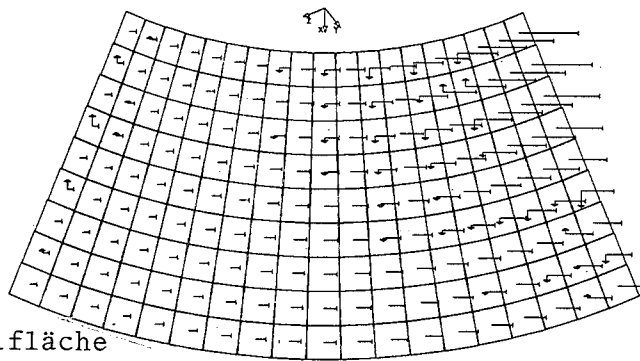
Seitenfläche



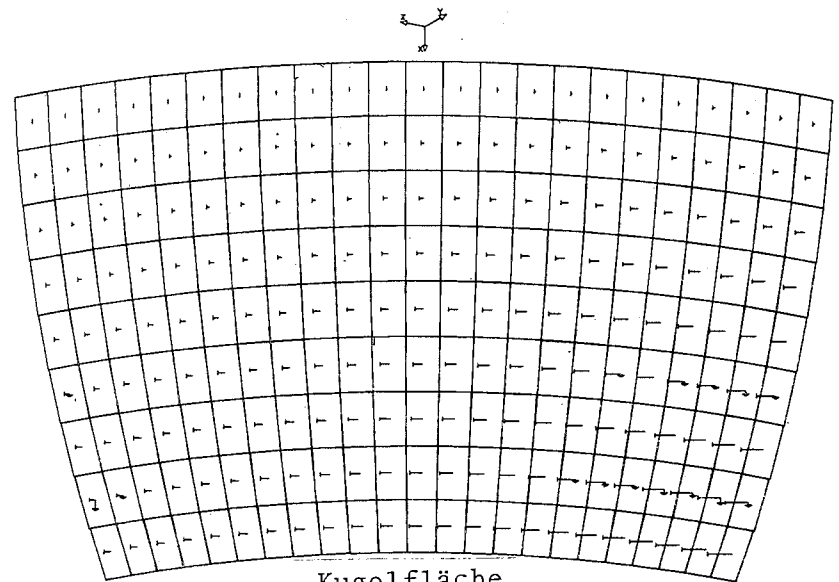
Zylinderfläche



Freie Wasseroberfläche



Kegelfläche



Kugelfläche

Abb. 4223-9 Verteilung von Druck und Normalbeschleunigung auf den Fluid-Randflächen

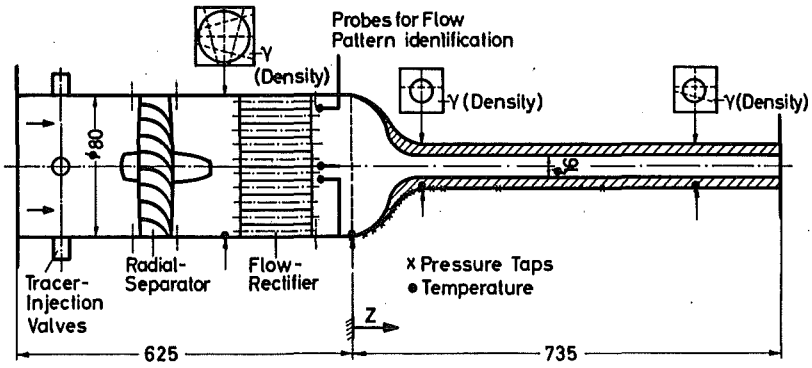
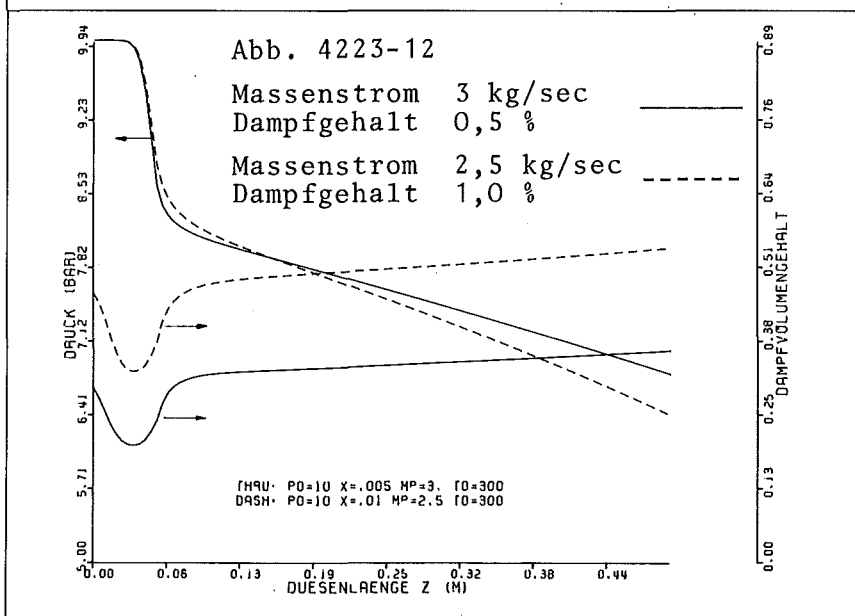
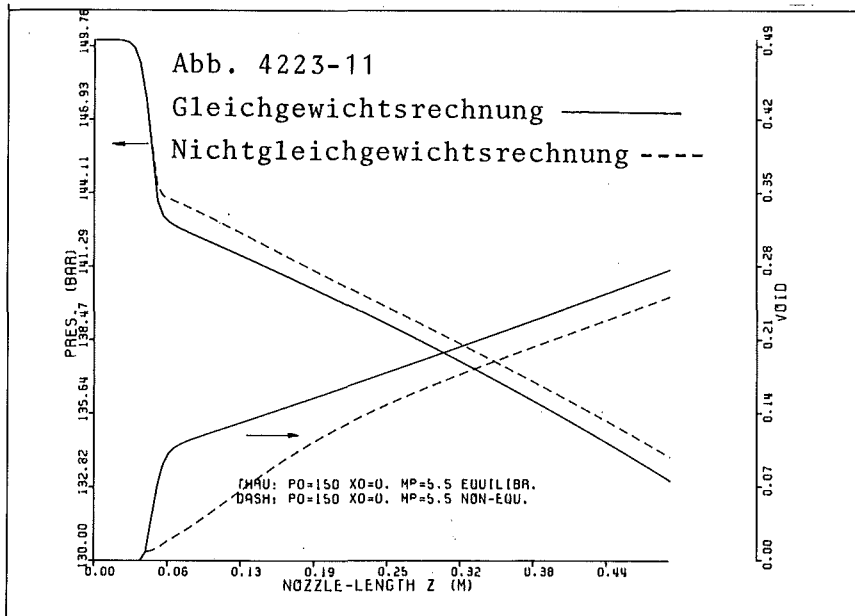


Abb. 4223-10 Test-Section for Two-Phase - Flow



4230 Notkühlung von LWR

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

Die Zielsetzung der theoretischen Untersuchungen zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverluststörfall von Leichtwasserreaktoren ist in KFK 1787 beschrieben. Die vorliegenden theoretischen Arbeiten werden in enger Zusammenarbeit mit dem Institut für Kernenergetik der Universität Stuttgart (IKE) durchgeführt.

Im Berichtszeitraum wurden Anwendungs- und Vergleichsrechnungen mit SSYST und anderen Programmen sowie Modellverbesserungen und Weiterentwicklungen von SSYST-Moduln durchgeführt. Eine erste Analyse zur statistischen Behandlung des Brennstabverhaltens wurde durchgeführt. Aus den Zugversuchsdaten des IMF wurde ein erstes Materialmodell gewonnen, das in einem internen Arbeitsbericht des PNS/IRE dokumentiert ist. /13/

1. Weiterführung von SSYST-Rechnungen zum Vorhaben PNS 4238

Bearbeiter: M. Schindler

Zur Durchführung der ersten Bündelversuche mit Brennstabsimulatoren im Rahmen von PNS 4238 wurden mit SSYST Begleitrechnungen für Einzelstabgeometrie erstellt. Ihre Ergebnisse sollen unter anderem Planung und Ablauf des Versuchsprogramms unterstützen. Es wurden dazu Rechnungen unter Variation verschiedener Parameter bei konstanter Ausgangstemperatur (973 K) und Stableistung (24 W/cm) des Simulators durchgeführt. Die Rechnungen hatten zum Ziel, Informationen über den Einfluß verschiedener Wärmeübergangsparameter auf den zeitlichen Verlauf der Hüllrohrtemperatur zu gewinnen.

1.1 Variation einiger Wärmeübergangsparameter

Die Variation der kühlmittelseitigen Wärmeübergangszahlen wurde unter folgenden idealisierten Annahmen durchgeführt:

Adiabates Aufheizen, nach Anstieg der Hüllrohrtemperatur auf 973 bzw. 1023 K Kühlung der Staboberfläche (Ergebnisse s. Abb. 4231-1).

Die Variation der Spaltweite ergab eine größere Abhängigkeit des Temperaturverlaufs, während die Variation der Emissionszahl im Spalt nur zu geringfügigen Änderungen führte.

1.2 Rechnungen mit Simulation des Flutens

Die Simulation des Stabverhaltens beim Fluten wurde unter folgenden Bedingungen durchgeführt: Zeitlich konstante Wärmeübergangszahl (50, 75 bzw. $100 \text{ W/cm}^2 \text{ K}$) für die Flutphase, Quenchen nach 40 s. Den errechneten Temperaturverlauf zeigt Abb. 4231-2, den Verlauf des Hüllrohrradius Abb. 4231-3. Bemerkenswert ist die außerordentlich empfindliche Reaktion des Dehnungsverhaltens auf die Hüllrohrtemperatur.

2. Rechnungen mit SSYST zu einem TREAT-Experiment und Vergleich mit FRAP-T4

Bearbeiter: R. Schützle, W. Gulden

2.1 Weitere durchgeführte Rechnungen

Zusätzlich zu den in /1/ dargestellten Rechnungen zu einem TREAT-Experiment /2/ wurden mit überarbeiteten Eingabedaten sowie mit einer geänderten Version des Oxidationsmoduls ZIRKOX (s. Abschnitt 5.1) weitere Rechnungen durchgeführt und ein Vergleich mit FRAP-T4 /3/ angestellt.

Bei den in /1/ erwähnten Ergebnissen stieg der Druck im Gasspalt nach der Rechnung aufgrund eines Xenon-Anteils mit der Temperatur stark an. Im Experiment trat dies nicht auf, da der untersuchte Brennstab nicht vorbestrahlt war. Die neueren Rechnungen ohne Spaltgasanteile lieferten, wie unten zu sehen ist, ähnliche Ergebnisse.

2.2 Ergebnisse

Der mit SSYST-1 berechnete Hüllrohrtemperaturverlauf ist in Abb. 4231-4 im Vergleich zum Experiment aufgetragen. Die Aufheizphase, die durch die aufgeprägte Leistung bedingt ist, stimmt mit dem Experiment gut überein. Geringe Unterschiede in der Maximaltemperatur können durch Differenzen im Wärmeübergangskoeffizienten an der Hüllrohroberfläche und einen besseren Wärmedurchgang im Gasspalt hervorgerufen werden. Die höheren Temperaturen

der FRAP-T4-Rechnung sind auf den überschätzten Beitrag der Hüllrohroxidation zurückzuführen. Den Einfluß eines begrenzten Dampfangebots auf die Zirkon-Wasser-Reaktion zeigen die beiden SSYST-Rechnungen mit und ohne Begrenzung. Durch Oxidation in der unteren Brennstabhälfte wird der Dampf verbraucht, so daß in Stabmitte keine Oxidation mehr stattfinden kann.

Das Versagen des Brennstabs wird wesentlich beeinflusst von der ansteigenden Hüllrohrtemperatur. Aus Abb. 4231-5 ist die lineare Dehnung in Funktion der Zeit ersichtlich. Das Hüllrohr reißt bei SSYST-1 nach etwa 32 s, bei FRAP-T4 bereits nach 28,5 s (Experiment: 33 s). Die Enddehnungen wurden für SSYST-1 nach /4/ bestimmt.

In Abb. 4231-6 ist der Stabinnendruck aufgetragen. SSYST-1 berechnet etwas niedrigere Werte als die gemessenen, während die FRAP-Rechnung wesentlich höhere liefert. Die Ursache für die etwas zu niedrigeren SSYST-Werte liegt in der Vernachlässigung der axialen Ausdehnung der Brennstoffsäule in SSYST-1, die über die Annahme konstanter Plenumsvolumina zu geringeren Drücken führen muß. Der zu hohe Druck der FRAP-T4-Rechnung läßt sich durch die höhere Gastemperatur in den Plena und im Spalt erklären.

Der Vergleich von FRAP-T4 und SSYST-1 mit experimentellen Ergebnissen zeigt eine gute Übereinstimmung. Allerdings ist es notwendig, ein Modell zur Begrenzung der Zirkon-Wasser-Reaktion einzusetzen, da letztere sonst überschätzt wird. SSYST-2 wird auch die axiale Ausdehnung der Brennstoffsäule berücksichtigen und damit eine noch bessere Übereinstimmung mit dem Experiment erreichen.

3. Vergleiche verschiedener Programme

Bearbeiter: M. Mesina, W. Gulden

Um die Einsatzfähigkeit verschiedener Programme zu testen, wurden Vergleichsrechnungen durchgeführt.

3.1 Vergleichsrechnungen zwischen SATURN-L und FRAP-S

Um die Einsatzfähigkeit des Programms FRAP-S zu testen, wurde ein Brennstab nachgerechnet. Für diesen Brennstab lagen die Messungen der Zentraltemperaturen und die Rechenergebnisse mit dem Programm SATURN-L vor. Die Ergebnisse des Vergleichs sind aus Abb. 4231-7 - 4231-9 zu ersehen. Die Zentraltemperaturen (Abb. 4231-7) stimmen sehr gut überein. Ebenfalls als Funktion der linearen Stabileistung (Abb. 4231-8) wurden die Wärmeübergangszahlen im Spalt ermittelt. Hier zeigen sich größere Abweichungen. Der Anstieg der Kurven infolge Veränderung des Spaltes aufgrund der Ausdehnung des Oxids wird von den verschiedenen Programmen bei verschiedenen Stabileistungen errechnet. Bei geschlossenem Spalt (oberer Knick der Kurven) ist die Übereinstimmung sehr gut. Der Kontaktdruck (Abb. 4231-9) zeigt größere Abweichungen, insbesondere bei hohen Stabileistungen.

3.2 Vergleichsrechnungen zwischen CARO-D und FRAP-S

Vergleichsrechnungen ergaben eine gute Übereinstimmung der Programme in einem Leistungsbereich der beim Reaktorbetrieb in Frage kommt. Bei unrealistisch großen Leistungen liefern Vergleichsrechnungen deutlich unterschiedliche Ergebnisse, die aus Unterschieden in den verwendeten Modellen zur Berechnung der Wärmeübergangszahlen im Spalt und der Spaltgasfreisetzung resultieren.

4. Verbesserungen an fremden Programmen

4.1 Einbau erweiterter Wasserdampf tafeln in COBRA3-C

Bearbeiter: R. Schütze, A. Flik

Um Experimente mit Brennstabbündeln, z.B. solche bei denen überhitzter Dampf auftritt, mit dem Programm COBRA3-C nachrechnen zu können, mußte dieses Programm erweitert werden, da es bisher nur den Sättigungszustand des Kühlmittels wiedergeben konnte. Um eine sinnvolle Behandlung der Unterkühlung und Überhitzung des Wassers zu ermöglichen, wurden die entsprechenden Datenfelder aus RELAP-3 übernommen und in COBRA eingebaut. Genauso wurde mit den Unterprogrammen zur Berechnung der Zustandsgrößen verfahren. Diese Änderungen haben für den Benutzer zur Folge, daß Dampf tafeln nicht

mehr eingegeben werden müssen. Der Zustand des Kühlmittels braucht jetzt nur noch durch Druck und Enthalpie definiert zu werden.

4.2 Test und Verbesserungen der Moduln FRAPDR und FRASSY

Bearbeiter: M. Mesina

Für die Durchführung einer Transientenrechnung muß zuerst der stationäre Ausgangszustand des Brennstabs berechnet werden. Zu diesem Zweck steht innerhalb des PNS das Programm FRAP-S /5/ zur Verfügung. Um dem SSYST-Anwender, der den Brennstab-Ausgangszustand mit FRAP-S rechnen möchte, die Erstellung der SSYST-Eingabe für die transiente Rechnung zu vereinfachen, wurde FRAP-S an SSYST unter Verwendung des "FRAP-S-FRAP-T-LINK"-Datenfiles lose gekoppelt. Zwei Hilfsmoduln, FRAPDR und FRASSY übernehmen automatisch von diesem Datenfile alle diejenigen Daten, die von SSYST als Eingabedaten benötigt werden /6/.

Zur Durchführung der Kopplung waren mehrere Korrekturen an den Programmen erforderlich. Außerdem waren die Moduln FRAPDR und FRASSY in verschiedenen Punkten zu erweitern.

5. Verbesserungen an SSYST-Moduln

5.1 Erstellung einer zweiten Version des Moduls ZIRKOX

Bearbeiter: W. Türk, M. Schindler

Die zweite Version des Moduls ZIRKOX unterscheidet sich von der ersten /7/ durch:

- Ausgabe der durch ZR/H_2O -Reaktion freigesetzten Wärme
- Berechnung und Ausgabe der freigesetzten H_2 -Menge
- Änderung des Volumens der Hülle durch Oxidation
- Möglichkeit der Beschränkung des Dampfangebots
(sie wird durch entsprechende Eingabe berücksichtigt).

Abb. 4231-4 zeigt den Einfluß der Begrenzung des Dampfangebots auf die Hüllrohräußentemperatur. Version 1 errechnet aufgrund der zu großen

Wärmeproduktion zu hohe Temperaturen, mit Dampfbegrenzung stimmen Rechnung und Experiment gut überein./8/. Abb. 4231-10 zeigt die zusätzliche Ausdehnung des Hüllrohrs durch Volumenzunahme bei der Oxidation /9/. Auch hier stimmen die mit ZIRKOX2 errechneten Werte gut mit dem Experiment überein.

5.2 Erweiterte Strömungsgleichungen für ZETHYF

Bearbeiter: R. Schützle

Die bisherige Version von ZETHYF betrachtet die Kühlmittelströmung beim Auftreten eines Zweiphasengemisches homogen. Damit kann auch aus der Wasser- bzw. Gemischoberfläche im Brennstabündel der entstehende Dampf während der Flutphase nicht austreten. Das Gemisch schäumt also stärker auf als in Wirklichkeit. Es treten daher im Modell zu günstige Kühlbedingungen auf und der Brennstab wird zu früh benetzt. Eine Abhilfe wurde durch teilweise separierte Darstellung der beiden Phasen Dampf und Wasser in den Gleichungen für das Strömungsmodell geschaffen.

5.3 Mathematische Modelle für einen transienten Gasdruckmodul in SSYST-2

Bearbeiter: M. Schindler

Bei transienten Rechnungen mit SSYST-1 werden zur Berechnung des Spaltgasdrucks üblicherweise die Moduln SPAGAD und ODRUSPA gleichzeitig verwendet. SPAGAD enthält im wesentlichen ein Gasfreisetzungmodell, dessen Anwendung bei transienten Vorgängen fragwürdig ist. ODRUSPA andererseits kann nicht allein verwendet werden, da er bereits einen mittleren Gasdruck voraussetzt und erst in Aktion tritt, wenn sich eine Beule gebildet hat. Es wurden deshalb mathematische Modelle für einen transienten Gasdruckmodul erarbeitet, die folgende modulare Trennung der Gasdruckrechnung beinhalten.

- Die Gasfreisetzung wird nur bei der Berechnung des stationären Ausgangszustandes berücksichtigt. Es wird vorausgesetzt, daß die freie Gasmenge im Gesamtstab während der hier interessierenden schnellen Transienten konstant bleibt.
- Die Berechnung des Drucks aus gegebener Gasmenge, Temperatur und Geometrieverhältnissen erfolgt in einem Modul, der wahlweise die ortsabhängige Lösung unter Berücksichtigung von Ausgleichsströmungen wie

auch die näherungsweise ortsunabhängige Lösung liefert.

5.4 Die Lösung der eindimensionalen Wärmeleitgleichung ohne Diskretisierung der Zeitkoordinate im Programm ZET-1D

Bearbeiter: M. Mesina

Es wurde bei der Lösung der eindimensionalen Wärmeleitgleichung auf das Differenzenverfahren in der Zeitkoordinate verzichtet und statt dessen das gekoppelte System der einfachen Differentialgleichungen für die zeitabhängigen Temperaturen in einzelnen Radialknoten direkt gelöst. Dadurch konnte bei Vorgängen mit schnellen Änderungen der Randbedingungen, bei denen die alte Version des Programms ZET-1D bei der Wahl zu großer Zeitschritte physikalisch unrealistische Schwingungen der Temperaturen lieferte, mit der neuen Version eine physikalisch sinnvolle Zeitabhängigkeit der Temperatur in allen Radialknoten gewonnen werden. Physikalisch unrealistische Schwingungen (s. z.B. Abb. 4231-11) können so vermieden werden.

6. Entwicklung neuer SSYST-Moduln zur statistischen Behandlung des Brennstabverhaltens

Bearbeiter: W. Sengpiel

Über die Ziele und Methodik der probabilistischen Schadensumfangsanalyse für die Brennstäbe eines DWR im Falle eines hypothetischen Kühlmittelverluststörfalls ist bereits berichtet worden /10/. Im hier zugrunde liegenden Berichtszeitraum sind die programmtechnischen Arbeiten auf einen Stand gebracht worden, der eine erste probabilistische Beispielrechnung mit SSYST gestattete. Im einzelnen handelt es sich um:

- Auswertung zweier Testbeispiele ("black box 1" und "black box 2") zur Durchführung von "Response Surface"-Analysen. In diesem Zusammenhang wurden das für die probabilistische Analyse des Brennstabverhaltens zur Anwendung kommende Verfahren des "experimental design" nach McKay/Conover /11/ und ein Regressionsanalyse-Programm getestet.
- Erweiterung der Programme für das "experimental design" und die Regressionsanalyse als SSYST-Moduln.

- Erstellung einer ersten vorläufigen Version des Programmes zur Berechnung von Hüllrohr-Versagenswahrscheinlichkeiten.
- Festlegung eines "Master Input" für SSYST und Durchführung einer Rechnung in Form einer statistischen Simulation.

6.1 Ergebnisse einer "Response Surface" Analyse mit dem Testbeispiel "Black Box 2"

Gesucht war die Verteilungsdichte einer Funktion y , die abhängig ist von sieben statistisch verteilten Einflußvariablen $X_i, i=1,7: y=y(X_1, \dots, X_7)$. Das rechnerische Vorgehen im Rahmen einer "Response Surface" Analyse gliedert sich in zwei Teile:

- Durchführung von Simulationsexperimenten nach einem festgelegten "experimental design". Approximation der unbekanntten Funktion mit Hilfe der Stützpunkte auf der "Response Surface" über eine Regressionsanalyse.
- Durchführung von Monte Carlo-Simulationen mit der approximierten Funktion $y_{\text{appr}} = y_{\text{appr}}(X_i)$ zur Berechnung der Verteilungsdichte von y_{appr} .

Zu approximieren war zunächst folgende Funktion:

$$y = 330 + \left\{ X_1 \cdot X_2 \cdot \text{EXP}(-X_1/X_2) + X_3 \cdot \text{EXP}(-((X_4-X_1)/X_3)^2) \right\} \times \\ \times \left\{ 1 + X_6 \cdot X_1^2 \cdot \text{arctg}(X_5-X_1) - 0.5 (1+X_6) X_7^4 \right\}$$

Die statistischen Variablen X_1 bis X_7 , die als gleich verteilt angenommen worden sind, hatten folgende Streubreiten:

1	≤	X_1	≤	5
0,01	≤	X_2	≤	20
0,01	≤	X_3	≤	1500
30	≤	X_4	≤	200
10	≤	X_5	≤	500
0,001	≤	X_6	≤	1
-1	≤	X_7	≤	1

Die Simulation zur Bestimmung von Stützpunkten auf der "Response Surface" wurden mit dem von McKay und Conover vorgeschlagenen "Hypercube Sampling" durchgeführt.

Da sich die Variable X3 als einflußreichste Größe erwies, wurde die "Response Surface" in drei Teilflächen für $0.01 \leq X3 \leq 200$, $200 < X3 \leq 600$ und $X3 > 600$ eingeteilt. Nach insgesamt 60 Simulationen wurden die Rechnungen abgebrochen, da Verbesserungen der erzielten Approximationen nur mit hohem zusätzlichen experimentellen Aufwand zu erreichen waren. Die Approximationen $y_{appr}^i(X1, \dots, X7)$ unterscheiden sich für die drei gewählten Teilbereiche im wesentlichen nur durch andere Koeffizienten, so daß hier nur die für den Bereich 3 ($X3 > 600$) angegeben werden soll:

$$\begin{aligned}
 y_{appr}^3 &= 516.81 + 1.011 \cdot X3 + 0.059 \cdot X1^2 \cdot X2 \cdot X6 \cdot X7^2 / X5 \\
 &- 0.169 \cdot X2 \cdot X6 \cdot X7^2 (X5 - X1) / X1 - \\
 &- 0.736 \cdot X3 \cdot X6 \cdot X7^2 + \\
 &+ 0.498 \cdot X1 \cdot X3 \cdot X6 \cdot X7^2 / X5 - \\
 &- 0.427 \cdot X3 \cdot X7^2
 \end{aligned}$$

mit einer Varianz $VAR(y_{appr}^3) \approx 65^2$.

Mit der gefundenen Approximation der Form

$$y_{appr} = e_1 \cdot y_{appr}^1 + e_2 \cdot y_{appr}^2 + e_3 \cdot y_{appr}^3$$

	$e_1 = 1$
$0.01 \leq X3 \leq 200$	$e_2 = 0$
	$e_3 = 0$
	$e_1 = 0$
$200 < X3 \leq 600$	$e_2 = 1$
	$e_3 = 0$
	$e_1 = 0$
$X3 > 600$	$e_2 = 0$
	$e_3 = 1$

sind Monte Carlo-Simulationen zur Bestimmung der Verteilungsdichte durchgeführt worden. In Abb. 4231-12 sind die Ergebnisse von Monte Carlo-Simulationen mit der Originalfunktion y und der Approximation y_{appr} dargestellt. Mehr als 99.99 % aller Werte von y_{appr} liegen innerhalb des Streubereichs von y . Man erkennt, daß die Verläufe beider Wahrscheinlichkeitsdichten qualitativ recht gut übereinstimmen. Quantitativ gibt es deutliche Abweichungen im Bereich $330 \leq y \leq 1300$. Infolge des integralen Charakters der kumulativen Dichtefunktionen (CDF) sind deren Abweichungen voneinander jedoch gering. In der folgenden Tabelle sind einige Werte der CDF's miteinander verglichen:

y^*	$p(y > y^*)$	
	ORIGINAL	APPROX.
830	0.63	0.624
1080	0.46	0.45
1330	0.29	0.268
1580	0.145	0.125
1830	$2,5 \cdot 10^{-2}$	$2,3 \cdot 10^{-2}$
2080	$5 \cdot 10^{-3}$	$4,6 \cdot 10^{-3}$
2330		$< 10^{-5}$

6.2 Erstellung zusätzlicher Programme bzw. SSYST-Moduln für die probabilistische Schadensumfangsanalyse

6.2.1 Das probabilistische Berstkriterium

Es ist eine erste vollständige Rechnung mit SSYST für einen Heißstab als Beispiel eines Simulationsexperimentes für die angestrebte "Response Surface"-Analyse durchgeführt worden. Dazu war es nötig, einen Teil der vorhandenen Programme zu SSYST-Moduln umzuarbeiten ("experimental design", Regressionsanalyse) und zusätzlich ein Rechenprogramm zur zeitschrittweisen Berechnung von Hüllrohr-Versagenswahrscheinlichkeiten zu erstellen. Dieses Programm beruht auf der ersten Version eines probabilistischen Versagenskriteriums in Anlehnung an Berstdaten, die dem Programm FRAIL von INEL /12/ zugrunde liegen. Die verwendeten Daten werden z.Zt. ergänzt durch eine von Raff /13/ begonnene Berstdaten-Bibliothek. Im Programm ist die Versagenswahrscheinlichkeit als Funktion der Hüllrohrtemperatur

und -dehnung dargestellt. Für die thermisch-mechanische Analyse mit SSYST wird der Brennstab in eine Reihe axialer Zonen (z.B. 20) eingeteilt. Der zeitabhängige Hüllrohrzustand an jeder axialen Stabposition z_i , charakterisiert durch Temperatur und Dehnung, wird prinzipiell verglichen mit dem entsprechenden probabilistischen Versagenskriterium und ergibt eine zonenspezifische Versagenswahrscheinlichkeit $p_{z_i}^F$. Die Wahrscheinlichkeit, daß das Hüllrohr (in irgendeiner Zone z_i) versagt, ist dann

$$p(F_{z_1} \cup F_{z_2} \dots \cup F_{z_n}) = 1 - \prod_{i=1}^n (1 - p_{z_i}^F) \quad (1)$$

$F_{z_i} \cup F_{z_{i+1}}$ Versagen in Zone z_i oder in Zone z_{i+1}

Da die angegebene Gleichung zur Berechnung der integralen Hüllrohrversagenswahrscheinlichkeit (z.Zt. t_k) eine Abhängigkeit von der Anzahl n , der axialen Zonen enthält, wird eine Normierung des Versagenskriteriums und damit der zonenspezifischen Versagenswahrscheinlichkeiten auf eine charakteristische Bezugslänge s eingeführt. Haben die Brennstabsimulatoren, mit denen experimentell probabilistische Versagenskriterien gewonnen wurden, die Länge $L = 1 \cdot s$ und die axialen Stabzonen Δz_i die Länge $\Delta z_i = n_i \cdot s$, dann ist die korrigierte Versagenswahrscheinlichkeit für eine axiale Zone z_i

$$\begin{aligned} p_{z_i}^F &= 1 - (1 - p_{z_i}^F)^{\frac{n_i}{1}} \\ &= 1 - (1 - p_{z_i}^F)^{\frac{\Delta z_i}{L}} \end{aligned} \quad (2)$$

Mit den korrigierten Werten $p_{z_i}^F$ für die zonenspezifischen Versagenswahrscheinlichkeiten wird Gleichung (1) unabhängig von der Anzahl n der Brennstabzonen.

In Abb. 4231-13 ist für unbestrahlte Hüllrohre die Versagenswahrscheinlichkeit als Funktion der Temperatur und der Dehnung ("engineering" strain) dargestellt. Eine ausreichende Berstdaten-Bibliothek für bestrahlte Hüllrohre ist z.Zt. noch nicht verfügbar.

6.2.2 Eingabe und Ergebnisse einer ersten statistisch ausgewerteten
KMVS - Analyse

Für eine erste statistische Simulation eines KMVS mit SSYST wurden folgende Werte der betrachteten statistischen Variablen zugrunde gelegt:

- radialer Leistungsformfaktor f_{rad} 1.35
- axialer Leistungsformfaktor f_{ax} 1.55
- Korrekturfaktor für den (in RELAP) berechneten *krit.*
Wärmestrom C_{CHF} 1
- Korrekturfaktor für die Nachzerfallsleistung C_{DH} 1.2
- Station. Spaltgasdruck P_G 62.5 BAR
- Korrekturfaktor für Wärmedurchgangszahl Spalt $C_{\alpha SP}$ 1.
- Hüllrohr - Wandstärke S 0.72 mm
- Restwassermenge unt. Plenum bei Blowdown-Ende h_{RW} 0
- Wärmeübergangskoeffizient Refill-Phase α_{FILL} 0 (adiabat)
- Wärmeübergangskoeffizient oberhalb Quenchfront α_{FLUT} 50 W/m²k

Nebenbedingungen für die LOCA-Analyse:

- 2F-Bruch kalter Strang
- 106 % Reaktorleistung
- 6 von 8 Druckspeichern in Betrieb,
2 Druckspeicher speisen in gebr. Loop;
2 von 4 Niederdruck-Pumpensystemen in Betrieb,
1 System speist in gebr. Loop.

Der Brennstab wurde in 20 aktive Zonen mit Längen $\Delta z_1 = 0.195$ m (Zonen 3.... 22) mit einem unteren und oberen Plenum (Zonen 2 bzw. 23) eingeteilt. In den Abb. 4231-14 bis 4231-17 sind einige Ergebnisse für den beschriebenen Fall dargestellt, die Abbildungen sind auf die höchstbelastete axiale Stabzone 13 (Stabmitte) bezogen. Die plastischen Hüllrohrdehnungen wurden nach einem Norton-Ansatz mit Koeffizienten nach Emmerich berechnet. Die maximale Dehnung beträgt ca. 74 % ($\epsilon = (r - r_0) / r_0$, r = aktueller Hüllrohr-Radius, r_0 = Hüllrohr-Radius zu Beginn der LOCA-Transiente). In Abb. 4231-16 ist die zum Temperatur- und Dehnverlauf ent-

sprechende integrale Versagenswahrscheinlichkeit dargestellt, d.h. Versagenswahrscheinlichkeit = $N_f(t)/N_0$; $N_f(t)$ = Anzahl der zur Zeit t geborstenen Stäbe des betrachteten Typs unter den betrachteten Bedingungen, N_0 = zu Beginn der LOCA-Transienten vorhandene Anzahl Stäbe des betrachteten Typs. Abb. 4231-17 stellt die Wahrscheinlichkeit dar, mit denen Dehnungen in Intervall $/0,1/$ erreicht bzw. überschritten werden.

Literatur

- /1/ Schützle, R.; Gulden, W.:
Rechnungen mit SSYST zum TREAT-FRF2-Experiment.
(1977) unveröffentlicht
- /2/ Lorenz, R.A.; Parker, A.W.:
Final Report on the Second Fuel Rod Failure Transient Test of
a Zircaloy-Clad Fuel Rod Cluster in TREAT.
ORNL-4710, January 1972
- /3/ Charyulu, M.K.; Siefken, L.J.:
Developmental Verifikation of FRAP-T4.
TFBP-TR-216, Sept. 1977
- /4/ Mac Donald, P.E. et al.:
MATPRO-Version 9. A Handbook of Materials Properties for Use
in the Analysis of Light Water Reactor Fuel Rod Behaviour
TREE-NUREG-1005, December 1976
- /5/ Dearian, J.A. et al.:
FRAP-S. A Computer Code for the Steady-State-Analysis
of Oxide Fuel Rods.
INEL, Interim-Report I-309, January 13. 1977
- /6/ Gulden, W.:
Anschluß des Rechenprogramms FRAP-S an SSYST.
(1977) unveröffentlicht
- /7/ Schindler, M.:
ZIRKOX - ein SSYST-Modul zur Berechnung der Zirkon-Wasser-
Reaktion nach Baker-Just
(1975) unveröffentlicht
- /8/ Schützle, R.:
Rechnungen mit SSYST zum TREAT-Experiment.
(1977) unveröffentlicht

- /9/ Türk, W.; Schmidt, F.A.R.:
Untersuchungen zum Verhalten von Reaktor­brennstäben unter Ab­
schmelzbedingungen und Vergleich mit Einzelstabexperimenten.
1. Techn. Fachbericht zum Forschungsvorhaben BMFT RS 205
(Veröffentlichung in Vorbereitung)
- /10/ Sengpiel, W.:
Beitrag zum PNS Halbjahresbericht 1/77
KFK 2500
- /11/ Mc Kay, M.; Conover, W.; Whiteman, D.:
Report on the Application of Statistical Techniques to the
Analysis of Computer Codes
LA-NUREG-6526-MS (1976)
- /12/ Kerrigan, J.D.:
FRAIL 3: A Fuel Rod Failure Subcode
TFBP-TR-189, April 1977
- /13/ Raff, S.; Marek, U.
Entwicklung eines Zry-Deformationsmodells (DEM0D)
(1978) unveröffentlicht

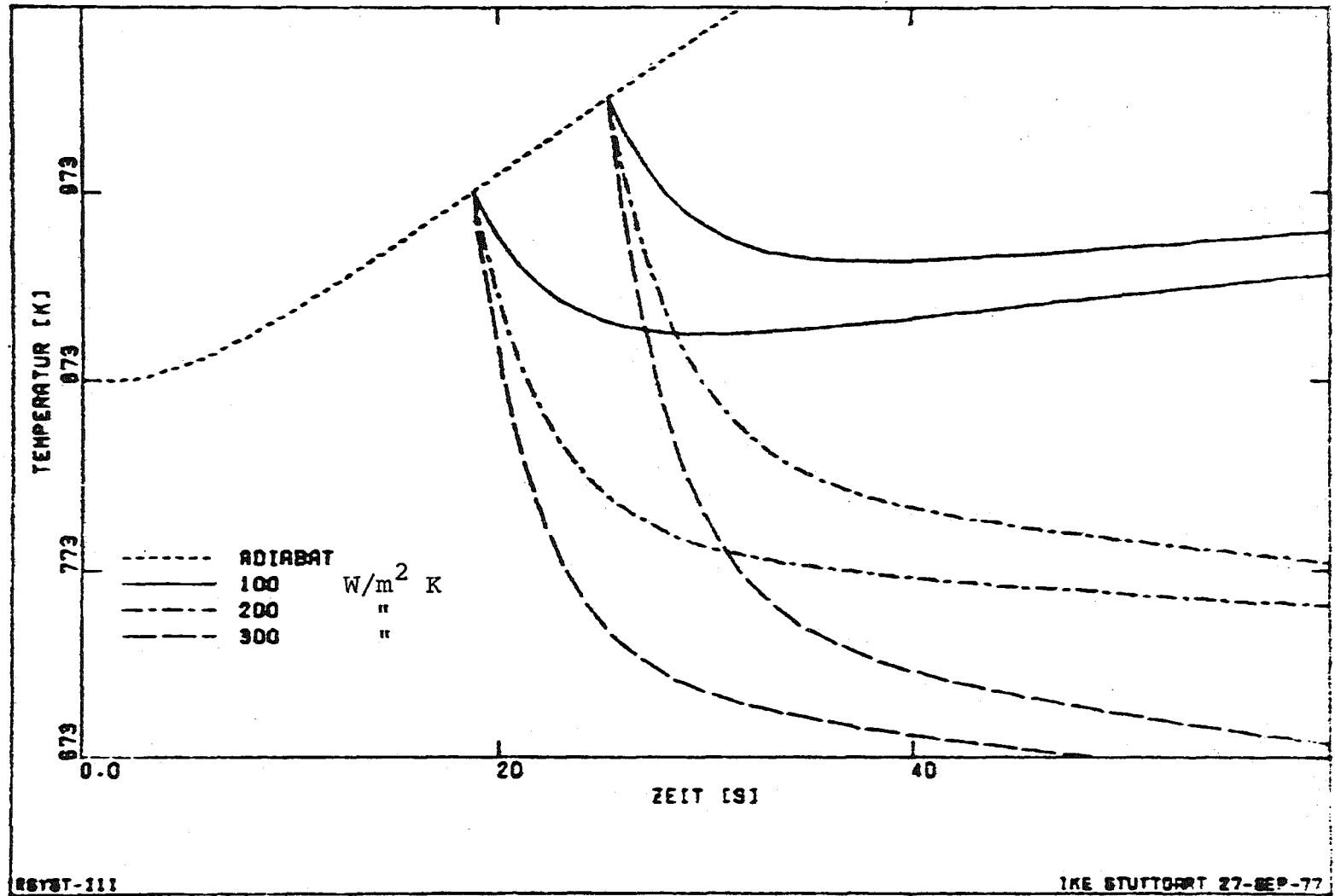


Abb. 4231-1: Der zeitliche Verlauf der Hüllrohrtemperatur bei verschiedenen kühlmittelseitigen Wärmeübergangszahlen

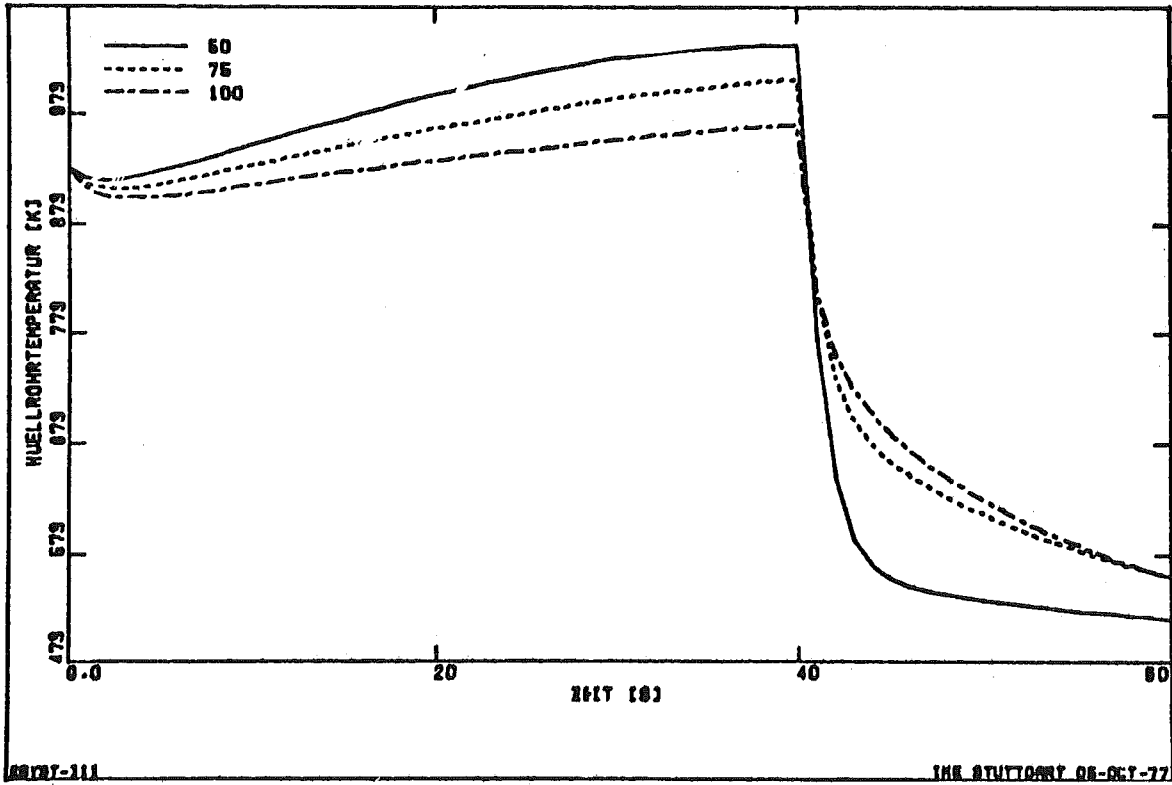


Abb. 4231-2: Der zeitliche Verlauf der Hüllrohrtemperatur beim Flutvorgang unter Variation der Wärmeübergangszahlen ($\alpha = 50, 75, 100 \text{ W/m}^2 \text{ K}$)

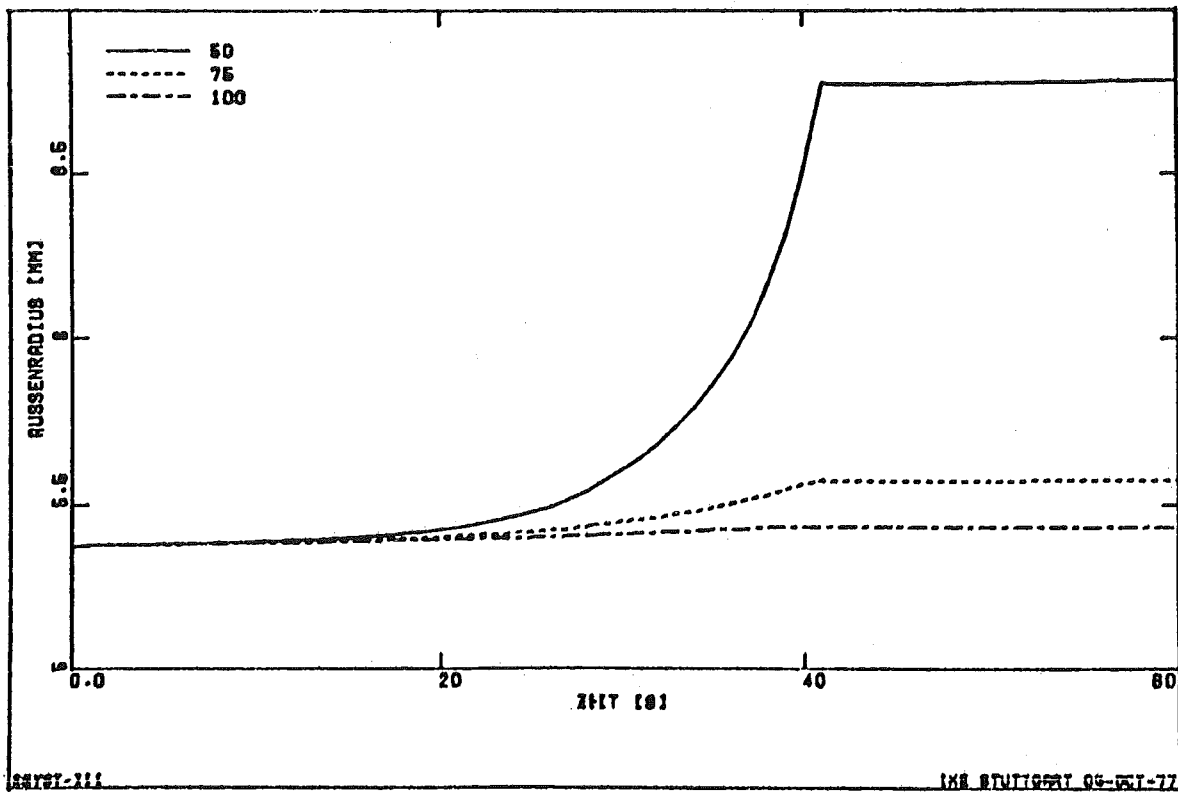


Abb. 4231-3: Zeitlicher Verlauf des Hüllrohrradius bei verschiedenen Wärmeübergangszahlen ($\alpha = 50, 75, 100 \text{ W/m}^2 \text{ K}$)

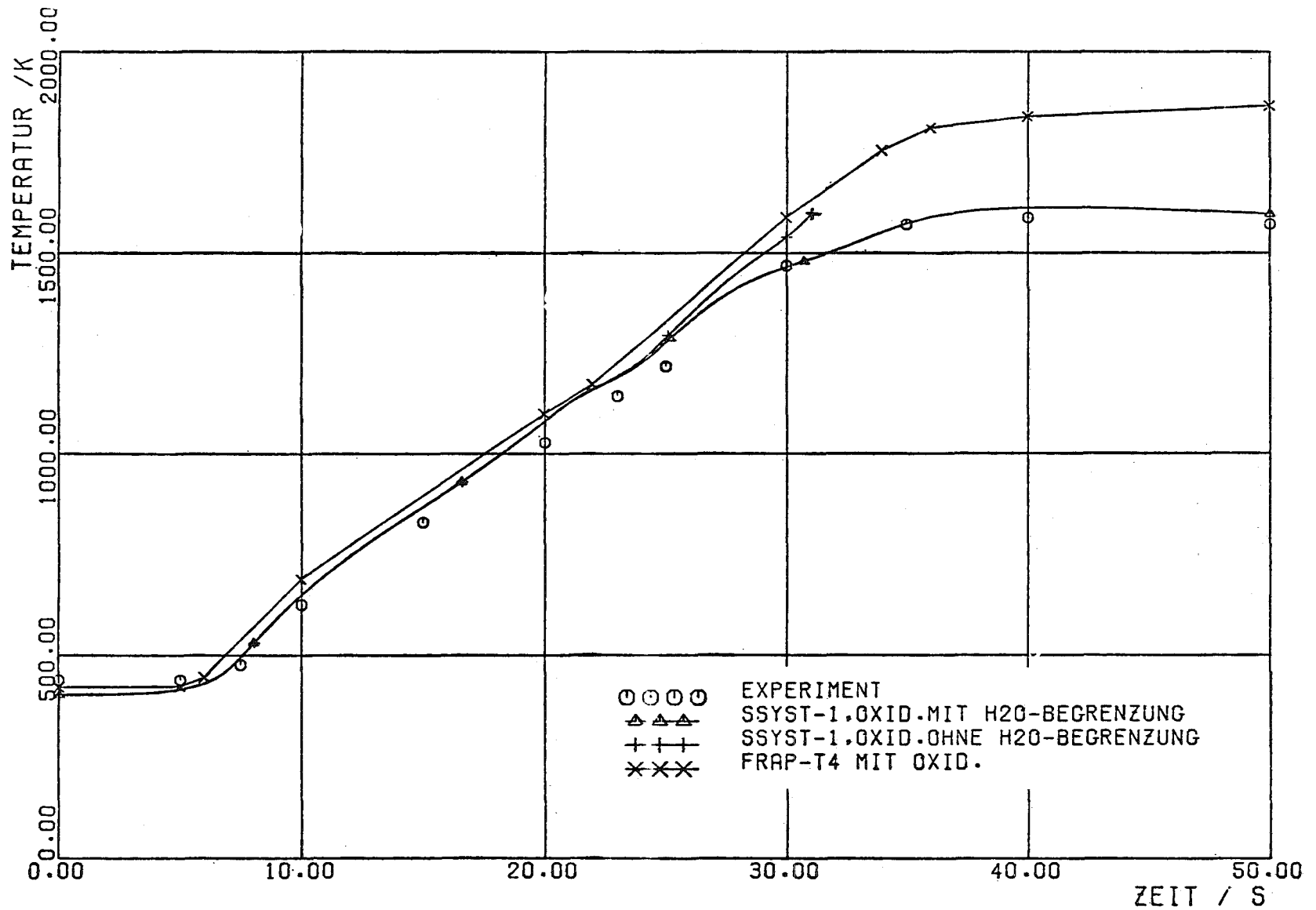


Abb. 4231-4: Vergleich zwischen TREAT, SSYST und FRAP-T bezüglich Hüllrohrtemperaturen und Einfluß der Hüllrohroxidation

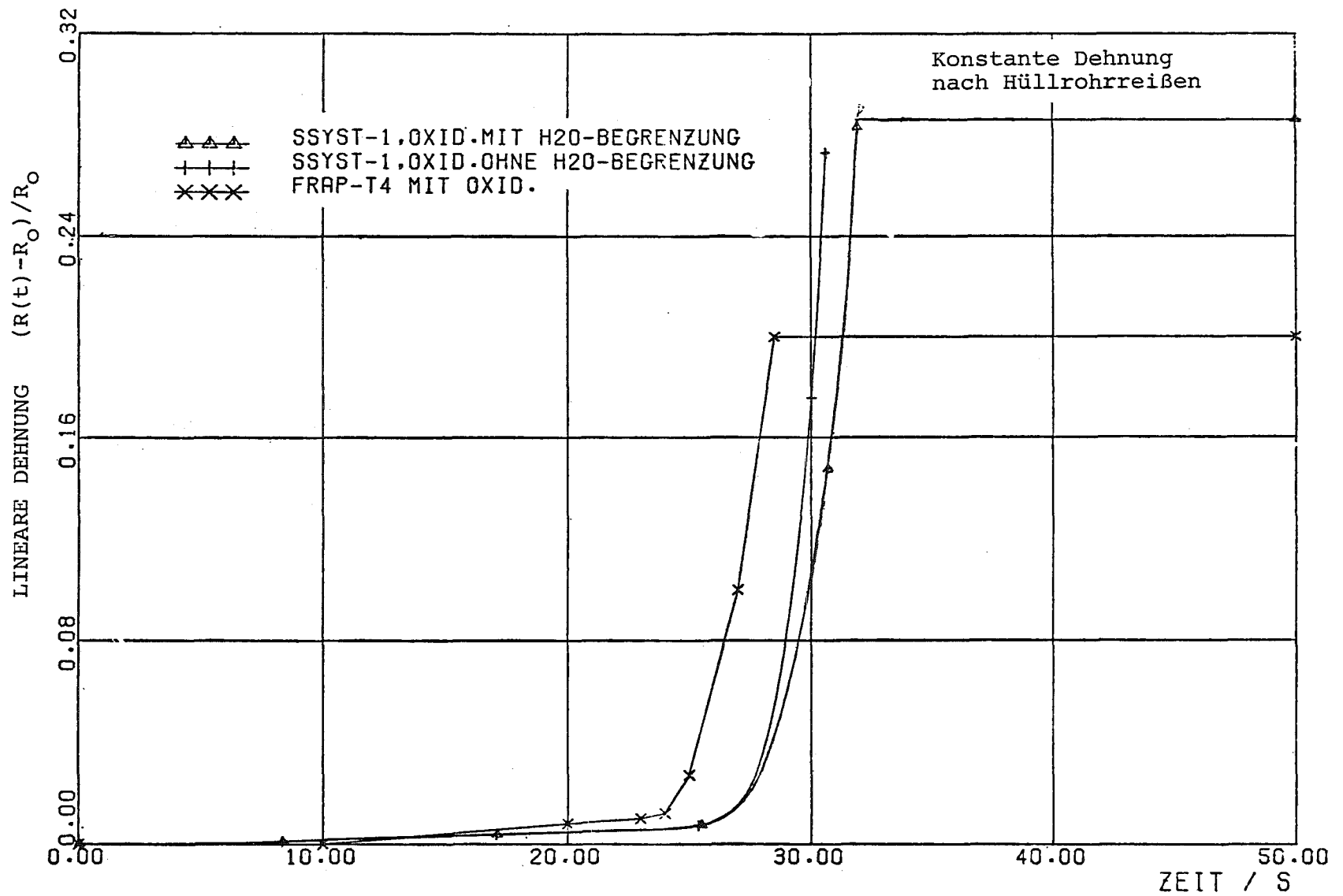


Abb. 4231-5: Vergleich zwischen TREAT, SSYST und FRAP-T bezüglich der Hüllrohrdehnung

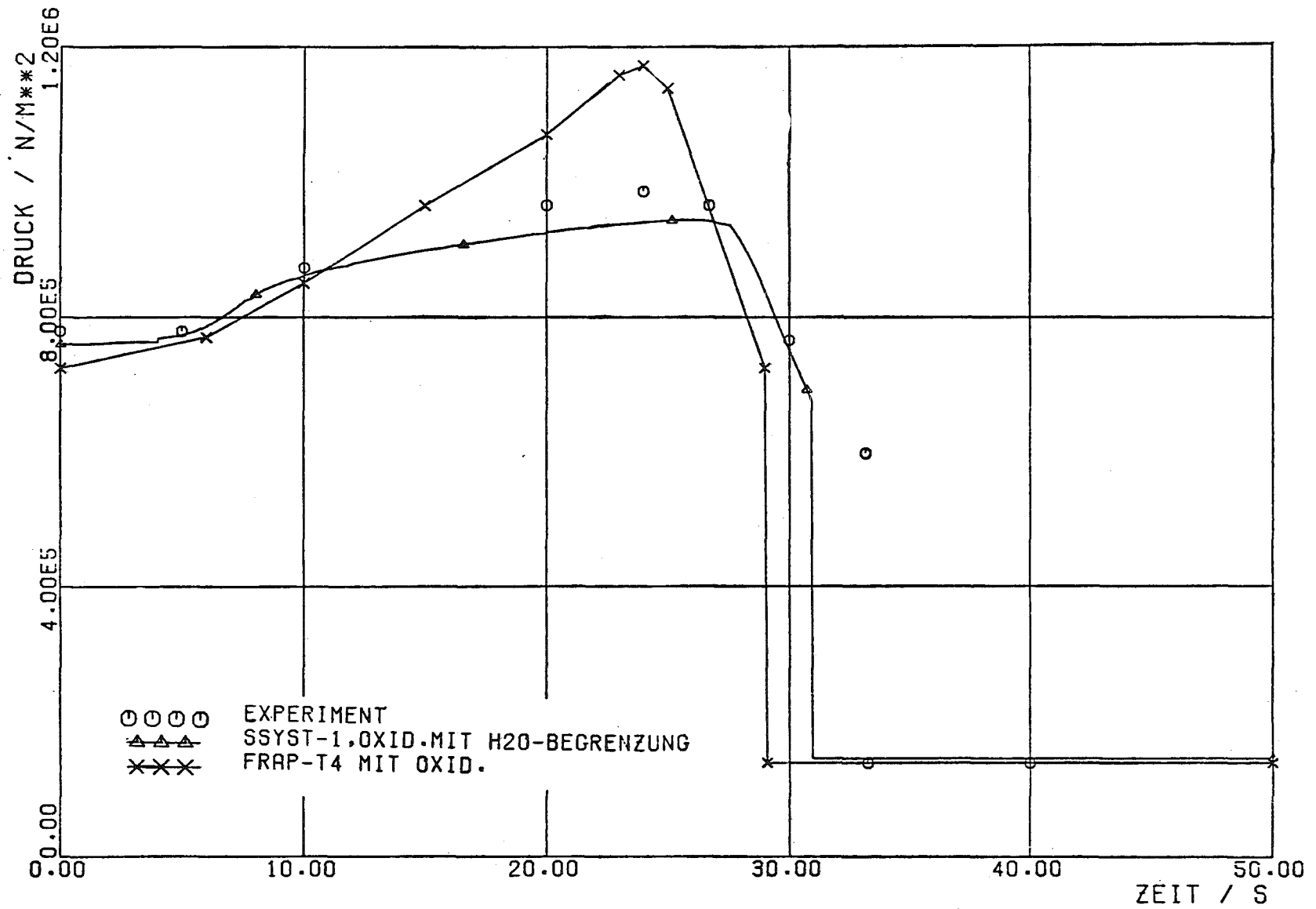


Abb. 4231-6: Vergleich zwischen TREAT, SSYST und FRAP-T bezüglich des Stabinnendrucks

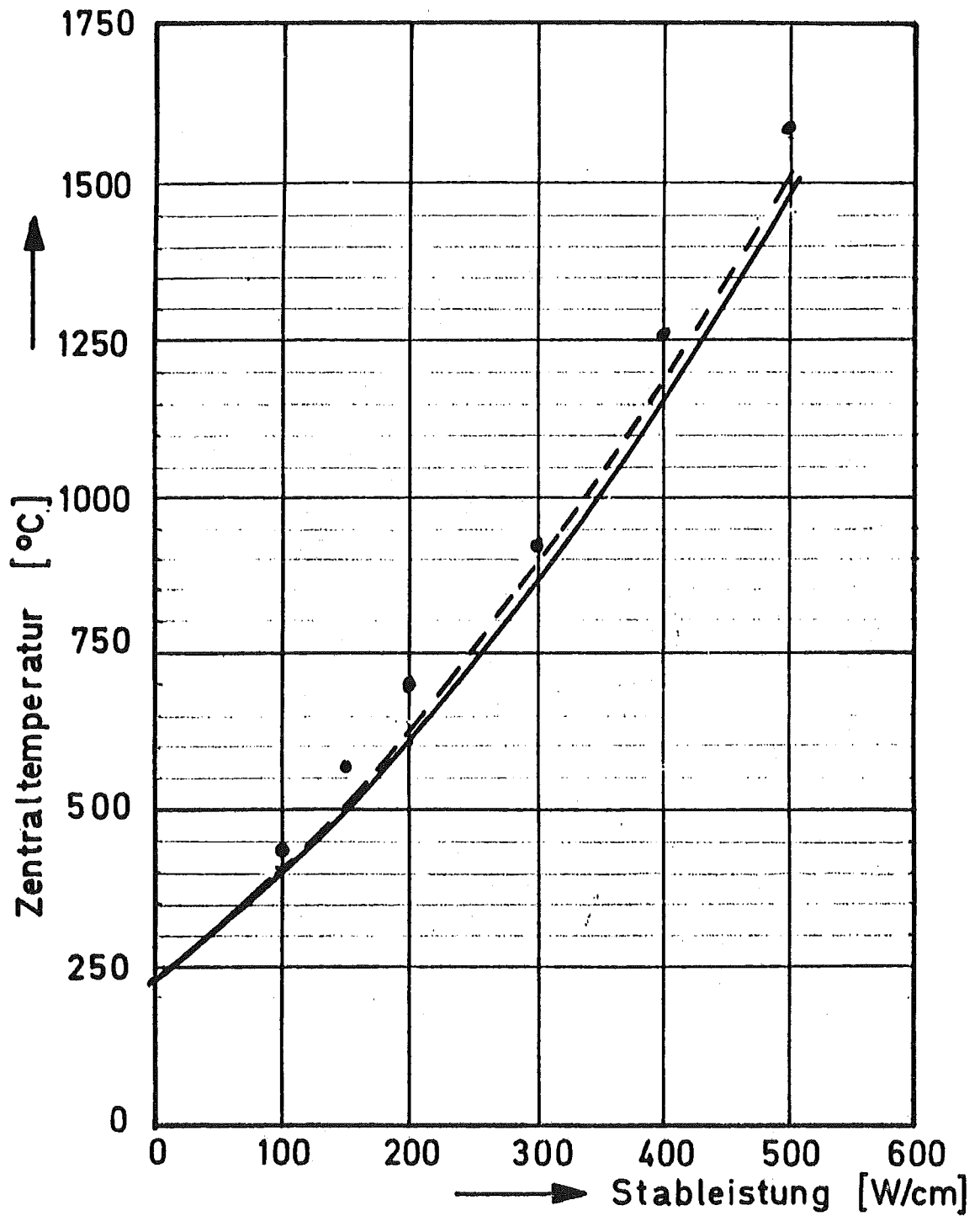


Abb. 4231-7: Zentraltemperatur als Funktion der linearen Stableistung, Teststab HBB 11 TF-2 (Halden), Abbrand 0

- Messung
- - - - - Rechnung (SATURN)
- Rechnung (FRAP-S)

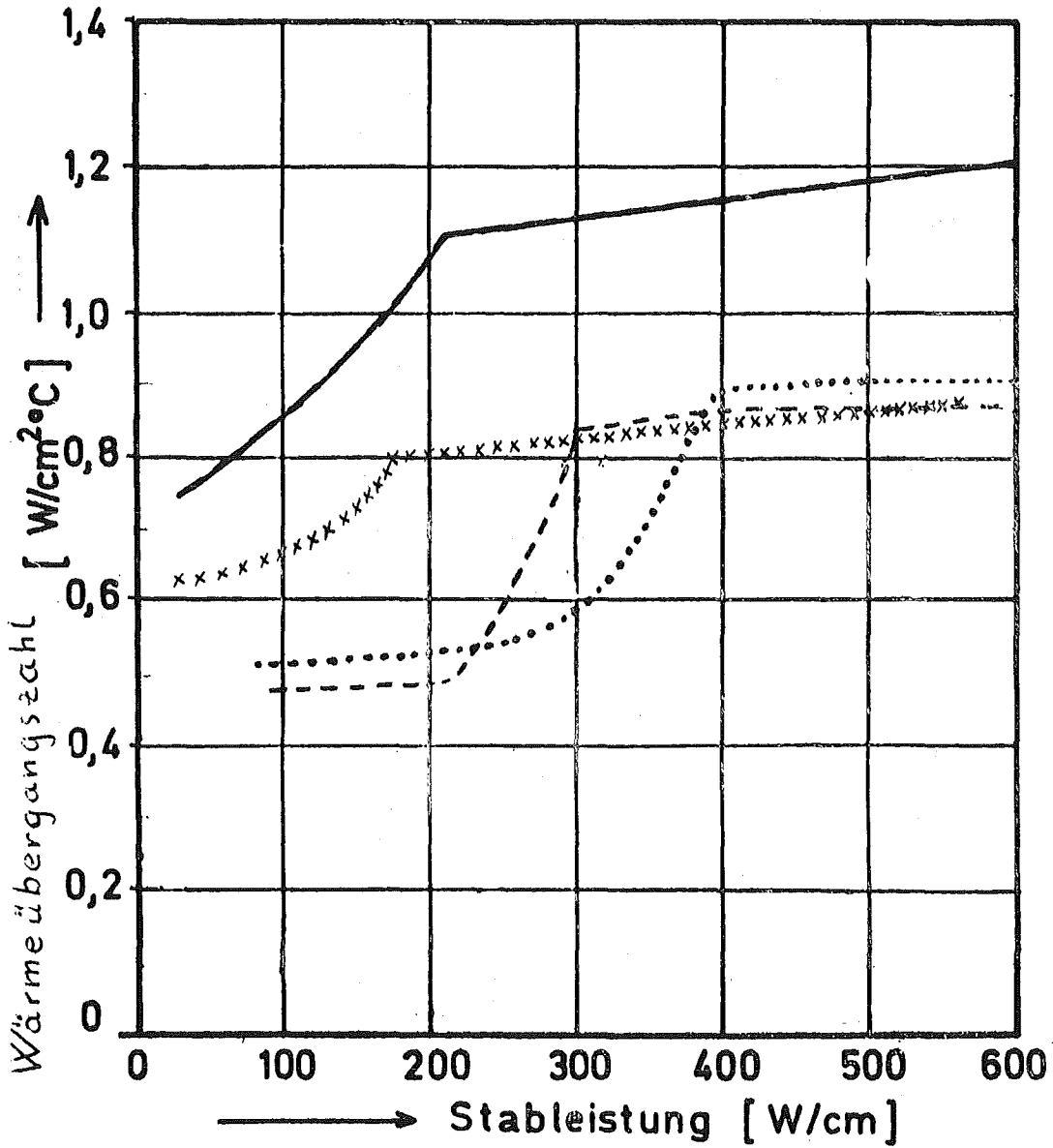


Abb. 4231-8: Wärmeübergangszahlen im Spalt als Funktion der linearen Stableistung

- SATURN (Abbrand 0.)
- xxxxxxxxx SATURN (Abbrand 4300 MWd/t_{UO₂})
- FRAP-S (Abbrand 0.)
- FRAP-S (Abbrand 4300 MWd/t_{UO₂})

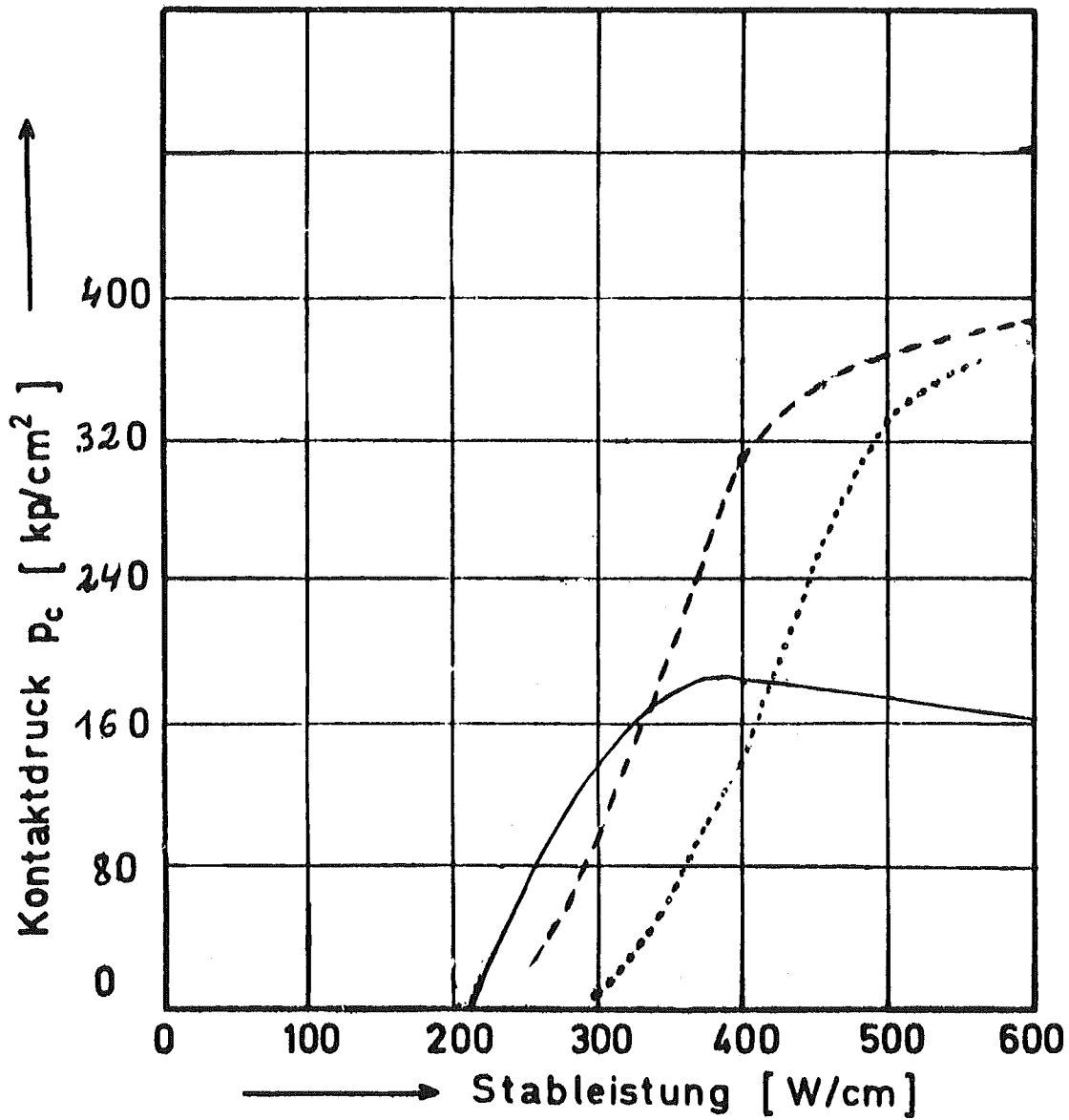


Abb. 4231-9: Kontakttdruck als Funktion der linearen Stableistung

- SATURN (Abbrand O.)
- FRAP-S (Abbrand O.)
- FRAP-S (Abbrand 4300 MWd/t_{UO₂})

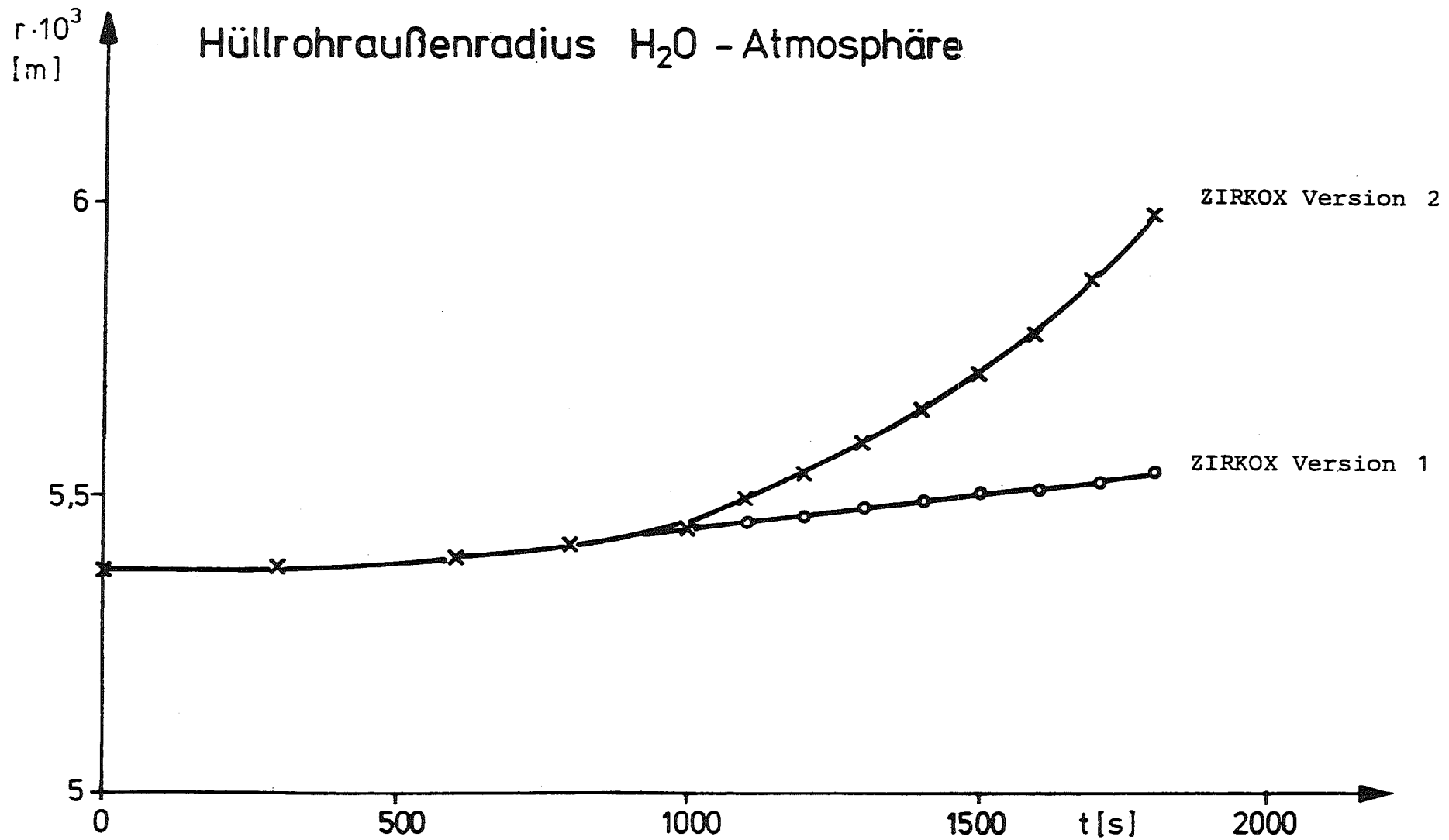


Abb. 4231-10: Einfluß der Oxidation auf den Hüllrohraußenradius

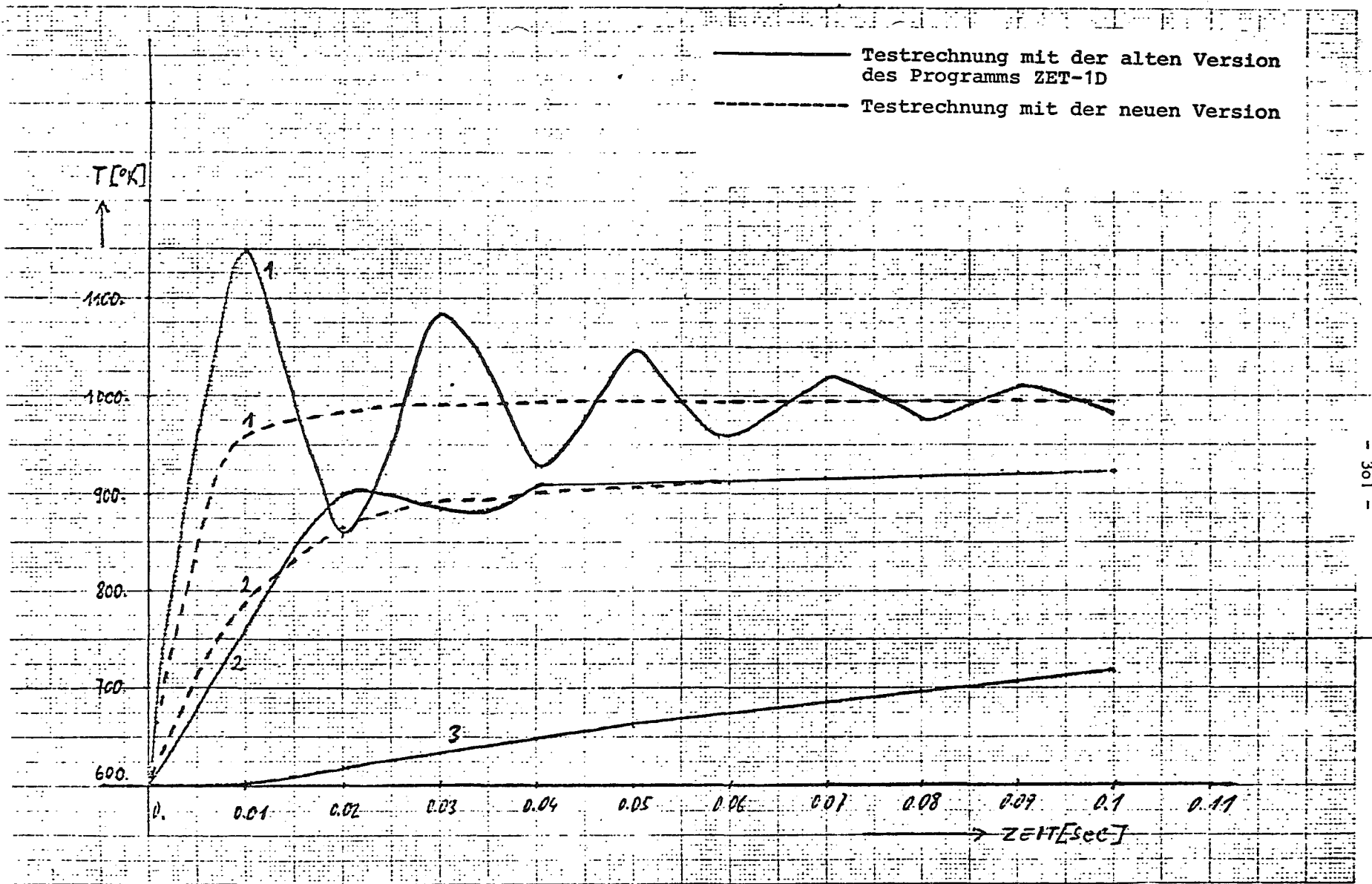
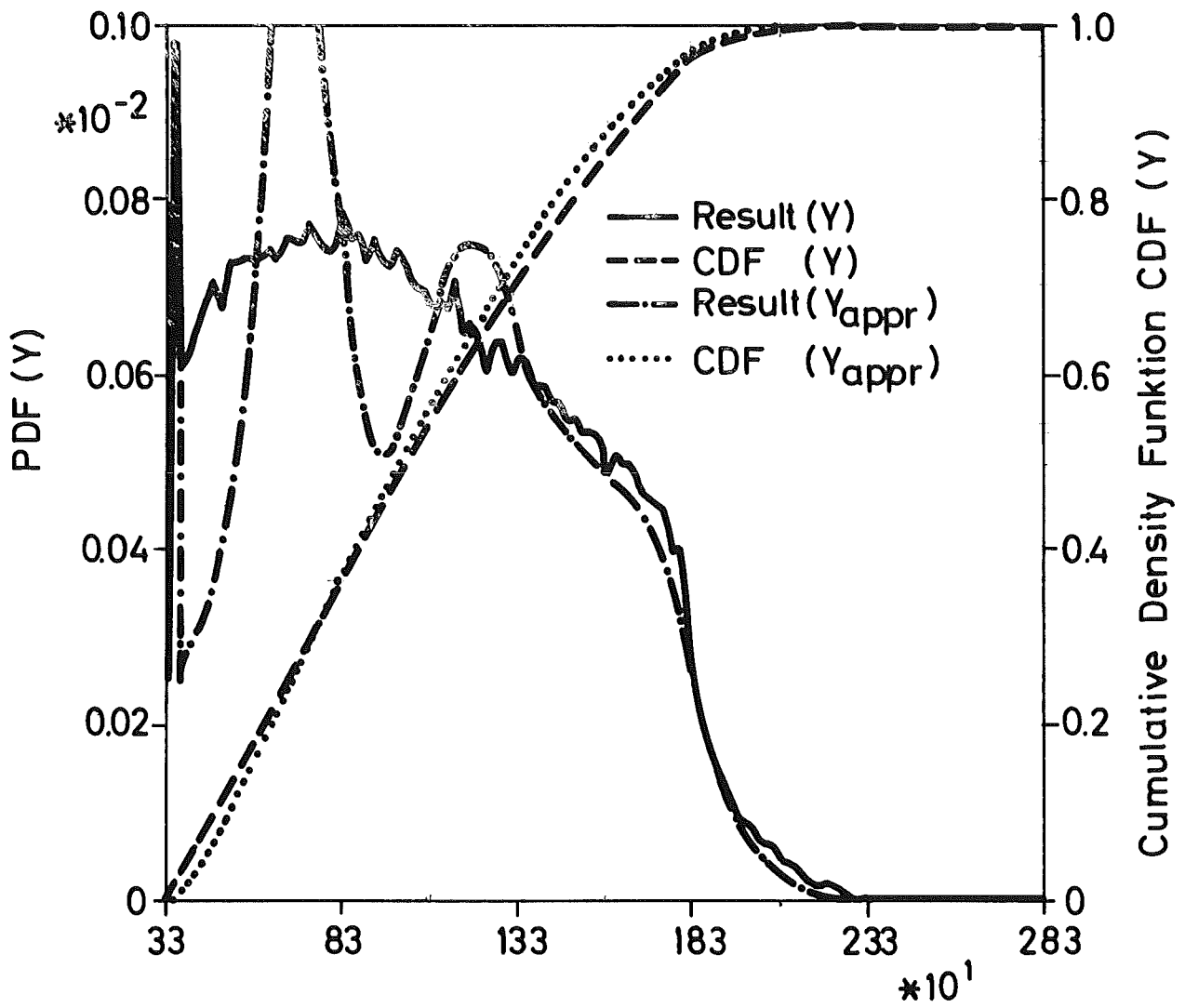


Abb. 4231-11: Testbeispiel 1, Zeitabhängigkeit der Temperaturen, äußerste Brennstoffzone (Kurve 3), Spalt (Kurve 2) und Hüllrohr (Kurve 1)



$$Y = Y (X_1; X_2; X_3; X_4; X_5; X_6; X_7)$$

Result Black Box 2

Abb. 4231-12: Dichteverteilungen und kumulative Häufigkeiten der Originalfunktion y und der Approximation y_{appr} .

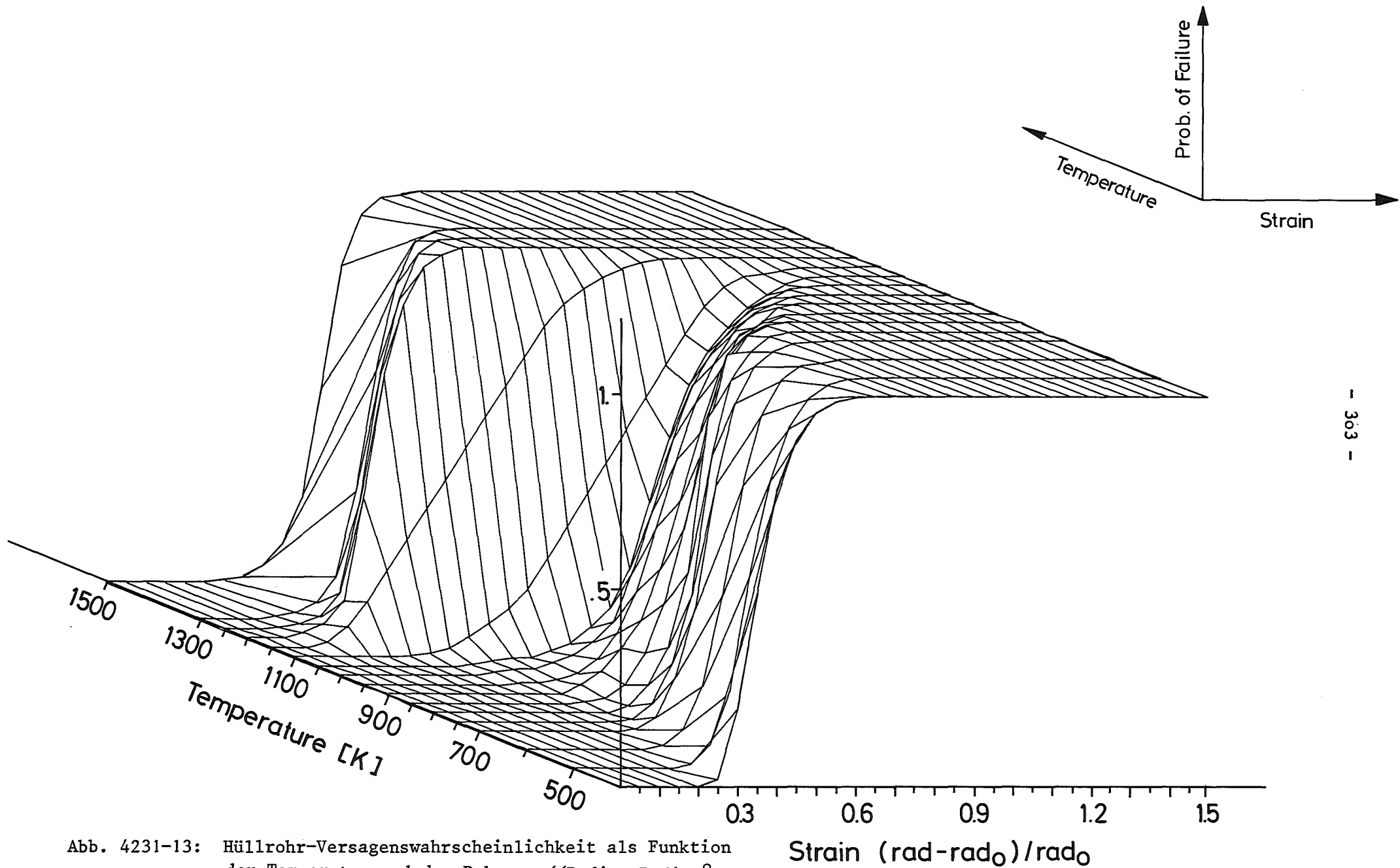


Abb. 4231-13: Hüllrohr-Versagenswahrscheinlichkeit als Funktion der Temperatur und der Dehnung $((\text{Radius} - \text{Radius}^0) / \text{Radius}^0$, "engineering strain") für unbestrahlte Zry-Rohre.

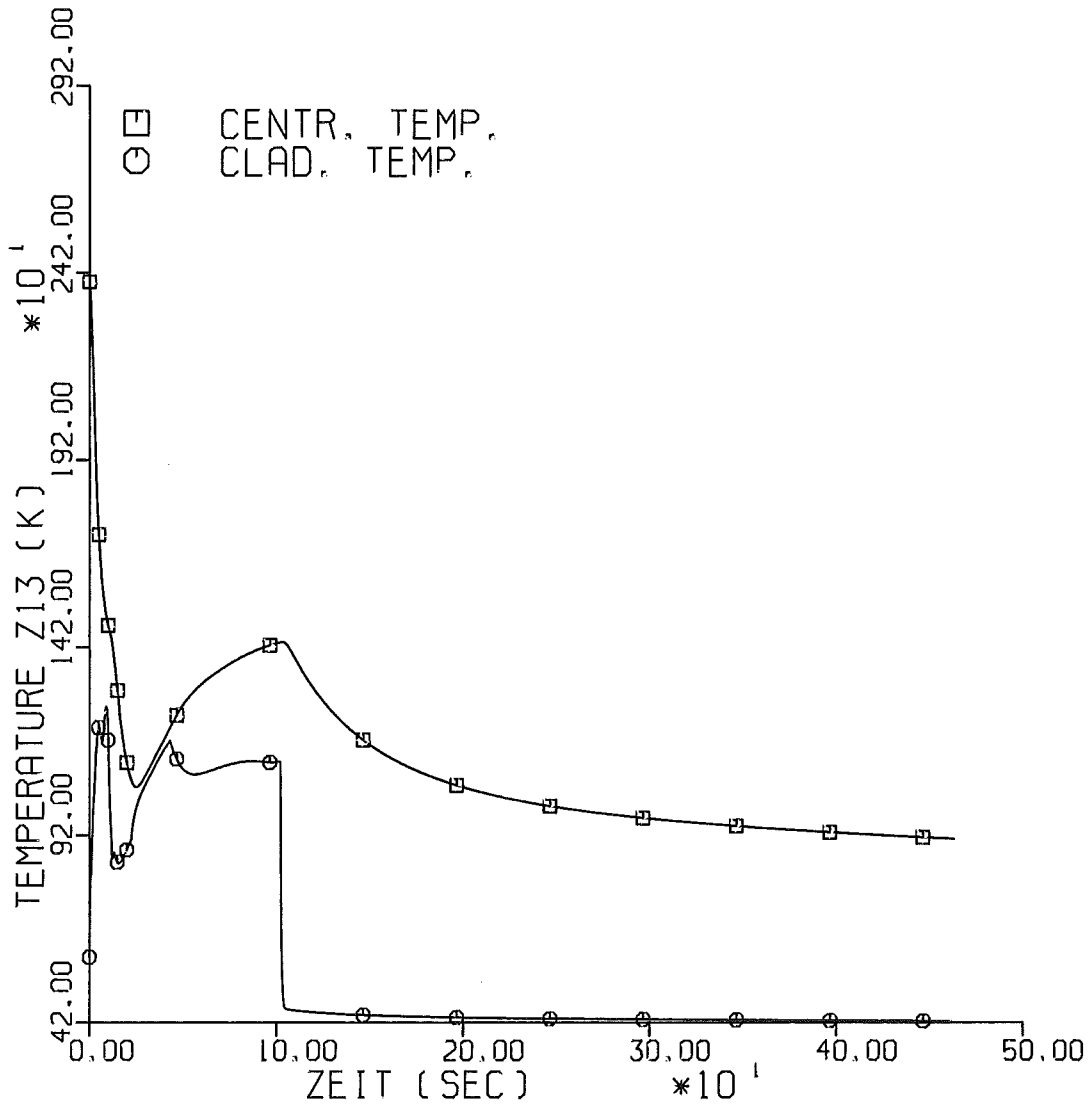


Abb. 4231-14: Hüllrohr-Temperaturen und Brennstoff-Zentraltemperaturen für die höchstbelastete Zone 13 in Brennstabmitte.
 $F_q = 2.1$

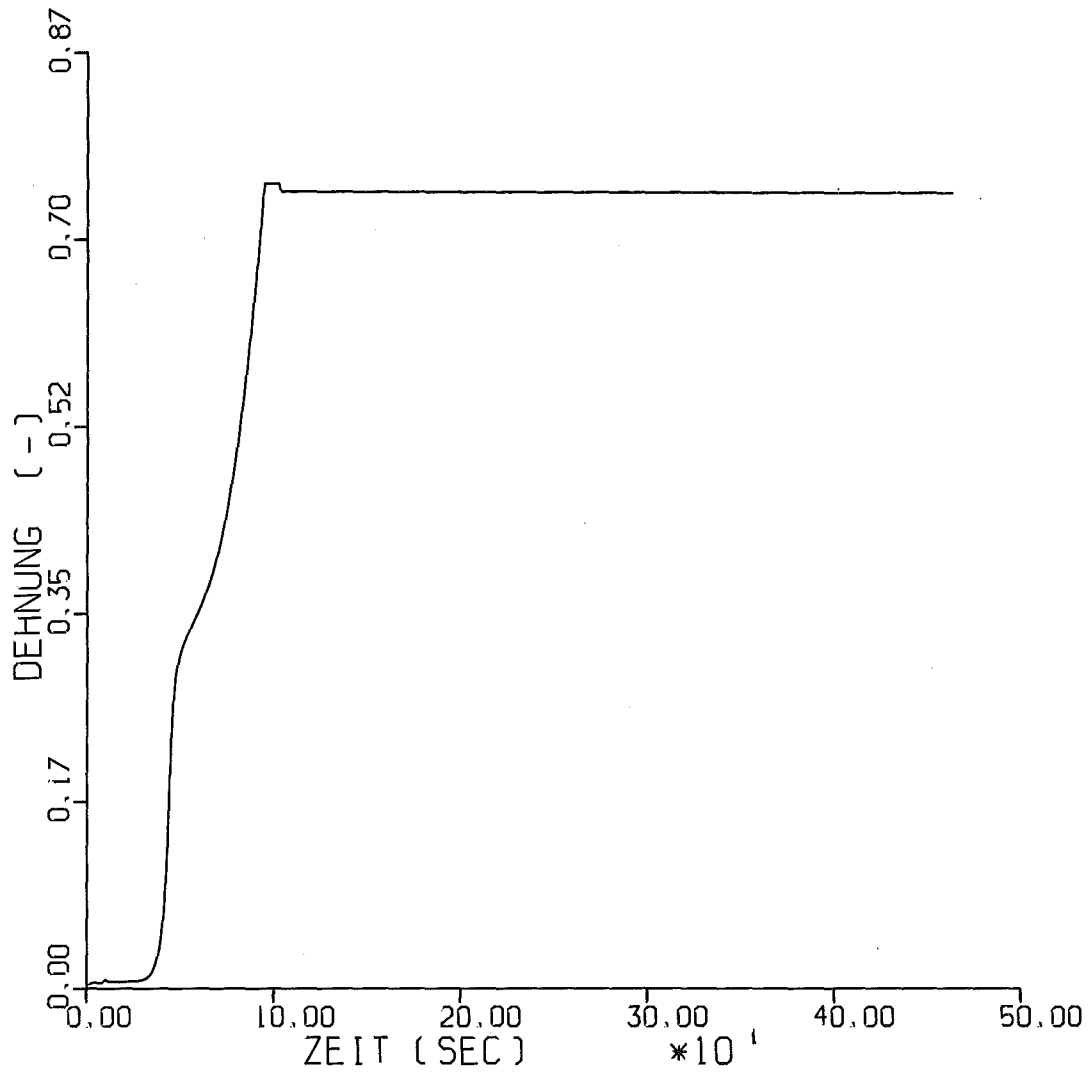


Abb. 4231-15: Hüllrohr-Dehnungen ($\epsilon = (\text{Radius} - \text{Radius}^0) / \text{Radius}^0$)
in Zone 13.

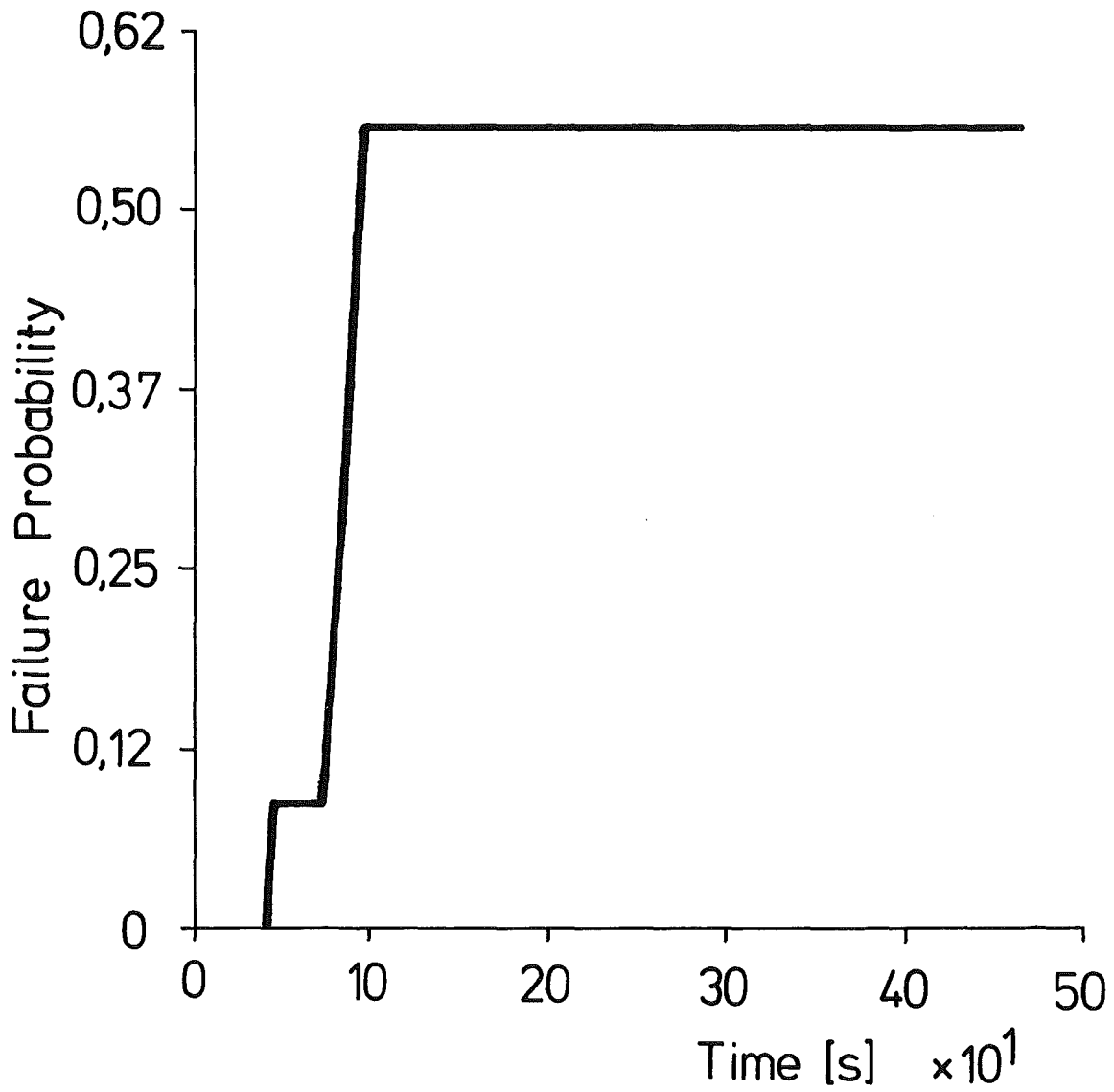


Abb. 4231-16: Zeitlicher Verlauf der Hüllrohr-Ver-sagenswahrscheinlichkeit in Zone 13

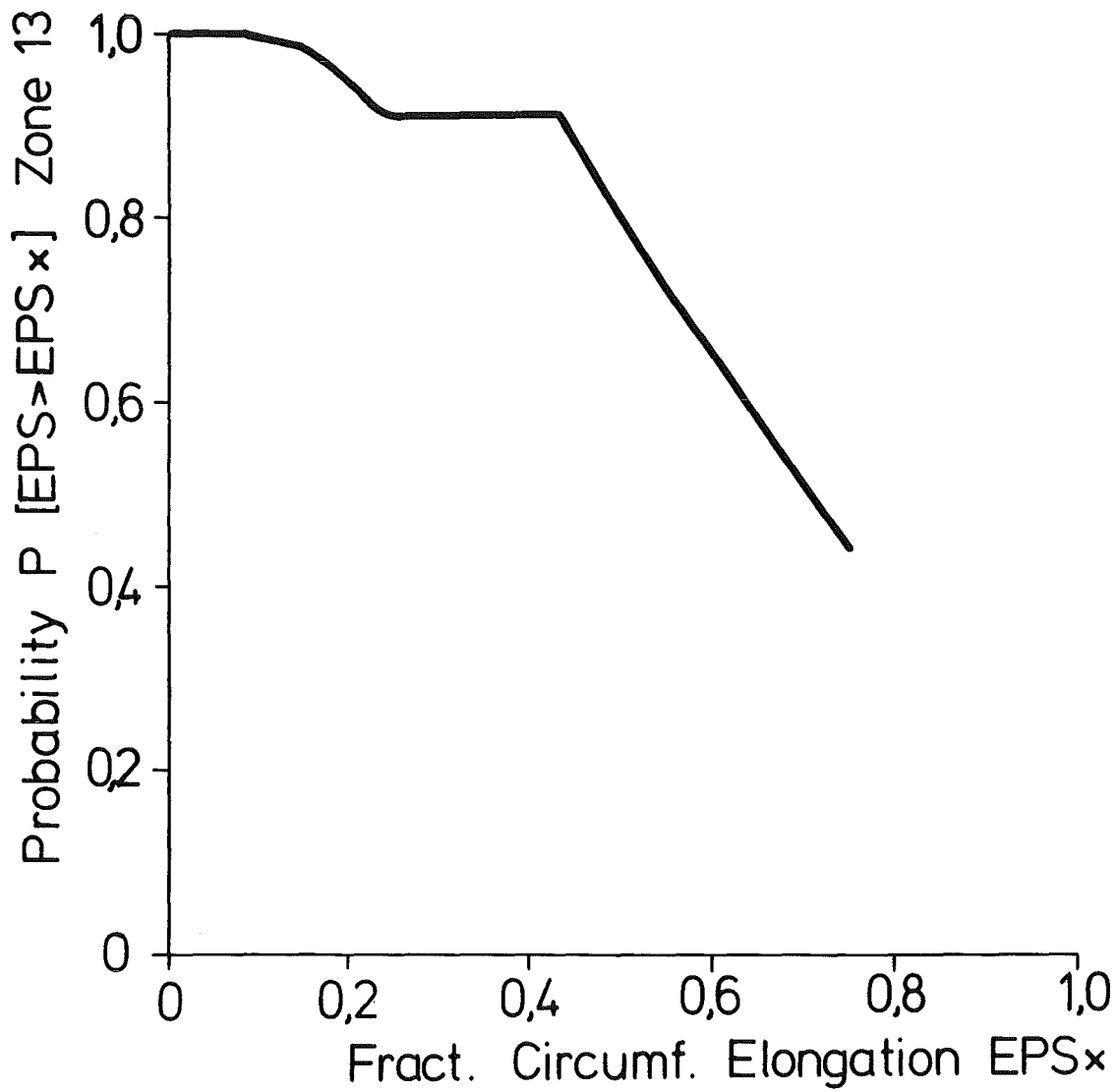


Abb. 4231-17:

Wahrscheinlichkeiten für das Erreichen bzw. Überschreiten von Dehnungen ϵ^x in Zone 13

4234 Messung der Nachzerfallswärme von ^{235}U im Zeitbereich
10 - 1000 sek

(K. Baumung, INR)

Durchgeführte Arbeiten:

Im Berichtszeitraum wurde die Meßapparatur, bestehend aus Rohrpostanlage mit Kühlkreislauf und angeschlossenen Kalorimeter, am FR2 aufgebaut. Dabei kam es zu Verzögerungen, weil vom Reaktorbetrieb die geplante Kühlwassermenge nicht mehr zur Verfügung gestellt werden konnte, da wegen Überlastung der ADB (Abt. Dekontaminationsbetriebe) die Abwassermenge reduziert werden mußte. Daher mußte ein Kühlaggregat beschafft und getestet werden. Dazu wurde der Kühlkreislauf ins INR transportiert und durch Drosseln der Druckabfall in der Rohrpost simuliert. Dabei zeigte sich, daß die Kühlleistung von 700 W ausreicht, um die Gastemperatur am Wärmetauscheraustritt auf 18°C zu halten, da das Gebläse offensichtlich nicht seine Nennleistung von 1.5 kW an das Gas abgibt. Bei einer gemessenen Temperaturdifferenz von etwa 10 K zwischen Brennstoffprobe und Kühlgas sind somit Probertemperaturen von etwa 30°C zu erwarten, die in einem günstigen Meßbereich des Kalorimeters liegen. Eine weitere Verzögerung ergab sich durch die Notwendigkeit, die Abgase über zum Versuchsaufbau gehörende Jodfilter in die allgemeine FR2-Abluftanlage einzuleiten. Zwar waren solche Filter schon von Anfang an geplant, doch wurde bei der Sicherheitsbesprechung der Wunsch geäußert, die Abgase vorsorglich über die Halogenabgasanlage abzugeben. Dies stieß aber beim Aufbau der Meßapparatur auf technische Schwierigkeiten, so daß vom Reaktorbetrieb eigene Jodfilter mit geprüftem Abscheidegrad verlangt wurden. Daher wurden die beiden Filter bei LAF II neu beschickt und ein Abscheidegrad von ^{131}J in Form von Methyljodat von besser als 99.9999 % bescheinigt.

Durch den geänderten Aufbau der Anlage wurde es nötig, die Rohrpoststeuerung zum Ausfahren der Probe zu modifizieren, um ein sicheres Starten zu erzielen.

Erzielte Ergebnisse:

Inzwischen ist die Meßapparatur am FR2 wieder vollständig aufgebaut.

Kalte Tests der Rohrpost und des Kalorimeters sind nahezu abgeschlossen, so daß demnächst mit den Bestrahlungsexperimenten begonnen werden kann.

4235 Untersuchungen zum Materialverhalten von Zircaloy bei Störfällen.

4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohren.

(M. Böcek, C. Petersen, S. Raff (IRE)⁺, H. Schneider, W. Schweiger, B. Seith und K. Dindorf, IMF/II).

1. Der Vergleich der Temperaturabhängigkeiten einiger Kenngrößen im Nortonschen Fließgesetz ermittelt unter verschiedenen Versuchsbedingungen

1.1 Der n-Wert aus:

$$\dot{\epsilon} = A(T)\sigma^n = A_0 e^{-Q\sigma/kT} \sigma^n \quad (1)$$

Die hier zum Vergleich stehenden n-Werte wurden (mittels stetiger Versuchsführung) aus zweierlei Versuchen ermittelt.

Zum einen aus Warmzugversuchen aus der Auftragung $\log \sigma_{0,2}$ vers. $\log \dot{\epsilon}_0$ ($\sigma_{0,2}$ ist die Spannung 0,2% plastische Zugverformung, $\dot{\epsilon}_0$ ist die auf die Probenausgangslänge bezogene Dehngeschwindigkeit), sog. $n_{\dot{\epsilon}_0}$ - Wert. Zum anderen erfolgte die n-Bestimmung aus Kriechversuchen (bei konstanter Last) aus der Auftragung $\log \sigma$ vers. $\log \dot{\epsilon}_{\min}$ (σ ist die wahre Spannung zum Zeitpunkt der minimalen (wahren) Kriechgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}$), sog. $n_{\dot{\epsilon}_{\min}}$ - Wert.

In der Abb. 4235-1 ist der Temperaturverlauf von $n_{\dot{\epsilon}_0}$ und $n_{\dot{\epsilon}_{\min}}$ für Vakuumversuche (Druck $p < 10$ nbar) wiedergegeben. Die Messpunkte stellen Mittelwerte dar. Die $n_{\dot{\epsilon}_{\min}}$ -Werte zwischen 600 und 800°C sind im Vergleich zu den $n_{\dot{\epsilon}_0}$ -Werten nur schwach temperaturabhängig. Im 2-Phasen-Bereich nehmen beide Werte ab und die $n_{\dot{\epsilon}_0}$ -Werte bleiben im β -Bereich bis zu 1100°C konstant.

⁺) Mitbeteiligt am Abschnitt 1. und 2.

Entsprechende $n_{\dot{\epsilon}_{\min}}$ -Werte in diesem Temperaturbereich fehlen.

Die Abb. 4235-2 zeigt die $n_{\dot{\epsilon}_{\min}}(T)$ und $n_{\dot{\epsilon}_0}(T)$ -Verläufe für Versuche in Luftatmosphäre (Warmzugversuche) bzw. im "schlechten" Vakuum ($p > 10\text{bar}$). Im Allgemeinen sind alle n -Werte kleiner als jene aus Vakuumversuchen; $n_{\dot{\epsilon}_0}(T)$ weist im 2-Phasen-Bereich zwei Äste auf. Zur Klärung dieses Sachverhalts sind weitere Kriechversuche im 2-Phasenbereich in oxidativer Atmosphäre notwendig.

1.2 Der Q_σ -Wert aus $A(T) = A_0 e^{-Q_\sigma/kT}$.

Die Q_σ -Wertbestimmung erfolgte zum einen aus Kriechversuchen aus der Auftragung $\log \dot{\epsilon}_{\min}$ vers. $1/kT$ für konstanten σ -Wert (k ist die Boltzmannkonstante)

$$Q_\sigma = - \left(\frac{\partial \ln \dot{\epsilon}}{\partial (1/kT)} \right)_\sigma$$

Zum anderen wurde Q_σ auch aus Warmzugversuchen ermittelt, nämlich aus der Auftragung $\log \dot{\epsilon}_{0,2}$ vers. $1/kT$ für konstanten $\sigma_{0,2}$ -Wert.

Bemerkung:

Des öfteren wird GL (1) auch in der Form verwendet

$$\sigma = B(T) \dot{\epsilon}^m = B_0 e^{Q_\dot{\epsilon}/kT} \dot{\epsilon}^m \quad (2)$$

Die Formen (1) und (2) sind identisch, wenn gilt

$$m = \frac{1}{n} \text{ (sogen. Geschwindigkeitsexponent)}$$

$$\log A_0 = - \frac{1}{m} \log B_0$$

$$Q_\sigma = n Q_\dot{\epsilon}$$

Für die Vakuumversuche ($p < 10\text{bar}$) ist ein Vergleich von $Q_\sigma(T)$ und $Q_{\sigma_{0,2}}(T)$ in der Abb. 4235-3 wiedergegeben. Zwischen 600 und 700°C ist sowohl $Q_{\sigma_{0,2}}$ als auch Q_σ temperaturunabhängig (Mittelwert $\approx 3.5 \times 10^2 \frac{\text{kJ}}{\text{mol}}$). In oberen α - und insbesondere im α/β -Bereich erfolgt eine (offenbar von der angelegten Spannung abhängige) Auffächerung der Q_σ - bzw. $Q_{\sigma_{0,2}}$ -Werte. Ein ähnlicher Sachverhalt folgt aus Messungen am ANL [1]. Die Q_σ -Werte sind zwischen 1000 und 1100°C temperaturunabhängig (Mittelwert $\approx 1.2 \times 10^2 \frac{\text{kJ}}{\text{mol}}$);

Ähnliches Verhalten zeigen die Q-Werte für Luftatmosphäre bzw. "schlechtes" Vakuum (Abb. 4235-4). Die entsprechenden Q-Werte im α -Bereich sind im Vergleich zu jenen aus Vakuumversuchen um den Faktor 0.8 kleiner.

Die obigen Untersuchungen dienen in erster Reihe der Erstellung einer Datenbasis für Modellrechnungen der inelastischen Verformung.

2. Die Analyse von Kriechkurven

Die Entwicklung von mechanischen "Zustandsgleichungen" erfordert die Kenntnis über jene Prozesse, die als Folge der Verformung auftreten und diese wiederum beeinflussen (Verformungs-Verfestigung und Entfestigung). Zu diesem Zweck wurden isotherme Vakuum-Zug-Kriechversuche bei konstanter Last im Temperaturbereich 600-1100°C durchgeführt. Die Form der Kriechkurven (KK) gibt Auskunft z.B. über Verfestigungsvorgänge (Primär-Bereich der KK).

Folgende Feststellungen können aus einer vorläufigen Analyse von KK getroffen werden.

a) Im allgemeinen zeigen die KK (in der Darstellung $\log \dot{\epsilon}$ vers. ϵ) 2 Bereiche (s. dazu die schematische Darstellung in der Abb. 4235-5). Einen Primär-Bereich in dem die Kriechgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}$ im Laufe der Verformung entweder abnimmt (Abb. 4235-6a) (sogn. normales Primär-Kriechen) oder zunimmt (Abb. 4235-6b) (sogn. anomales Primär-Kriechen) bzw. sich nicht verändert (Abb. 4235-7b) (sogn. stationäres Fließen). In Ausnahmefällen sind auch 3-Bereichs-Kriechkurven mit (in dieser Darstellung) linearem Mittelstück registriert worden (Abb. 4235-9).

b) Mit wachsender Temperatur und Spannung nimmt die Tendenz zum anomalen Primär-Kriechen zu (Abb. 4235-6 bis 4235-8). Dieses Verhalten dominiert im α/β - und möglicherweise auch im β -Phasenbereich, woraus zu schließen ist, daß entfestigende Prozesse in diesen Bereichen dominieren.

c) Die Anwendung des Stabilitätskriteriums für den Zugversuch auf die vorliegenden KK, nämlich für $dn\dot{\epsilon}/d\epsilon \leq 1$ ist die Verformung stabil (einschnürungsfrei), führt zum Schluß, daß die Verformung stabil verläuft im Bereich des normalen Primär-Kriechens bzw. im stationären Fließbereich, für den Fall, daß der Primärbereich fehlt. (Abb. 4235-7b und Abb. 4235-8a).

d) Eine Analyse der Kurvenform ergab, daß unabhängig von Temperatur und Spannung 70-90 % der Gesamtdehnung im instabilen Verformungsbereich erfolgt. Dies trifft auch zu für 3-Bereichs-Kriechkurven mit "linearem" Bereich (z. B. Abb. 4235-9), der allgemein als Merkmal angesehen wird für die Gleichmaß-Kriechdehnung.

3. Untersuchungen zur Rissmorphologie von ZrO₂ - Schichten

Eine Methode wurde entwickelt, die gestattet, durch Zielpräparation die Rissentwicklung in ZrO₂ - Schichten von Zry/ZrO₂ Verbundproben im Laufe der Verformung zu verfolgen.

Dazu wurden Zry-4 Flachzugproben in Wasserdampf voroxidiert und darauf folgend im Zug mit konstanter Dehngeschwindigkeit $\dot{\epsilon}_0$ verformt, Die Dehnversuche über die hier berichtet wird erfolgten durchwegs in Luftatmosphäre.

Die Abb. 4235-10 zeigt Oberflächenaufnahmen von Verbundproben, die mit gleicher Dehngeschwindigkeit bei verschiedenen Temperaturen plastisch gedehnt wurden. Die Haftfestigkeit der ZrO₂-Schicht nimmt mit wachsender Temperatur zu. Ein Abplatzen dieser Schichten erfolgt bei 400°C bereits bei Dehnungen $\epsilon < 2\%$, während bei 800°C die ZrO₂-Schicht noch bei Dehnungen $\epsilon < 40\%$ am Zry-4 haften.

Die Abb. 4235-11 und Abb. 4235-12 zeigen die Rissentwicklung im ZrO₂ im Laufe der Dehnung. Letztere zeigt den Ablauf an einer nichtvoroxidierten Probe (Oxidation erfolgt nur während der Verformung).

Die Beschreibung der Rissmorphologie erfolgt zunächst durch die Rissdichte, Rissbreite (d.h. Rissöffnung an der breitesten Stelle) und

die Risslänge. Diese Größen werden an verschiedenen Proben-Bereichen gemessen.

Als vorläufige Ergebnisse, die zunächst die Verwendbarkeit der Methode demonstrieren sollen, zeigt die Abb. 4235-13 die Abhängigkeit der Rissdichte N von der Dehnung, die Abb. 4235-14 die entsprechende Dehnungsabhängigkeit der Rissbreite λ .

Um die Versuchsbedingungen zu vereinfachen, erfolgt in der nächsten Versuchsphase die Verformung der ZrY/ZrO_2 - Verbundproben im Vakuum. Aus diesen Versuchen erhoffen wir brauchbare Ansätze für eine Modellentwicklung zur plastischen Verformung dieses Verbundwerkstoffes.

4. Geplante Weiterarbeit

- Abschluß von Iso-Zugkriechversuchen
- Beginn mit temperaturtransienten Zugkriechversuchen
- Iso-Berstversuche mit kontinuierlicher Verformungsaufzeichnung.
- Fortführung der Untersuchungen am ZrY/ZrO_2 -Verbundwerkstoff.

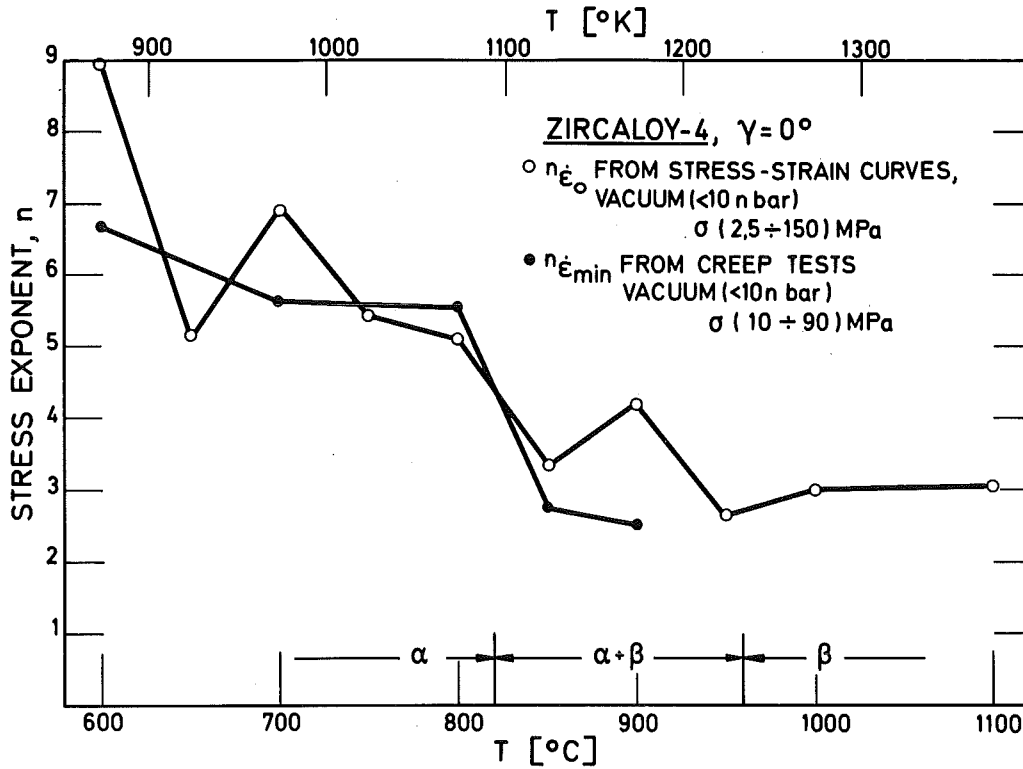


Abb. 4235-1: Temperaturabhängigkeit des Spannungsexponenten aus unterschiedlichen Versuchsführungen ermittelt (Vakuum < 10nbar).

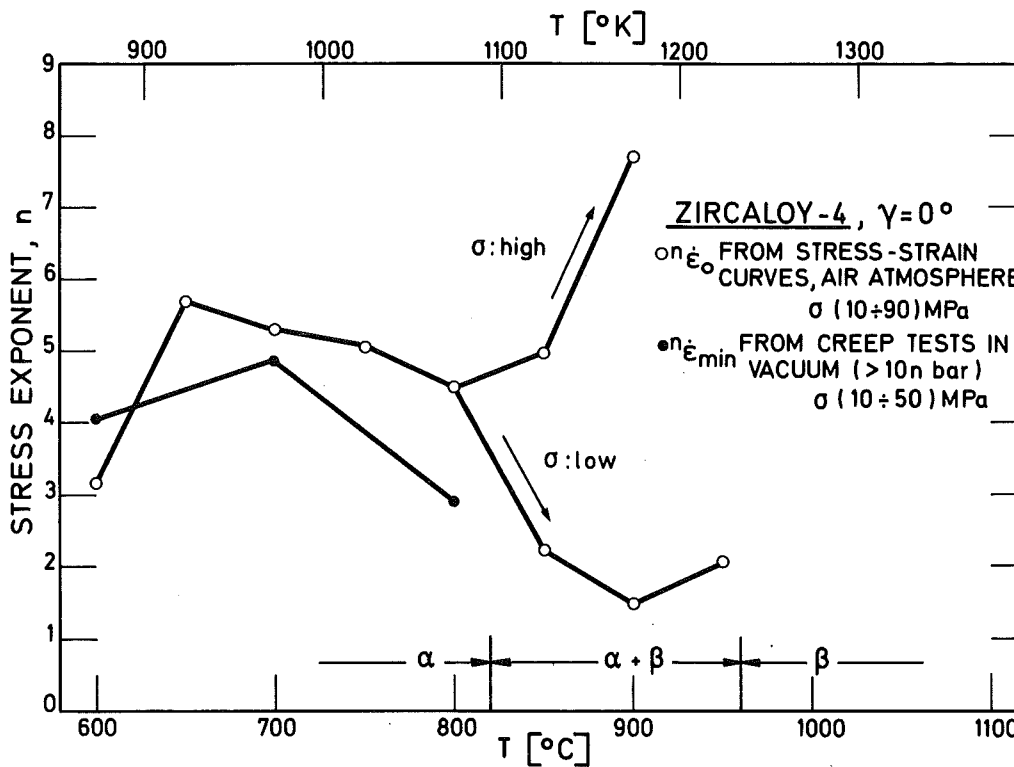


Abb. 4235-2: Temperaturabhängigkeit des Spannungsexponenten aus unterschiedlichen Versuchsführungen ermittelt (Luft, Vakuum > 10nbar).

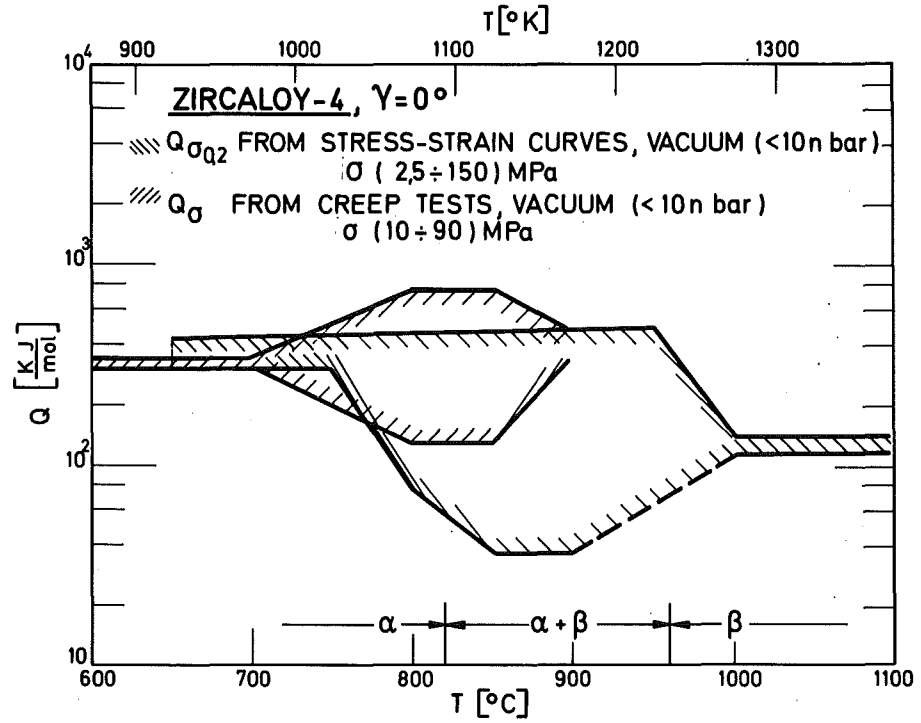


Abb. 4235-3: Temperaturabhängigkeit des Q -Wertes aus unterschiedlichen Versuchsführungen ermittelt (Vakuum $< 10 \text{ nbar}$).

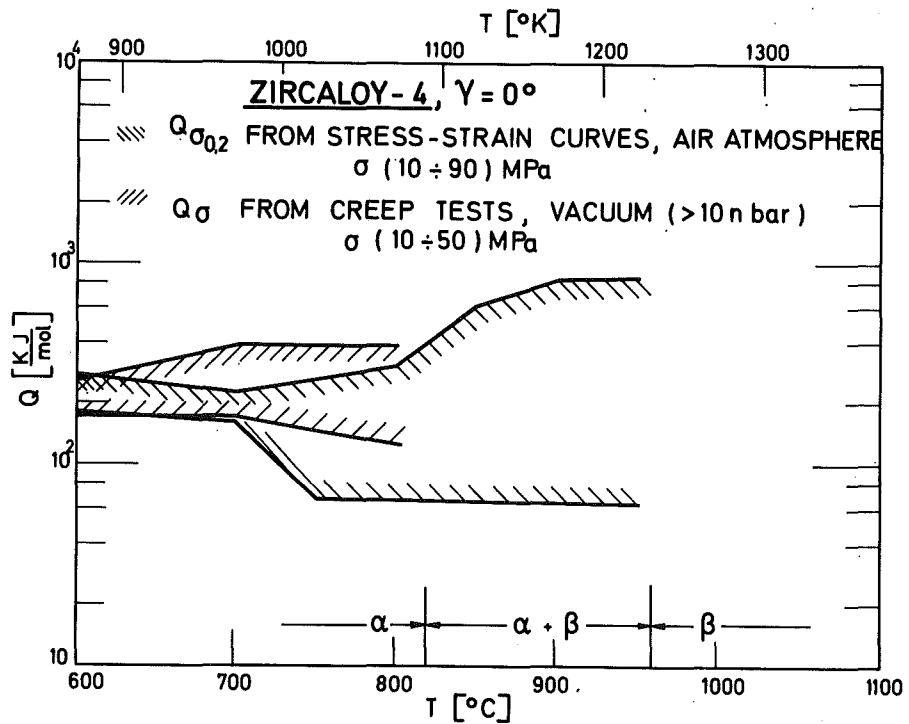


Abb. 4235-4: Temperaturabhängigkeit des Q -Wertes aus unterschiedlichen Versuchsführungen ermittelt (Luft, Vakuum $> 10 \text{ nbar}$).

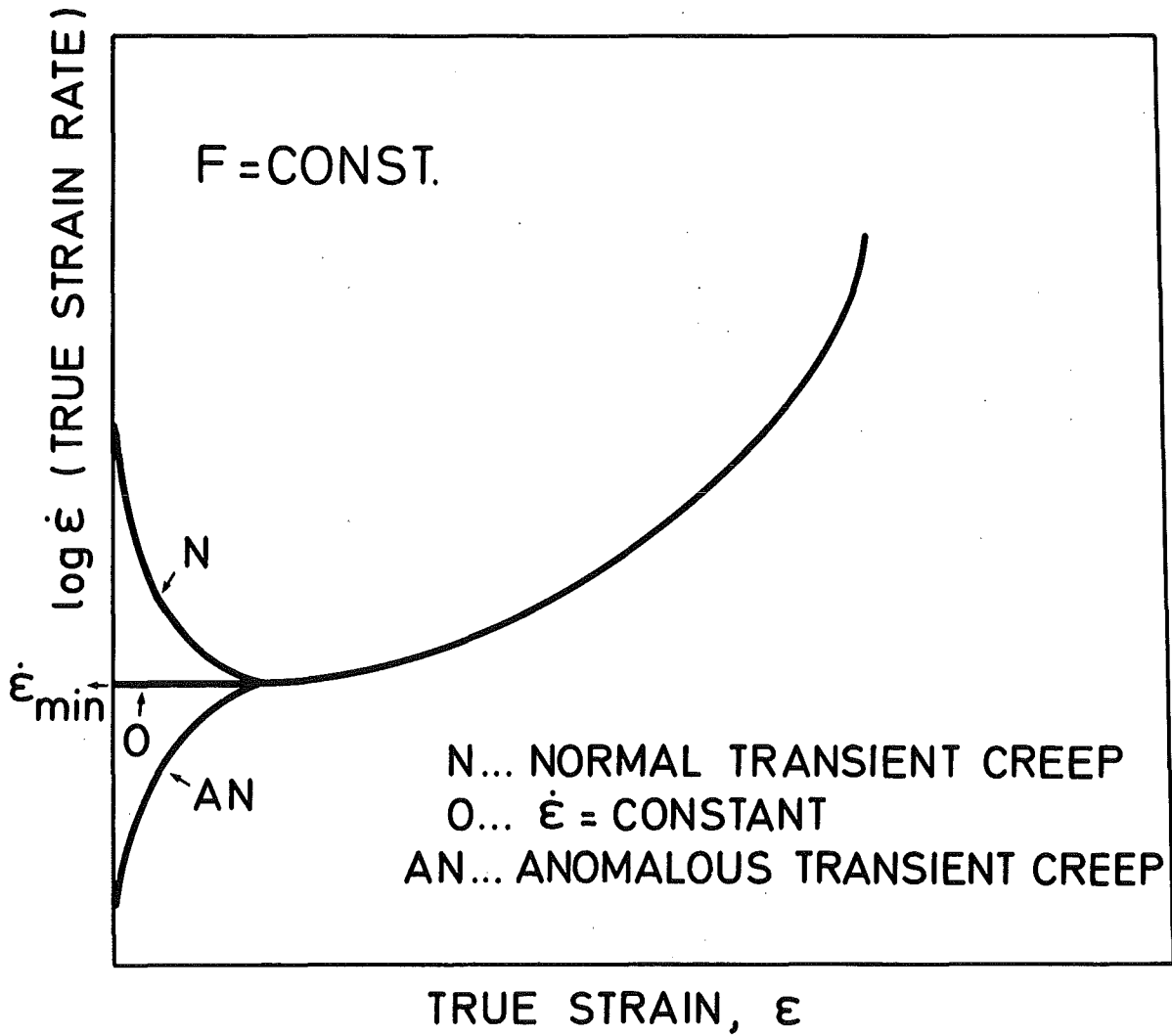


Abb. 4235-5: Schematische Darstellung der Kriechkurve.

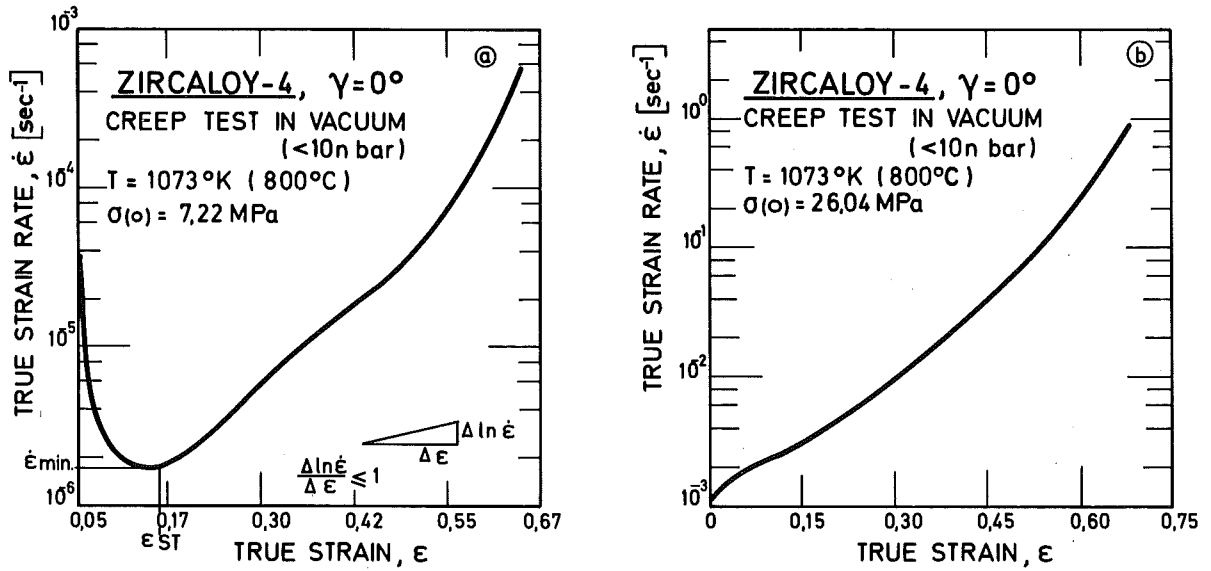


Abb. 4235-6: Typische Kriechkurven im α -Phasenbereich bei unterschiedlichen Spannungen.

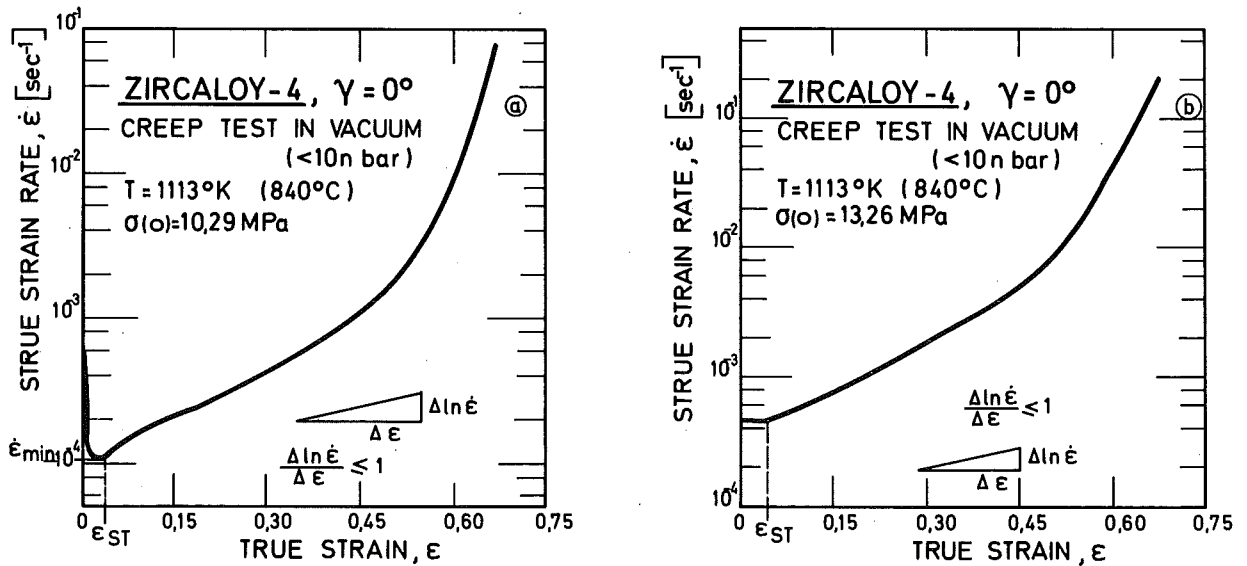


Abb. 4235-7: Typische Kriechkurven im α/β -Phasenbereich bei unterschiedlichen Spannungen.

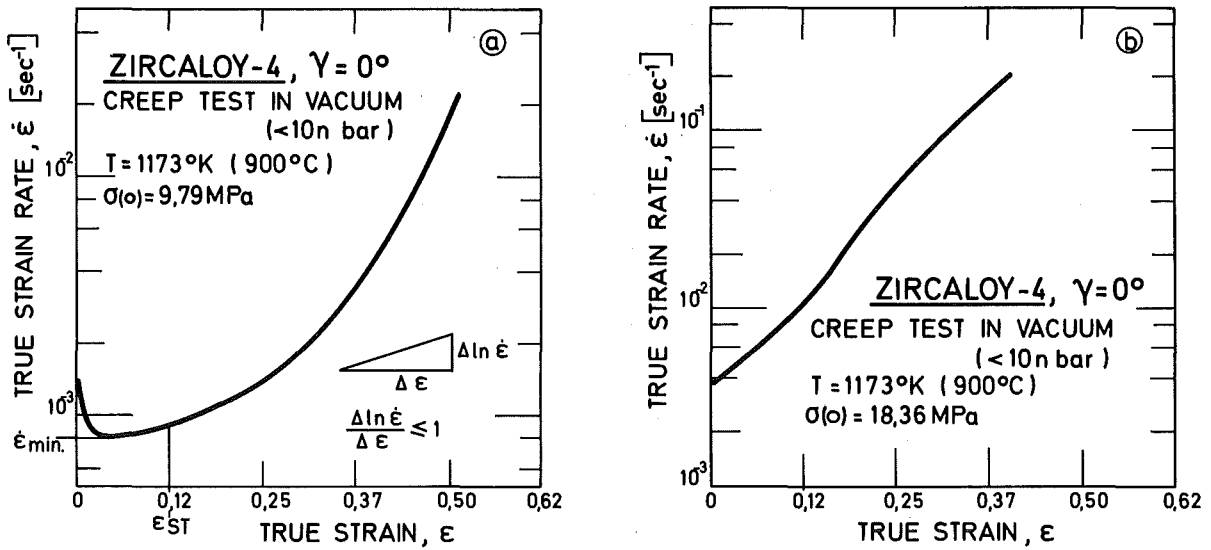


Abb. 4235-8: Typische Kriechkurven am Ende des α/β -Phasenbereiches bei unterschiedlichen Spannungen.

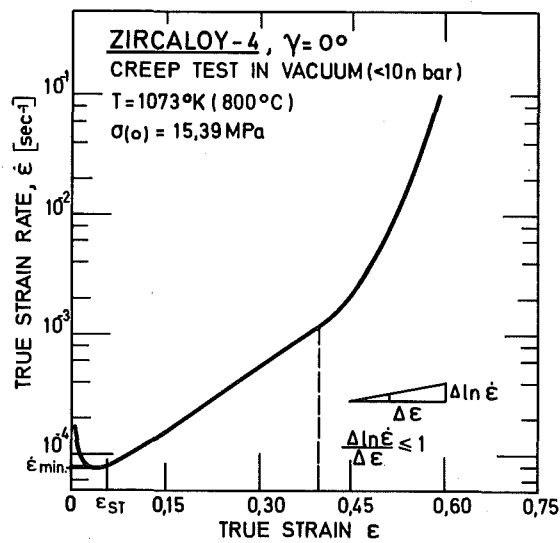


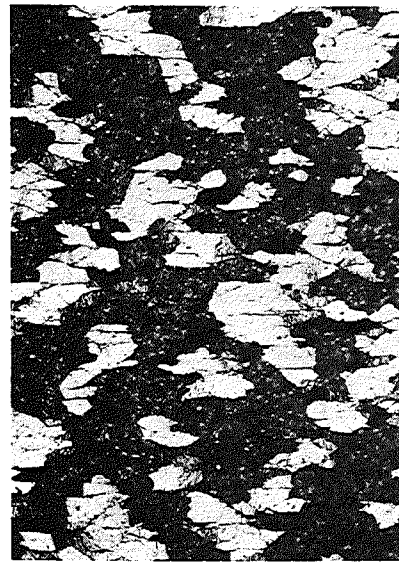
Abb. 4235-9: Typische Kriechkurven mit linearem Mittelstück (3-Bereichs-Kriechkurve).

ZIRCALOY-4, $\gamma = 0^\circ$ $\overbrace{\hspace{1cm}}^{200 \mu\text{m}}$
 PREOXIDIZED IN STEAM
 DEFORMED IN AIR, $\dot{\epsilon}_0 = 1,3 \times 10^{-4} \text{ [sec}^{-1}\text{]}$

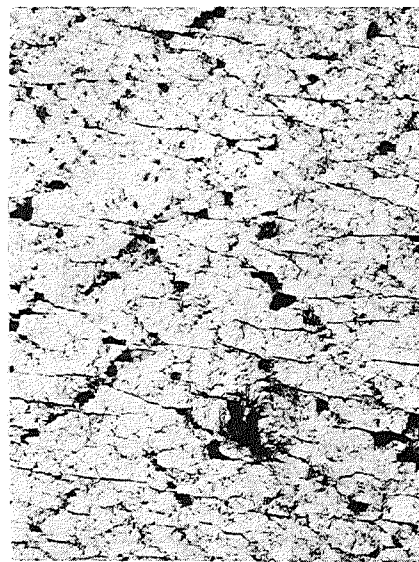
$T_D = 400^\circ\text{C} \text{ (673}^\circ\text{K)}$ $T_D = 500^\circ\text{C} \text{ (773}^\circ\text{K)}$

$T_D = 600^\circ\text{C} \text{ (873}^\circ\text{K)}$

$T_D = 700^\circ\text{C} \text{ (973}^\circ\text{K)}$



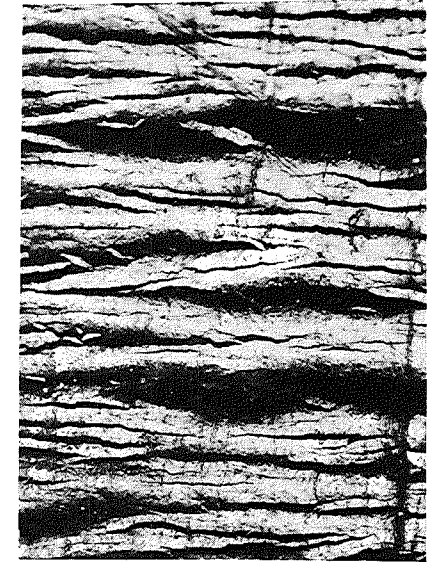
$\epsilon_0 = 2,3\%$



$\epsilon_0 = 4,2\%$



$\epsilon_0 = 29\%$



$\epsilon_0 = 47,5\%$

Abb. 4235-10: Oberflächenaufnahmen von Verbundproben, die bei verschiedenen Temperaturen verformt wurden.
 (Proben voroxidiert)

ZIRCALOY-4, $\gamma = 0^\circ$

PREOXIDIZED: 800°C (1073°K),
30min IN STEAM

DEFORMED: $T_D = 800^\circ\text{C}$ (1073°K)
IN AIR

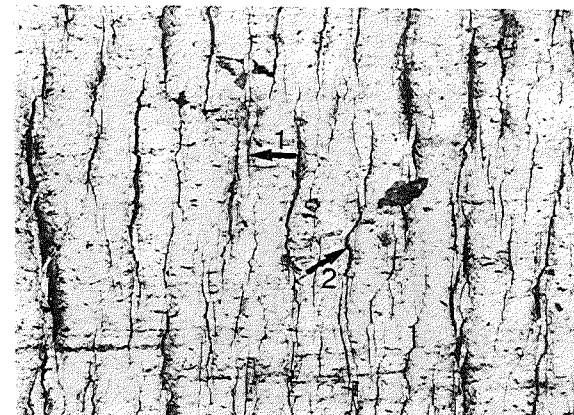
$$\dot{\epsilon}_0 = 3,3 \times 10^{-4} \text{ [sec}^{-1}\text{]}$$



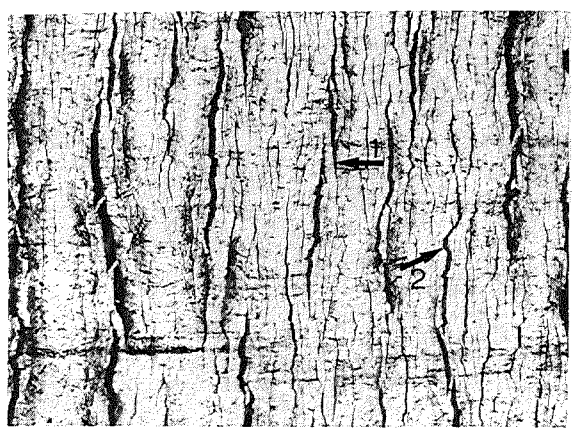
$\epsilon_0 = 4,5\%$



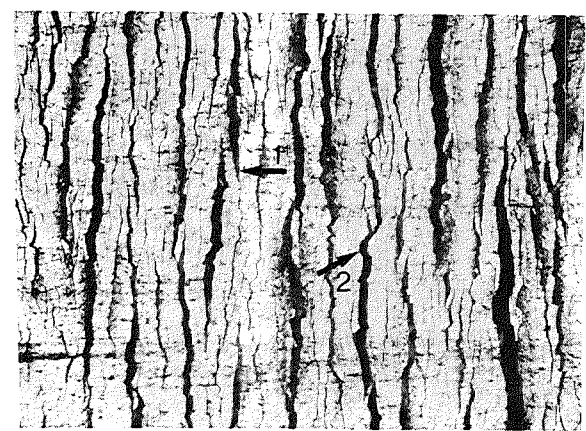
$\epsilon_0 = 25\%$



$\epsilon_0 = 35\%$



$\epsilon_0 = 43\%$



$\epsilon_0 = 63,5\%$



Abb. 4235-11: Oberflächenaufnahmen von Verbundproben zur Darstellung der Rissentwicklung im ZrO_2 im Laufe der Verformung. (Probe voroxidiert)

ZIRCALOY-4, $\gamma = 0^\circ$, AS RECEIVED $\overline{200 \mu\text{m}}$
 DEFORMED: $\dot{\epsilon}_0 = 1,3 \times 10^{-4} \text{ [sec}^{-1}\text{]}$, IN AIR
 $T_D = 800^\circ\text{C}$ (1073°K)

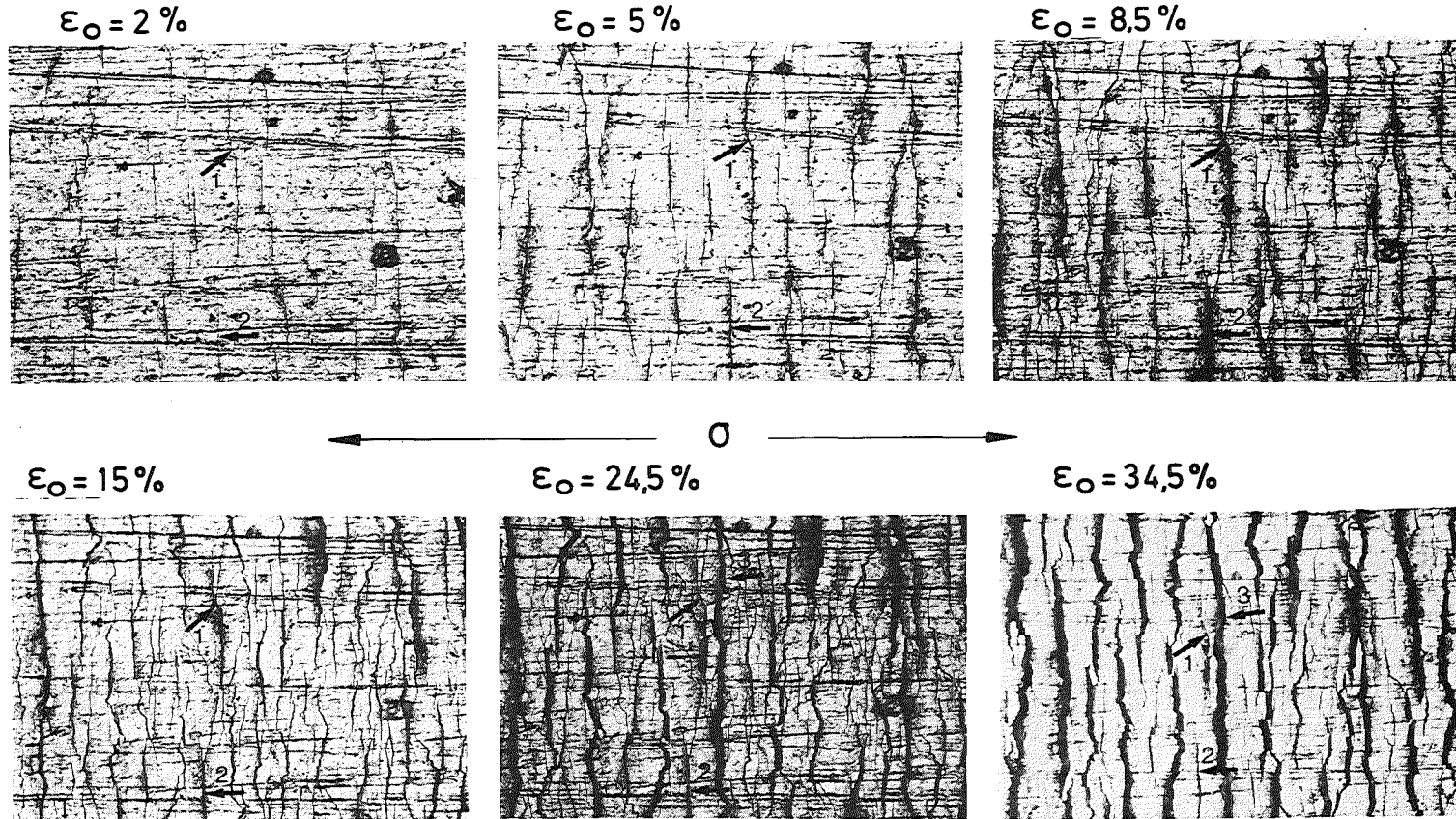


Abb. 4235-12: Oberflächenaufnahmen von Verbundproben zur Darstellung der Rissentwicklung im ZrO_2 im Laufe der Verformung (Probe nicht voroxidiert)

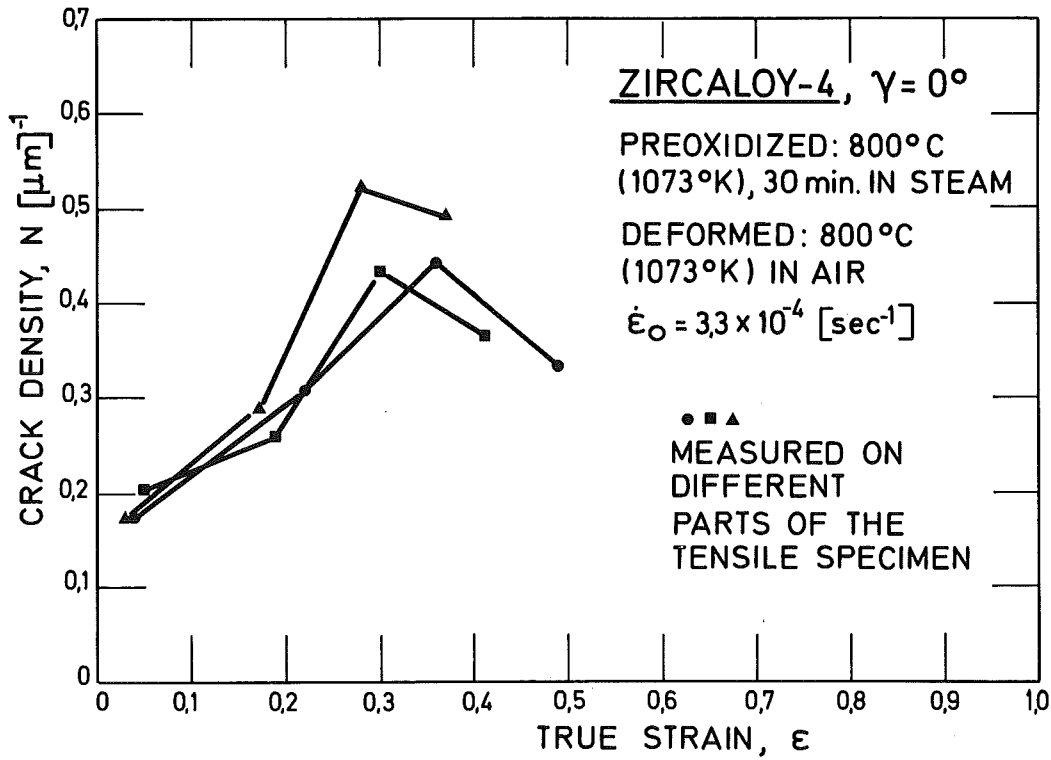


Abb. 4235-13: Abhängigkeit der Rissdichte N von der Dehnung.

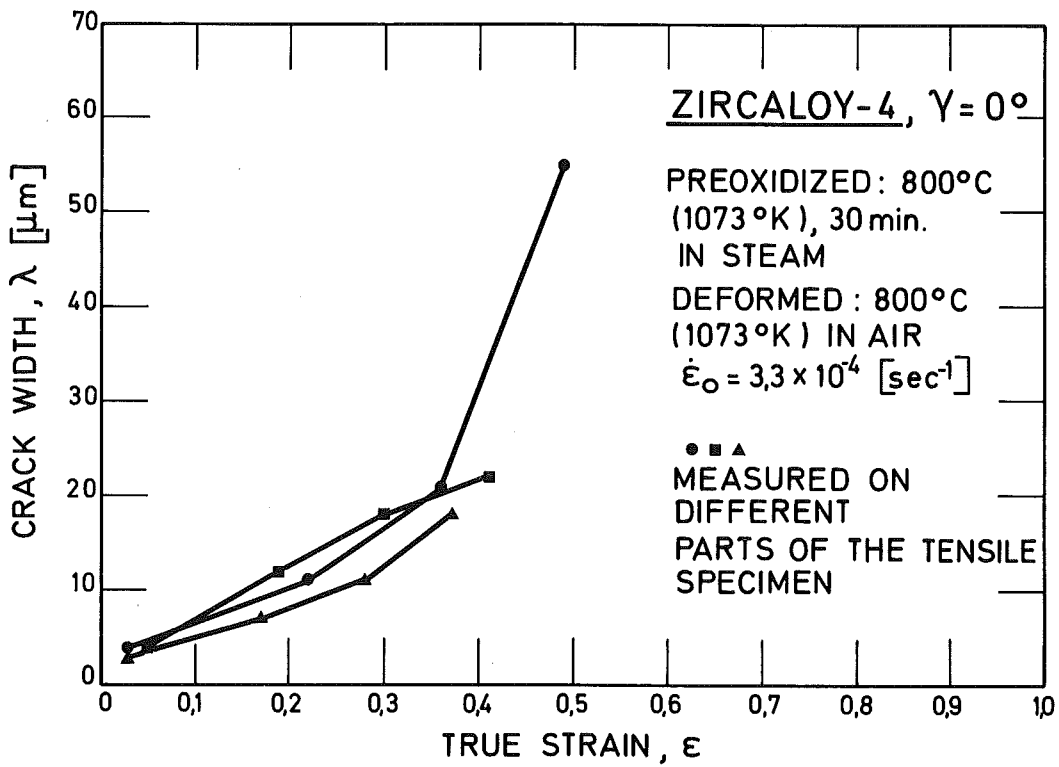


Abb. 4235-14: Abhängigkeit der Rissbreite λ von der Dehnung.

4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy 4-Hüllrohren

(S. Leistikow, H. v. Berg, R. Kraft, G. Schanz)

1. Oxidationskinetische Untersuchungen an ungespannten Rohrabschnitten in Wasserdampf

1.1 Kinetik der isothermen Oxidation bei T = 700 - 1000°C

Für den Temperaturbereich 1000-1300°C waren zur kinetischen Beschreibung der Wasserdampf-Oxidation des Zircaloy 4 aus den experimentellen Ergebnissen empirische Gesetze für die parabolischen Geschwindigkeitskonstanten der Sauerstoffaufnahme τ , des Wachstums der Oxidschicht ϕ , der O₂-stab. α -Schicht und der Doppelschicht ξ (Oxid + α -Schicht) abgeleitet worden (2):

$$\delta_{\tau}^2/2 = 2,62 \cdot 10^{-1} \exp(-41\,653/RT) \text{ [(g/cm}^2\text{)}^2\text{/sec]} \quad (1)$$

$$\delta_{\phi}^2/2 = 3,91 \cdot 10^{-2} \exp(-40\,164/RT) \text{ [cm}^2\text{/sec]} \quad (2)$$

$$\delta_{\alpha}^2/2 = 2,54 \cdot 10^{-1} \exp(-43\,561/RT) \text{ [cm}^2\text{/sec]} \quad (3)$$

$$\delta_{\xi}^2/2 = 8,30 \cdot 10^{-1} \exp(-43\,885/RT) \text{ [cm}^2\text{/sec]} \quad (4)$$

Direkte Beziehungen für die Sauerstoffaufnahme und die Schichtstärken in Abhängigkeit von Temperatur T[K] und Reaktionszeit t[sec] lassen sich daraus nach der parabolischen Beziehung des Typs $x^2 = \delta_x^2 \cdot t$ errechnen (R = 1,987 cal/mol/K):

$$\text{Sauerstoffaufnahme } \tau = 7,24 \cdot 10^{-1} \sqrt{t} \exp(-10\,481/T) \text{ [g/cm}^2\text{]} \quad (1a)$$

$$\text{Oxidschicht } \phi = 2,80 \cdot 10^{-1} \sqrt{t} \exp(-10\,107/T) \text{ [cm]} \quad (2a)$$

$$\text{O}_2\text{-stab. } \alpha\text{-Schicht } \alpha = 7,13 \cdot 10^{-1} \sqrt{t} \exp(-10\,961/T) \text{ [cm]} \quad (3a)$$

$$\text{Doppelschicht } \xi = 1,29 \sqrt{t} \exp(-11\,043/T) \text{ [cm]} \quad (4a)$$

Im folgenden wird dargelegt, daß die obigen empirischen Gesetze mit ausreichender Näherung auch zur Beschreibung der Oxidationskinetik im Bereich 700-1000°C angewendet werden können. Bestehende systematische Abweichungen werden diskutiert.

Eine Serie von insgesamt 94 im Rohrofen isotherm geführten Oxidationsversuchen bei 700-1000°C mit 1-15 min Versuchsdauer (- bei 1000°C zusätzlich 30, 60 und 90 min -) ist bereits auf die Kinetik der Sauerstoffaufnahme ausgewertet worden (2). Zu jedem Zeit-Temperatur-Paar aus dieser Serie ist nun jeweils eine

Probe metallographisch auf die Stärke der Oxidationsschichten untersucht worden, um zu prüfen, ob sich der für die Sauerstoffaufnahme ermittelte Übergang zu kubischer Kinetik unterhalb 1000°C auch im Wachstum der Schichtstärken ausprägt und evtl. deuten läßt. Die Stärken der Oxid- und der α -Schicht wurden direkt an jeweils 5 Stellen des metallographischen Querschliffs bzw. planimetrisch an Schliffbildern vermessen.

Oxidschicht

Bei 1000°C entspricht die Oxidschicht näherungsweise dem nach den Hochtemperaturergebnissen (Gl. 2a) erwarteten Niveau. Bei 950 - 700°C wird einheitlich registriert, daß für 2 min, z. T. noch bis 5 min Versuchszeit, die Oxidschicht die erwartete Stärke aufweist. Sie bleibt dann mit zunehmender Versuchszeit im weiteren Wachstum zurück, unterhalb 800°C nur vorübergehend, so daß bei 750 und 700°C nach 15 min das nach (Gl. 2a) zu erwartende Niveau wieder erreicht ist. Die Beschreibung des Oxidschichtwachstums durch die parabolische Beziehung ist somit als Näherung brauchbar oder konservativ.

O_2 -stabilisierte α -Schicht

Die α -Schicht ist bei 1000 , 950 und 900°C um max. ca. 10% geringer als nach den Hochtemperaturergebnissen (Gl. 3a) zu erwarten war. Im Temperaturbereich 820 - 970°C , in dem zweiphasiges $\alpha+\beta$ -Zircaloy-Grundgefüge auftritt, ist die α -Schicht als Bereich zwischen Oxid und $\alpha+\beta$ -Gefüge definiert. Bei 800°C und darunter im Stabilitätsbereich des α -Grundgefüges existiert keine α -Schicht nach obiger Definition mehr. Ein im geätzten metallographischen Anschliff erkennbarer heller Saum im Anschluß an das Oxid ist bei diesen Temperaturen als Nachweis einer Zone mit erhöhtem Sauerstoffgehalt zu deuten; die Breite dieses Saumes, eine fiktive α -Schicht, konnte für 850°C und zum Teil für 800 - 750°C noch genügend genau vermessen werden. Bei 850°C ergab die Vermessung der α -Schicht, deren Erkennbarkeit aufgrund des geringen Volumenanteils an β -Phase im Grundgefüge erschwert ist, jeweils höhere Werte, die Vermessung der Breite des Ätzsaumes jeweils niedrigere Werte im Vergleich zu den nach Gl. 3 erwarteten Schichtstärken. Auch für 800 und 750°C liegt die Breite des hellen α -Ätzsaumes einheitlich niedriger als erwartet. Insgesamt kann somit die Gl. 3a mit ausreichender Näherung auch für den Temperaturbereich 700 - 1000°C zur Abschätzung der α -Schichtstärke bzw. der Breite der als Ätzsaum erkennbaren Sauerstoff-Diffusionszone benutzt werden.

Doppelschicht

Die kombinierte Schicht aus dem Oxid und der α -Schicht bzw. der an das Oxid angrenzenden Sauerstoffdiffusionszone im α -Gefüge läßt im Vergleich zu der entsprechenden für 1000-1300°C formulierten Beziehung 4a keine wesentlichen systematischen Abweichungen erkennen, so daß auch diese Formel als ausreichende Näherung bis 700°C extrapoliert werden kann.

Verhältnis der Stärke der Oxidschicht zur α -Schicht

Für 1000°C wurde als Schichtstärkenverhältnis praktisch zeitunabhängig im Mittel ca. 1,04 ermittelt. Bei tieferer Temperatur ist das Verhältnis geringer und nimmt außerdem mit der Zeit ab, wie aus Tab. 4235-1 zu ersehen ist. Dagegen hatte eine Serie angenähert isothermer Versuche bei 1000-1300°C ergeben, daß das Schichtstärkenverhältnis von 0,62-0,7 bei 1300°C auf 0,73-0,78 bei 1000°C ansteigt, während es bei konstanter Temperatur mit zunehmender Versuchszeit abnimmt (3). Die neueren Ergebnisse für 1000°C stimmen mit Angaben von Urbanic (4) überein, wonach das Verhältnis von ca. 0,67 bei 1300°C auf ca. 1,05 bei 1000°C steigt. Die von Urbanic nicht betrachtete, nunmehr für den ganzen Temperaturbereich gefundene Abnahme des Schichtstärkenverhältnisses mit zunehmender Reaktionszeit wird selbstverständlich durch die parabolisches Schichtwachstum voraussetzenden Näherungsformeln 2a und 3a nicht beschrieben. Oxidationsrechnungen mit dem Computer-Code SIMTRAN (5) ergeben dagegen die richtige Tendenz. Experimentell bestätigt ist diese auch von Cathcart et al. (6) für 956 und 905°C.

Versuch der Deutung von Abweichungen von der parabolischen Kinetik

Nach der obigen Beschreibung kommen die Abweichungen von der parabolischen Kinetik vor allem bei der Oxidschicht und ihrem Verhältnis zur α -Schicht zum Ausdruck. Daher ist die Deutung der Effekte naheliegenderweise auch in Eigenschaften des Oxids zu suchen.

Im hier interessierenden Temperaturbereich ist bekannt, daß ZrO_2 als monoklines Tieftemperaturoxid und oberhalb 890°C als tetragonale Modifikation auftreten kann. Das monokline Oxid besitzt nach dem Zr-O-Zustandsdiagramm einen schmäleren Homogenitätsbereich der Unterstöchiometrie als das tetragonale Oxid. Es sollte daher, wenn es als Oxid auf oxidierendem Zircaloy gebildet wird, den Sauerstofftransport stärker hemmen, als eine entsprechende Schicht aus tetragonalem Oxid. Das für das Oxid unterhalb 1000°C beobachtete verzö-

gerge Wachstum nach einer Anfangsphase, deren Kinetik nach den Hochtemperaturergebnissen zu erwarten ist, läßt sich erklären, wenn angenommen wird, daß sich zum Beginn der Oxidation auch bei tieferen Temperaturen zunächst das tetragonale Oxid bildet, das allmählich in das thermodynamisch stabile monokline Oxid übergeht. Als Ursache dafür kommt eine anfängliche Stabilisierung durch Wachstumsspannungen infrage und die von Cathcart et al. (7) in anderem Zusammenhang zur Erklärung anomaler Oxidationseffekte herangezogene Hysterese der Phasenumwandlung.

Das Verhältnis der Oxid- zur α -Schichtstärke wird durch das Verhältnis der Sauerstoff-Diffusionskoeffizienten, die den Sauerstofftransport und damit das Wachstum beider Phasen bestimmen, festgelegt. Die Abnahme dieses Verhältnisses oberhalb 1000°C mit steigender Temperatur wird durch die höhere Aktivierungsenergie der Sauerstoffdiffusion in der α -Phase im Vergleich zu der im Oxid erklärt. Die Umkehr dieser Tendenz unterhalb 1000°C spiegelt das verzögerte Oxidwachstum wider, das trotz des oben gegebenen Deutungsversuchs nicht vollständig geklärt ist. Im Schichtstärkenverhältnis bestehen die größten Unterschiede zu neueren experimentellen Ergebnissen anderer Autoren (6,8).

Breakaway-Oxidation im Langzeitversuch

Nach den Ergebnissen bei 1000°C ist die Sauerstoffaufnahme und das Oxidwachstum unmittelbar vor dem bei ca. 30 min eintretenden Breakaway-Effekt etwas verzögert, danach stark beschleunigt. Die α -Schicht erreicht bei 30 min ein Maximum und wird dann schmaler. Das Verhältnis Oxid/ α -Schicht ist beim Breakaway minimal und wächst dann extrem rasch. Der Breakaway besteht in einem Verlust der Schutzwirkung des Oxids, das infolgedessen nicht diffusionskontrolliert rasch wächst und die auch weiterhin diffusionskontrolliert fortschreitende α -Schicht fast aufzehrt.

Schlußfolgerungen

Die unterhalb 1000°C auch für das Wachstum der Oxidationsschichten beobachteten Abweichungen von der parabolischen Hochtemperaturkinetik sind trotz eines gegebenen Deutungsversuchs nicht vollständig verstanden. Die parabolische Beschreibung der Kinetik ist jedoch auch für diesen Temperaturbereich eine brauchbare Näherung. Vorteilhaft ist die dadurch erreichte Einfachheit und Einheitlichkeit der kinetischen Beschreibung im Bereich $700\text{--}1300^{\circ}\text{C}$ durch die empirischen Formen (1)-(4) bzw. (1a)-(4a) oder durch Computerrechnungen

mit dem Code SIMTRAN. Tab. 4235-2 zeigt die mit beiden Berechnungsverfahren bisher erreichte Annäherung an die experimentellen Ergebnisse. Der Breakaway-Effekt ist rechnerisch z.Zt. nicht erfaßt, so daß eine Extrapolation auf langzeitige Oxidation ($t > 15$ min) nicht zulässig ist. Im Hinblick auf eine Berechnung der Zircaloy-Oxidation während einer Temperaturtransiente erscheint die Kenntnis der Tieftemperaturkinetik ausreichend, da niedrige Temperaturen im Störfall nur kurzzeitig durchlaufen werden und außerdem die dabei erreichte Oxidation gegebenenfalls auch durch die Hochtemperaturoxidation überdeckt wird.

1.2 Isotherme Oxidation von vorkorrodierten Rohrabschnitten bei 1000+1200°C

Über diese Untersuchungen ist bereits berichtet worden (3). Die Sauerstoffaufnahme während der 5-minütigen Nachoxidation bei 1000 bzw. 1200°C hat nachgewiesen, daß die bei verschiedenen Temperaturen aufgebrauchten Vorkorrosionsschichten den weiteren Oxidationsumsatz in fast allen Fällen noch stärker hemmen als dies nach ihrer Stärke zu erwarten wäre.

Mit Gl. (1) wurde nun errechnet, welche Nachoxidation angesichts des während der Vorkorrosion gebildeten "Oxidsockels" zu erwarten ist. Das prozentuale Verhältnis der experimentell ermittelten zur errechneten Nachoxidation läßt bei Ergebnissen unter 100% eine erhöhte, bei Ergebnissen über 100% eine verminderte Schutzwirkung der Voroxidationsschicht im Vergleich zu einer bei 1000 bzw. 1200°C entstandenen Oxidschicht erkennen (Tab. 4235-3).

Die Ergebnisse zeigen, daß die Schutzwirkung des Voroxids bei 1000°C stärker als bei 1200°C ist. Für beide Temperaturen verbessert sich die Schutzwirkung zunächst mit dem Ausmaß der Voroxidation, erreicht optimale Werte bei umgerechnet 10 μm und wird mit stärkerer Voroxidation wieder schwächer. Für starke Voroxidation ergeben sich bei 1200°C Werte über 100%, d.h. geringere Schutzwirkung als zu erwarten ist.

Die Ergebnisse können widerspruchsfrei mit der besseren Schutzwirkung des bei tieferen Temperaturen gebildeten monoklinen Oxids im Vergleich zu dem bei höheren Temperaturen gebildeten tetragonalen Oxid erklärt werden. Während diese Schutzwirkung bei der Erhitzung auf 1000°C erhalten bleibt, geht sie bei Erhitzung auf 1200°C weitgehend verloren, wahrscheinlich durch Umwandlung der monoklinen Voroxidationsschicht in tetragonales Oxid. Mit zunehmender Voroxi-

dation verursachten Schichtdefekte eine verminderte Schutzwirkung.

1.3 Temperatur-transiente Oxidation von vorkorrodierten Rohrabschnitten

bei $T_{\max} \leq 1200^{\circ}\text{C}$

Im Rahmen unserer Untersuchungen wurde bereits über die störfalltypischen Oxidationsreaktionen an isotherm bei hohen Temperaturen in Dampf voroxidiertem Zircaloy 4-Rohrmaterial berichtet (2). Die hier zu berichtenden Untersuchungen wurden auf Material ausgedehnt, das bei mittleren Temperaturen wie folgt vorkorrodiert worden war: in den Rezipienten von Labor-Dampfkreisläufen wurden auf 5 cm langen Rohrabschnitten bei $400\text{--}600^{\circ}\text{C}$ in Dampf unter Variation von Temperatur und Versuchszeit Oxidschichten unterschiedlicher Dicke erzeugt, die Proben wurden in Inertgas auf Zimmertemperatur abgekühlt und zu den störfalltypischen Untersuchungen in die Rohrofen-Versuchsanlage überführt. Aus der durch Wägung bestimmten Gesamt-Sauerstoffaufnahme wurden die in Tab. 4235-4 wiedergegebenen mittleren ZrO_2 -Schichtstärken berechnet.

Zu den störfallbezogenen Expositionen wurden die voroxidierten Proben LOCA-ähnlichen Temperatur-Transienten über 3 min bei Maximaltemperaturen von 1000 , 1100 und 1200°C in Dampfatmosphäre unterworfen. Für die mittleren Vorkorrosionstemperaturen von $400\text{--}450^{\circ}\text{C}$ wurden ähnliche Ergebnisse (Abb. 4235-15) erzielt, wie sie in (2) für höhere Vorkorrosionstemperaturen bereits beschrieben worden waren. Dabei lagen im Fall der Maximaltemperaturen von 1000°C und 1100°C die Umsätze deutlich unter denen des (nicht vorkorrodierten) metallischen Ausgangszustandes. Bei 1200°C wurde, verglichen mit der im metallischen Zustand auftretenden Stärke des Oxidationsprodukts und gegenüber den isotherm ohne Zwischenabkühlung anfallenden Schichtstärken, keine Schutzwirkung festgestellt. Im Gegenteil, die Proben oxidierten noch ein wenig stärker als im metallischen Ausgangszustand und weitaus stärker als bei einer Voroxidation, die bei hohen Temperaturen vorgenommen und ohne Zwischenabkühlung weitergeführt wurde.

2. Rohrinnendruck-Zeitstand- und Kriechversuche an einseitig verschlossenen Rohrkapseln

2.1 Isotherm/isobare Experimente in Wasserdampf im Rohrofen

2.1.1 Vergleich der bisherigen Resultate in Argon und Wasserdampf

Die Ergebnisse der Rohrinnendruck-Zeitstandprüfung in Argon und Dampf werden nunmehr in einer Gesamtdarstellung (Abb. 4235-16) bei doppelt-logarithmischer Auftragung von Tangentialspannung resp. Innendruck gegen die Standzeit wiedergegeben. Der Vergleich dieser Zeitstandversuche in oxidierendem und inertem Milieu zeigt, daß gegenüber dem in reinem Argon beanspruchten Material die Wasserdampf-Oxidation des Zircaloy 4 unter den angewandten isotherm-isobaren Versuchsbedingungen eine beachtliche Standzeitverlängerung durch die verfestigende Wirkung der äußerlich gebildeten Oxidschicht bewirkt wird. Der Druckbereich, unterhalb dem es in Dampf selbst bei Temperaturen oberhalb 1000°C nicht mehr zum Bersten der Kapseln kommt, liegt bei 6-8 at.

2.1.2 Versuche an längeren Rohrkapseln

Die bisher durchgeführten Innendruck-Versuche wurden an Zircaloy 4-Rohrkapseln durchgeführt, die aus 50 mm langen Hüllrohrabschnitten gefertigt worden waren. Durch gleichartige Untersuchungen an in der Länge verdoppelten Rohrkapseln sollte eine mögliche Beeinflussung des Materialverhaltens bestimmt werden. Dieses könnte theoretisch ^{durch} eine vergrößerte Meßlänge zwischen der Einspannung durch Kapselstopfen auftreten und sich durch höhere Dehnungswerte bemerkbar machen. Bei Rohrofenheizung auf Versuchstemperatur 1000°C ergab sich ein Oberflächen-Temperaturgradient an der Rohrprobe, der symmetrisch von der Kapselmitte bis zu den beiden Kapselstopfen verlief und etwa 8 bis 10°C betrug, während dieser im Fall der kurzen Kapseln bei nur 3 bis 4°C lag. Aus dem Vergleich der in Dampf an kurzen und langen Rohrkapseln bei 1000°C gemessenen Standzeiten und maximalen Umfangsdehnungen (Tab. 4235-5) ersieht man, daß diese Werte innerhalb des Streubandes der bereits mitgeteilten Zeitstandkurve liegen und auch hinsichtlich der Umfangsdehnung einen markanten Einfluß der Kapsellänge nicht erkennen lassen.

2.1.3 Versuche an voroxidierten Rohrkapseln

Innerhalb der etwa 3-jährigen Einsatzzeit im LWR erfährt ein Brennstab eine korrosionsbedingte Wandstärkenschädigung entsprechend der Bildung von 20-30 µm ZrO₂-Schichtdicke. Dieser langsame Oxidationsvorgang wurde an einseitig ver-

geschlossenen Rohrkapseln in der Rohrberstprüfanlage während 2 Std. bei 800°C simuliert, wobei etwa 15 µm haftfestes ZrO₂ gebildet wurden.

Der Einsatz dieser voroxidierten Proben in die Kriech-Berst-Experimente im Rohrofen bei Temperaturen von 900-1300°C in Dampf ergab - gegenüber den Versuchen in Dampf an nichtvoroxidierten Proben - einen beträchtlichen Festigkeitsanstieg (Abb. 4235-17-22). Schon die Zeitscandergaben bei 900°C weisen diesen Festigkeitsanstieg aus, der sich (relativ zu den Kurven nicht voroxidierten Proben in Dampf) zu hohen Temperaturen hin noch weiter verstärkt. Die gemessenen max. Umfangsdehnungen (Abb. 4235-23-28) sinken auf erheblich niedrigere Werte ab: <1000°C 12-59%, \geq 1000°C 5-19%. Diese Ergebnisse lassen erkennen, daß im Störfall durch die betriebsbedingte Voroxidation unter Heißstabbedingungen stark verminderte Umfangsdehnungen, d.h. ein gegenüber den Messungen an dem metallischen Hüllmaterial in Argon und Dampf stark beeinträchtigtes Dehnungsverhalten erwartet werden kann.

2.2 Temperatur-transiente/isobare Experimente unter induktiver Beheizung

2.2.1 Versuche unter Heißstabbedingungen

Weitere temperatur-transiente Versuche wurden auf der Grundlage von berechneten Heißstabstörfallverläufen vorgenommen. Dazu wurden einseitig verschlossene Rohrkapseln in der Versuchseinrichtung für induktiv beheizte Versuche mit dem Prüfdruck beaufschlagt und programmgesteuerten Störfall-Transienten unterworfen.

Die Darstellung ihrer Ergebnisse (Abb. 4235-29+30) wird im Schaubild der Kühlmittelverlust-Standard-Störfallverläufe eines Heißstabs vorgenommen, die ein Blowdown-Peak bei 950°C, ein Temperaturminimum bei 750°C und unter pessimistischen Annahmen eine Störfall-Maximaltemperatur \geq 1000°C ausweisen. Die Kreuze im Funktionsverlauf kennzeichnen jeweils die im Versuch bei gegebenem Innendruck erreichten Standzeiten. Im Blowdown-Peak, gegebenenfalls auch etwas verzögert, rissen alle Kapseln bei Innendrücken >15-19 bar. Im Druckbereich 7-15 bar erreichten die Kapseln das gewünschte max. Temperaturniveau von 800-1300°C. Bei Drücken <7 bar trat aus Gründen hochgradiger Verfestigung kein Bersten in den hier gefragten Prüfzeiten mehr auf (siehe isotherme/isobare Versuche).

Die beobachteten max. Umfangsdehnungen liegen im Blowdown-Peak zwischen 64-81%, in der Aufheizphase sinken sie von 87% (1060°C) auf 30% (1300°C) ab, vermindern sich über die Reaktionszeit bei Maximaltemperatur von 70 → 50% (900°C), 60 → 51% (950°C), 63 → 56% (1000°C), 70 → 22% (1100°C), 30 → 20% (1200°C) und 30 → 10-20% (1300°C). Die zukünftigen Sicherheitsuntersuchungen an Zircaloy 4-Rohrkapseln werden sich den sog. Normalstab-Bedingungen, d.h. einer Belastung bei niedrigeren Temperaturen und höheren Drücken, zuwenden.

Tab. 4235-1 Vergleich zwischen Messung und Berechnung des Schichtstärkenverhältnisses Oxid/ α -Schicht

[°C]	[min]	1	2	5	10	15
		1000	gemess.	0,96	1,08	0,95
	Gl. (2) u. (3)	0,77	→			
	SIMTRAN	0,74	0,63	0,71	0,71	0,71
950	gemess.		1,08	1,08	0,88	0,81
	Gl. (2) u. (3)	0,79	→			
	SIMTRAN	0,69	0,63	0,57	0,56	0,56
900	gemess.		1,00	0,99	0,77	0,74
	Gl. (2) u. (3)	0,82	→			
	SIMTRAN	0,63	0,71	0,57	0,50	0,49
850	gemess.			0,77	0,63	0,53
	Gl. (2) u. (3)	0,85	→			
	SIMTRAN	0,56	0,56	0,55	0,54	0,49

Tab.: 4235-2 Vergleich zwischen Messung und Berechnung der Zircaloy-Oxidation.
Auswahl aus Versuchen von 1, 2, 5, 10 u. 15 min bei 1000-700°C

°C	[min]	O ₂ -Aufnahme [mg/dm ²]			Oxid [µm]			α-Schicht [µm]		
		gem., Gl. (1), SIMTRAN			gem. Gl. (2), SIMTRAN			gem. Gl. (3), SIMTRAN		
1000	1	175	149	142	9,9	7,7	7,6	10,3	10,1	10,3
	15	561	577	554	34,4	29,9	29,3	32,9	38,9	41,3
950	2	168	150	127	7,9	7,9	6,9	7,5	10,0	10,9
	15	351	412	352	17,7	21,6	18,8	23,3	27,4	33,5
900	2	121	104	79,2	6,3	5,6	4,2	5,6	6,8	5,9
	15	249	286	217	12,6	15,3	11,5	16,6	18,7	23,4
850	2	74,7	70,1	47,1	4,0	3,8	2,5	4,7	4,5	4,5 (3,6)
	15	161	192	129	9,4	10,4	6,8	16,6	12,3	13,9 (11,1)
800	5	63,0	71,8	42,3	2,5	3,9	2,2	(3,3)	4,5	4,6
	15	98,1	124	73,3	4,2	6,8	3,8	(5,3)	7,8	7,9
750	10	55,4	63,0	32,1	2,4	3,5	1,6	(2,0)	3,9	3,7
	15	65,9	77,1	39,3	3,9	4,3	2,0	(2,9)	4,7	4,5

(): α-Meßwerte in Klammer bedeuten Breite eines Ätzsaumes, der die O₂-Diffusionszone im α-Gefüge nachweist.

Tab.: 4235-3 Prozentuales Verhältnis der gemessenen zur errechneten [Gl. (1)] Sauerstoffaufnahme während der Oxidation (5 min, 1000 bzw. 1200°C) vorkorrodiierter Proben. Mittelwerte aus je 3 Versuchen.

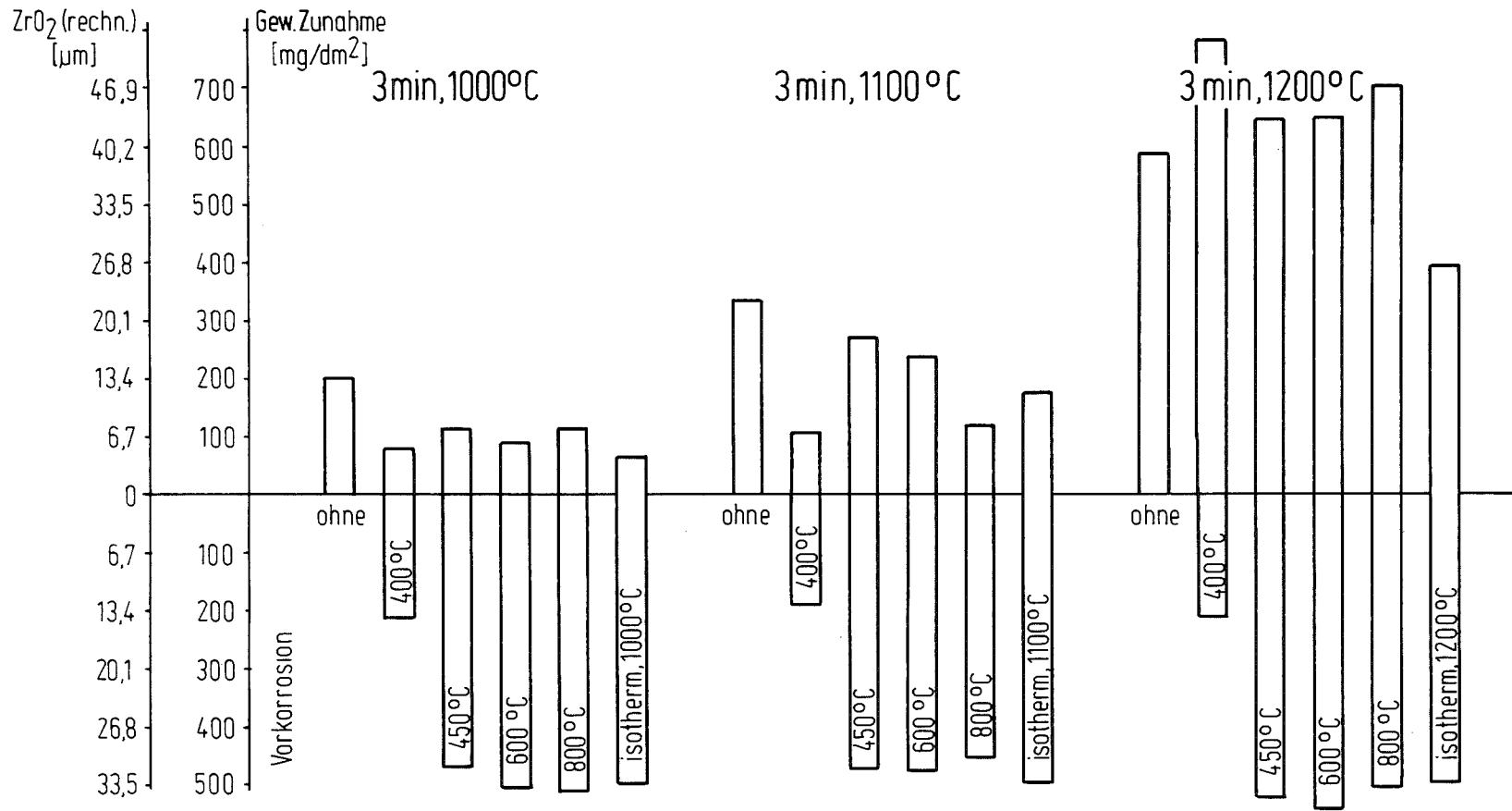
Voroxidation			Nachoxidation bei	
[°C]	[h]	[mg/dm ²]	1000°C	1200°C
			[% der errechneten Werte]	
350	2000	23,7	69	87
400	2000	100,7	31	90
450	1000	165,3	25	85
800	1,5	180,3	48	75
500	466	325,2	30	
600	46-51	330,1	46	118
600	79	619,2		173
600	93	668,1	89	

Tab.:4235-4 Aus Gewichtszunahmen berechnete ZrO₂-Schichtdicken von Vorkorrosionsversuchen an Zircaloy 4-Rohrabschnitten

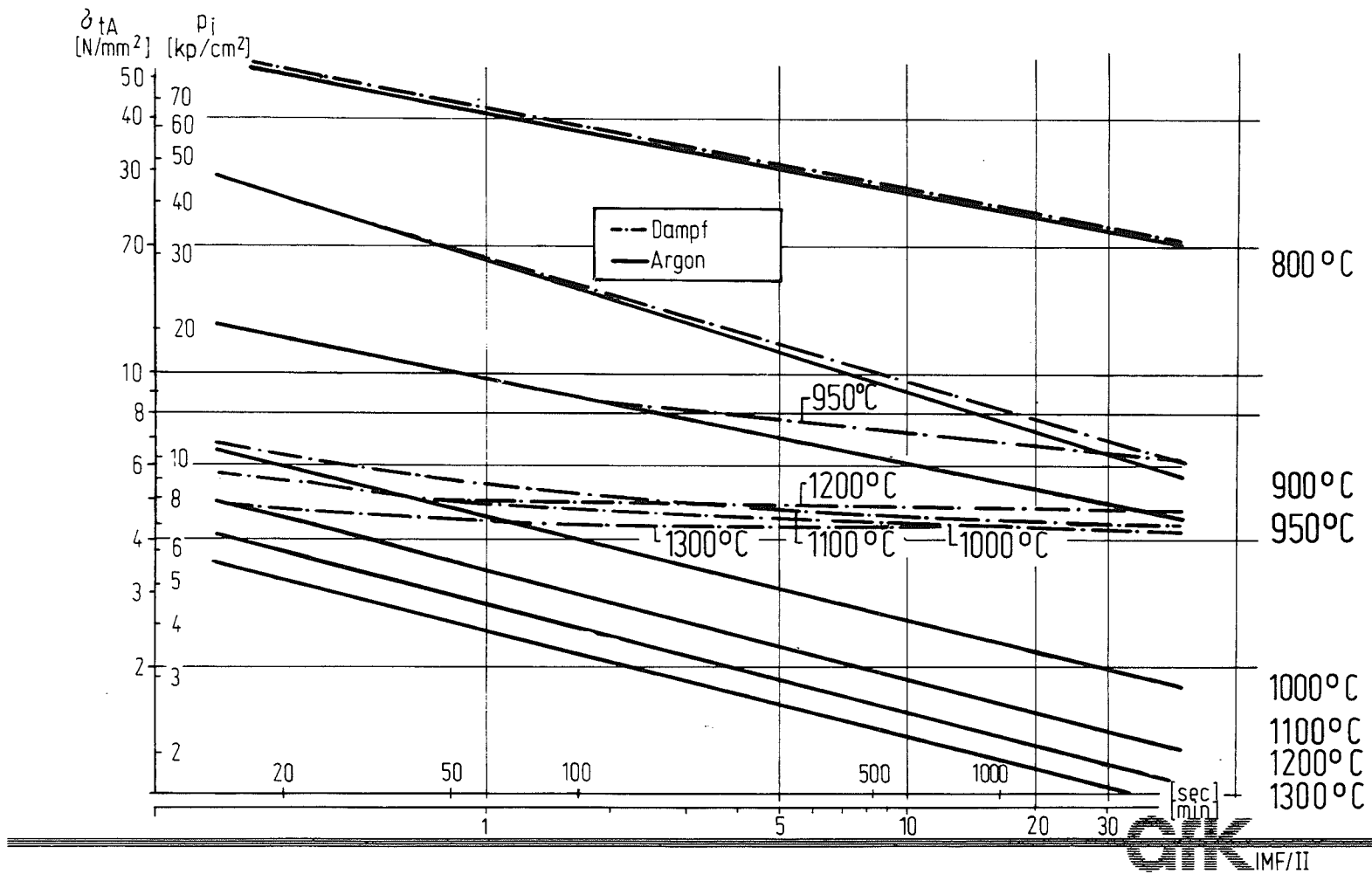
Temperatur der Vorkorrosion T [°C]	Reaktionszeit t [Std]	berechnete ZrO ₂ -Schichtdicke s [µm]
400	4008 - 6675	12,6 - 15,2
450	2418 - 2692	31,4 - 35,1
600	26 - 51	29,3 - 40,8
800	5,3 - 8	30,1 - 35,3

Tab.: 4235-5 Vergleich von Rohrinndruck-Berstexperimenten an Rohrkapseln verschiedener Länge hinsichtlich der bei 1000°C gemessenen Standzeiten und max. Umfangsdehnungen

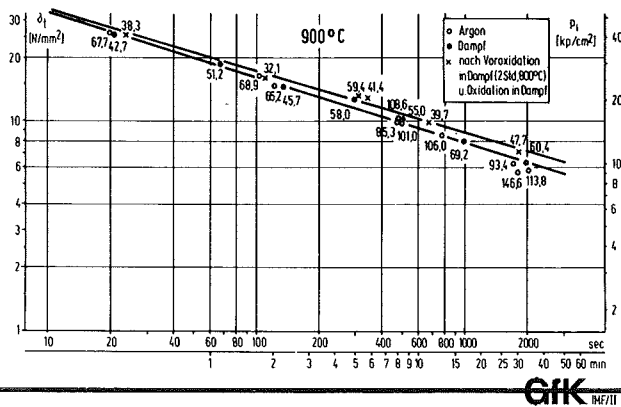
Kapsellänge	Kapselinnendr.	Tangential- Spannung	Standzeit	max. Umfangs- dehnung
l [mm]	p_i [kp/mm ²]	σ_t [N/mm ²]	t_B [sec]	ϵ_u [%]
50	9,8	6,2	24	87,5
50	9,1	5,8	43	75,1
100	9,0	5,9	50	86,8
100	9,0	5,9	50	94,9
50	8,5	5,4	53	78,8
100	8,9	5,8	55	85,7
100	7,7	5,0	83	81,5
100	7,8	5,0	85	78,9
50	8,0	5,1	96	23,3
50	8,2	5,2	107	60,3
50	8,3	5,3	151	35,5
50	7,4	4,7	151	42,9
100	7,8	5,0	152	40,7
100	6,9	4,5	207	30,2
100	7,7	5,0	300	19,1
100	7,3	4,7	308	24,8
50	7,0	4,5	415	17,5
50	7,0	4,4	492	22,7
50	7,1	4,5	528	17,7
50	7,0	4,5	536	26,6
50	7,3	4,6	599	26,5
50	6,9	4,4	1533	30,8



Dampf-Oxidation vorkorrodiertes Zircaloy 4-Proben unter LOCA-Bedingun-
 gen (1m/s, 1bar, 3min, 1000-1200°C). Mittelwerte aus 2-5 Messungen.

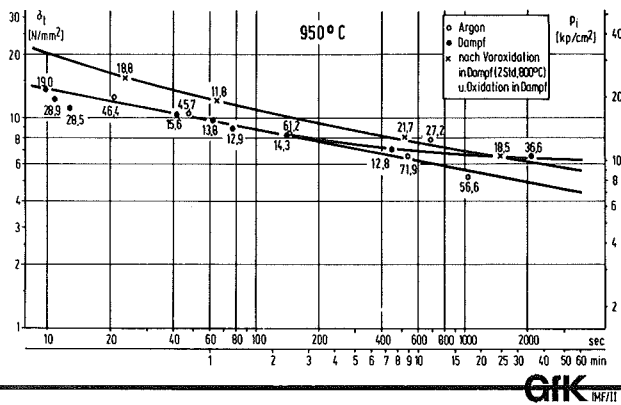


Rohrinnendruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4-Rohrkapseln bei 800-1300°C
Zeitstandkurven in Argon und Dampf



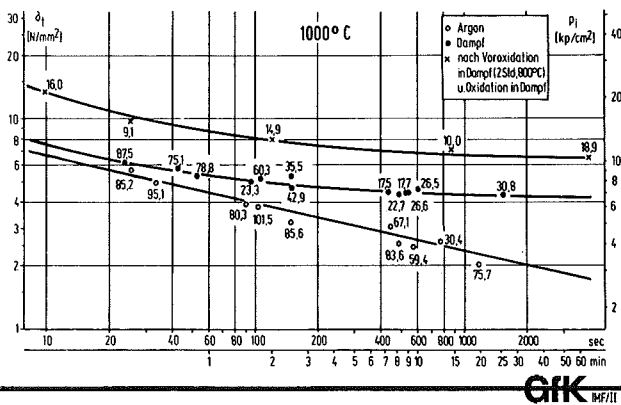
Rohrinnendruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4 Rohrkapseln in reinem Argon sowie in Dampf ohne und mit Voroxidation (2 Std, 800°C) bei 900°C mit Angabe der Umfangsdehnung in %

Abb. 4235-17



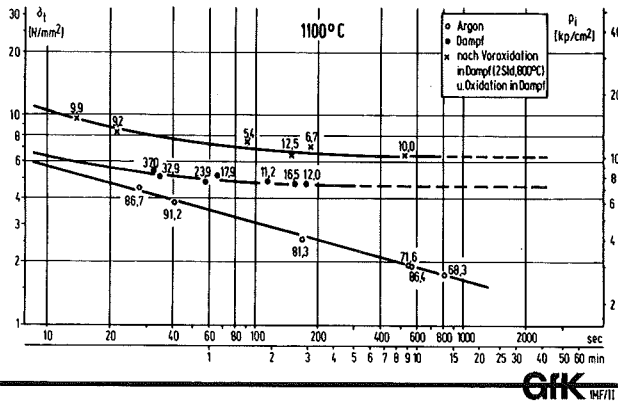
Rohrinnendruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4 Rohrkapseln in reinem Argon sowie in Dampf ohne und mit Voroxidation (2 Std, 800°C) bei 950°C mit Angabe der Umfangsdehnung in %

Abb. 4235-18



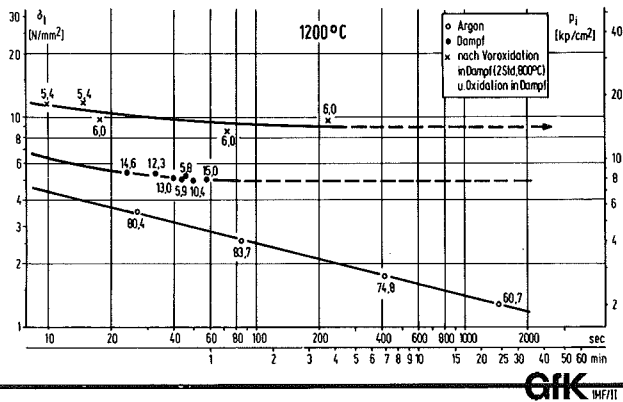
Rohrinnendruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4 Rohrkapseln in reinem Argon sowie in Dampf ohne und mit Voroxidation (2 Std, 800°C) bei 1000°C mit Angabe der Umfangsdehnung in %

Abb. 4235-19



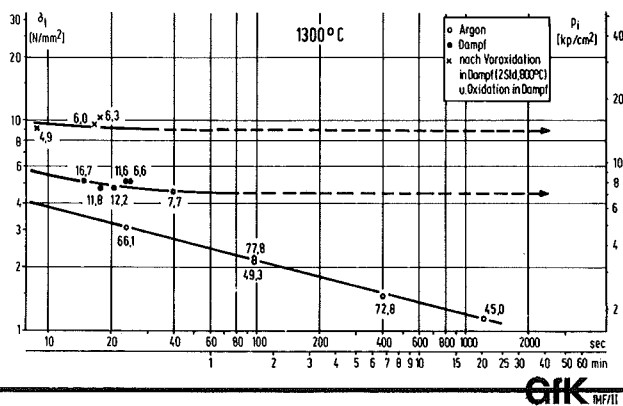
Rohrinnendruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4 Rohrkapseln in reinem Argon sowie in Dampf ohne und mit Voroxidation (2 Std., 800°C) bei 1100°C mit Angabe der Umfangsdehnung in %

Abb. 4235-20



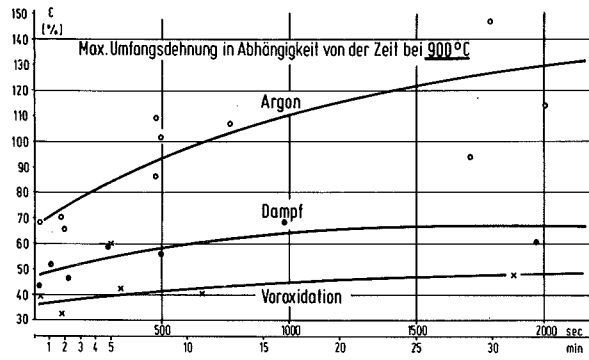
Rohrinnendruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4 Rohrkapseln in reinem Argon sowie in Dampf ohne und mit Voroxidation (2 Std., 800°C) bei 1200°C mit Angabe der Umfangsdehnung in %

Abb. 4235-21



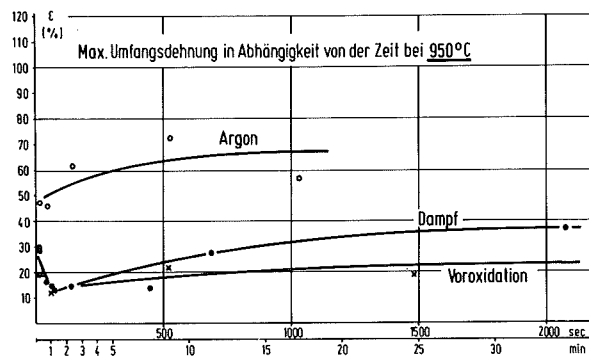
Rohrinnendruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4 Rohrkapseln in reinem Argon sowie in Dampf ohne und mit Voroxidation (2 Std., 800°C) bei 1300°C mit Angabe der Umfangsdehnung in %

Abb. 4235-22



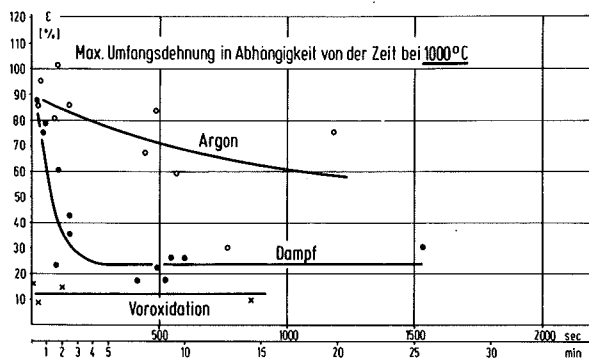
Rohrinnendruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4 Rohrkapseln in reinem Argon sowie in Dampf ohne und mit Voroxidation (2Std, 800°C)

Abb. 4235-23



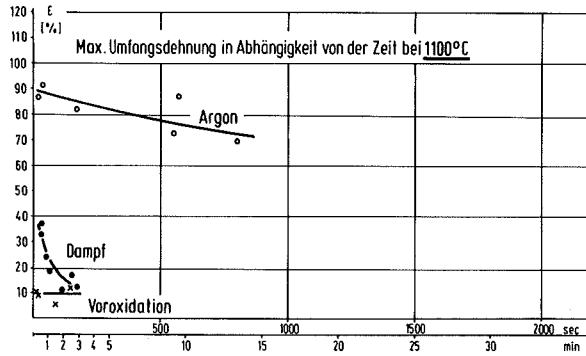
Rohrinnendruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4 Rohrkapseln in reinem Argon sowie in Dampf ohne und mit Voroxidation (2Std, 800°C)

Abb. 4235-24



Rohrinnendruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4 Rohrkapseln in reinem Argon sowie in Dampf ohne und mit Voroxidation (2Std, 800°C)

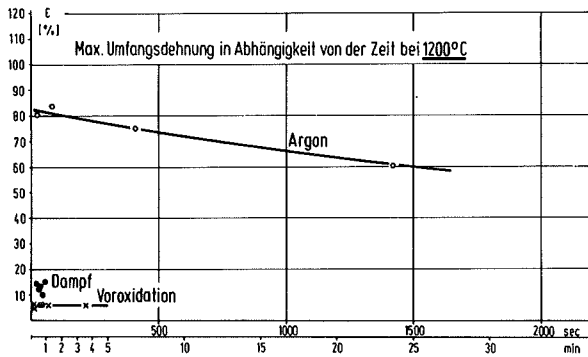
Abb. 4235-25



GfK INF/II

Rohrinnendruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4 Rohrkapseln in reinem Argon sowie in Dampf ohne und mit Voroxidation (2Std, 800°C)

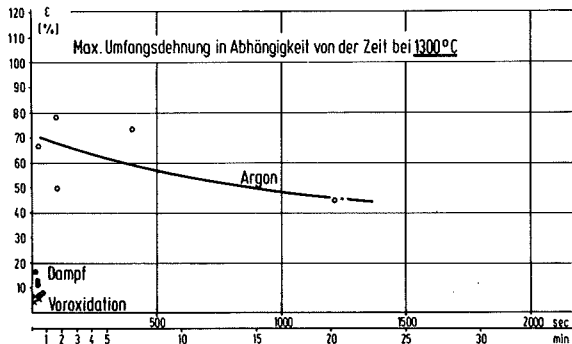
Abb. 4235-26



GfK INF/II

Rohrinnendruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4 Rohrkapseln in reinem Argon sowie in Dampf ohne und mit Voroxidation (2Std, 800°C)

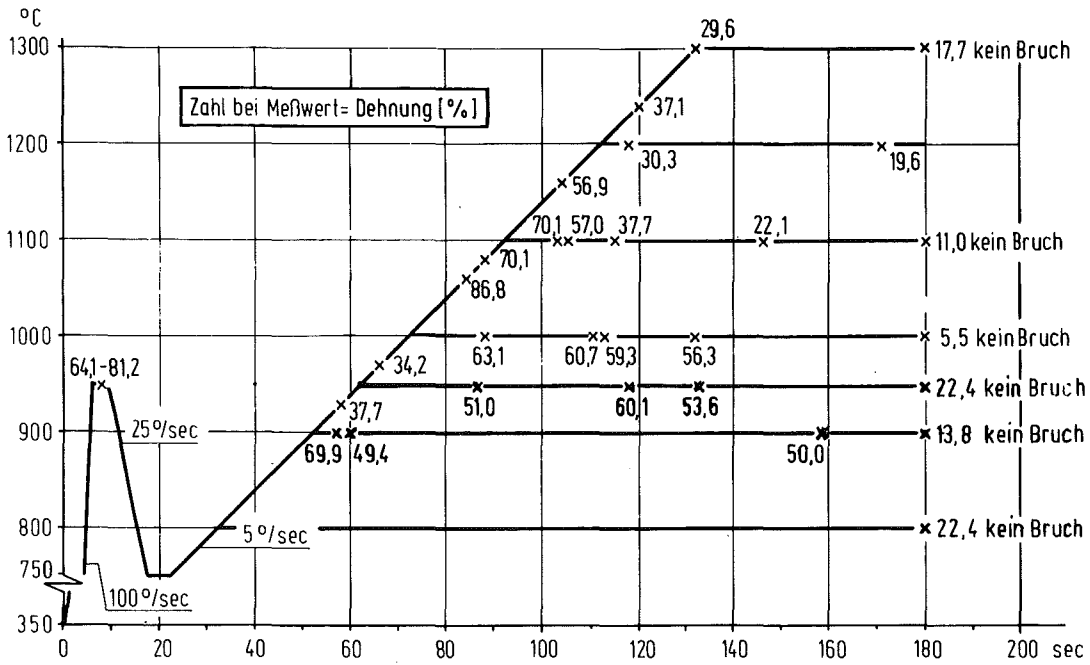
Abb. 4235-27



GfK INF/II

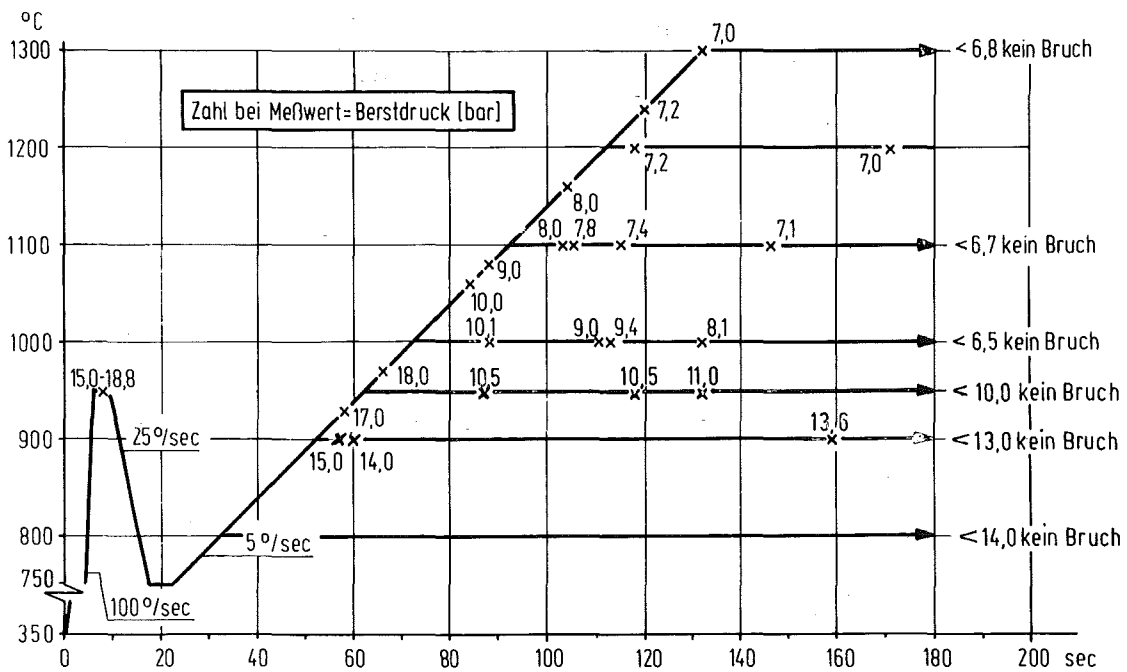
Rohrinnendruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4 Rohrkapseln in reinem Argon sowie in Dampf ohne und mit Voroxidation (2Std, 800°C)

Abb. 4235-28



Temperaturtransiente Kriech- und Berst-Experimente in Dampf.
 Störfalltypische, isobare Versuche bei max. Temperaturen $\geq 800^{\circ}\text{C}$

ABB. 4235-29



Temperaturtransiente Kriech- und Berst-Experimente in Dampf.
 Störfalltypische, isobare Versuche bei max. Temperaturen $\geq 800^{\circ}\text{C}$

ABB. 4235-30

4235.3 Untersuchungen zum Einfluss des Oxidbrennstoffes und von Spaltprodukten auf die mechanischen Eigenschaften von Zry-Hüllrohren bei Störfalltransienten

(P.Hofmann, C.Politis, H.Schneider, J.Burbach, K.Kurz, H.Metzger, H.T.Miller, E.Nold, G.Rejman, B.Scheckel; IMF I)

1. Einfluss von Jod auf das Verformungs- und Bruchverhalten von Zry-4-Hüllrohren

1.1 Versuchsdurchführung

Die Spannungsrisskorrosions-Versuchsapparatur wurde im 1. PNS-Halbjahresbericht ausführlich beschrieben /9/. Die Rohrberstversuche erfolgten unter isobaren und isothermen Bedingungen. Die Rohrprobe wurde auf die gewünschte Temperatur gebracht und anschliessend durch einen konstanten Argon-Innendruck mechanisch belastet. Gemessen wurde neben der Hüllrohrtemperatur und dem Innendruck die Standzeit der Rohrproben sowie nach dem Versuch die Hüllrohraufweitung in Abhängigkeit von der Probenlänge. Die Jodkonzentration in den Rohrproben betrug 7 mg/cm^3 , was einem simulierten Abbrand von nahezu 9 At.% entspricht, unter der Annahme vollständiger Freisetzung des Jods aus dem UO_2 . Die Jodkonzentration wurde zunächst deshalb so hoch gewählt, um festzustellen, ob das mechanische Verhalten von Zry-4 bei hohen Temperaturen überhaupt durch Jod beeinflusst wird. In weiterführenden Experimenten wird auch der Einfluss der Jodkonzentration systematisch untersucht.

Die Zry-Hüllrohre kamen im Anlieferungszustand (fehlerfrei) und innen voroxidiert (ZrO_2 -Schicht $\leq 25 \text{ }\mu\text{m}$) zum Einsatz, z.T. waren die Rohrproben noch mit UO_2 -Pulver oder UO_2 -Pellets gefüllt. Parallel dazu erfolgten Vergleichsversuche mit den gleichen Probentypen, die ausserdem noch elementares Jod enthielten. Die Zeitstandexperimente erfolgten unter Argon.

1.2 Versuchsergebnisse

1.2.1 Einfluss von Jod auf die mechanischen Eigenschaften von Zry-Hüllrohren, die im Anlieferungszustand zum Einsatz kamen

Die bereits früher beschriebenen Versuchsergebnisse von temperatur- und drucktransienten Experimenten zum Spannungsrisskorrosionsverhalten von

as-received Zry-Hüllrohren (fehlerfrei) in Gegenwart von elementarem Jod zeigten, dass hinsichtlich der Bersttemperatur als Funktion des Berstdruckes keine wesentlichen Unterschiede zwischen den Rohrproben, die Jod enthielten und den jodfreien Argon-Vergleichsproben, festzustellen waren /9,10/. Auch im Hinblick auf die Zeit bis zum Bersten waren für die verschiedenen Rohrproben keine ausgeprägten Unterschiede vorhanden. Lediglich die Berstdehnung der mit Jod gefüllten Rohrproben war bei Temperaturen $\leq 850^{\circ}\text{C}$ deutlich kleiner als die der jodfreien Vergleichsproben /9,10/.

Die bisher durchgeführten Zeitstandexperimente mit as-received Zry-Hüllrohren zwischen 700 und 1000°C zeigen dagegen, dass es unter isothermen, isobaren Versuchsbedingungen, bei allen untersuchten Temperaturen, besonders bei kurzen Standzeiten (<10 min) zu unterschiedlichen Versuchsergebnissen zwischen den Jod enthaltenden und den jodfreien Rohrproben kommt. So sind die Berstdrücke der Jod enthaltenden Rohrproben deutlich kleiner als die der Vergleichsproben bzw. bei gleichem Innendruck versagen die Zry-Rohrproben in Gegenwart von Jod erheblich schneller als die Argon-Vergleichsproben (Abb.4235-29). Bei längeren Standzeiten (>10 min) und dementsprechend kleineren Innendrücken bzw. Hüllrohr-Tangentialspannungen geht der Jodeinfluss auf die Zeit bis zum Bersten der Rohrproben, speziell bei 900°C , zurück.

Im Hinblick auf die Berstdehnungen werden die schon bei den transienten Experimenten gemachten Versuchsergebnisse bestätigt, d.h. unterhalb 900°C sind die Berstdehnungen der mit Jod gefüllten Zry-Rohrproben deutlich kleiner als die der jodfreien Vergleichsproben (Abb.4235-29, -30, -31). Bei den Argon-Vergleichsproben variiert die Berstdehnung bei den untersuchten Temperaturen von 700 bis 1000°C zwischen 55 und 115% , wobei die geringsten Berstdehnungen bei 900°C auftreten (Abb.4235-30). Diese Beobachtung steht in Übereinstimmung mit den Versuchsergebnissen von transienten Experimenten, bei denen ebenfalls ein Minimum in den Berstdehnungen bei etwa 930°C , d.h. im Zweiphasengebiet des Zry, beobachtet wurde /10,11/. Die Berstdehnungen der mit Jod gefüllten Rohrproben variieren dagegen zwischen 15% bei 700°C und etwa 95% bei 1000°C (Abb.4235-31). Die Berstdehnung hängt aber nicht nur von der Temperatur der Proben, sondern auch vom Innendruck, d.h. von der Standzeit ab. Mit zunehmender

Standzeit geht oberhalb 700°C der Einfluss von Jod auf die Berstdehnung zurück (Abb.4235-29, -31). Möglicherweise werden bei den niedrigen Innendrücken, die bei konstanter Temperatur eine längere Standzeit bewirken, nicht mehr die notwendigen kritischen Tangentialspannungen im Hüllmaterial erreicht, die - neben einer korrosiven Umgebung - erforderlich sind, dass es zum Versagen des as-received Hüllrohres infolge Spannungsrisskorrosion kommt. Um darüber Auskunft zu erhalten, sind Spannungsrisskorrosionsexperimente mit vorgeschädigten (pre-cracked) Zry-Hüllrohren geplant, die auch bei relativ niedrigen Tangentialnennspannungen im Hüllrohr, an den Rißspitzen hohe, lokale Spannungserhöhungen zur Folge haben.

1.2.2 Einfluss von Jod auf die mechanischen Eigenschaften von innen voroxidierten und/oder brennstoffhaltigen Zry-Rohrproben

Erste Experimente mit innen vorkorrodierten (ZrO_2 -Schicht $\leq 25 \mu m$) oder mit UO_{2+x} -Pulver ($O/U = 2.03$) gefüllten Rohrproben, die kein Jod enthalten, zeigen eine durch die Sauerstoffaufnahme bedingte deutlich größere Zeitstandfestigkeit als die Argon-Vergleichsproben, besonders bei Temperaturen $\geq 900^\circ C$ (Abb.4235-29). Die Sauerstoffaufnahme hat eine starke Versprödung des Zry-Hüllrohres zur Folge mit maximalen Berstdehnungen von etwa 13% bei $1000^\circ C$ (Abb.4235-29). Mit abnehmender Temperatur, d.h. bei 900, 800 und $700^\circ C$, geht der Sauerstoffeinfluss auf die mechanischen Eigenschaften des Zry deutlich zurück, da die Diffusionsgeschwindigkeit des Sauerstoffs im Zry und damit die Sauerstoffaufnahme stark abnimmt (Abb.4235-32).

Die Gegenwart von Jod hat bei den voroxidierten und/oder brennstoffhaltigen Rohrproben bei 700 und $800^\circ C$ jedoch wieder einen sehr starken Einfluss auf die Berstdehnung, die stark zurückgeht (Abb.4235-32a, - 32b). Die Gründe für die Abnahme der Duktilität und damit Reduzierung der Berstdehnung der Zry-Hüllrohre sind sehr wahrscheinlich in einer Rissbildung der Oxidschicht auf der Hüllrohroberfläche zu suchen. Die Oxidschicht und die dazugehörige sauerstoffstabilisierte α -Zr(O)-Phase sind bei den voroxidierten Proben von Anfang vorhanden oder bilden sich bei den Rohrproben, die $UO_{2,03}$ -Pulver enthalten, während des Versuches. Wie

chemische Analysen der Hüllrohrinnenoberfläche (AES) zeigen, sind die Randzonen stark sauerstoffhaltig und damit spröde (siehe Abschnitt 1.2.3). Bereits bei geringen Verformungen des Hüllrohres reißen diese spröden Schichten an vielen Stellen axial auf und bilden so scharfe Kerben in der Hüllrohroberfläche. Diese Kerben führen einerseits zu einer lokalen Depassivierung der Hüllrohrinnenoberfläche, da durch das Aufreißen der Deckschicht das metallische Zry freigelegt wird und andererseits zu lokalen Spannungsspitzen am Rissgrund, die im Zusammenwirken mit dem Jod ein beschleunigtes verformungsarmes Versagen des Hüllrohres infolge Spannungsrisskorrosion bewirken.

Bei 900 und 1000°C hat Jod dagegen bei den voroxidierten und/oder brennstoffhaltigen Proben eine Berstdehnung zur Folge, die grösser ist als bei den jodfreien Proben (Abb.4235-32c). Diese Ergebnisse sind überraschend, da im Prinzip das gleiche Bruchverhalten gelten sollte wie bei 700 und 800°C. Eine Erklärung für die grössere Duktilität der sauerstoffhaltigen und Jod gefüllten gegenüber den jodfreien Zry-Rohrproben kann z.Zt. noch nicht gegeben werden. Dazu sind weitere Untersuchungen sowie chemische Analysen der Hüllrohrinnenoberfläche erforderlich.

1.2.3 Bestimmung der Sauerstoff-Randzonenkonzentration in Zircaloy-4-Berstproben

In Hinblick auf die Möglichkeit des Auftretens von Spannungsrisskorrosion an der Innenseite von Zircaloy-Hüllrohren ist es von Interesse, ob nach Einsatz mit UO_2 an den Hüllrohren oberflächlich durch Sauerstoff versprödete Zonen vorliegen können. Die über den Gesamtquerschnitt der Zircaloy-Hüllrohre mit Hilfe der Vakuum-Heissextraktion durchgeführten Sauerstoffbestimmungen geben keinen Hinweis auf die Höhe der möglicherweise in der Randzone auftretenden Sauerstoffkonzentration. Um Aussagen über den Konzentrationsverlauf des Sauerstoffs in den Oberflächenschichten der Innenseite der Zircaloy-Hüllrohre machen zu können, wurde die Auger-Elektronen-Spektroskopie (AES)-Profilanalyse zur Untersuchung verschiedener Proben eingesetzt.

Dieses Untersuchungsverfahren /12/ ist für den Nachweis von Sauerstoff gut geeignet. Es besitzt einerseits eine sehr gute Nachweisempfindlichkeit für

Sauerstoff. Andererseits ist eine Messung der Sauerstoff-Intensität auch unter laufendem Oberflächenabtrag durch Ar-Ionenbeschuss möglich, so dass die Messung nicht durch oberflächliche Kontaminationen verfälscht wird. Registriert man nun laufend während des gleichmässigen Abtrags die Auger-Intensität des interessierenden Elements, so kann man bei Kenntnis der Abtragsrate und durch Vergleich der gemessenen Auger-Intensität mit der einer Probe bekannten Gehalts, Konzentrations-Tiefenprofile aufstellen.

Die Abtragsrate wurde empirisch bestimmt, und zwar bei einem Argon-Druck von 5×10^{-5} Torr und einer Sputter-Energie von 2 kV und 30 mA zu 0,6 $\mu\text{m}/\text{h}$ für sauerstoffarmes Zircaloy und zu 0,42 $\mu\text{m}/\text{h}$ für eine sauerstoffreiche Schicht (ca. 20% O).

Zur Messung wurde der Sauerstoff-Peak bei 510 eV herangezogen. Um den gemessenen Peakhöhen bestimmte Prozentgehalte zuordnen zu können, wurden Vergleichsproben mit bekannten Sauerstoffgehalten unter gleichen Bedingungen analysiert. Diese Vergleichsproben waren durch Zusammenschmelzen unterschiedlicher Mengen ZrO_2 und Zirkon-Metallpulver im Lichtbogen und anschliessendes Homogenisieren bei 1300°C hergestellt worden. Die Proben waren anschliessend mit Hilfe der Vakuum-Heissextraktion auf ihren Sauerstoffgehalt untersucht worden. Die AES-Analyse ergab einen linearen Zusammenhang zwischen Peakhöhe und Sauerstoffgehalt (Abb.4235-33).

Die zu untersuchenden Zircaloy-Hüllrohre wurden aufgeschnitten, vorsichtig plattgedrückt und anschliessend zur AES-Profilanalyse eingesetzt.

Nachfolgend sind die Untersuchungsergebnisse aus drei verschiedenen Versuchsreihen wiedergegeben, in denen jeweils eine Hüllrohrprobe ohne UO_2 und je eine mit stöchiometrischem UO_2 -Pulver ($\text{O}/\text{U} = 2,003$), überstöchiometrischem UO_2 -Pulver ($\text{O}/\text{U} \approx 2,05$) und einem stöchiometrischen UO_2 -Pellet ($\text{O}/\text{U} = 2,005$) eingesetzt war. Die Berstdrücke wurden bei den drei Versuchsreihen derart variiert, dass die Bersttemperaturen bei etwa 900, 920 und oberhalb 1100°C lagen.

Die Abbildungen 4235-34a-c zeigen den Verlauf der Sauerstoffkonzentration in den Randzonen, jeweils von einer Versuchsreihe in einem Diagramm zusammengefasst. Ausserdem sind die jeweiligen Versuchsdaten und die über den Gesamtquerschnitt der Hüllrohre bestimmten Sauerstoffgehalte angegeben. Die Abbildungen 4235-34a-c geben die Einzeldiagramme der Proben wieder, wobei hier neben dem Verlauf der Sauerstoffkonzentration auch

die des Kohlenstoffs und Stickstoffs eingetragen ist. Da bei mehreren Proben überraschend hohe Sauerstoffgehalte (ca. 20%) in den Randzonen vorliegen, die verwendeten Vergleichsproben jedoch nur max. 9% Sauerstoff enthalten, wurde versucht, auch für den hohen Konzentrationsbereich Vergleichsproben herzustellen und zu messen. Es wurden Zircaloy-Bleche an Luft oxidiert und anschliessend mit dem Rasterelektronenmikroskop und der Röntgen-Feinstruktur die Oberflächenschicht untersucht. Die Probe A⁺⁾ zeigte auf schwarzem Untergrund auf der Oberfläche ab und zu helle Punkte, während die Oberfläche der Probe B⁺⁾ durchgehend eine hellere Oberflächenschicht aufwies. Die rasterelektronenmikroskopische Untersuchung zeigte, dass eine keramische Oberflächenschicht vorliegt und die Röntgenfeinstruktur-Untersuchung konnte den Nachweis für das Vorliegen von ZrO_2 (26% Sauerstoff) erbringen. Die AES-Analyse ergab für die Probe A einen Sauerstoffgehalt von ca. 23% in der Oberflächenschicht und für Probe B einen solchen von etwa 25,5%.

Die in der Abbildung 4235-34 dargestellten Ergebnisse zeigen einen deutlichen Zusammenhang zwischen der Stöchiometrie bzw. der Form des eingesetzten UO_2 und der Höhe der Sauerstoff-Randzonenkonzentration. Nach Einsatz mit überstöchiometrischem UO_2 -Pulver enthält die Randzone in allen Fällen um die 20 Gew.-% Sauerstoff. Die Dicke dieser sauerstoffreichen Schicht ist in den drei Versuchsreihen unterschiedlich, sie nimmt mit steigender Bersttemperatur zu:

Bersttemperatur (°C)	Dicke der sauerstoffhaltigen Schicht in μm
891	ca. 4
928	" 5,5
1100	" 16

Nach Einsatz mit stöchiometrischem UO_2 -Pulver treten vergleichsweise geringe Erhöhungen der Sauerstoffkonzentrationen im Zry-Hüllrohr auf, nur in einem Fall lag diese in einem kurzen Bereich bei ca. 18%. Nach Einsatz mit stöchiometrischen UO_2 -Pellets sind im Vergleich mit dem ohne UO_2 eingesetzten Zircaloy-Hüllrohr in der Randzone keine signifikanten Unterschiede zu erkennen.

⁺⁾ bei 650°C im reinen Sauerstoffstrom oxidierte Zry-4-Rohrproben; Probe A schwach, Probe B stark oxidiert.

2. UO₂/Zry-Reaktionsexperimente unter PCM-Bedingungen

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 ($\Delta p \approx 80$ bar). Die Glühexperimente wurden deshalb bei hohen UO₂/Zry-Kontaktdrücken durchgeführt. Die Versuchsdurchführung wurde bereits im 2.PNS-Halbjahresbericht 1976 beschrieben /11/. 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 /13,14/. 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 UO₂/Zry-Reaktionskinetik

Das wesentliche Ziel der UO₂/Zry-Reaktionsexperimente ist die quantitative, analytische Beschreibung der chemischen Wechselwirkungen. Es ist deshalb erforderlich, das Wachstum der bei der Reaktion zwischen dem UO₂ und Zry entstehenden Phasen in Abhängigkeit von der Temperatur und Zeit zu ermitteln. Insgesamt bilden sich drei verschiedene Phasenbereiche, die ausgehend vom UO₂ zum chemisch unbeeinflussten Zry-Hüllmaterial wie folgt zusammengesetzt sind:

- a) eine sauerstoffstabilisierte α -Zr(O)-Phase, die an den Korngrenzen noch geringe Mengen α -Uran enthält
- b) eine (Uran, Zirkonium)-Legierung, die zum überwiegenden Teil aus Uran besteht
- c) eine zweite reine sauerstoffstabilisierte α -Zr(O)-Phase im Zircaloy-4.

In Tabelle 4235-6 und Abb.4235-36 sind die Versuchsergebnisse der UO₂/Zry-Reaktionsexperimente wiedergegeben. Die Tiefender verschiedenen Reaktionszonen wurden unter dem Lichtmikroskop an mindestens vier Stellen ausge-

Specimen No	Temperature [°C]	Time [min]	Depth of Reaction Layers [µm]		
			I	II	III
29	1000	10	7	11	52
28	1000	20	10	15	65
27	1000	30	12	20	81
26	1000	60	22	28	108
33	1100	10	16	21	88
32	1100	20	28	37	137
31	1100	30	32	43	138
30	1100	60	38	48	184
24	1200	6	19	26	105
25	1200	10	25	34	148
56	1200	20	34	50	207
57	1200	30	44	62	260
58	1200	60	70	90	360
42	1300	3	32	40	130
13	1300	6	48	70	178
11	1300	10	50	70	200
12	1300	20	84	104	345
10	1300	30	82	120	360
43	1300	60	(148)	(164)	(380)
39	1400	3	53	64	180
41	1400	6	70	90	200
40	1400	10	96	114	270
34	1400	20	152	175	-
38	1500	3	90	151	227
37	1500	6	118	160	-
36	1500	10	162	218	-
35	1500	20	290	404	-

Tabelle 4235-6: Tiefe der verschiedenen Reaktionszonen nach den UO₂/Zry-Reaktionsglühungen unter PCM-Bedingungen (Zry/UO₂-Kontaktdruck ca. 80 bar) in Abhängigkeit von der Temperatur und Zeit. In der Tabelle ist die Dicke von drei verschiedenen Phasenbereichen dargestellt, die wie folgt zusammengesetzt sind (s. Abb. 4235-36):

- I: α-Zr(O) mit geringen Mengen α-Uran
- II: α-Zr(O) + (U,Zr)-Legierung
- III: α-Zr(O) + (U,Zr)-Legierung + α-Zr(O)

messen. Sowohl in der Tabelle 4235-6 als auch in der Abb.4235-36 sind die entsprechenden Mittelwerte für die Tiefe der Phasenbereiche a) $\hat{=}$ I, a) + b) $\hat{=}$ II sowie für die drei Phasen a), b) + c) $\hat{=}$ III zusammen angegeben. Oberhalb 1400°C war die Bestimmung des Reaktionsumfanges der Phase c) schwierig, da sich tangentiale Risse bildeten. Ausserdem war die Phasengrenze zwischen dem α -Zr(O) und dem Zry z.T. sehr unregelmässig ausgebildet, infolge α -Zr(O)-Einwachsungen im α' -Gefüge (umgewandeltes β -Gefüge) des Zry. In die Arrhenius-Darstellung der UO_2 /Zry-Reaktionsexperimente (Abb.4235-36) sind zum Vergleich extrapolierte Daten aus der Literatur von ähnlichen Experimenten bei tieferen Temperaturen eingetragen. Die Werte von L.N.Grossmann und D.M.Rooney /13/ zeigen keine so gute Übereinstimmung mit den eigenen Versuchsergebnissen wie die von M.W.Mallett et al. /16/ (Abb.4235-36), obwohl diese von Versuchen unterhalb 1000°C auf den hier untersuchten Temperaturbereich 1000 - 1500°C extrapoliert wurden. L.N.Grossmann hatte dagegen Versuche bis zu 1200°C durchgeführt. Zum Vergleich ist auch die Dicke der Doppelschicht [α -Zr(O)+ZrO₂] von reinen Zry-4 Oxidationsexperimenten in Dampf von S.Leistikow und G.Schanz /2/ in die Arrhenius-Darstellung (Abb.4235-36) eingetragen. Man erkennt, dass die Dicke der entstehenden Reaktionszonen bei den UO_2 /Zry-Reaktionsexperimenten sowie den Zry/Dampf-Oxidationsversuchen etwa gleich gross ist. Bei beiden Versuchstypen ist die Diffusion von Sauerstoff in das Zry der geschwindigkeitsbestimmende Schritt der Reaktion, trotzdem ergeben die UO_2 /Zry-Reaktionsexperimente scheinbar grössere Sauerstoffeindringtiefen in das Zry als die reinen Oxidationsexperimente. Die Ursache für diese zunächst überraschenden Versuchsergebnisse ist in der Festlegung der ursprünglichen UO_2 /Zry-Phasengrenze nach den Reaktionsglühungen zu suchen. Es war deshalb erforderlich, geeignete Experimente mit Wolfram-Markern (Drähte, Bleche) an der UO_2 /Zry-Phasengrenze durchzuführen, um die Diffusionsdaten (Tabelle 4235-6, Abb.4235-36) korrigieren zu können. Die Ergebnisse der ersten Marker-Experimente mit 40 μ m starken W-Drähten bzw. 25 μ m dicken W-Blechen bei 1200°C/60 min ergeben, dass ein Teil des Zr unter gleichzeitiger Reaktion mit dem UO_2 aus dem Hüllmaterial herausdiffundiert, und es bilden sich α -Zr(O) (Phase a) sowie eine (U,Zr)-Legierung (Phase b), ein Teil des Sauerstoffs des UO_2 diffundiert in das Zry unter Bildung von reinem α -Zr(O) (Phase c) (Abb.4235-37). Die ursprüngliche UO_2 /Zry-Phasengrenze liegt nach diesen ersten Untersuchungen offenbar im Bereich der (U,Zr)-Legierung (Phase b).

Das hat zur Folge, dass die vorliegenden Diffusionsdaten zu korrigieren sind. Die derzeitigen Versuchsergebnisse der UO_2/Zry -reaktionskinetischen Untersuchungen (Abb.4235-36) geben daher konservative Ergebnisse wieder.

2.2.2 Bestimmung der Konzentrationsprofile von U, Zr und O über die UO_2/Zry -Reaktionszone

Um Auskunft über die Elementverteilung über die Reaktionszone zu erhalten, wurden analytische Untersuchungen mit der Mikrosonde (MS) und mittels der Auger-Elektronen-Spektroskopie (AES) durchgeführt. Die Versuchsergebnisse sind in Abb.4235-38 und 4235-39 wiedergegeben. Man erkennt, dass die AES-Analyse zu exakteren Ergebnissen führt als die Mikrosonde. Die (U,Zr)-Legierung (Phase b) enthält nahezu keinen Sauerstoff (1 - 2 Gew.%), der max. Sauerstoffgehalt in der reinen $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Phase (Phase c) variiert zwischen 4 und 6 Gew.%, d.h. diese Phase ist aufgrund des hohen Sauerstoffgehaltes stark versprödet. Die starke Versprödung der Phase c) ist u.a. auch der Grund dafür, dass es zu einer ausgeprägten Rissbildung während der Abkühlung der Versuchsproben kommt.

2.2.3 Einfluss von simulierten Spaltprodukten auf die UO_2/Zry -Reaktionen

Dem Brennstoff wurden die simulierten Spaltprodukte Cs, J (in Form von CsJ) und Te entsprechend eines Abbrandes von 5 At % bzw. 10 At % zugegeben. Der Füllgasdruck betrug bei 20°C 1 bar. Gegenüber früheren Untersuchungen unterscheiden sich diese Experimente dadurch, dass neben dem CsJ noch freies, elementares Cs dem UO_2 zugegeben wurde, um die entsprechende Cs-Spaltproduktkonzentrationen zu erreichen. Im Hinblick auf die Phasenbildung hat sich praktisch kein wesentlicher Unterschied zwischen den Proben die Spaltprodukte enthielten und den spaltproduktfreien Rohrproben ergeben. Was den Reaktionsumfang anbelangt, so können noch keine sicheren Aussagen gemacht werden. Überraschend war jedoch die Beobachtung, dass bei Temperaturen $\geq 1200^\circ\text{C}$ und einem simulierten Abbrand von 10 At % das Zry-Hüllmaterial nicht mehr auf den Brennstoff kollabierte. Offenbar ist unter diesen Bedingungen der Probeninnendruck durch die verdampfenden Spaltprodukte so gross, dass es selbst bei einem Aussendruck

von 80 bar (Argon) nicht mehr zum Kollabieren des Hüllrohres kommt, teilweise war sogar eine geringe Hüllrohraufweitung festzustellen. Weitere Versuche sowie theoretische Abschätzungen des Hüllrohrinnendruckes sind geplant.

Literatur

- /1/ H.M.Chung et al., ANL-76-121, S.81
- /2/ Leistiwok, S., v.Berg, H., Jennert, D., Kraft, R., Schanz, G., Weis R.: Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy 4-Hüllrohren. In: KFK 2435 (1977) S.261-305
- /3/ Leistikow, S., v.Berg, H., Jennert, D., Kraft, R., Schanz, G.: Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy 4-Hüllrohren. In: KFK 2375 (1976) S. 283 - 314
- /4/ Urbanic, U.F.: Method for Estimating the Exposure Time and Temperature for Zircaloy Oxidation in Steam. Journal of Nuclear Materials 59 (1976) S. 90 - 94
- /5/ Malang, S.: SIMTRAN I - H Computer Code for the Simultaneous Calculation of Oxygen Distributions and Temperature Profiles in Zircaloy During Exposure to High-Temperature Oxidizing Environments. ORNL - 5083, Nov. 1975
- /6/ Cathcart, J.V.: Quarterly Progress Report on the Zirconium Metal-Water Oxidation Kinetics Program Sponsored by the NRC Division of Reactor Safety Research for Oct. - Dec. 1976. ORNL/NUREG/TM-87 Feb. 1977
- /7/ Cathcart, J.V.: Quarterly Progress Report on the Zirconium Metal-Water Oxidation Kinetics Program. Jul.-Sept. 1976. ORNL/NUREG/TM-62, Nov. 1976
- /8/ Biederman, R.R., Ballinger, R.G., Dobson, W.G.: Oxidation Reaction Kinetics of Zircaloy-4 in an Unlimited Steam Environment. EPR NP-225, Sept. 1976
- /9/ Hofmann, P. et al.: 1.PNS-Halbjahresbericht 1977, KFK 2500 (1978)
- /10/ Hofmann, P., Colitis, C.: Thermal Reactor Safety Meeting of the ANS, August 1977, Sun Valley, Idaho, USA
- /11/ Hofmann, P. et al.: 2.PNS-Halbjahresbericht 1976, KFK 2435, S.306-331
- /12/ Schneider, H., Nold, E.: KFK 2273 (Okt. 1976)
- /13/ Quapp, W.J., McCardell, R.K.: OECD-CSNJ, Rep. No.13. Spec.Spatind, Norwegen (1976)
- /14/ Quapp, W.J. et al.: Thermal Reactor Safety Meeting of the ANS, August 1977, Sun Valley, Idaho, USA
- /15/ Grossmann, L.N., Rooney, D.M., GEAP-4679 (1965)
- /16/ Mallett, M.W. et al.: BMI - 1210 (1957)

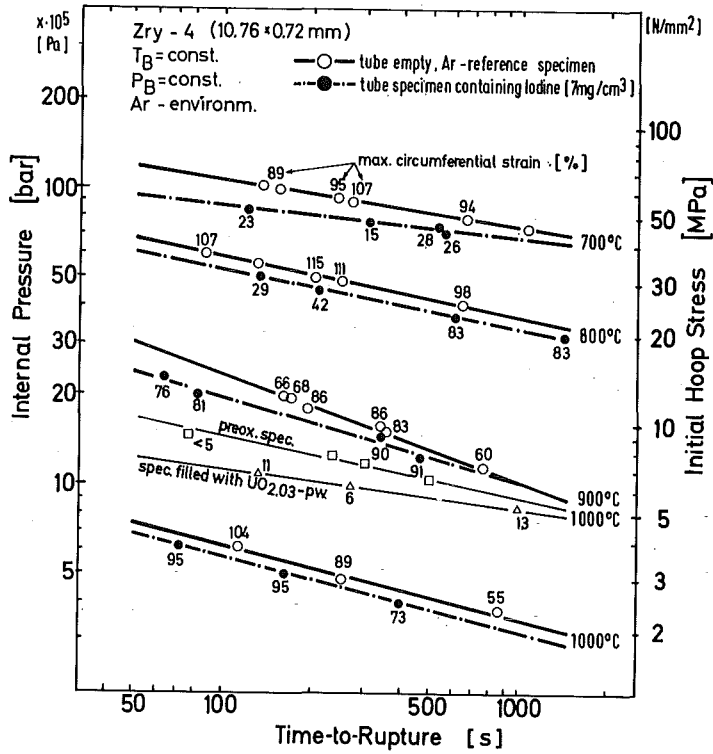


Abb.4235-29: Standzeit von as-received Zry-4-Hüllrohren in Argon in Abhängigkeit vom Innendruck für verschiedene Temperaturen (mit Angabe der max. Umfangsdehnung). Als Druckmedium diente Argon bzw. ein Argon/Jodgas-Gemisch

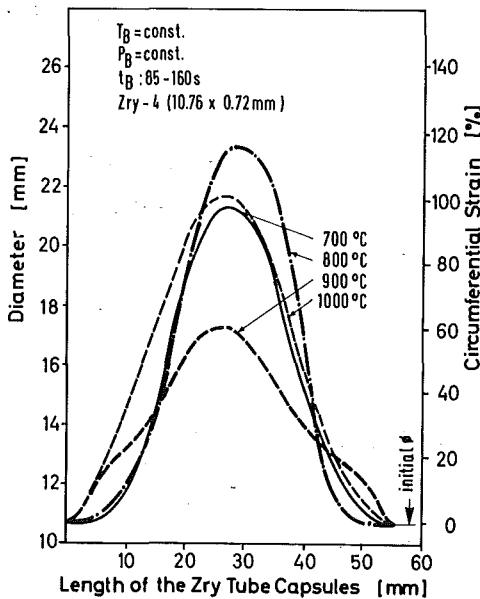


Abb.4235-30: Verformung von as-received Zry-4-Standzeitproben in Argon bei verschiedenen Temperaturen. Als Druckmedium diente Argon (Proben waren jodfrei)

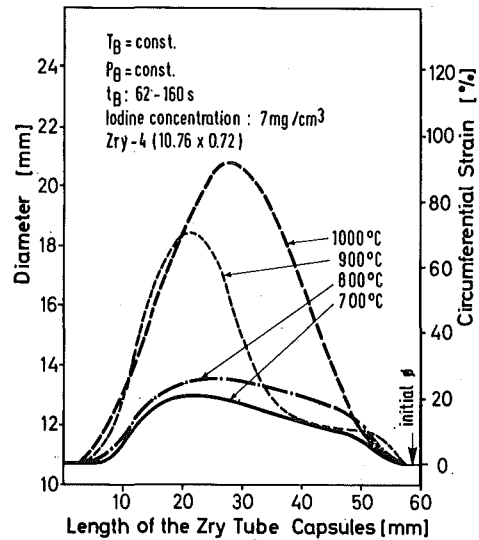


Abb.4235-31: Verformung von as-received Zry-4-Standzeitproben in Argon bei verschiedenen Temperaturen in Gegenwart von Jod. Als Druckmedium diente Argon/Jodgas-Gemisch

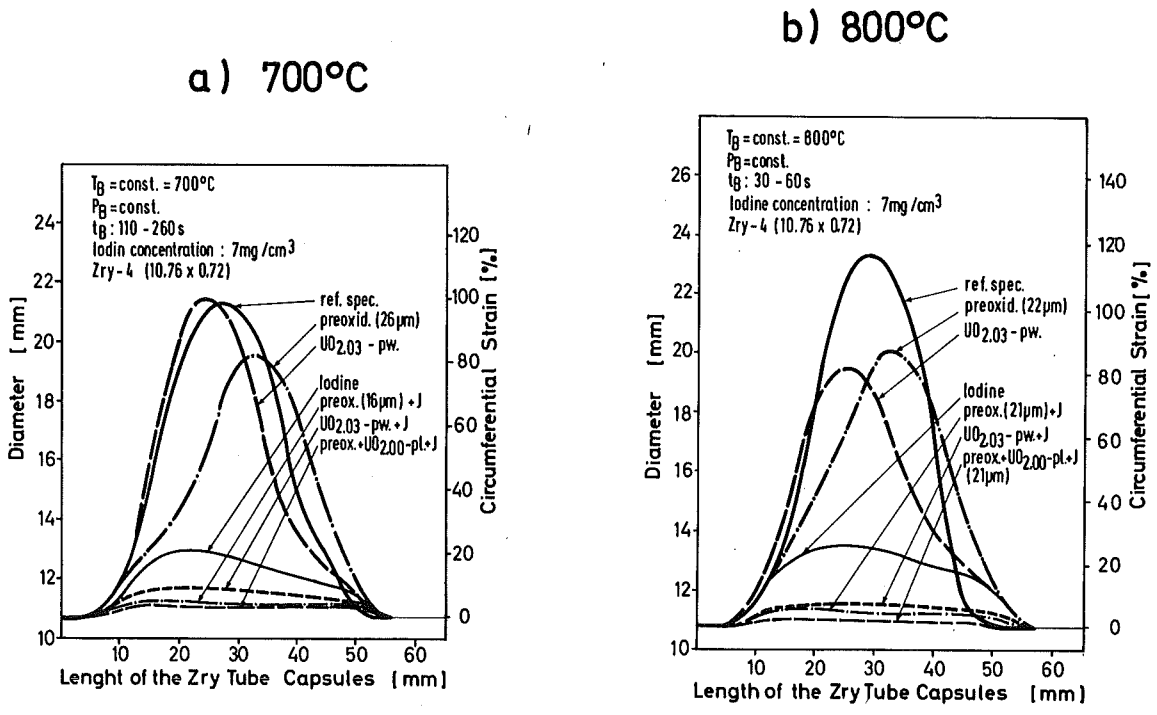


Abb.4235-32: Verformung von Zry-Hüllrohren nach Zeitstandversuchen in Argon. Die Hüllrohre waren z.T. innen voroxidiert und/oder mit UO_2 -Brennstoff gefüllt; teilweise enthielten die Rohrproben noch Jod. Die Gegenwart von Jod hat bei 800 und 800°C einen grossen Einfluss auf die Berstdehnung, nicht jedoch bei 900°C . Isotherme Glühtemperatur: a) 700°C , b) 800°C , c) 900°C

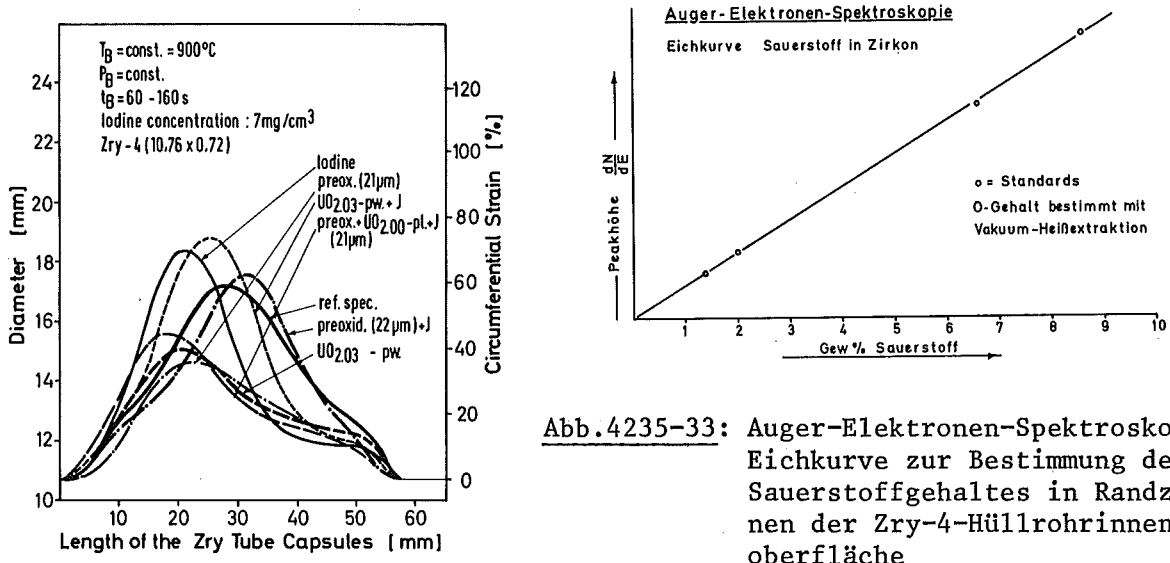
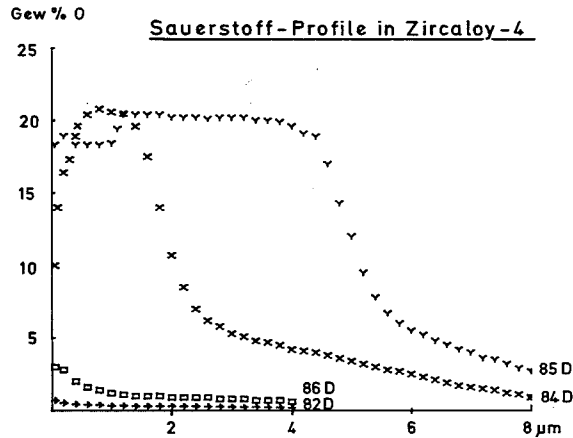


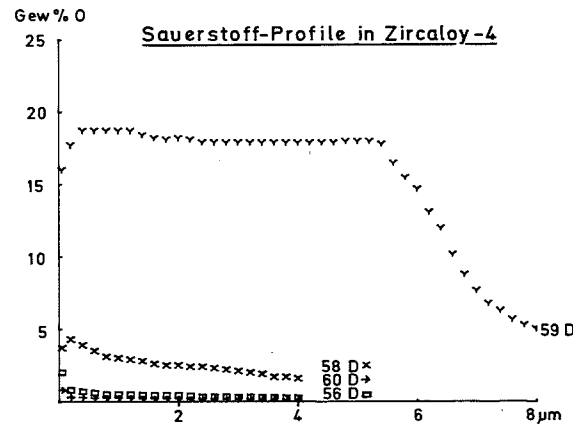
Abb.4235-33: Auger-Elektronen-Spektroskopie-Eichkurve zur Bestimmung des Sauerstoffgehaltes in Randzonen der Zry-4-Hüllrohrinnenoberfläche

a)



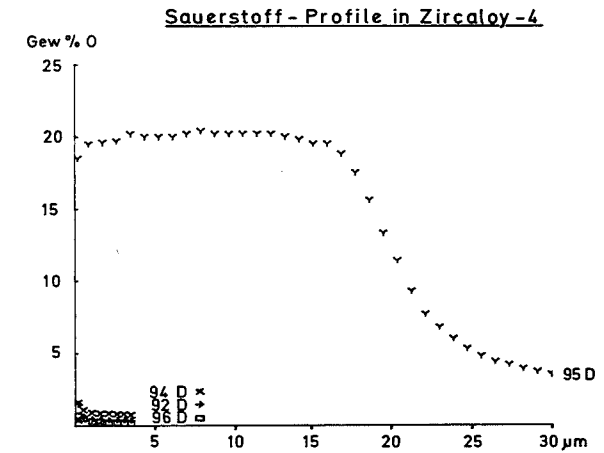
→ 82 D Zry-4 + Ar	872°C 1' 26" 49,1 bar
<u>O = 0,13 % Ø</u>	
× 84 D Zry-4 + UO _{2,003} Pulver	896°C 2' 18" 45,2 bar
<u>O = 0,18 % Ø</u>	
∇ 85 D Zry-4 + UO _{2,056} Pulver	891°C 2' 48,8 bar
<u>O = 0,23 % Ø</u>	
◻ 86 D Zry-4 + UO _{2,005} Pellet	904°C 2' 40" 39 bar
<u>O = 0,14 % Ø</u>	

b)



→ 56 D Zry-4 + Ar	922°C 1' 50" 30 bar
<u>O = 0,13 % Ø</u>	
× 58 D Zry-4 + UO _{2,003} Pulver	922°C 2' 30" 30 bar
<u>O = 0,16 % Ø</u>	
∇ 59 D Zry-4 + UO _{2,047} Pulver	928°C 2' 20" 30 bar
<u>O = 0,34 % Ø</u>	
◻ 60 D Zry-4 + UO _{2,005} Pellet	919°C 2' 47" 30 bar
<u>O = 0,14 % Ø</u>	

c)

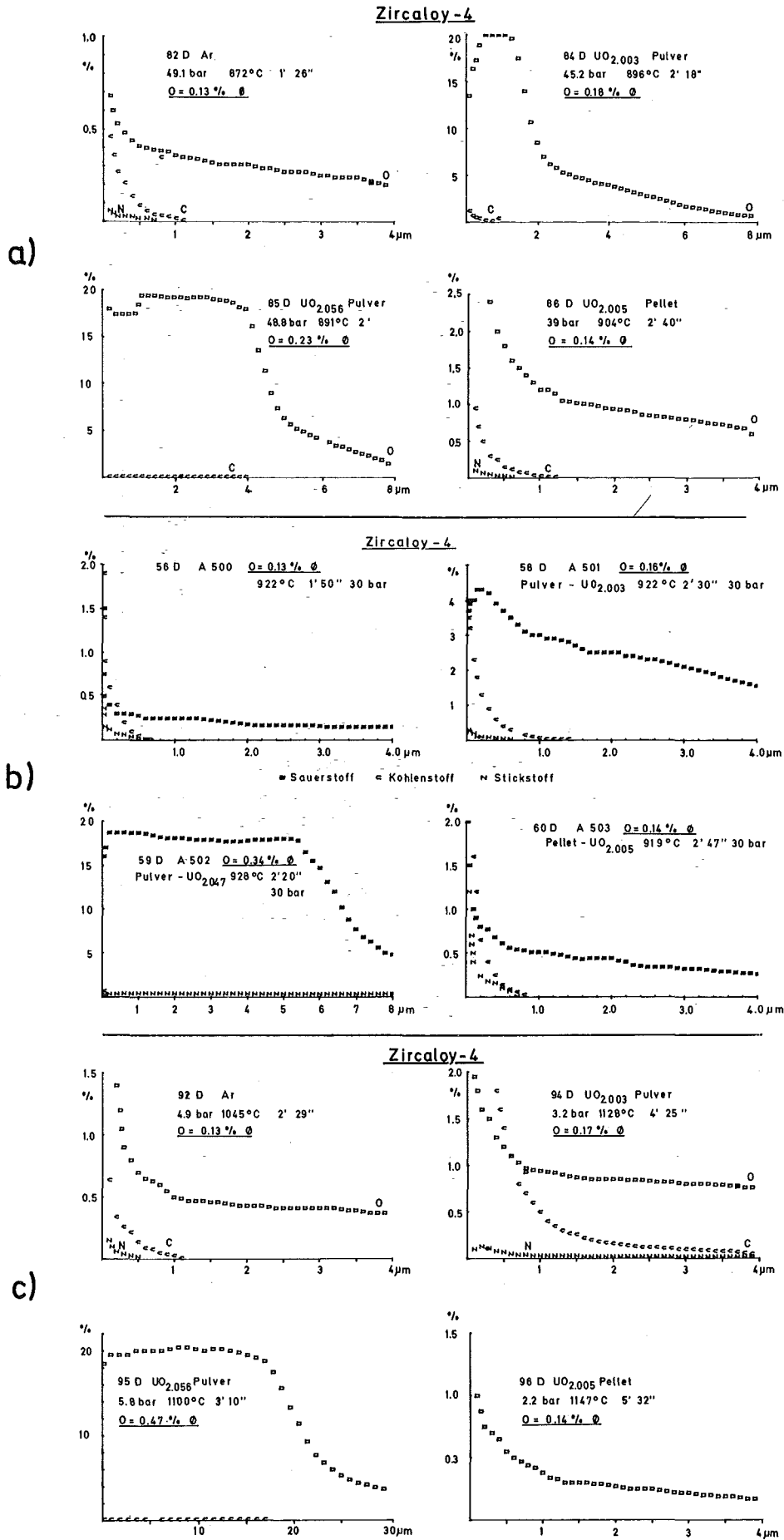


→ 92 D Zry-4 + Ar	1045°C 2' 29" 4,9 bar
<u>O = 0,13 % Ø</u>	
× 94 D Zry-4 + UO _{2,003} Pulver	1128°C 4' 25" 3,2 bar
<u>O = 0,17 % Ø</u>	
∇ 95 D Zry-4 + UO _{2,056} Pulver	1100°C 3' 10" 5,8 bar
<u>O = 0,47 % Ø</u>	
◻ 96 D Zry-4 + UO _{2,005} Pellet	1147°C 5' 32" 2,2 bar
<u>O = 0,14 % Ø</u>	

Abb.4235-34: Sauerstoffgehalt in den Randzonen der Hüllrohr-Innenoberfläche von UO₂- bzw. Argon-gefüllten Zry-4-Rohrproben nach transienten Berstversuchen mit maximalen Hüllmaterialtemperaturen zwischen:

a) 891 - 904°C, b) 919 - 928°C, c) 1100 - 1147°C.

Der Sauerstoffgehalt in den oberflächennahen Zonen hängt u.a. stark vom O/U-Verhältnis des UO₂ ab und beträgt bis etwa 20 Gew.%. Zum Vergleich sind die Sauerstoffgehalte der Zry-4-Hüllrohre über dem Gesamtquerschnitt angegeben.



• Abb. 4235-35: Sauerstoff-, Stickstoff- und Kohlenstoffgehalt in den Randzonen der Zry-Hüllrohroberfläche von UO₂- und Argon-gefüllten Rohrproben nach transienten Berstversuchen mit maximalen Hüllmaterialtemperaturen zwischen:

a) 891 - 904°C, b) 919 - 928°C, c) 1100 - 1147°C

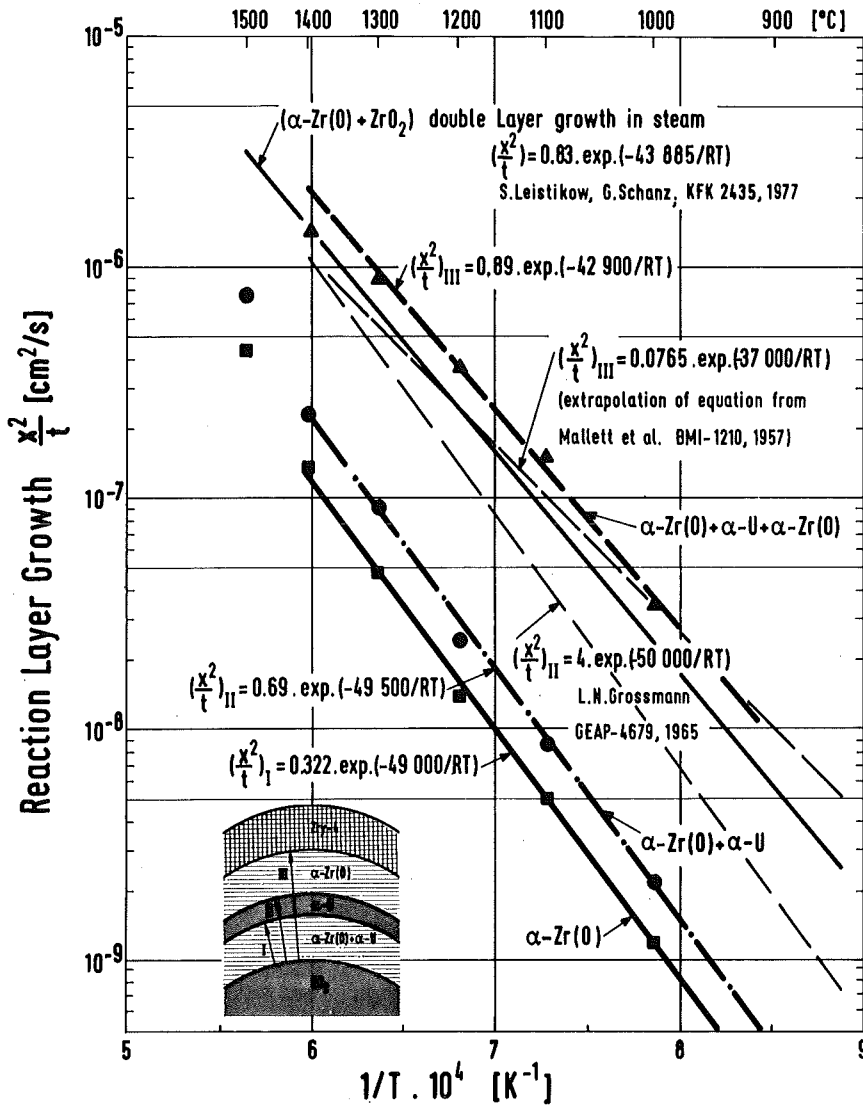
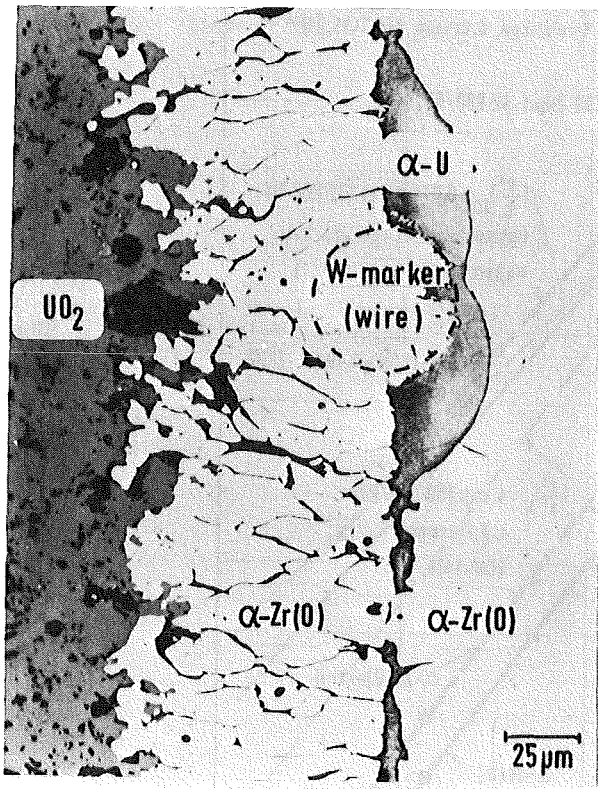
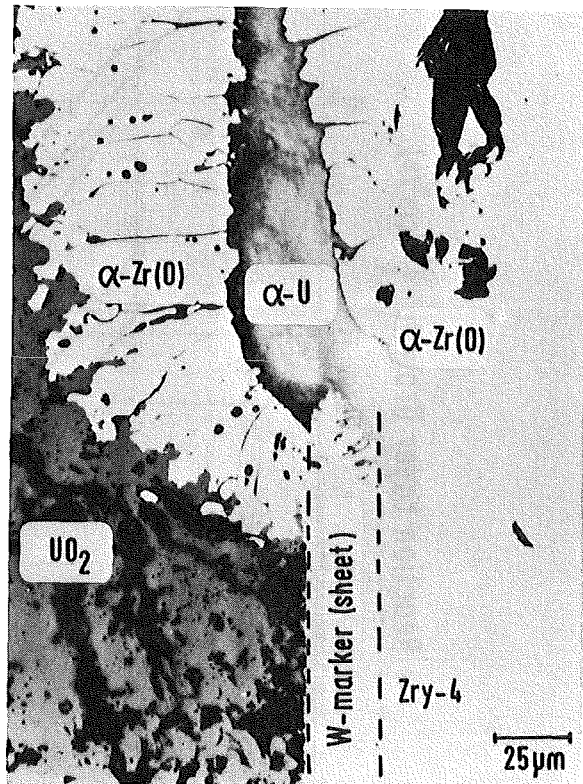


Abb.4235-36: Arrhenius-Darstellung der chemischen Wechselwirkungen zwischen dem UO_2 und Zry und Vergleich mit extrapolierten Daten aus der Literatur /15,16/. Zur Bestimmung der tatsächlichen Eindringtiefe des Sauerstoffs in das Zry muss die ursprüngliche UO_2 /Zry-Phasengrenze bekannt sein, um die dargestellten Werte zu korrigieren.

- I: α -Zr(O)
- II: α -Zr(O) + (U,Zr)-Legierung
- III: α -Zr(O) + (U,Zr)-Legierung + α -Zr(O)



W - wire



W - sheet

Abb.4235-37: Metallographische Versuchsergebnisse von Experimenten zur Bestimmung der ursprünglichen UO_2/Zry -Phasengrenze nach den Reaktionsglühungen mit Hilfe von Wolfram-Markern (Draht bzw. Blech) zwischen dem UO_2 und Zry. Versuchsbedingungen:

$T = 1200^{\circ}C$, $t = 60 \text{ min}$, $\Delta p = 80 \text{ bar}$.

Das Zr diffundiert unter gleichzeitiger Reaktion mit dem UO_2 in den Brennstoff. Nach Lage der W-Marker liegt die ursprüngliche Phasengrenze im Bereich der α -Uran-Phase, die noch geringe Mengen Zr enthält.

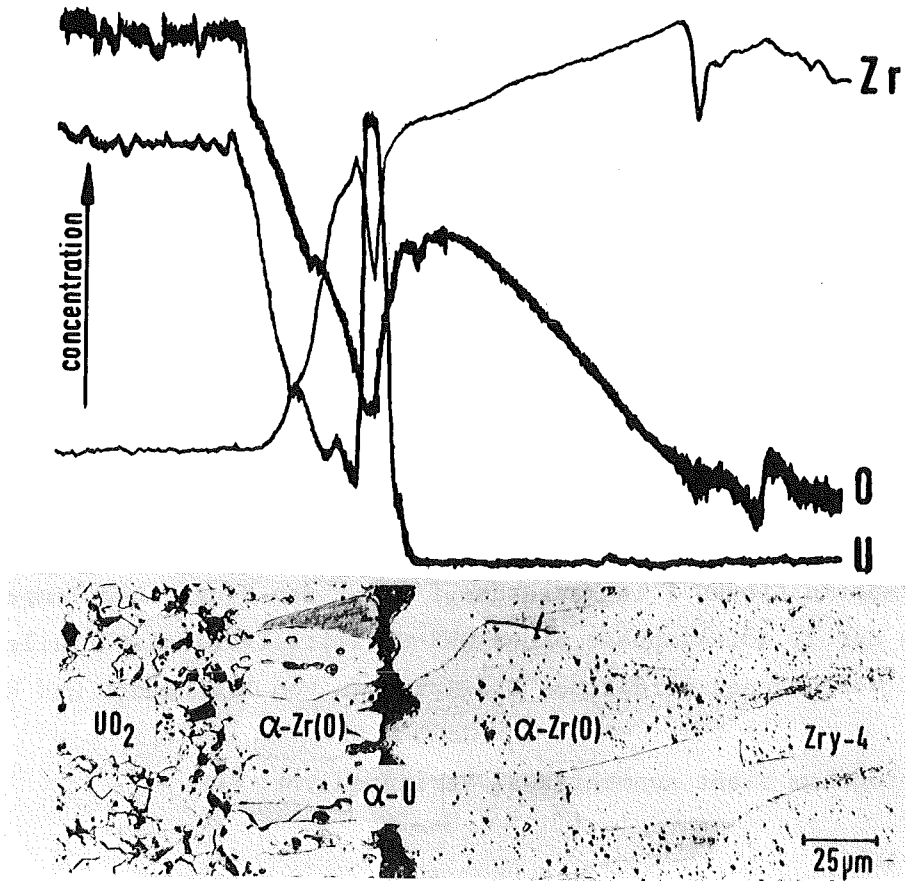


Abb.4235-38: Zuordnung von AES-Konzentrationsprofilen von U, Zr und O zu den einzelnen Phasen nach der UO_2/Zry -Reaktionsglühung bei $1400^\circ C/3$ min

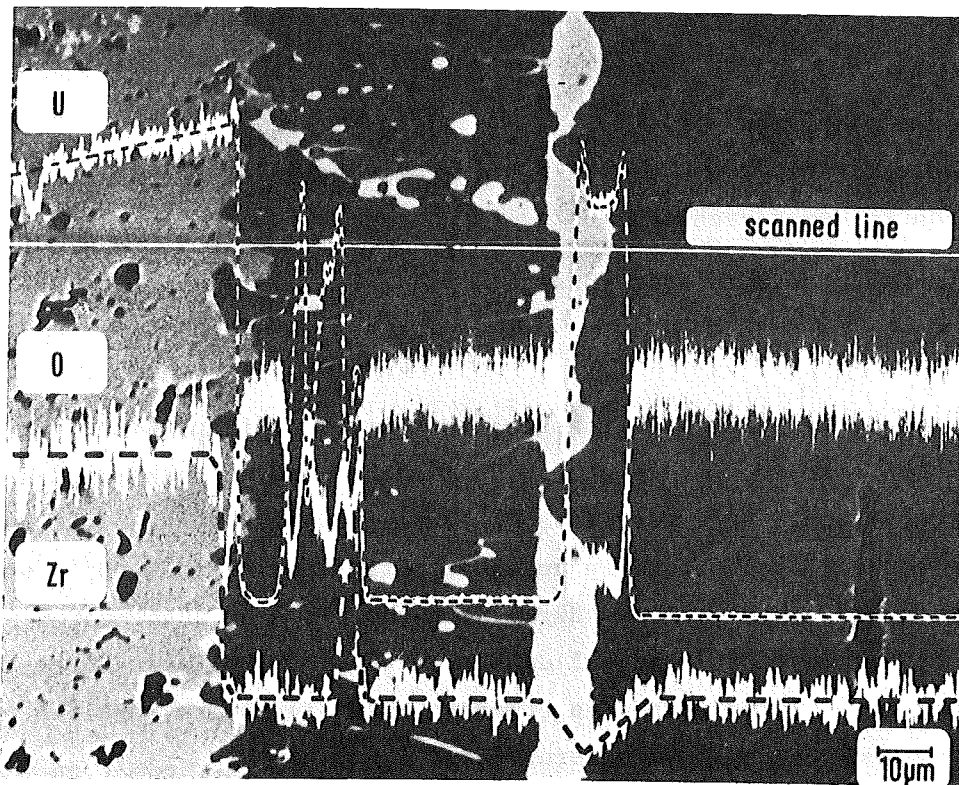


Abb.4235-39: Zuordnung von Mikrosonden-Konzentrationsprofilen von U, Zr und O zu den einzelnen Phasen nach der UO_2/Zry -Reaktionsglühung bei $1300^\circ C/10$ min

4235.4 Berstversuche an Zircaloy-Hüllrohren unter kombinierter
mechanisch-chemischer Beanspruchung

(L. Schmidt, H. Lehning, K. Müller, IMF III
S. Leistikow, D. Jennert, IMF II)

1. Vorläufiges Testprogramm

Die Experimente dienen dem Zweck der Prüfung des Dehnungs- und Berstverhaltens von indirekt beheizten, brennstoffgefüllten Zircaloy-Hüllrohren (Brennstabsimulatoren) in Wasserdampf unter den Druck- und Temperaturbedingungen der 2. Aufheizphase eines DWR-Kühlmittelverluststörfalles sowie den damit verbundenen oxidativen Einwirkungen von Brennstoff und Kühlmittel.

Das Testprogramm sieht nunmehr zwei Varianten vor:

I. Heißstab

Temperaturrampe bis ca. 1.000°C mit anschließender schneller Abkühlphase bei abgeschalteter elektrischer Leistung und erhöhtem Dampfdurchsatz.

Druck im Brennstabsimulator konstant bzw. als Zeitfunktion.

II. Normalstab

Temperatur auf ca. 700°C konstant bei einer Stabileistung von ca. 15 W/cm und erhöhtem Dampfdurchsatz.

Druck im Brennstabsimulator konstant.

Der zweite Bedarfsfall hat sich erst in neuerer Zeit auf Grund von Versuchsergebnissen ergeben, die zeigen, daß bei axial und azimuthal gleichmäßiger Temperaturverteilung der einsetzende Kriechverformungsvorgang nicht zur Ausbildung lokaler Beulen, sondern zu einer rotationssymmetrischen Aufweitung über die gesamte Probenlänge führen kann. Von der hier angewandten Simulation der wahren Temperaturverteilung auf der Hülle eines Brennstabes durch indirekte Beheizung wird begründetermaßen erwartet, daß sie andere, örtlich begrenzte Dehnungs- und Schadensformen verursacht.

Es ist notwendig, der Testphase II zunächst eine Vorversuchsphase zur exakten meßtechnischen Erfassung der Versuchsrandbedingungen vorzuschalten:

Bei niedriger Stableistung, beheiztem Dampfführungsrohr und geringem Dampfdurchsatz (Heißdampf) wird eine über den Umfang der Zircaloy-Hülle konstante Temperatur von ca. 700°C eingestellt.

Die Hülle wird mit einem konstanten Innendruck beaufschlagt.

2. Versuchseinrichtung

Die im vorangegangenen Halbjahresbericht kurz dargestellte Versuchseinrichtung wurde teilweise schon für die II. Testphase modifiziert. Der prinzipielle Aufbau bleibt unverändert, hingegen müssen einzelne Anlagenteile wie Dampferzeuger und Kondensator entsprechend größer ausgelegt werden. Die Neukonstruktion des Kondensators erfordert aus Sicherheitsgründen ein geschlossenes Kühlsystem, das auf Urankontamination aus den Brennstabsimulatoren überwacht werden kann. Es ist vorgesehen, einen vorhandenen Kühlkreis einzusetzen, der bei 4 m³/h Durchsatz eine Wärmemenge von 15 kW abführt. Für die I. Testphase bleibt die Teststrecke in ihrer bisherigen Ausführung mit pyrometrischer Temperaturmessung bestehen.

Die Teststrecke mit dem Brennstabsimulator muß für die II. Testphase umgestaltet werden, da die zu erwartende unterschiedliche azimutale Temperaturverteilung mit der jetzigen pyrometrischen Meßanordnung nicht erfaßbar ist. Hierzu müssen noch grundsätzliche Überlegungen angestellt werden, weil auch die Temperaturmessung mit außen auf der Hülle aufgebrachten Thermoelementen problematisch ist und größere Meßfehler nicht ausschließt. Bei der Lösung dieses Problemes soll auf Erfahrungen und Ergebnisse zurückgegriffen werden, die im Rahmen des PNS-Vorhabens 4238 anfallen.

3. Vorversuche zur Temperaturmessung

Die Teststrecke ist mit drei übereinander angeordneten Spektralpyrometern ausgerüstet. Der Meßbereich liegt zwischen zunächst 555 und 1.012°C und kann ohne größere Eingriffe auf 670 bis 1.290°C umgestellt werden. Die Pyrometer haben einen oszillierenden Meßstrahl (Meßfolge 162 Hz) und einen Maximalwertspeicher. Dadurch wird beim Aufbeulvorgang, bei dem die Oxidschicht aufreißt und sehr kurzzeitig helle Stellen an der Oberfläche frei werden,

mit großer Wahrscheinlichkeit eine fehlerfreie Messung ermöglicht. Dieses Meßverfahren setzt eine genaue Kenntnis der Emissionszahl unter Berücksichtigung des Absorptionsvermögens des Heißdampfes und der Quarzglasfenster in der gewählten Ordnung voraus. In einer der Teststreckengeometrie nachgebildeten Versuchs-Anordnung, Abb. 4235-40, wurde an einem Testprüfling, Abb. 4235-41, durch Vergleichsmessungen mit geeichten Thermoelementen die Emissionszahl im Bereich von 500 bis 800°C bestimmt. In weiteren Versuchen sollen höhere Temperaturen eingestellt werden. Es hat sich gezeigt, daß unmittelbar vor jedem Versuch die metallisch blanke Staboberfläche bei mindestens 550°C in einer Heißdampfumgebung voroxidiert werden muß. Im Diagramm, Abb. 4235-42, ist der zeitliche Verlauf der Oberflächenschwärzung durch Oxidbildung dargestellt. Die ermittelte Emissionszahl von 75 % ändert sich über die vorgesehene Versuchszeit im Minutenbereich nicht mehr. Änderungen der Emissionszahl von ± 5 % ergeben z.B. bei einer Oberflächentemperatur von 800°C eine Abweichung, die innerhalb der Meßgenauigkeit einer üblichen Thermoelementanordnung liegt.

4. Aktueller Stand des Vorhabens

- Die Konstruktion der Teststrecke ist abgeschlossen und die Fertigung in die Wege geleitet.
- Für die Dampfversorgungsanlage konnte die Konstruktion des Dampferzeugers abgeschlossen und zur Fertigung gegeben werden. Überhitzer, Kühler und Kondensator wurden spezifiziert.
- Die erforderlichen elektrischen Versorgungs-, Regel- und Meßeinrichtungen wurden in Auftrag gegeben.
- Die Erweiterung der Speicherkapazität der Datenerfassungsanlage ist weitgehend abgeschlossen.
- Zur pyrometrischen Temperaturmessung wurde eine spezielle Testanordnung aufgebaut und weitere Vorversuche durchgeführt. In dieser Anordnung sollen auch die elektrischen Innenheizer erprobt werden.
- Für die Brennstabsimulatoren konnte das Hüll- und Stopfenmaterial sowie Aluminiumoxidpellets beschafft werden. Die Uranpellets wurden spezifiziert und werden für ca. 40 Brennstabsimulatoren aus Beständen des PNS-Vorhabens 4238 zur Verfügung gestellt.

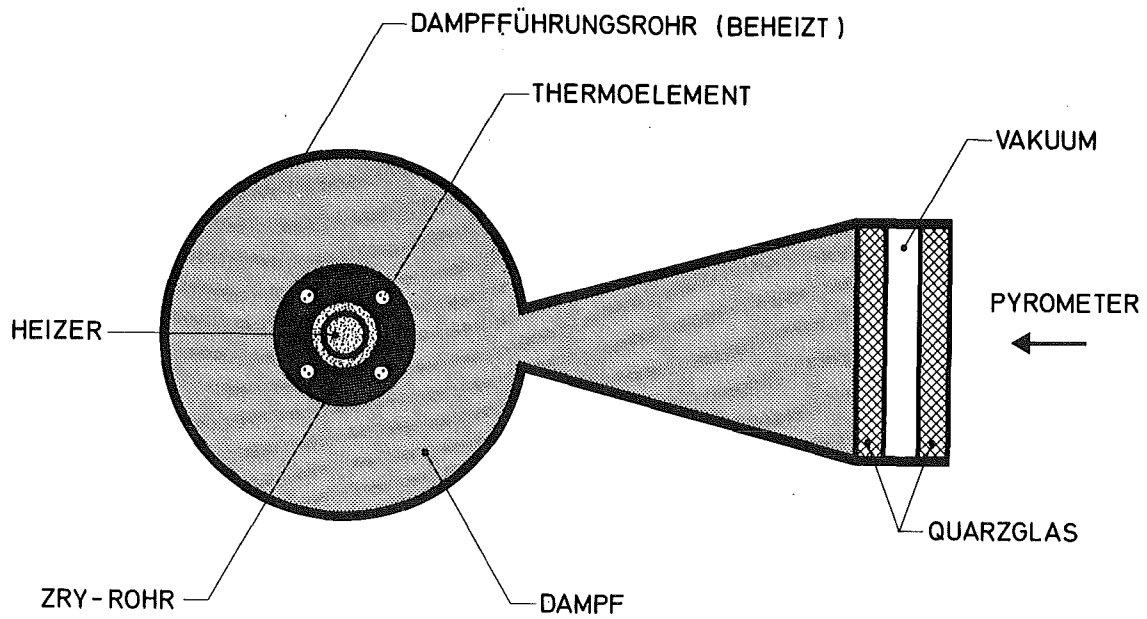


Abb. 4235-40: Versuchsanordnung für pyrometrische Temperaturmessung

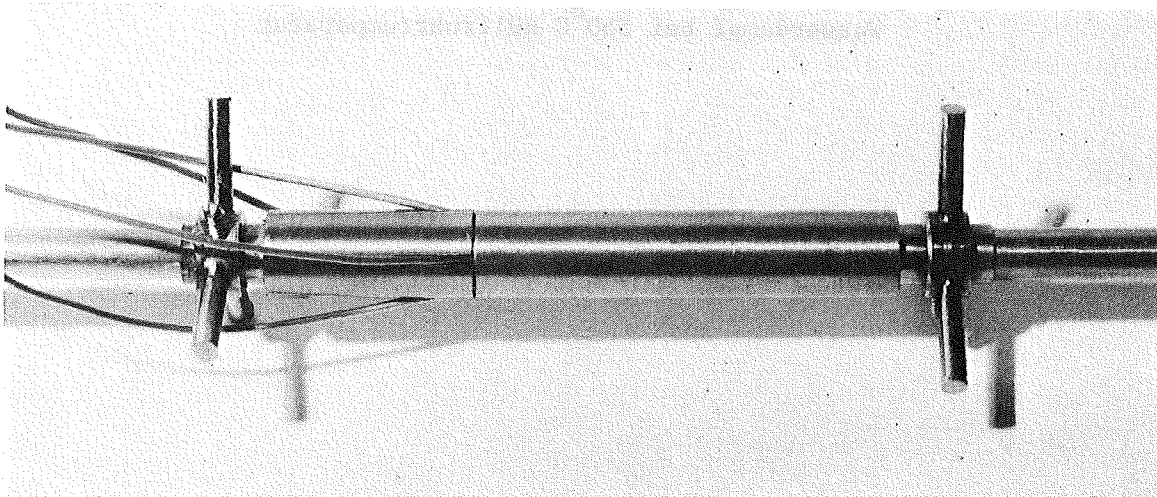


Abb. 4235-41: Testprüfling

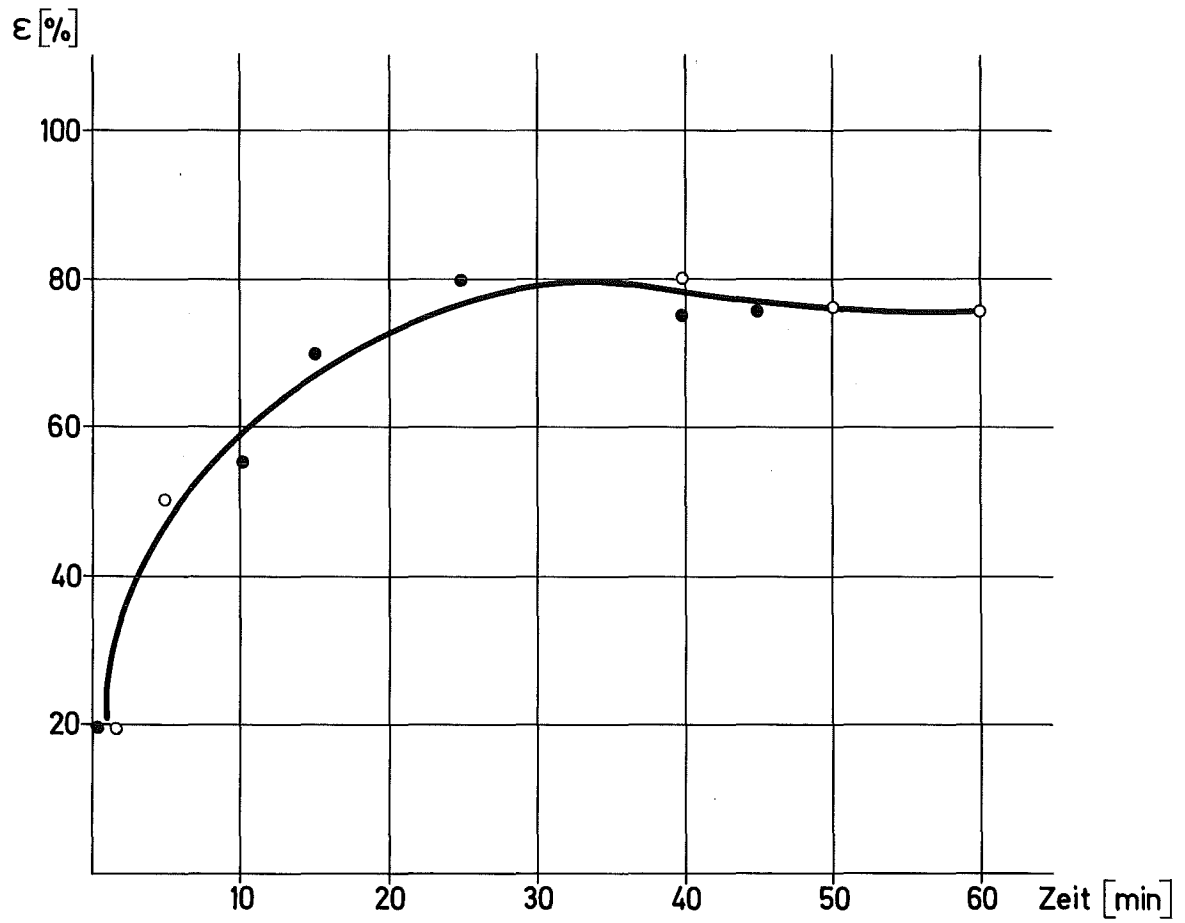


Abb. 4235-42: Änderung des Emissionsvermögens durch Voroxidation in Wasserdampf bei 550°C Hüllrohrtemperatur

4236 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown-
Phase eines Kühlmittelverluststörfalls

Out-of-pile Experimente mit elektrisch beheizten Einzelstäben

(G. Class, D. Fömpe, IRE; K. Hain, F. Brüderle, N. Paroth,
T. Vollmer, K. Wagner, RBT)

Mit Beginn des zweiten Halbjahres erfolgte die Aufnahme des Experimentierbetriebes mit der Versuchsanlage COSIMA. Obwohl noch weitere Schwierigkeiten mit der elektronischen Meßwerterfassung und dem Interface für den rechnergesteuerten Blowdown-Ablauf zu überwinden waren (und z.T. noch bestehen), wurde eine erste Serie von 12 rechnergesteuerten Blowdown-Versuchen durchgeführt.

Zugleich wurde ein Ventilsteuerprogramm für die Simulation eines 2F-Bruches im kalten Strang zwischen Pumpe und Reaktordruckbehälter nach Vorausberechnung und anschließender iterativer Verbesserung anhand der Versuchsergebnisse erstellt.

Auch die Entwicklung der Sondermeßverfahren zur pyrometrischen Messung der Hüllrohrtemperatur während der Transienten und insbesondere das True-Mass-Flow-Meter (TMFM) zur direkten Messung des transienten Zweiphasenmassenstromes in den Ausströmleitungen konnten bis zur Einsatzreife unter Blowdown-Bedingungen geführt werden. Für das TMFM bestätigte sich die aus den kalten Luft-Wasser-Vorversuchen abgeleitete Erwartung einer Meßgenauigkeit von etwa $\pm 5\%$ für den Momentanwert (bezogen auf den Skalendwert) und einer Reproduzierbarkeit des integralen Ausflusses von etwa $\pm 3\%$. Die Beeinflussung des TMFM-Nullpunktes während der Blowdown-Transiente durch die Temperatur- und Druckabhängigkeit des Meßsystems ist von der gleichen Größenordnung wie die Meßgenauigkeit.

Soweit es die aufgezeichneten Meßdaten erlaubten, erfolgte mit dem fertiggestellten Rechenprogramm COSIMA-A eine Auswertung der ersten Versuche.

In den Experimenten erwies sich sowohl die Gesamtanlage wie auch der

Simulationsbrennstab auf der Basis Al_2O_3 -Pellets als voll funktions-tüchtig. Stableistungen von über 700 W/cm konnten ohne Schwierigkeiten beherrscht werden. Die Meßergebnisse zeigen, daß mit dem gewählten Anlagen- und Steuerungskonzept die Einstellung von vorgewählten reaktortypischen Versuchsbedingungen in der Teststrecke möglich ist. Die gemessenen Druck- und Hüllrohrtemperaturtransienten sind reproduzierbar und konnten in befriedigendem Maße den vorgegebenen Referenzverläufen angeglichen werden, wie aus den Abb. 4236-1 und -2 zu ersehen ist. Die Abb. 4236-3 zeigt einen charakteristischen Meßwertverlauf des TMFM am Unterplenum. Das zugehörige Ventilsteuerprogramm, Abb. 4236-4, läßt die Reaktion des Leckmassenstromes auf Änderungen der Ventilstellung deutlich erkennen.

Hinsichtlich der Nachrechnung der in der Teststrecke auftretenden Massenstromverläufe ist das Auswerterechenprogramm noch nicht fertiggestellt. Diese Nachrechnung soll zur weiteren Überprüfung der Übereinstimmung der Bedingungen in der Teststrecke mit den vorgegebenen Referenzverläufen dienen. Es zeigte sich, daß beim Vorliegen hoher Dampfgehalte in den Ausström-Nodes die Rechnung sehr empfindlich auf Änderungen der Leckmassenströme in der Größenordnung der TMFM-Meßfehler reagiert. Liegt der Meßwert bei hohem Dampfgehalt ein wenig zu hoch, dann wird wegen der geringen Dichte des ausströmenden Mediums ein merklich zu großer Volumenstrom aus der Apparatur entnommen, wodurch der Druck in der Rechnung relativ schnell abfällt. Die theoretischen Arbeiten werden sich daher zunächst verstärkt auf die Versuchsnachrechnung konzentrieren.

Nachdem zu erwarten ist, daß in Kürze die Versuchsnachrechnungen befriedigend beherrscht werden, kann der Versuchsbetrieb mit Brennstabsimulatoren mit Innendruck in naher Zukunft aufgenommen werden. Diese Versuche dienen der Verifikation von SSYST, womit erstmals COSIMA das eigentliche Versuchsziel erreicht haben wird. Daneben sind Versuche mit dem Brennstab zur Messung der Wärmeübergangskoeffizienten am Brennstabsimulator durchzuführen und es ist die Entwicklung des Simulationsbrennstabes auf der Basis von ThO_2 -Ringpellets weiterzutreiben. In das noch zu präzisierende Versuchsprogramm sollen u.U. auch PBF-bezogene (Power burst facility) Versuche aufgenommen werden.

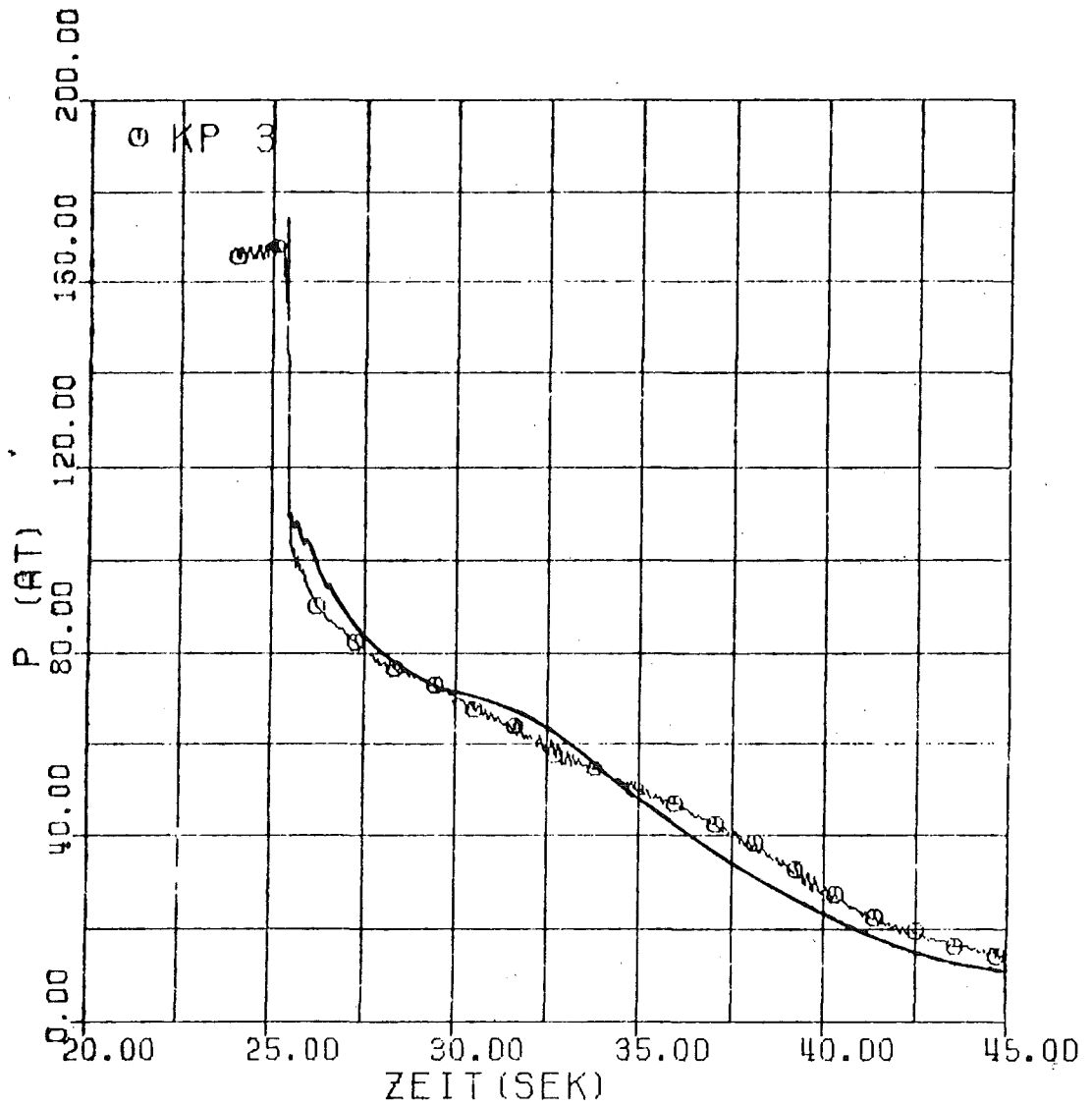


Abb. 4236 - 1: Drucktransiente beim Kühlmittelverluststörfall
(2F-Bruch zwischen Pumpe und Reaktordruckbehälter)

- DWR (Biblis - Typ)
- COSIMA Versuch Nr. 7 vom 3.11.1977

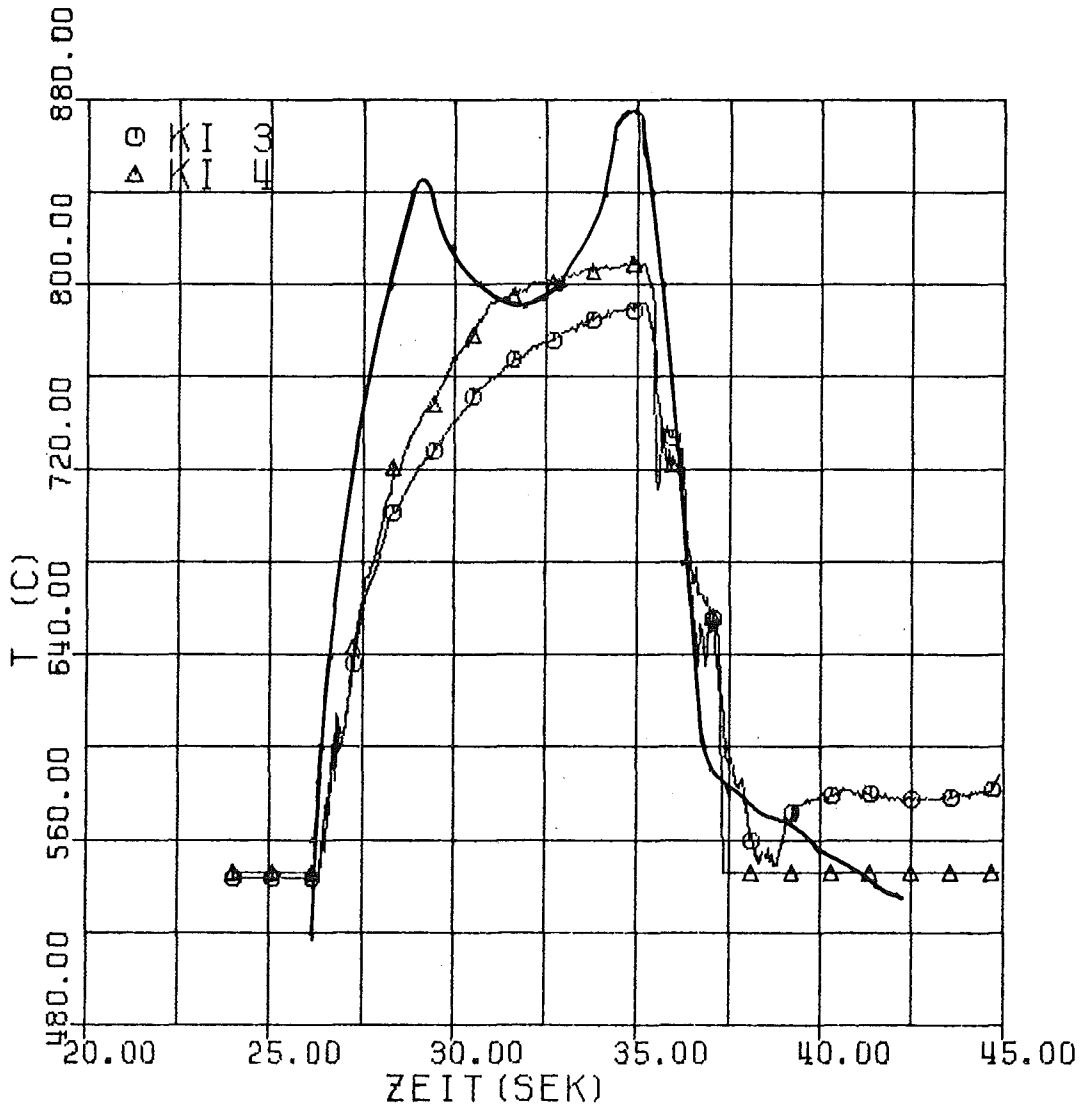


Abb. 4236 - 2: Hüllrohrtemperaturtransienten beim Kühlmittelverluststörfall (2F-Bruch zwischen Pumpe und Reaktordruckbehälter)

— DWR (Biblis - Typ)
○ } COSIMA Versuch Nr. 9 vom 5.12.1977
△ }

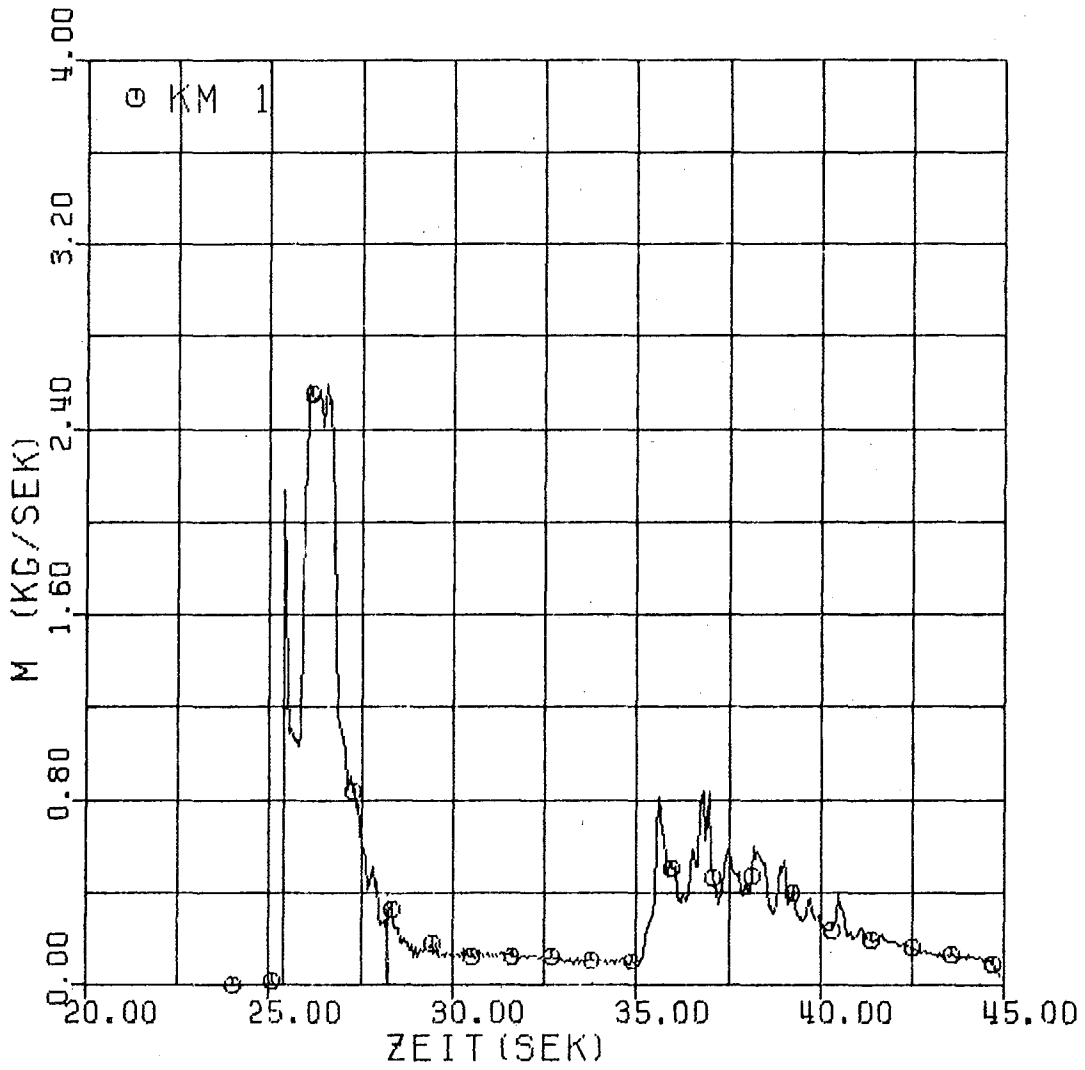


Abb. 4236 - 3: Leckmassenstrom am Unterplenum
COSIMA Versuch Nr. 9 vom 5.12.1977

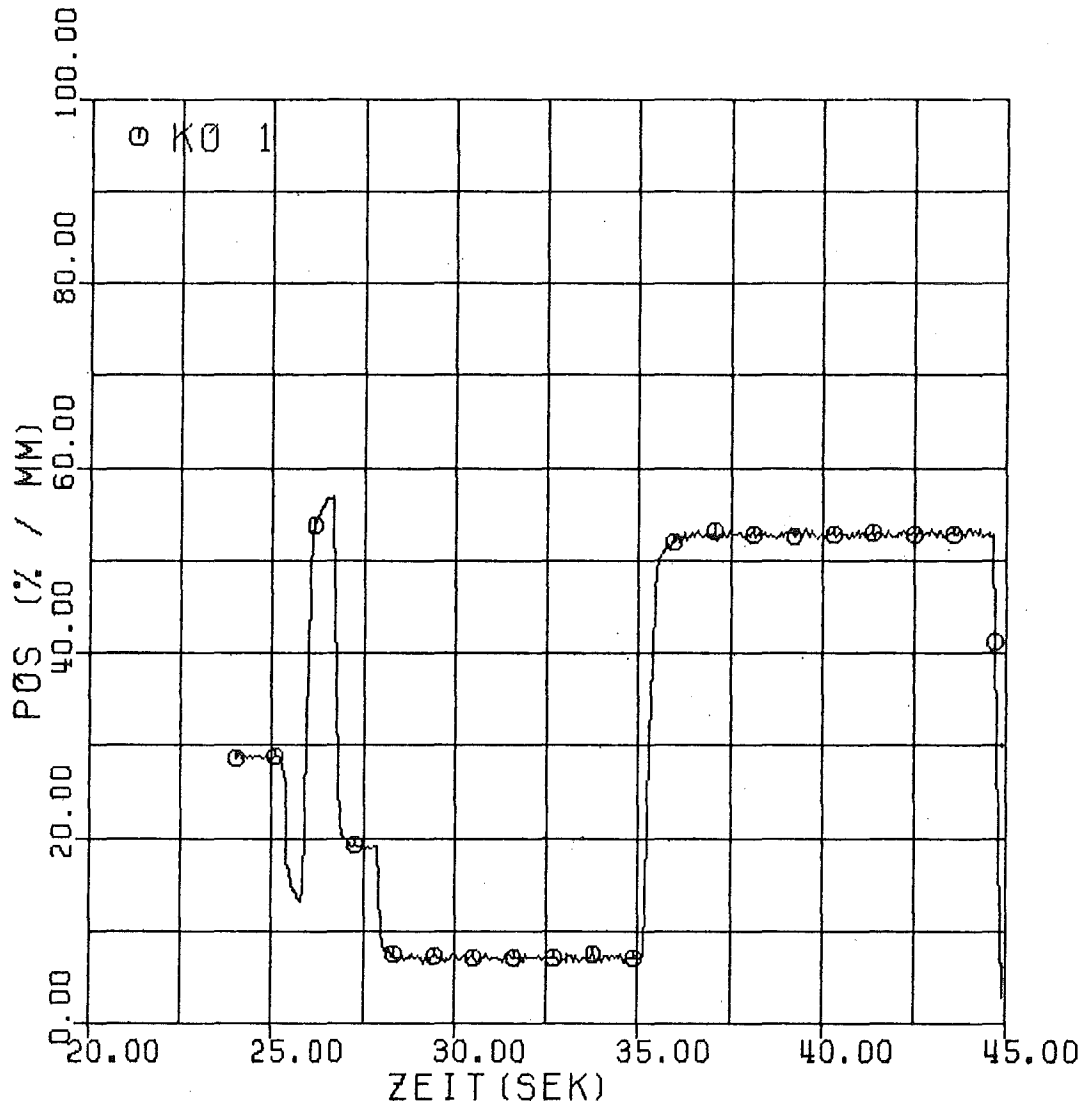


Abb. 4236 - 4: Ventilsteuerprogramm Unterplenum
COSIMA, Versuch Nr. 9 vom 5.12.1977

4237 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverluststörfalles.
In-pile-Versuche mit Einzelstäben im DK-Loop des FR2.
Nuklearversuche und Referenzversuche.
(B. Räßle, K. Baumgärtner, A. Grünhagen, G. Harbauer, M. Hespeler, H. Junker, E. Karb, W. Knappschneider, W. Legner, W. Leiling, H. Lukitsch, M. Prüßmann, K. Wagner, IT)

1. Referenzversuche

Mit Rücksicht auf die Priorität der Nuklearstabversuche, vor allem wegen der umfangreichen Vorbereitungen für die Versuche mit vorbestrahlten Stäben, wurden die Versuche mit elektrisch beheizten Stäben auf eine BSS-Versuchsreihe beschränkt zur

- weiteren Absicherung der Temperaturkorrekturwerte und der Einengung der Bandbreite
- Ermittlung des azimutalen Temperaturprofils des Hüllrohres in der vorliegenden Versuchsanordnung
- Erprobung einer für die Montage vorbestrahlter Prüflinge entwickelten Dampfmischer-Konstruktion
- Erprobung einer beulfähigen BSS-Version.

Der Korrekturwert von 75 K bei einer Stableistung von 50 W/cm hat sich bestätigt, die maximalen Abweichungen von diesem Wert lagen bei < 15 K gegenüber den früheren Angaben von ± 35 K. Korrekturwerte bei anderen Stableistungen konnten wegen eines Defektes an der Stabhülle des BSS 07 nicht gewonnen werden.

Am Umfang des Stabes wurden an gleicher axialer Position 3 TE in die Wand eingebettet. Die damit am nicht deformierten Simulator-Stab ermittelten Unterschiede der Wandtemperatur lagen bei allen Leistungsstufen unter 10 K.

Die neue Mischerkonstruktion zeigte im Betrieb keine Nachteile im Vergleich zu der früheren Ausführung. Die neue Prüflingskonstruktion hat sich ebenfalls bewährt und kann mit geringen Abänderungen für die Referenzstäbe verwendet werden.

2. Nuklearversuche

Das vorgesehene Programm der Versuche mit frischen Nuklearstäben war im 1. Halbjahr 1977 mit 3 Versuchen beendet worden, die mit Dampfbypaß gefahren wurden. Die Auswirkungen des Bypaß-Betriebes auf die Oxidation können erst bei den Nachuntersuchungen festgestellt werden. Die für die Oxidation geforderte Menge von $< 0,02$ kg Dampf pro Stunde ließ sich technisch nicht realisieren. Der tatsächliche Durchsatz betrug ca. $0,3 - 0,5$ kg/h. Der Kühleffekt dieser Dampfmenge ist nicht vernachlässigbar:

Im Bypaß-Betrieb ergibt sich während der ersten 10 bis 20 Sekunden der Transientenlaufzeit eine wesentliche Verringerung der Aufheizgradienten (S. Abb. 4237.1).

Die weiteren Versuche wurden daraufhin wieder ohne Dampfbypaß gefahren.

Die Vorbereitung der Versuche mit vorbestrahlten Prüflingen und die Durchführung der ersten Versuchsserie hatte im 2. Halbjahr 1977 zentrale Bedeutung.

Da vorbestrahlte Prüflinge nur in heißen Zellen gehandhabt werden können, mußten für deren fernbediente Montage und Instrumentierung schwierige technische Probleme bewältigt werden. Besonders die Ankopplung des Prüflings an den Probenträger und an die Druckmeßeinrichtung, das kontrollierte Anschweißen der TE auf der Stabhülle sowie Kontrollmessungen und Dichtheitsprüfungen erforderten eigene, neu entwickelte Vorrichtungen und Werkzeuge, deren Eignung in umfangreichen Tests vor Montagebeginn nachzuweisen war.

Mit Hilfe dieser Einrichtung wurden fünf Prüflingseinsätze der Abbrandstufe 20.000 MWd/t_U montiert und instrumentiert. Anschließend wurde das In-pile-Versuchsprogramm mit diesen Stäben wie geplant durchgeführt und alle Stäbe nach dem Versuch neutronen-radiografiert.

Im Unterschied zu den Versuchen mit frischen Brennstäben zeigte sich bei allen vorbestrahlten Stäben stark fragmentierter Brennstoff, der dort seine Pelletstruktur verliert und zu Körnern zerfällt, wo im Verlauf der Transiente die ihn stützende Zry-Hülle aufbeult. Die Höhe der Brennstoffsäule verringert sich dabei je nach Ausmaß der Aufbeulung: Die relativ große und lange Beule bei Versuch F.1 (Abb. 4237-2) führte zu einer Verringerung um ~ 8 cm, die kleineren und auch kürzeren Beulen bei den Versuchen F.2 - F.5 nur zu rd. 2 cm Verkürzung (Abb. 4237-4).

Die Bersttemperaturen und -drücke, wie auch die zeitlichen Verläufe von Hülltemperatur und Innendruck, ergaben keine Abweichungen gegenüber den Versuchen mit frischen Nuklearprüflingen (siehe Abb. 4237-3 und Tab. 4237-2).

3. Vorbestrahlung

Die Vorbestrahlung weiterer Stäbe im FR2 (zwei Einsätze mit je sechs Stäben für Zielabbrand 35.000 MWd/t_U) verlief ohne Störungen. Einer dieser Einsätze hat inzwischen sein Abbrandziel erreicht und wurde zum Jahresende ausgebaut.

4. Nachbestrahlungsuntersuchungen (NBU)

Die NBU in den Heißen Zellen (HZ) wurden nach einer betriebsbedingten Unterbrechung fortgeführt. Von den in die Heißen Zellen eingeschleusten 14 Stäben wurden bisher 8 Stück zerstörungsfrei untersucht und - soweit vorgesehen - zur Anfertigung von Schliffproben zerschnitten sowie metallographisch aufbereitet. Einige Werte aus der Nachvermessung sind in Tab. 4237-1 aufgeführt.

5. Theoretische Arbeiten

Die Übereinstimmung von Nachrechnungen (IKE) der Hülltemperaturtransienten der BSS 05-Reihe mit den Versuchsdaten konnte durch veränderte Modellannahmen für den Wärmedurchgang in den Ringspalten verbessert werden.

Mit der Annahme einer Wärmedurchgangszahl von 0,5 statt 1,0 Watt/cm² K während des Stationärbetriebs ergibt sich durch die erhöhte Wärmespeicherung im Stab auch eine größere Temperaturspanne zwischen Heizer und Hülle, die durch Abbau gespeicherter Wärme während der ersten Sekunden der Transiente zu einem steileren Temperaturanstieg führt. Eine Verringerung des Wärmedurchgangswiderstandes, die sich im Verlauf der Transiente durch unterschiedliche thermische Dehnungen einstellt, wird nach 8 Sekunden Transientenlaufzeit durch sprunghafte Erhöhung des k-Wertes auf 1,0 Watt/cm² K simuliert.

Der mit diesen Werten berechnete zeitliche Verlauf der Hülltemperatur ergibt auch in den ersten 20 Sekunden der Transiente eine akzeptable Annäherung an die gemessenen Daten. Eine ausführliche Beschreibung enthält [1].

Zur Verwendung bei den Wärmeleitrechnungen an Brennstäben und Simulatoren wurden interessierende Stoffwerte zusammengetragen und in [2] numerisch, grafisch sowie als Funktion dargestellt.

Über die In-pile-Versuche und ihre Ergebnisse wurde auf dem PNS-Jahreskolloquium 1977 [3] und im Mai 1977 auf der internationalen Konferenz über Kernenergie und Brennstoffkreislauf in Salzburg [4] vorgetragen.

6. Literatur

- [1] D. Steiner: Rechnungen für den Brennstabsimulator mit WALHYD 2D, (1977) unveröffentlicht

- [2] K. Wagner, T. Vollmer: Zusammenstellung von Stoffwerten für Wärmeleitrechnungen an LWR-Brennstäben und deren Simulatoren. KFK-Ext. 15/77-2, August 1977

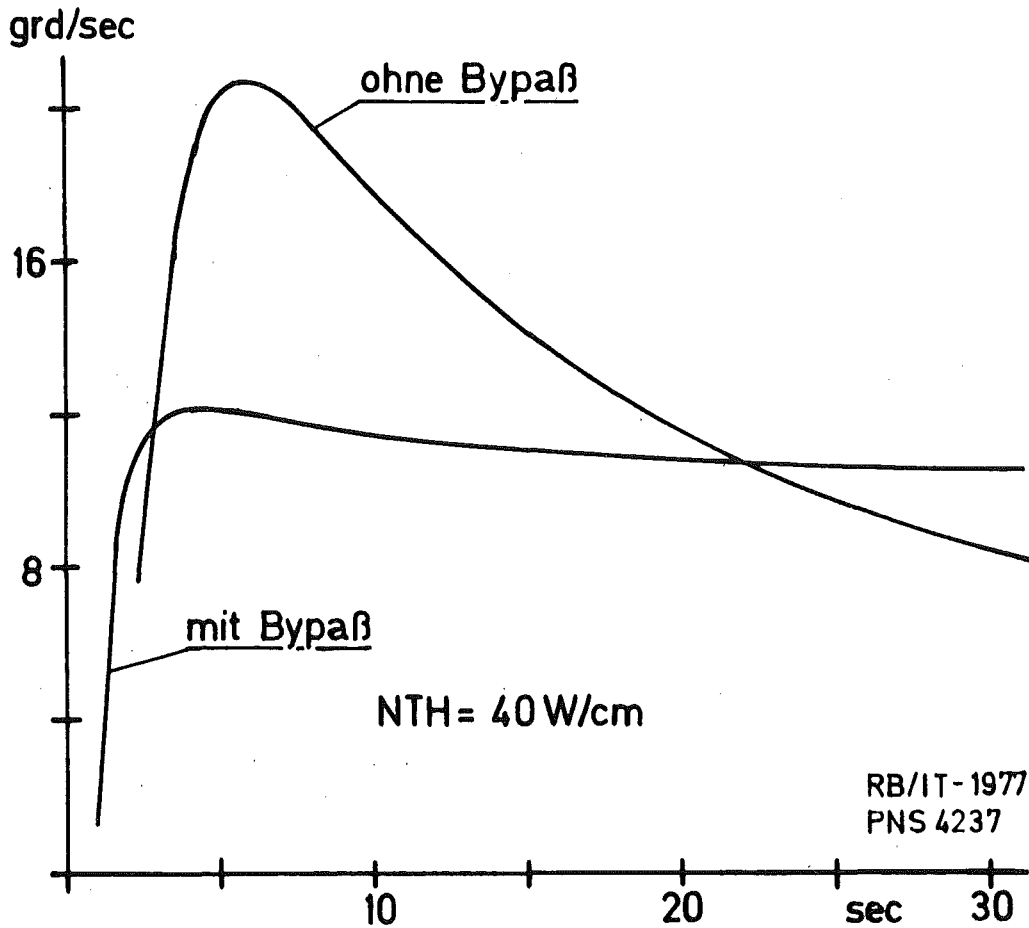
- [3] E. Karb: Ergebnisse von In-pile-Experimenten im FR2 zum Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen. In: KFK 2570, Jahreskolloquium 1977 des Projektes Nukleare Sicherheit

- [4] H. Albrecht, M. Boček, F. Erbacher, A. Fiege, M. Fischer, S. Hagen, P. Hofmann, H. Holleck, E. Karb, S. Leistikow, S. Malang, G. Ondracek, F. Thümmeler, K. Wiehr: BEHAVIOR OF LWR FUEL ELEMENTS UNDER ACCIDENT CONDITIONS, Paper No. IAEA-CN-36/124, vorgetragen auf der INTERNATIONAL CONFERENCE ON NUCLEAR POWER AND ITS FUEL CYCLE, Salzburg, May 1977.

Prüfling Nr.	Stablänge mm	UKB-UKRiß mm	Rißlänge mm	max. Rißbreite mm	$(\Delta U/U_0)$ max.
A 1.1	5,53	30	19	1,3	0,64
A 1.2	4,67	-	-	-	-
A 2.1	0,94	220	35	9,0	0,43
A 2.2	-0,18	120	50	5,5	0,56
A 2.3	7,45	135	19	4,5	0,35
B 1.1	3,13	270	41	9,5	0,25
B 1.2	4,46	332	11	1,8	0,25
B 1.3	nicht ermittelt.	262	36	8,5	0,33

Meßwerte aus zerstörungsfreier NBU

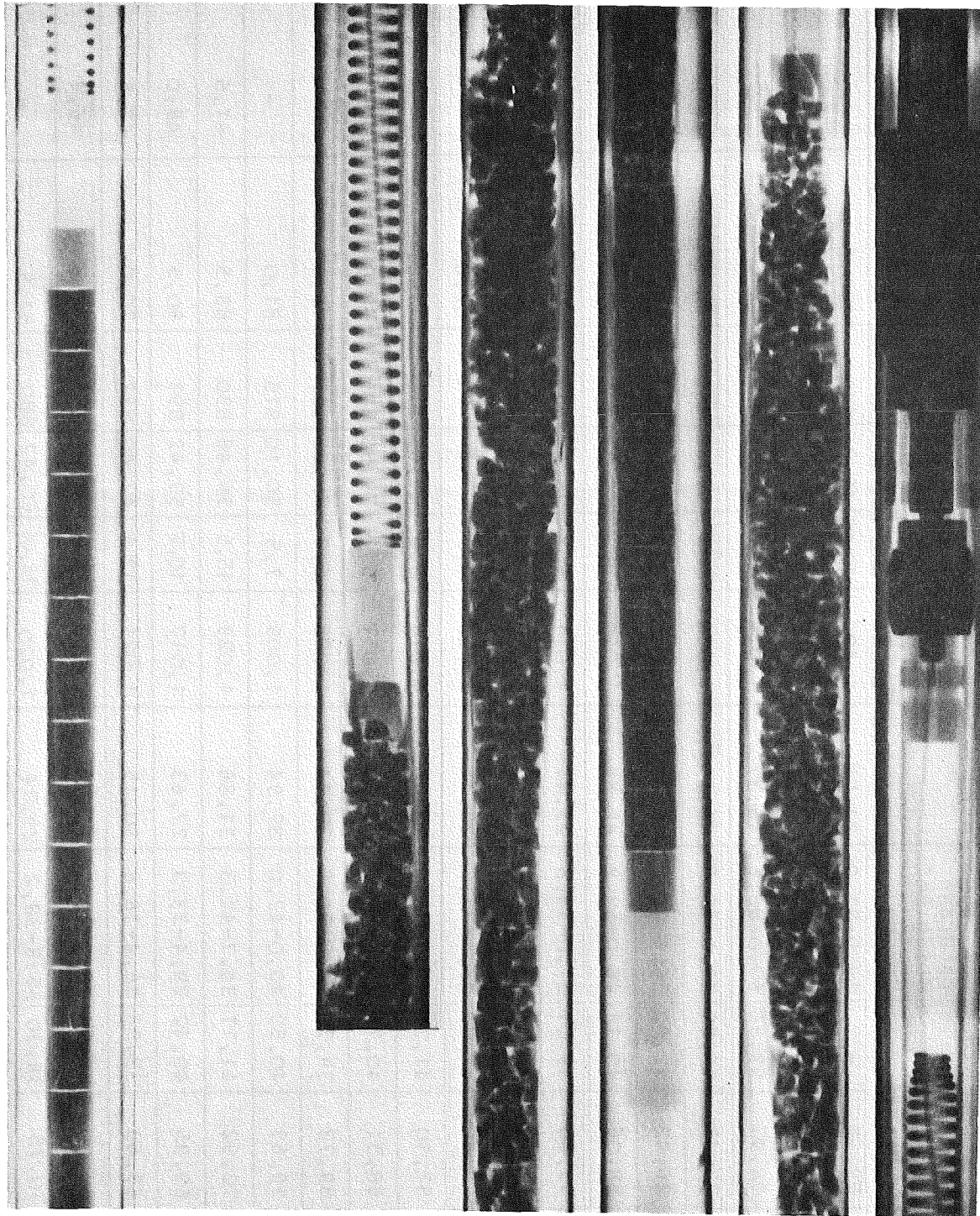
Tab. 4237-1



Temperaturgradient über der Zeit

Abb. 4237-1

In-pile-Versuchsdaten	Ver- such	Ab- brand Mwd/t	Innen- druck	spez. Stableistung (W/cm)			Form- fakt. $\frac{\varnothing_{Pr\ max}}{\varnothing_{Pr}}$	NR MW	Berstdaten		Dauer Auf- heizung bis 920°C s	Länge der Brennstoff- säule aus n- Radiografie [cm]
				NTH	aus Tempe- raturan- stieg bei 650°C	NKPM			Druck bar	Temp. °C		
	A 1.1	-	53,55	-	16,0-31,0	21,03	1,406	10,08	49,86	810	150,2	-
	A 1.2	-	53,72	42,45	39,5-41,0	63,17	1,055	7,7	-	-	63,5	-
	A 2.1	-	98,97	53,96	60,0-68,6	46,37	1,012	12,0	87,98	820	41,8	-
	A.2.2	-	73,47	40,59	43,0-45,5	41,34	1,031	6,3	58,36	860	64,6	-
	A 2.3	-	26,42	42,82	36,6-45,5	34,94	1,017	8,3	24,70	1015	52,7	-
	B 1.1	-	58,06	40,11	46,0-59,2	42,84	1,010	10,8	52,37	900	62,0	-
	B 1.2	-	55,35	39,07	31,0-34,5	23,47	1,011	5,3	45,20	915	93,5	-
	B 1.3	-	70,13	39,30	40,5-47,0	35,44	1,010	8,0	61,21	845	62,5	-
	B 1.4	-	-	41,74	33,5-37,5	25,72	1,023	8,0	-	-	62,0	-
	B 1.5	-	57,10	41,39	30,7-34,5	22,36	1,013	6,8	44,67	910	115,1	-
	B 1.6	-	88,51	40,75	29,0-31,5	25,86	1,011	5,8	79,58	825	98,0	-
	B 3.1	-	89,73	39,70	34,5-36,8	30,14	1,008	6,8	79,32	825	78,0	-
	B 3.2	-	59,63	40,59	40,0-43,0	37,94	1,009	7,5	50,10	915	81,0	-
Tab. 4237-2	F1	20000	70,92	41,17	34,7-44,3	31,86	1,029	15,5	56,48	830	83,5	41,5
	F2	20000	60,95	40,42	29,4-33,3	27,63	1,017	10,7	53,42	893	90,5	48,0
	F3	20000	45,63	35,98	36,4-38,8	30,15	1,021	12,1	42,40	932	70,0	47,5
	F4	20000	83,00	40,95	38,2-40,2	32,78	1,009	16,0	72,41	835	71,2	46,8
	F5	20000	70,75	36,30	35,8-38,2	29,74	1,020	12,0	60,42	880	83,5	-

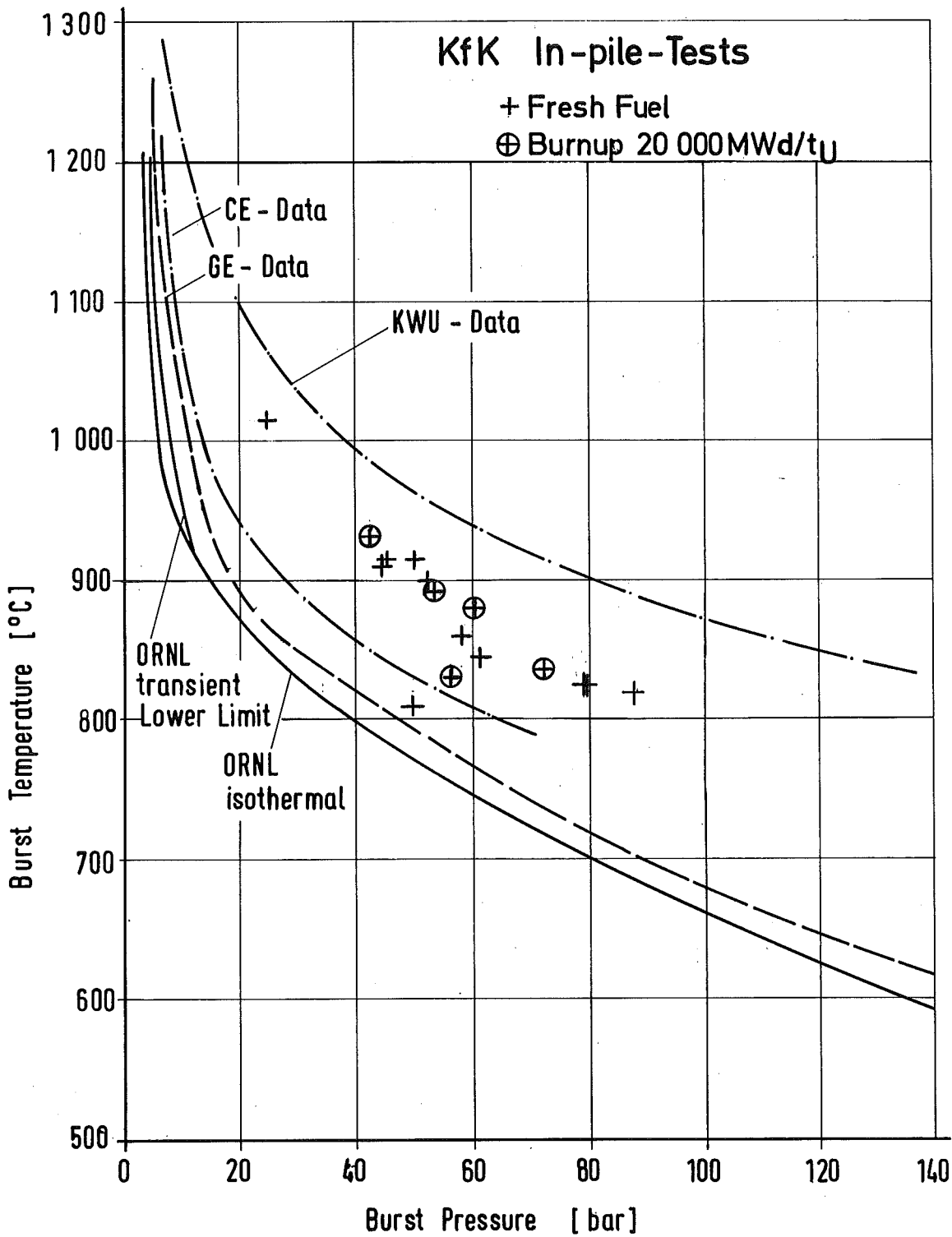


vor Transiente

nach Transiente

GRK RBT-IT-1977
PNS 4237-112

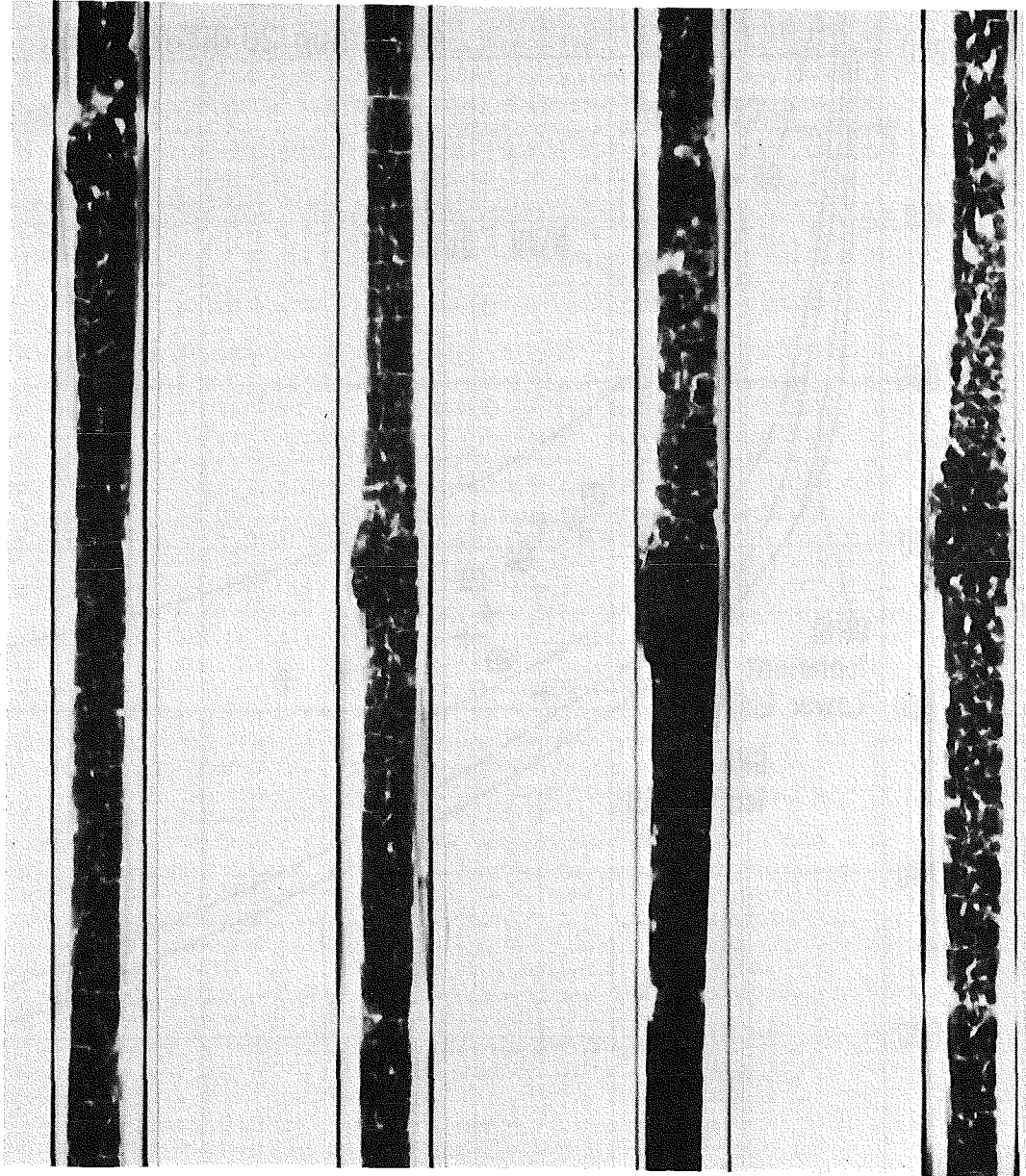
Neutronenradiographie, Versuch F1
Abbrand 20.000 MWd/t_U



RBT/IT - 1977
PNS 4237 - 60.5

Burst Temperature vs. Burst Pressure

Abb. 4237-3



Versuch:

F2

F3

F4

F5



RBT-IT-1978
PNS 4237-116

Neutronenradiographien nach Transiente
Abbrand 20.000 MWd/t_U

ABB, 4237-4

4238 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Niederdruckphase eines hypotetischen Kühlmittelverluststörfalles und zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zirkaloy-Hüllrohren und einsetzender Kernnotkühlung (REBEKA - Programm⁺)

(K. Wiehr, F. Erbacher, U. Harten, W. Just, H.J. Neitzel, P. Schöffner, He. Schmidt, IRB)

1. 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 SSSYST zur Beschreibung des Brennstabverhaltens.

Im Berichtszeitraum lagen die Schwerpunkte auf der Durchführung folgender Arbeiten:

- Versuche an verkürzten Brennstabsimulatoren
 - . unter simulierten Temperaturtransienten für Normal- bis Heißstäbe
 - . bei Variation der isothermen Starttemperatur zur Verdeutlichung des Einflusses der azimuthalen Temperaturdifferenz auf die Berstumfangsdehnung
- Vorversuche zum Bündelexperiment mit Fluten
 - . zur Bestimmung der Aufheizraten
 - . zur Isothermie der Teststrecke
 - . zur Festlegung der Flutwassersteiggeschwindigkeit
 - . zur Bestimmung des Flutzeitbeginns bei 760°C Hüllentemperatur
- Erstes Bündelexperiment mit 25 Brennstabsimulatoren voller Länge und axialem Leistungsprofil sowie Fluten.
- Versuchsauswertung

+) REBEKA = reaktortypisches Bündel-Experiment Karlsruhe
bzw. reactor typical bundle experiment Karlsruhe

1. Untersuchungen mit verkürzten Brennstabsimulatoren

1.1 Versuchsdurchführung

Die Versuche wurden mit einem verkürzten Brennstabsimulator von 325 mm Länge durchgeführt. Sie orientierten sich an Temperaturtransienten, wie sie für einen Kühlmittelverluststörfall mit 2F-Bruch im kalten Strang errechnet wurden, und zwar für den Bereich zwischen Normal- und Heißstab. Die erwarteten Temperaturverläufe wurden über eine Leistungssteuerung simuliert.

Den schematischen Aufbau des Prüfstandes zeigt Abb. 4238-1. Die Abb. 4238-2 zeigt einen Versuchsverlauf für eine isotherme Starttemperatur von 300°C. Geplottet sind 4 azimutale Hüllrohrtemperaturen, der Innendruck und der dazugehörige Spannungs- und Stromverlauf.

Die Mehrzahl der Versuche hatte eine isotherme Starttemperatur von 600°C. Typisch für diese Versuchsserie ist das Aufheizen des Brennstabsimulators auf etwa 620°C, das Abstellen der Leistung und das Abwarten, bis bei etwa 600°C ein Ausgleich azimutaler Temperaturunterschiede auf der Hülle stattgefunden hat. Das Dampfführungsrohr selbst ist nicht beheizt. Die abwärtsgerichtete Dampfströmung hat eine Eintrittstemperatur von 150°C und eine Geschwindigkeit von 0,6 m/s. Von diesem Zustand aus wird der Stab mit einem Innendruck von 70 bar beaufschlagt und mit etwa 10 K/s aufgeheizt. Mit Erreichen einer bestimmten Temperatur, z. B. 760°C, wird die Leistung auf einen niedrigeren Wert heruntergeschaltet. Dampfkühlung und Strahlungsverluste an das kältere Dampfrohr entsprechen etwa der Wärmesenke in der Flutphase. Die anstehende reduzierte Leistung, die Größe der Wärmesenke und das sich daraus einstellende Temperaturplateau entsprechen etwa jeweils den Verhältnissen des zu simulierenden Brennstabes.

1.2 Ergebnisse

Die Temperaturverläufe in Abb. 4238-2 zeigen, daß bei völligem Ausgleich aller Temperaturunterschiede auf dem Hüllrohr bei etwa 300°C sich unter den angegebenen Leistungs-Kühlungs-Bedingungen wieder azimutale Temperaturdifferenzen ausbilden können. Selbst bei einer isothermen Starttemperatur von 600°C ist dies noch der Fall.

Ausgangsexzentrizitäten in der Lage der Pelletsäule zur Zirkaloyhülle, d. h. unterschiedlich große Spalte auf dem Umfang zwischen Pellets und Zirkaloyhülle, führen bei Aufheizung des Hüllrohres von innen und äußerer Wärmesenke zur Ausbildung von azimuthalen Temperaturunterschieden auf der Hülle. Mit beginnender plastischer Verformung wird dadurch eine Verbiegung des Hüllrohres verursacht. Da die wärmere Seite des Hüllrohres an der Pelletsäule weiterhin anliegt, die gegenüberliegende kältere Seite jedoch deutlich abhebt, führt dies zu einer Vergrößerung der azimuthalen Temperaturunterschiede auf der Hülle. Je größer die sich ausbildende Temperaturdifferenz bis zum Berstzeitpunkt werden kann, umso kleiner wird die entstehende Berstumfangsdehnung, da die Wandstärkenabnahme dann auf den heißen Teil des Hüllrohrumfangs lokal begrenzt bleibt.

Abb. 4238-3 ist eine vereinfachte stilisierte Darstellung der Versuche. Die Temperaturplateaus von 670 und 700°C liegen bereits oberhalb derjenigen, wie sie für Normalstäbe erwartet werden. Selbst nach 10 Minuten Haltezeit sind diese Hüllrohre nicht geborsten. - Mit zunehmender Höhe der Temperaturplateaus werden die Zeiten auf diesen Niveaus immer kürzer und wie Abb. 4238-4 zeigt, nehmen die Berstumfangsdehnungen zu. Die abwärts gerichtete Dampfströmung verschiebt das Dehnungsmaximum und die Berststellen aus der Stabmitte gegen das untere Stabende bzw. den tiefer sitzenden Abstandshalter.

Umfangsdehnungen größer als 33 %, was ein gegenseitiges Berühren benachbarter, aufblähender Stäbe bedeuten würde, sind auf eine relativ kurze Länge um die Berststelle begrenzt. Große axial ausgedehnte Hüllrohrverformungen wurden in keinem Fall beobachtet.

Abb. 4238-5 zeigt die Zusammenhänge zwischen der Versuchszeit, während der sich Temperaturunterschiede auf dem Umfang ausbilden können, der azimuthalen Temperaturdifferenz und der Berstumfangsdehnung. Die Versuchsführung der drei dargestellten Experimente war derart angelegt, daß sich unterschiedlich große azimuthale Temperaturunterschiede ausbilden können. Versuch 60 startet ab 300°C isotherm in die Rampe und ab 760°C stehen erzeugte Wärme und äußere Kühlung im Gleichgewicht. 92 Sekunden stehen bis zum Bersten zur Verfügung, um azimuthale Temperaturunterschiede ausbilden zu können. - Bei Versuch 61 ist diese Zeit deutlich kürzer, nur 57 s, da der Rampenstart bei 600°C isotherm erfolgt und das Bersten in einem Temperaturplateau von 785°C geschieht. -

Versuch 63 ist ein reiner Rampenversuch, bei dem jedoch das Dampfführungsrohr mit der gleichen Temperaturrampe beaufschlagt wird. Durch diese Prozeßführung wird die Möglichkeit, daß sich auf der Zirkaloyhülle azimutale Temperaturunterschiede ausbilden können, weitgehend unterbunden. - Derartige adiabate Randbedingungen treten in keiner Phase eines Kühlmittelverluststörfalles auf, sie stellen jedoch für das Verständnis des Verformungsverhaltens der Zirkaloyhüllrohre eine aufschlußreiche Versuchsführung dar.

Die bei diesen Versuchsführungen entstandenen azimutalen Temperaturdifferenzen zum Berstzeitpunkt betragen 64, 18 und 3 K. Dazu gehören Berstumfangsdehnungen von 39, 67 und 83 %. Dies bedeutet: Große azimutale Temperaturdifferenzen geben kleine Berstumfangsdehnungen, kleine azimutale Temperaturdifferenzen große Umfangsdehnungen.

Abb. 4238-6 zeigt Schnittbilder der Hüllrohre aus diesen drei Versuchen, im oberen Teil an der Berststelle, darunter einen Schnitt 10 mm oberhalb der Berstebene. Das Hüllrohr mit den großen Temperaturunterschieden auf dem Umfang (Versuch 60) zeigt im Bereich der Berstmantellinie die größte Hüllrohrwandstärkenabnahme. Hier herrschten der enge Spalt, die höhere Temperatur und demzufolge auch die größte Verformung. Die gegenüberliegende, kältere Seite zeigt praktisch noch die Ausgangswandstärke. Die Umfangsdehnung entsteht also überwiegend durch eine örtlich auf einen Teil des Gesamtumfangs begrenzte Wandstärkenverschwächung. Das Hüllrohr aus Versuch 61, das während des Versuchs die geringeren azimutalen Temperaturdifferenzen aufweist, zeigt bereits eine gleichmäßigere Abnahme der Hüllrohrwandstärke über den Umfang und birst bei einer Umfangsdehnung von 67 %. Im Fall des Versuchs 63 mit einer ganz geringen azimutalen Temperaturdifferenz findet die Wandstärkenabnahme noch gleichmäßiger auf dem ganzen Umfang statt, und bis zum Bersten werden hier 83 % Umfangsdehnung erreicht.

Eine gleichmäßige Wandstärkenverschwächung auf dem Umfang liegt auch bei direkt beheizten Hüllrohrexperimenten vor. Die Versuchsführung des direkten Beheizens verhindert die Ausbildung azimutaler Temperaturdifferenzen und führt daher zwangsläufig zu den bekannten großen Berstumfangsdehnungen.

In Abb. 4238-7 sind nun sämtliche Hüllrohrberstexperimente eingetragen, bei denen die azimutale Temperaturverteilung gemessen wurde. Aufgetragen ist

die Berstumfangsdehnung über der azimuthalen Temperaturdifferenz. Die Tendenz ist deutlich zu erkennen: Kleine Temperaturdifferenzen auf dem Umfang geben große Berstumfangsdehnungen, große Temperaturdifferenzen kleine Umfangsdehnungen. Die aufgezeigten Zusammenhänge führen zu folgenden Schlüssen:

- Der Deformationsmechanismus und die maximal entstehenden Berstumfangsdehnungen der Zirkaloyhülle werden maßgeblich von der Größe der auftretenden azimuthalen Temperaturverteilung beeinflusst.
- Experimente, bei denen durch die Versuchsführung eine Ausbildung von azimuthalen Temperaturdifferenzen verhindert wird (z. B. durch Direktbeheizung) führen zu unrealistisch großen Umfangsdehnungen der Zirkaloyhülle.

2. Erster Out-of-pile-Bündelversuch

Der Bündelversuch, durchgeführt unter Versuchsrandbedingungen, die die Verhältnisse von mittelbelasteten Brennstäben in der Wiederauffüll- und Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles eines Druckwasserreaktors simulieren, sollte zeigen, ob möglicherweise Effekte auftreten, die von Einzelstabexperimenten nicht bekannt sind.

2.1 Versuchsaufbau

Abb. 4238-8 zeigt die Anordnung von 25 Brennstabsimulatoren im Bündel. Sämtliche Brennstabsimulatoren haben Original-DWR-Abmessungen, wobei das axiale Leistungsprofil durch 7 Leistungsstufen simuliert wird. Das in den Stäben eingeschlossene Helium ist auf einen mittleren radialen Spalt von 50 μm , sowie das untere und obere Plenum in Originalvolumina verteilt. Die Brennstabsimulatoren werden in einem dünnwandigen, längs zugeschweißten Kasten aus Inconel durch Original-Abstandshalter geführt. Dieser Kasten sitzt im Druckrohr der Teststrecke. Zwischen Elementkasten und Druckrohr befindet sich als Zwischenisolation gesättigter Wasserdampf.

Die äußere Stabreihe im Bündel unterscheidet sich von den inneren 9 Stäben im wesentlichen nur dadurch, daß sie Hüllen aus Inconel besitzt, die sich

während des Versuchs nicht verformen. Diese Stäbe dienen der Simulation der thermischen Umgebung.

Etwa 130 Meßstellen werden registriert, wovon 120 Meßstellen über eine schnelle Datenerfassung aufgezeichnet werden. Davon entfallen auf die reine Bündelinstrumentierung 83 Temperatur- und 9 Druckmeßstellen.

2.2 Versuchsführung

Abb. 4238-9 zeigt im unteren Teil des Bildes schematisch die Versuchsführung. Der obere Kurvenzug zeigt den typischen Verlauf einer Hüllentemperatur. Ausgehend von einem isothermen Zustand in der ganzen Teststrecke von 175°C, wird die Teststrecke bei leichter Dampfströmung durch Hochheizen der Brennstabsimulatoren auf etwa 520° C gebracht. Die elektrische Leistung wird wieder abgeschaltet und der Innendruck von 70 bar aufgegeben. Zwanzig Sekunden später wird das Druckaufgabesystem abgeschlossen. Nach etwa 1 Minute wird die elektrische Leistung auf die Brennstabsimulatoren wieder zugeschaltet und bleibt bis zum Versuchsende stehen. Die Wiederaufheizphase beginnt, und mit Einspeisung des Notkühlwassers wird die Flutphase eingeleitet.

Temperatur- und Druckverläufe stellen sich nun bei anstehender Leistung durch die Einwirkung des Flutens und das Verformen der Zirkaloyhüllen völlig selbständig ein. Die Verformung der Zirkaloyhüllen endet mit dem Bersten, spätestens jedoch mit dem Quenchen der Hüllrohre.

Die für das Experiment gewählten Versuchsdaten sind im oberen Teil der Abbildung angegeben.

2.3 Ergebnisse

- Es konnte nachgewiesen werden, daß eine Stabreihe von Brennstabsimulatoren ohne verformungsfähige Hüllen in einem Bündel ausreichend ist, um den inneren Brennstabsimulatoren vorzutäuschen, sie befänden sich in einem großen Bündelverband - auch in der Flutphase.

- Abb. 4238-10 zeigt das Verhalten des Zentralstabes, der von der isothermen Starttemperatur aus durch eine höhere Leistung etwas rascher aufgeheizt wurde, um zum Flutbeginn eine um etwa 30 K höhere Hüllentemperatur aufzuweisen. Dadurch sollte er sich bereits in der Wiederaufheizphase verformen und kurz nach Flutbeginn als erster Stab im Bündel bersten. Die Hülle verformte sich wie vorgesehen bereits in der Temperaturrampe, und auch stärker als die der Nachbarstäbe, gekennzeichnet durch einen frühen Innendruckabfall bereits in der Rampe, jedoch platzte sie nicht als erste. Zum Flutbeginn hatte diese Hülle wegen des großen Spaltes nämlich keinen guten Wärmekontakt zu ihrer Wärmequelle mehr, und diese führte beim Einsetzen des Flutens wegen der relativ geringen Wärmekapazität der Zirkaloyhülle zu einem Temperatureinbruch von 187 K. Die Hüllrohrtemperatur stieg zwar noch einmal an, konnte jedoch an dieser Stelle keine Temperaturen mehr erreichen, die noch zu größeren Verformungen hätten führen können. Das Wiederbenetzen der Hülle erfolgte schließlich 240 Sekunden nach Flutbeginn - ohne Bersten. Der weitere Druckverlauf ist das Ergebnis des sich abkühlenden Gases und der sich verformenden Zirkaloyhülle.

- Abb. 4238-11 zeigt das Verhalten von zwei dem Zentralstab benachbarten Stäben. Aufgetragen sind die Innentemperatur TI 22/1 und die in gleicher Höhe außen liegende Temperaturmeßstelle TH 22, die gleiche Meßstellenpaarung des zweiten Stabes mit TI 29/1 und TH 29, sowie der Innendruckverlauf des Stabes 22. Da die Hüllen zum Zeitpunkt des Flutbeginns weniger abgehoben hatten, betrug der Temperaturabfall auch nur 90 K. Die Hüllentemperaturen erreichten nach kurzer Zeit fast wieder ihren Maximalwert, um dann jedoch unterschiedlich stark abzufallen. Dies ist auf unterschiedlich starke Verformungen der Hüllen zurückzuführen.

Das Hüllrohr des Stabes 29 verformte sich stärker, der Spalt zwischen Wärmequelle und Hülle war größer und der Wärmetransport zur Hülle geringer, was bei gleichen Kühlbedingungen für beide Hüllen einerseits zu einer stärkeren Abkühlung der Hülle 29 führte und andererseits zu einem stärkeren Ansteigen der Heizstabtemperaturen im Innern dieses Brennstabssimulators. Die Hülle dieses Stabes 29 quencht früher - 176 Sekunden nach Flutbeginn - ohne zu bersten. Die maximale Umfangsdehnung betrug 32 %. Die Temperaturdifferenz zwischen Zirkaloyhülle und Heizstabhülle stieg bis zum Quenchezitpunkt auf 275°C an.

Stab 22 quenchte 197 Sekunden nach Flutbeginn. Er erreichte eine maximale Umfangsdehnung von nur 11 % sowie eine Temperaturdifferenz zwischen Zirkaloy- und Heizstabhülle von nur 157°C.

- Abb. 4238-12 zeigt den Druck- und Temperaturverlauf eines geborstenen Stabes. 105 Sekunden nach Flutbeginn barst die Hülle. Auffallend am Temperaturverlauf ist das frühzeitige Wiederbenetzen der Hülle kurz nach dem Bersten.
- Abb. 4238-13 zeigt den Mittelteil der höchst belasteten Zone im Bündel. Es gibt keine Stelle im Bündel, an der man nicht aus irgendeiner Richtung frei zwischen den Stäben hindurchsehen könnte. Um die Abstandshalter liegen Zonen geringster Umfangsdehnung, überwiegend verursacht durch die lokale Kühlwirkung. Das Verformungsbild zwischen den Abstandshaltern zeigt eine Verschiebung der maximalen Umfangsdehnungen in Strömungsrichtung zum nächsthöheren Abstandshalter hin. Die beiden Berststellen sind deutlich zu erkennen.
- Abb. 4238-14 zeigt die geborstene Hülle 67 in Seitenansicht und Draufsicht. Das äußere Erscheinungsbild ist aus Einzelstabexperimenten mit verkürzten Brennstabsimulatoren und mit Brennstabsimulatoren voller Länge bekannt und läßt auf große azimutale Temperaturunterschiede an der Berststelle schließen, was wiederum die geringen Berstumfangsdehnungen erklärt. Das gleiche gilt für die geborstene Hülle des zweiten Stabes 76.
- Abb. 4238-15 zeigt die Auftragung der Umfangsdehnung aller 9 Zirkaloyhüllen über der ganzen Stablänge von 3,9 m. Unten im Bild ist die axiale Leistungsverteilung im Stab angegeben. Die maximal aufgetretenen Umfangsdehnungen an den einzelnen Stäben liegen zwischen 8 und 32 %. Die dehnungsverhindernde Wirkung der Abstandshalter ist deutlich zu erkennen.
- Nur zwei Zirkaloyhüllen kamen zum Bersten und erreichten Berstumfangsdehnungen von 24,2 % bzw. 30,6 %. Keine axial lang ausgedehnten Verformungen großer Umfangsdehnung waren aufgetreten.
- Die in der Wiederauffüll- und Flutphase entstandenen Verformungen in diesem Experiment sind so gering, daß sich Stäbe aufgrund von Umfangsdehnungen

nicht einmal hätten berühren können. Nur an einer Stelle trat Berührung zweier Stäbe durch eine Stabverbiegung auf.

- Die unter den eingestellten Versuchsbedingungen erzeugten Hüllrohrdeformationen führten zu keinerlei Beeinträchtigung der Kühlbarkeit.

3. Literatur

- /1/ F. Erbacher, H. J. Neitzel, M. Reimann, K. Wiehr,
"Ballooning in Zirkaloy Fuel Rod Claddings in a Loss-of-Coolant Accident",
ANS-Topical-Meeting on "Thermal Reactor Safety", July 31 - August 7, 1977,
Sun Valley, Idaho, USA.
- /2/ K. Wiehr, H. Schmidt,
"Out-of-pile Versuche zum Aufblähvorgang von Zirkaloyhüllen - Ergebnisse
aus Vorversuchen mit verkürzten Brennstabsimulatoren", KFK-2345 (Oktober
1977).
- /3/ K. Wiehr, F. Erbacher, U. Harten, W. Just, H.J. Neitzel, P. Schöffner,
H. Schmidt,
"Brennstabverhalten in der Wiederauffüll- und Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles",
Jahreskolloquium 1977 des Projekts Nukleare Sicherheit, KFK-2570.

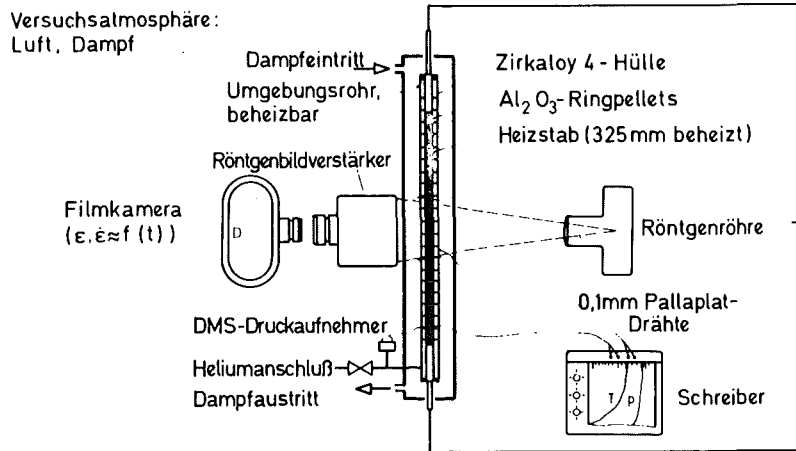


Abb. 4238-1 Prüfstand für Einzelstabversuche an verkürzten Brennstab-simulatoren

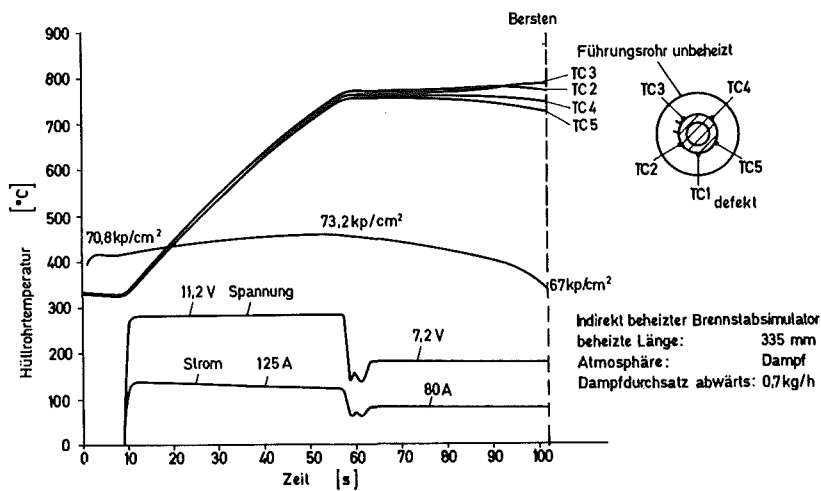


Abb. 4238-2 Berstversuch Nr. 60 unter simulierten Temperaturtransienten

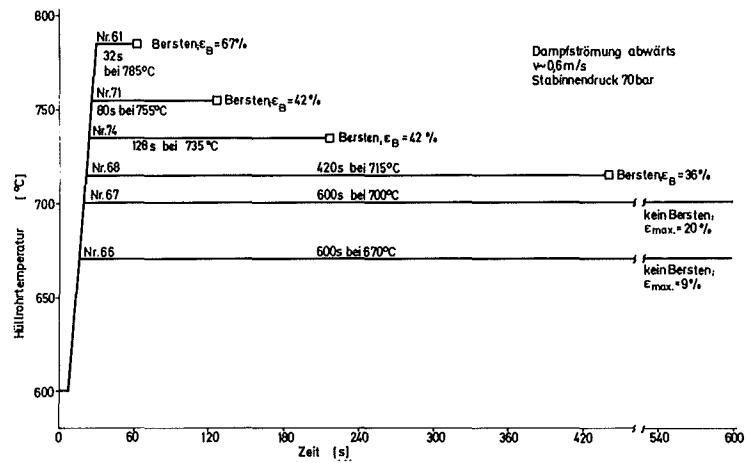


Abb. 4238-3 Verformungsversuche unter simulierten Temperaturtransienten - vereinfachte Darstellung -

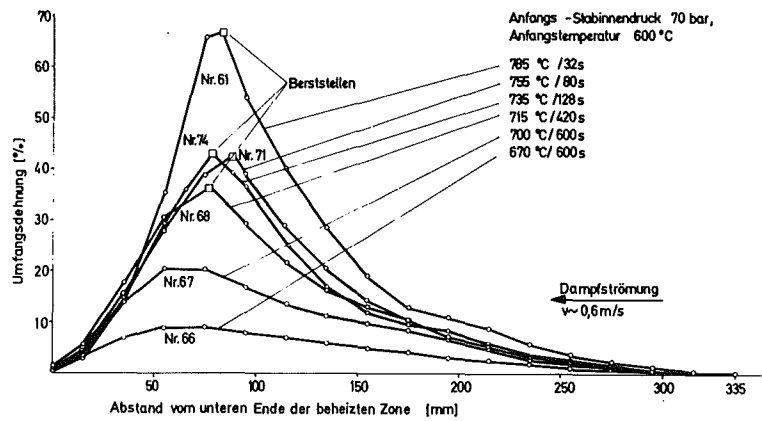


Abb. 4238-4 Umfangsdehnung über der Stablänge unter simulierten Temperaturtransienten

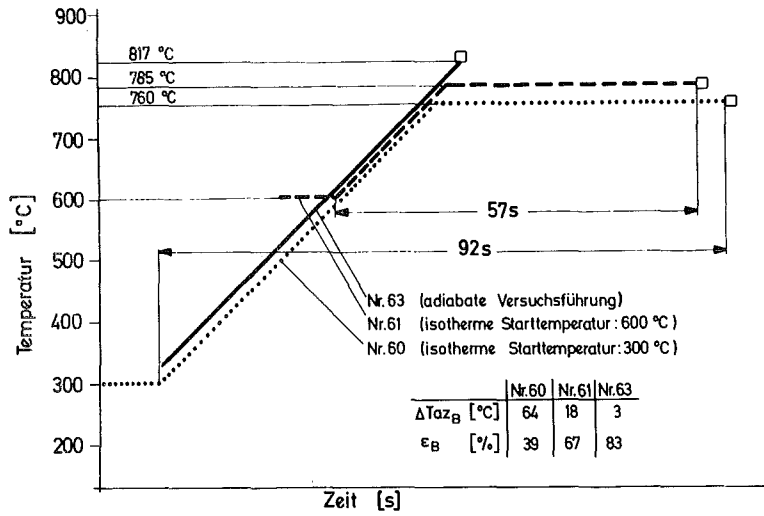


Abb. 4238-5 Versuchsführung, schematisch

Versuch Nr.60

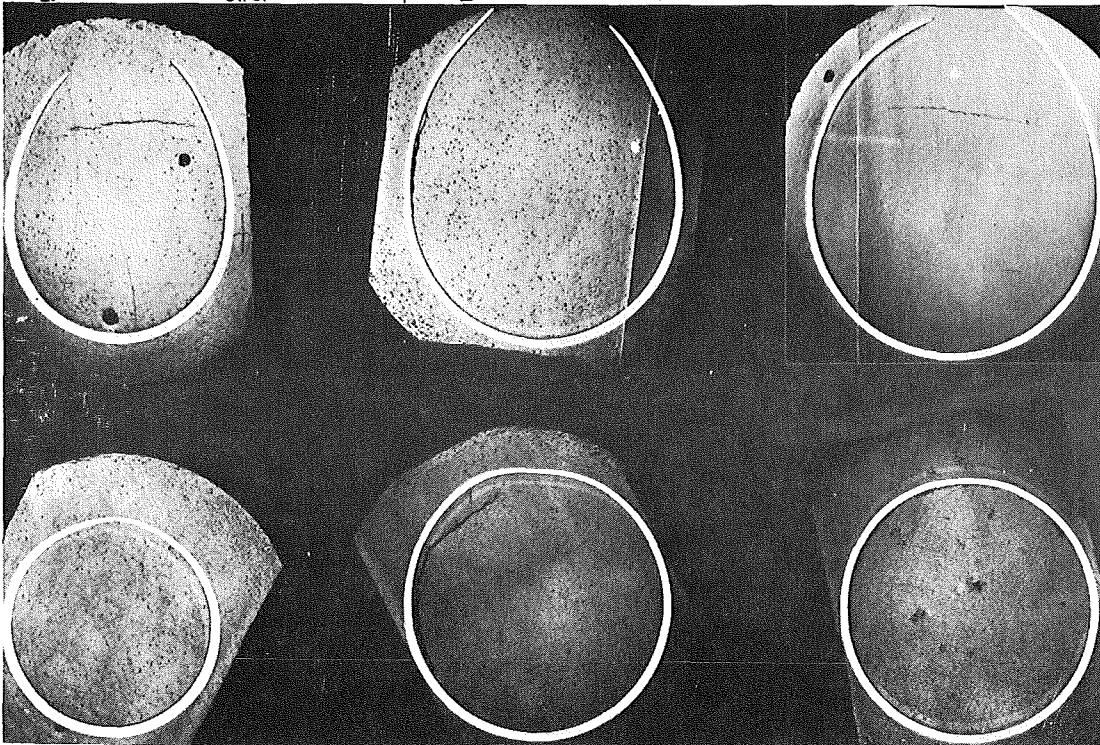
$\epsilon_B = 39\%$; $\Delta T_{circ.} = 64^\circ C$

Versuch Nr. 61

$\epsilon_B = 67\%$; $\Delta T_{circ.} = 18^\circ C$

Versuch Nr.63

$\epsilon_B = 83\%$; $\Delta T_{circ.} = 3^\circ C$



an Berststelle

10 mm über Berststelle

Abb. 4238-6 Schlibfbilder geborstener Zirkaloyhüllen, Einfluß der azimutalen Temperaturdifferenz

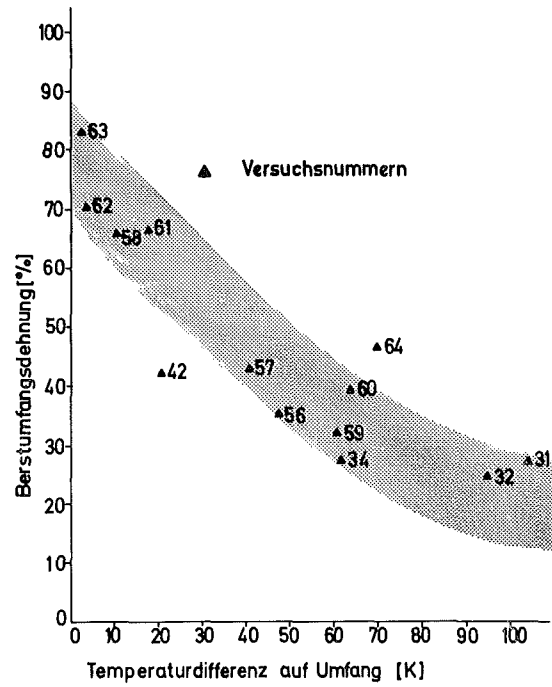
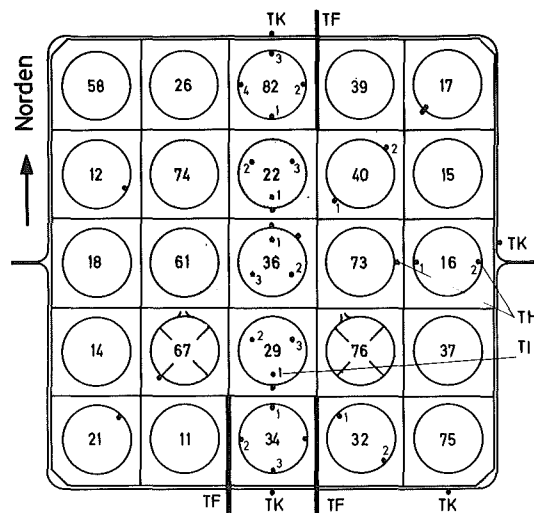


Abb. 4238-7 Berstumfangsdehnung über Temperaturdifferenz auf Umfang



- TH auf Außenstäben, TE in Simulatorhülle eingelötet
- TH auf Innenstäben, TE auf Zirkaloyhülle angepunktet
- TI auf Innenstäben, TE in Heizstabhülle eingelötet
- TK Kastenthermoelemente
- TF Fluidthermoelemente

Abb. 4238-8 Bündelquerschnitt und Thermoelementanordnung

- Isotherme Starttemperatur 520 °C
- Stabinnendruck 70 bar
- Nachwärmeleistung 20 W/cm
- Wärmeübergangszahl in Wiederauffüllphase $\approx 30 \text{ W/m}^2\text{K}$
- Hüllrohrtemperatur bei Flutbeginn 760-790 °C
- Flutrate, kalt $\approx 3 \text{ cm/s}$
- Flutwassertemperatur 130 °C
- Systemdruck 4 bar

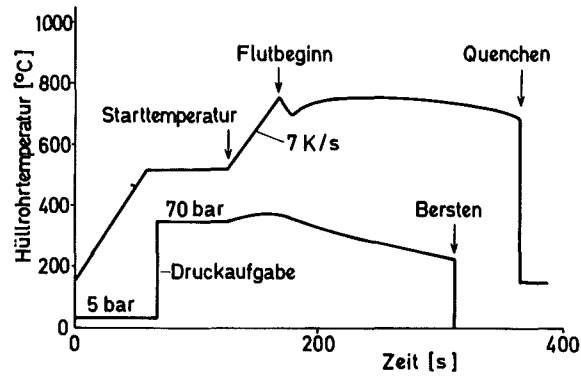


Abb. 4238-9 Versuchsdaten und Versuchsführung für Bündelversuch

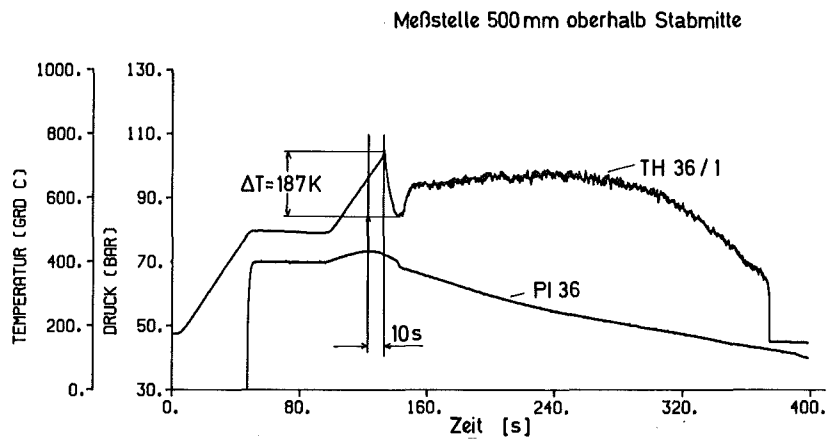


Abb. 4238-10 Hüllentemperatur und Innendruck des Zentralstabes

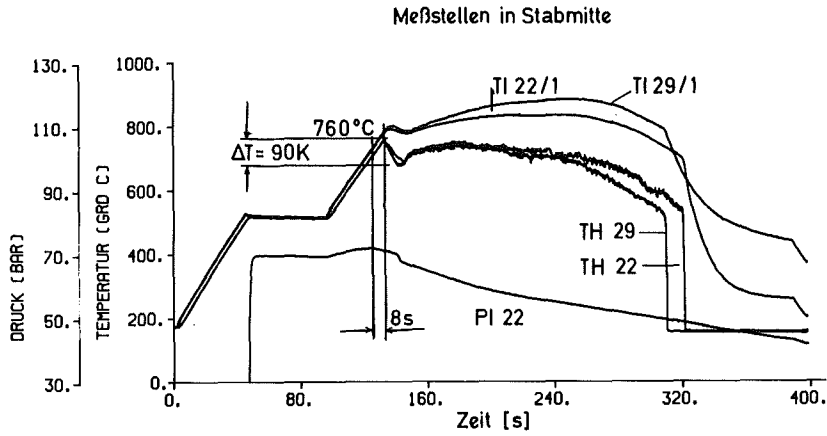


Abb. 4238-11 Temperaturen und Innendruck der Stäbe 22 und 29

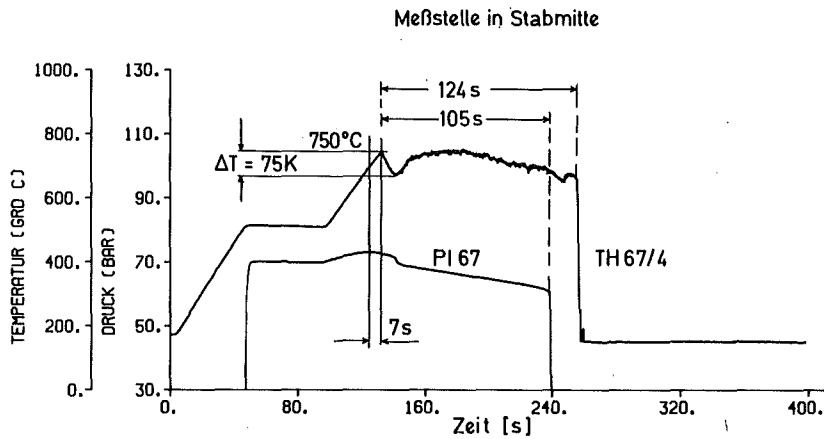


Abb. 4238-12 Hüllentemperatur und Innendruck des geborstenen Stabes 67

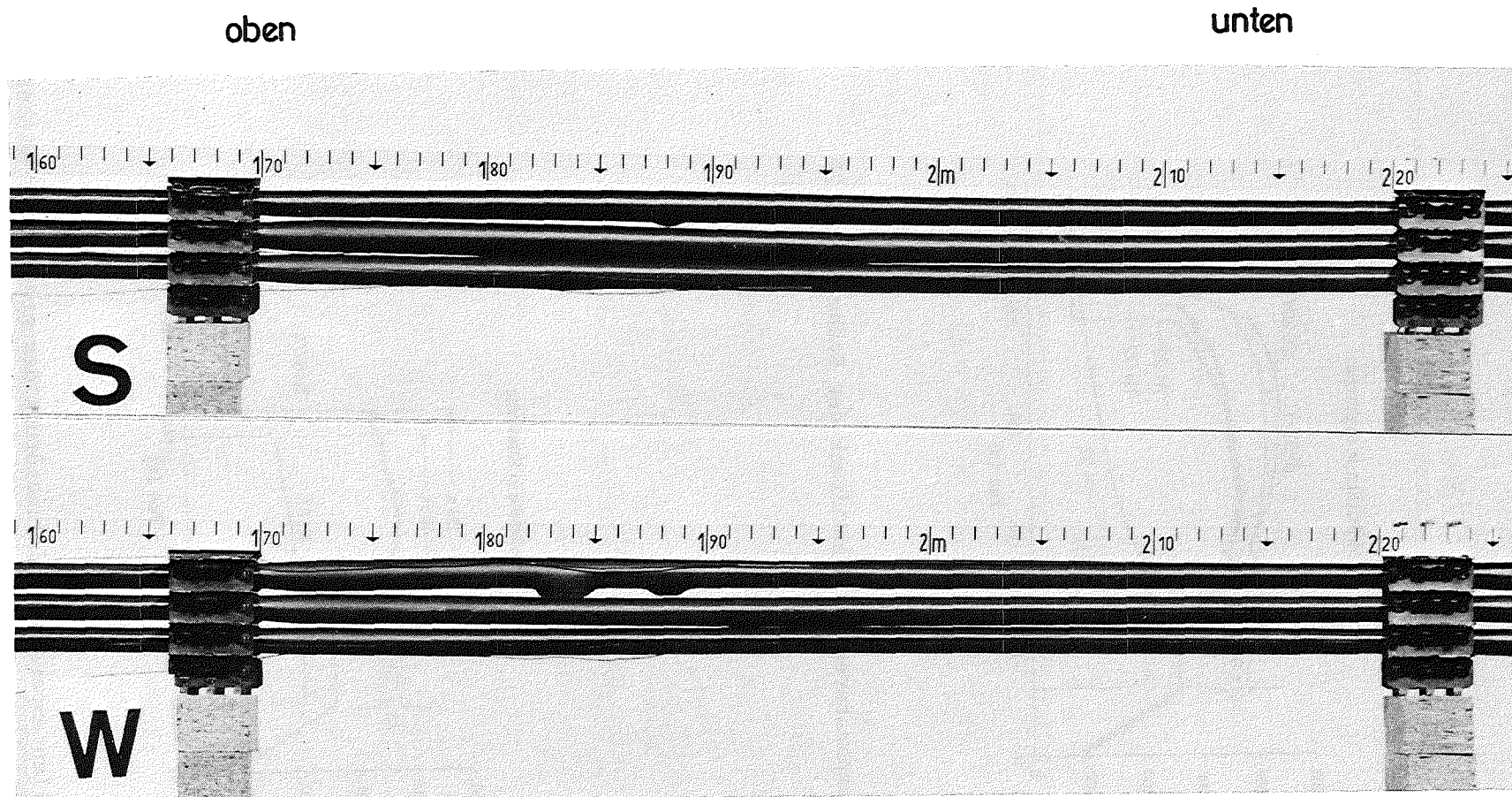
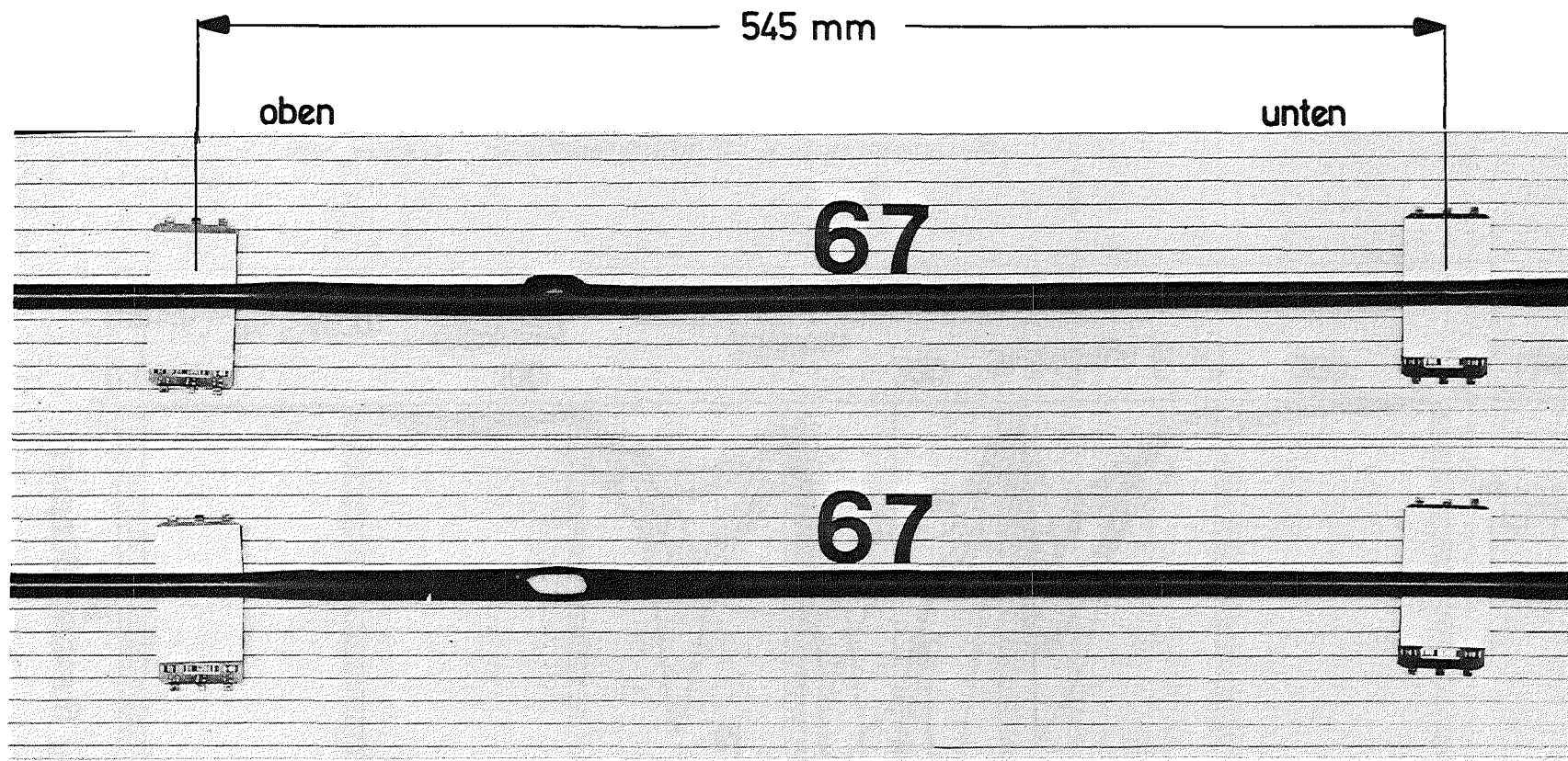


Abb. 4238-13 Mittelteil der höchstbelasteten Zone, Umgebungsstäbe entfernt



Bersttemperatur: ~ 810 °C , Berstumfangsdehnung : 31 %
Berstdruck: ~ 60 bar

Abb. 4238-14 Ansicht der geborstenen Hülle 67

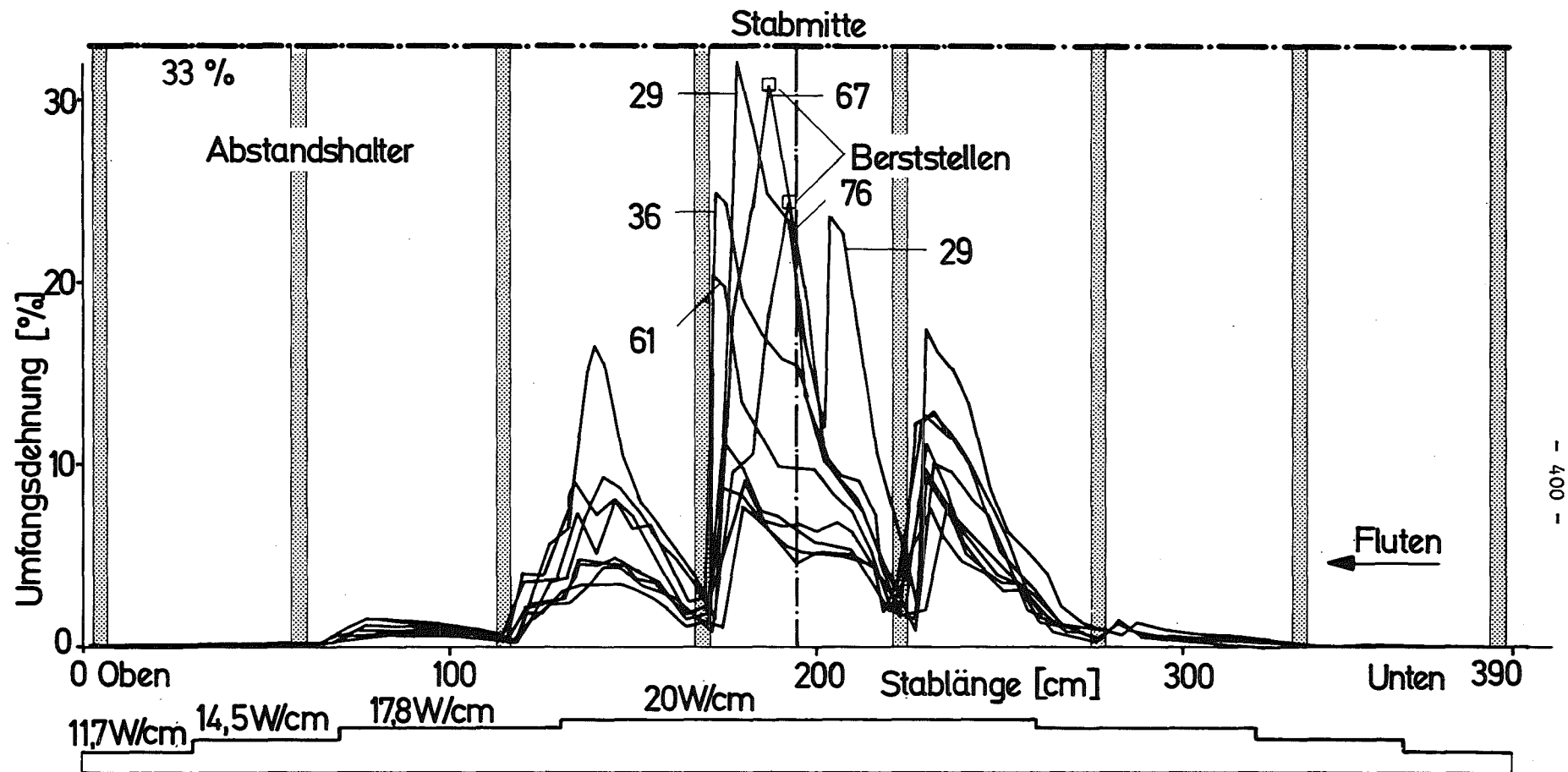


Abb. 4238-15 Umfangsdehnungen der 9 Zirkaloyhüllrohre

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

(P. Ihle, W. Götzmann, G. Hofmann, H. Kreuzinger, S. Malang, K. Rust, He. Schneider, IRB)

Ziel dieser Arbeit ist es, den Einfluß einer durch aufgeblähte Brennstabhüllen entstandenen Kühlkanalblockade auf die Kühlwirkung während der Flutphase zu bestimmen. Die Größe und die Form der Blockade werden variiert.

1. Arbeiten im Berichtszeitraum

Abgeschlossen wurden:

- Entwurf und Vergabe einer Ersatzteststrecke für die 5-Stab-Reihe.
- Entwurf und Vergabe von 2 Teststrecken für ein 5x5 Bündel für Stäbe mit 3.90 m beheizter Länge.
- Erstellung eines Rechenprogrammes zur Reduktion und graphischen Darstellung der Meß- und Rechenaten (DV-Programm)
- Vorversuche zur Umströmung von Teilblockaden in der 5-Stab-Reihe.

Begonnen wurden:

- Instrumentierung und Montage der 5-Stab-Reihe mit hülsenförmigen Blockaden
- Vorbereitung zur Instrumentierung der Stäbe und Teststrecken für das 5x5 Bündel
- Erweiterung des Prüfstandes für das 5x5 Bündel incl. Strahlungsheizung der Teststrecke
- Beschreibung des o.g. DV-Programms.

Fortgesetzt wurden:

- Erweiterung des Rechenprogrammes HETRAP
- Auswertung der bisherigen Versuche
- Überlegungen zur Erweiterung des Versuchsprogramms auf Bündel mit bis zu 50 Stäben.

2. Zusammenfassung der bisherigen Experimente und Ergebnisse

Die bisher durchgeführten Experimente mit der 5-Stab-Reihe mit Lochplatten als Blockadesimulatoren gaben den Zielvorstellungen entsprechend:

- optischen Einblick in die Zweiphasenströmung
- qualitative Ergebnisse bezüglich Hüllrohrtemperaturtransienten.

2.1 Untersuchte Parameterbereiche:

konstante Werte:

- | | |
|---|----------|
| - Anzahl der Stäbe | 5 |
| - Stabdurchmesser | 10.75 mm |
| - Stabteilung | 14.3 mm |
| - beheizte Länge der Stäbe | 2.90 m |
| - hydraulischer Durchmesser der Anordnung | 13.5 mm |
| - axialer Leistungsfaktor (cosinus stufenförmig) | 1.33 |
| - Kastenwandstärke | 6.5 mm |
| - axiale Blockadelänge | 23 mm |
| - zeitliche Änderung der Stableistung nach ANS Standard | |

varierte Werte:

- | | |
|---|------------------|
| - maximale Stableistung | 22,5 - 27,5 W/cm |
| - maximale Stabtemperatur bei Flutbeginn | 550 - 800 °C |
| - max. Kastentemperatur " " | 400 - 550 °C |
| - Flutgeschwindigkeit (konst. in jedem Versuch) | 1.5 - 7 cm/s |
| - Flutwassertemperatur(" " " ") | 40 - 80 °C |
| - Systemdruck (" " " ") | 2 - 4.5 bar |
| - Blockadetypen | Lochplatten |
| - Blockadefaktor in allen Kanälen gleichmäßig: | 0 %, 62 %, 90 %, |
| und ungleichmäßig gesamt: | 90 % |

2.2 Gemessene Werte (jeweils 10 Werte/s) :

- Hüllrohrtemperaturtransienten an bis zu 8 Stellen, längs eines Stabes
- Kastenwandtemperaturen
- Flutwassertemperatur am Bündeleintritt
- Flutrate
- Dampftemperatur nach Bündelaustritt
- ausgetragenes Wasser nach Bündelaustritt
- Drücke und Druckverluste
- zugeführte elektrische Leistung

2.3 Berechnete Werte (ortsabhängig jeweils 10 Werte/s Problemzeit):

- Staboberflächentemperaturen
- Stableistung
- Wärmeflüsse an der Staboberfläche
- gespeicherte Wärme im Stab
- Flutgeschwindigkeit im kalten Bündel
- Wärmeübergangszahlen
- Vergleich Heizstab-Brennstab (Simulationsqualität)

2.4 Ergebnisse

Die mit konstanter Einspeiserate geflutete und mit Gitterplatten blockierte 5-Stub-Reihe unterlag im o.g. Parameterbereich folgenden Wärmeübergangsverhältnissen:

Vor der Blockade:

- Gleicher Wärmeübergang wie in ungestörtem Bündel bei gleichem örtlichem Kühlmitteldurchsatz

Im Abstand von 50 mm vor der Blockade konnte noch kein Einfluß der stromabwärts gelegenen Störstelle ermittelt werden, wenn alle Kanäle gleichmäßig versperrt waren. Weder Tropfenzerstäubung beim Aufprall auf die Gitterplatte, noch Tropfen separation in Bereichen kleiner Dampfgeschwindigkeit konnten den Wärmeübergang nennenswert beeinflussen. Letzterer Einfluß kann demzufolge

nur bei größerer radialer Erstreckung von Blockaden ermittelt werden (s. Pkt. 4).

Nach der Blockade:

- Gleicher oder besserer Wärmeübergang durch Tropfenzerstäubung gegenüber unblockierter Anordnung mit gleichem örtlichem Kühlmitteldurchsatz (Abb. 4239-1 und 4239-2).

Dieser Effekt ist stärker bei größerem Blockadefaktor.

Die Zerstäubung der Tropfen hat mehrere Ursachen:

Zertrümmerung beim Aufprall auf die Blockade, Zerplatzen im aus der Engstelle austretenden Strahl und Zerkleinern von größeren Tropfen, die als Konglomerat kleiner Tropfen von oben in Richtung Blockade wieder zurückfallen. Bisher konnte nur die gemeinsame Wirkung dieser Effekte ermittelt werden, die darin besteht, daß bei zunehmendem Blockadefaktor der Wärmeübergang besser wird.

- Die Verbesserung des Wärmeübergangs hat unmittelbar nach der Blockade ihr Maximum, ist aber noch nach ca. 1 m feststellbar. Dies gilt zu Beginn der Flutphase. Gegen Ende der Flutphase fällt bei Flutgeschwindigkeiten um 2 cm/s die Stabtemperatur im oberen Bündelbereich sehr langsam und steigt bei noch kleineren Flutgeschwindigkeiten sogar wieder an. Dies ist darauf zurückzuführen, daß zu Beginn des Flutvorgangs am unteren Bündelende und im Bereich hinter der Blockade gleichzeitig viel Wärme gespeichert wird, so daß die Dampfproduktion und damit die Kühlung des oberen Bündelendes gegen Ende der Flutphase abnehmen (s. Abb. 4239-3).
- Flutgeschwindigkeit und Systemdruck verschlechtern mit fallenden Werten allgemein den Wärmeübergang wie in ungestörten Anordnungen, verändern jedoch den Kühlmechanismus hinter der Blockade qualitativ nicht.

Diese hier gemachten Feststellungen gelten auch für die Gitterplatte, die in der 5-Stab-Reihe 2/3 der Unterkanäle voll blockiert und nur an deren beiden Schmalseiten 10 % des gesamten ungestörten Strömungsquerschnitts der Anordnung freigibt (s. Abb. 4239-4). Zwei Effekte führen zu der intensiven Kühlung nach der Blockade auch in den voll blockierten Unterkanälen:

- Die aus den beiden seitlichen Engstellen austretende Strömung bildet hinter der Blockade Wirbel mit intensivem Queraustausch zwischen den Unterkanälen.
- In die voll blockierten Unterkanäle fallen nach dem oben beschriebenen Mechanismus Tropfen in Richtung Oberseite der Blockade.

In dieser Anordnung sind die Einzelbeiträge der beiden genannten Effekte zur Kühlung noch nicht aus der Gesamtwirkung zu erkennen. Hierzu sind größere Anordnungen und eine Variation der Querschnitte blockiert zu unblockiert erforderlich (siehe Punkt 4).

3. Vergleich mit externen Arbeiten

Nach gegenwärtigem Kenntnisstand sind zwei gegenläufige Effekte, die während der Flutphase den Kühlmechanismus im Bereich hinter der Blockade bestimmen, qualitativ bekannt:

- Der höhere Strömungswiderstand im blockierten Bereich führt dort zu einer Durchsatzverminderung und dadurch zu einer örtlich verringerten Kühlung.
- Die Zweiphasenströmung erfährt beim Passieren der Blockade und beim Rückströmen hinter die Blockade eine Zerstäubung der Tropfen, die im allgemeinen eine bessere Kühlung hinter der Blockade bewirkt.

Welcher der beiden gegenläufigen Effekte bei den möglichen Flut- und Geometriebedingungen überwiegt, ist nicht ausreichend bekannt. Über den Kühlmechanismus vor der Blockade gibt es für Nebelströmung bislang keine Aussagen. Versuche in Blasenströmung und in einphasiger Strömung geben einen Aufschluß über die Größe der Einflußbereiche vor und hinter der Blockade /1/, /2/, /3/, /4/, können jedoch keine Aussage liefern zur:

- Tropfenzerstäubung, wirksam hinter der Blockade und bei Quer- und Rückströmung.
- Tropfenabscheidung vor der Blockade und
- zeitabhängiger Dampfproduktion, die zusätzlich beeinflusst wird durch unterschiedliche Zerstäubung,

Diese Effekte sind stark wirksam zu Beginn der Flutphase mit der ausgeprägten Nebelströmung. Dies zeigte sich bei den FLECHT-Versuchen /5/, bei den Untersuchungen der INC /6/ und den eigenen Ergebnissen aus der 5-Stab-Reihe mit plattenförmigen Blockaden /7/ bis /11/. Ihre zeitabhängige Veränderung und ihre Wirksamkeit bei den möglichen Flut- und Geometrieparametern sind jedoch zu quantifizieren.

4. Darstellung der offenen Probleme und Ausblick auf das weitere Vorgehen

Aufgrund der bisherigen Ergebnisse aus der 5-Stab-Reihe mit plattenförmigen Blockaden bedürfen 3 Bereiche in einem Bündel voller Länge der näheren Untersuchung:

- Unmittelbar vor der Blockade.

Hier kann es bei kleinen Flutgeschwindigkeiten und größerer radialer Erstreckung einer Blockade mit großem Blockadefaktor zu Tropfenseparation kommen. Die in der Stauzone abnehmende Dampfgeschwindigkeit führt zu geringerem Wassermitriß und größerer Dampfüberhitzung.

- Nach der Blockade.

Die unter Punkt 2.4 beschriebenen Effekte hinter der Blockade - Wirbelbildung und Tropfenrückfall, jeweils verbunden mit Tropfenzerstäubung - sind hinsichtlich ihres Einflusses zu trennen. Dies ist nur in größeren Anordnungen möglich, die größere Verhältnisse unblockierter zu blockierter Bündelquerschnitte erlauben bei ausreichender Größe des blockierten Bereichs in radialer Richtung.

- Oberes Drittel eines Bündels voller Länge, wenn die Blockade etwa in Kernmittenebene liegt. Bei kleiner Flutgeschwindigkeit und dennoch starker Wärmeabfuhr aus dem Bündel - verursacht z. B. durch Blockaden - nimmt die Dampfproduktion gegen Ende der Flutphase stark ab. Dies kann zu einem Wiederansteigen der Stabtemperatur führen, wenn die Benetzungsfront das obere Bündelende noch nicht erreicht hat.

In der laufenden Versuchsgruppe I mit fünf nebeneinander angeordneten Stäben (Reihe 1x5) wird unter Inkaufnahme starker Wandeinflüsse qualitativ durch optische Beobachtung und quantitativ durch Temperaturmessung und Berechnung

der Wärmeübergangszahlen untersucht, welche Unterschiede im Vergleich zur unblockierten Anordnung sich im Einflußbereich von plattenförmigen und keulenförmigen Blockaden ergeben. Bei den meisten Versuchen dieser ersten Gruppe sind alle Kühlkanäle in der axialen Mitte gleichförmig bis zu 90 % von Blockadekörpern versperrt. Das Prinzip der Versuchsanordnungen ist in Abb. 4239-5 dargestellt.

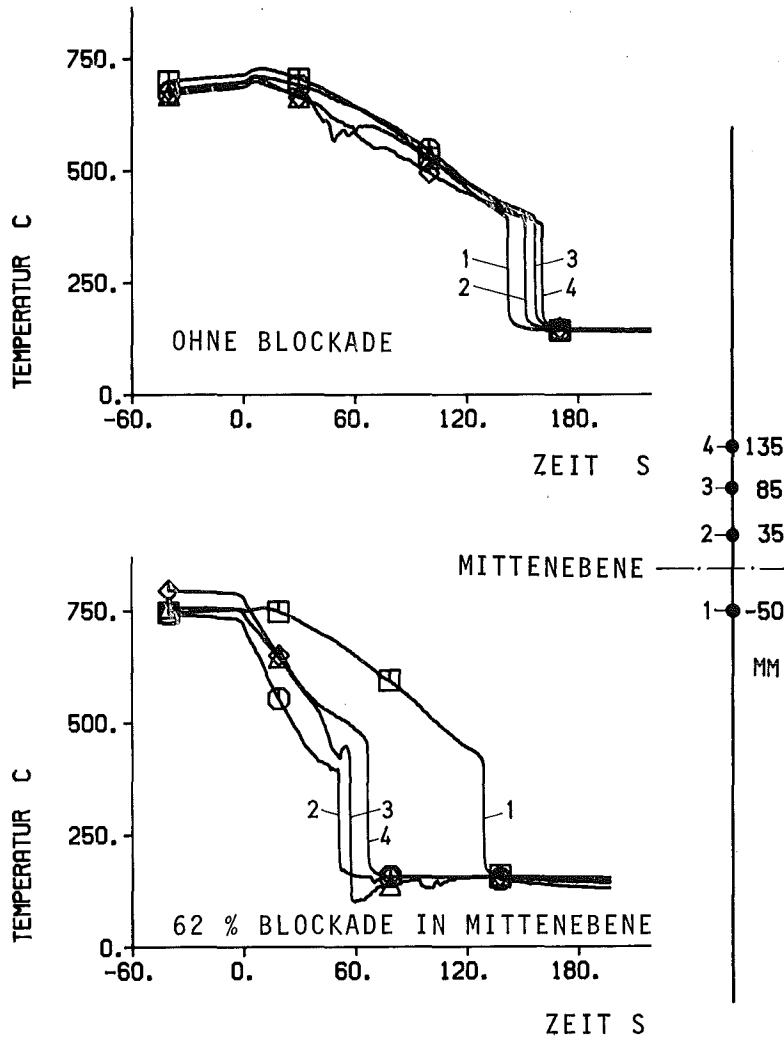
In der Versuchsgruppe 2 wird in einer 5x5-Bündelanordnung nur ein Teil der Kühlkanäle durch Blockaden verengt, um die Umverteilung des Kühlmittelstromes in miteinander kommunizierenden, blockierten und freien Kühlkanälen in die Untersuchung einzubeziehen. Obwohl es zweifelhaft erscheint, daß im Zentrum der relativ kleinen Gruppe von 3x3 verdickten Stäben eine deutliche Auswirkung der Kühlkanalversperrung meßbar sein wird, wird von dieser Versuchsgruppe Aufschluß darüber erwartet, mit welchen Temperaturen im Fall einer koplanaren Blockade an 9 benachbarten Stäben zu rechnen ist und ob die höchsten Temperaturen dicht vor der Blockade oder eventuell weit hinter der Blockade auftreten, wo sie nach den ersten Ergebnissen der Versuchsgruppe 1 vermutet werden können.

In der Versuchsgruppe 3 wird mit 25 Stäben in einer 5x5-Bündelanordnung unter weitgehendem Verzicht auf die optische Zugänglichkeit aber bei wesentlich reduziertem Wandeinfluß das quantitative Ergebnis aus der ersten Versuchsgruppe präzisiert; dazu werden bei zunächst nur geringer Variation der Versuchsparameter ein Bündel ohne Blockaden und mehrere Bündel mit gleichmäßig in allen Kühlkanälen angebrachten, platten- und keulenförmigen Blockaden untersucht. Es wird geprüft, ob die Verwendung einer vorgebbaren Druckdifferenz über die Bündellänge als weitere Flutrandbedingung neben dem bisher angewandten Zwangsdurchsatz praktisch durchführbar ist und den Aussagewert der Ergebnisse erhöht.

Die Versuchsgruppe 4 soll Aussagen über die Wirkung von Teilblockaden größerer, radialer Abmessungen ermöglichen und wird nach noch ausstehenden Überlegungen spezifiziert.

- /1/ D. Kirsch,
"Untersuchungen zur Strömungs- und Temperaturverteilung im Bereich lokaler
Kühlkanalblockaden in Stabbündel-Brennelementen", KfK 1794, Mai 1973.
- /2/ J. M. Creer, D. S. Rowe, J. M. Bates, A. M. Sutey,
"Effects of Sleeve Blockages on Axial Velocity and Intensity of Turbulence
in an Unheated 7x7 Rod Bundle", BNWL 1965, Jan. 1976.
- /3/ J. M. Creer, J. M. Bates,
"Effects of Sleeve Blockages on Air Velocity Distributions in an Unheated
7x7 Rod Bundle", BNWL 1975, Jan. 1976.
- /4/ W. B. Hall, G. P. Ioannou, Z. T. Turner,
"Heat Transfer in the Vicinity of a Partial Flow Blockage in a Reactor
Core", I. Mech. E.-Tagung "Heat and Fluid Flow in Water Reactor Safety",
Sept. 1977, Manchester, GB.
- /5/ F. F. Cadek, D. P. Dominicis, R. H. Leyse,
"PWR-FLECHT", Final Report, WCAP-7665, April 1971.
- /6/ P.R. Davis,
"Experimental Studies of the Effect of Flow Restrictions in a Small Rod
Bundle Unter Emergency Core Coolant Injection Conditions", Nuclear
Technology, Vol. 11, (Aug. 1971) S. 551 - 556
- /7/ P. Ihle, S. Malang, K. Rust,
"Thermohydraulic Tests with Bundles of Ballooned Rods Simulating the
Reflood Phase of a LOCA", ANS-Thermal Reactor Safety Meeting, July/Aug.
1977, Sun Valley, ID, USA.
- /8/ S. Malang, K. Rust,
"Heat Transfer Analysis of Experiments Simulating a Loss-of-Coolant
Accident (LOCA)", I. Mech. E.-Tagung "Heat and Fluid Flow in Water
Reactor Safety", Sept. 1977, Manchester, GB.

- /9/ P. Ihle, S. Malang, K. Rust,
"Reflowd Experiments with Bundles of Ballooned Rods", Symposium on the
Thermal and Hydraulic Aspects of Nuclear Reactor Safety, 1977 Winter
Annual ASME-Meeting, Atlanta, Ga., USA.
- /10/ Y. Murao,
"An Analytical Study of the Thermo-Hydrodynamic Behavior of the Reflood
Phase During a LOCA", KfK-2545 (Dezember 1977).
- /11/ H. Albrecht, M. Bocek, F. Erbacher, A. Fiege, M. Fischer, S. Hagen,
P. Hofmann, H. Holleck, E. Karb, S. Leistikow, S. Malang, G. Ondracek,
F. Thümmeler, K. Wiehr,
"Behavior of LWR Fuel Elements under Accident Conditions", Paper No.
IAEA-CN-36/124, vorgetragen auf der "International Conference on
Nuclear Power and its Fuel Cycle", Salzburg, May 1977.

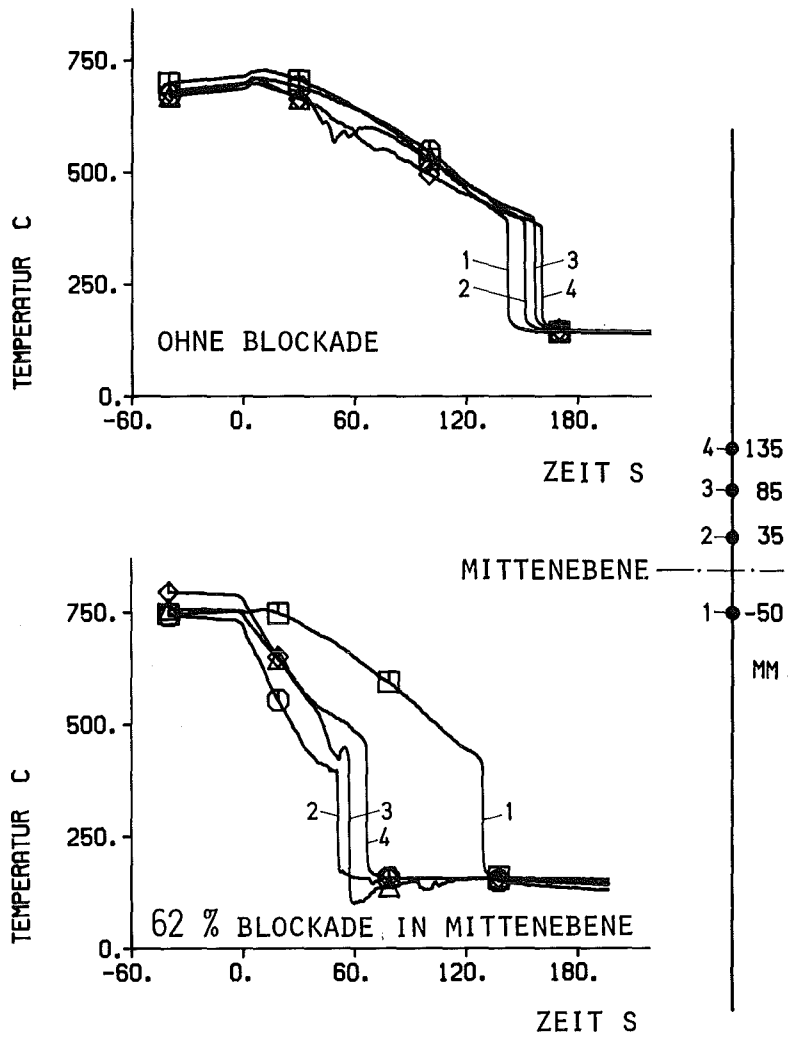


- SYSTEMDRUCK 4 BAR
- FLUTGESCHWINDIGKEIT 6 CM/S
- BLOCKADEFAKTOR IM BLOCKIERTEN FALL 62 %
- IN ALLEN UNTERKANALEN

HÜLLENTEMPORATUREN

ABB. 4239-1

OHNE BLOCKADE, MIT 62 % BLOCKADE

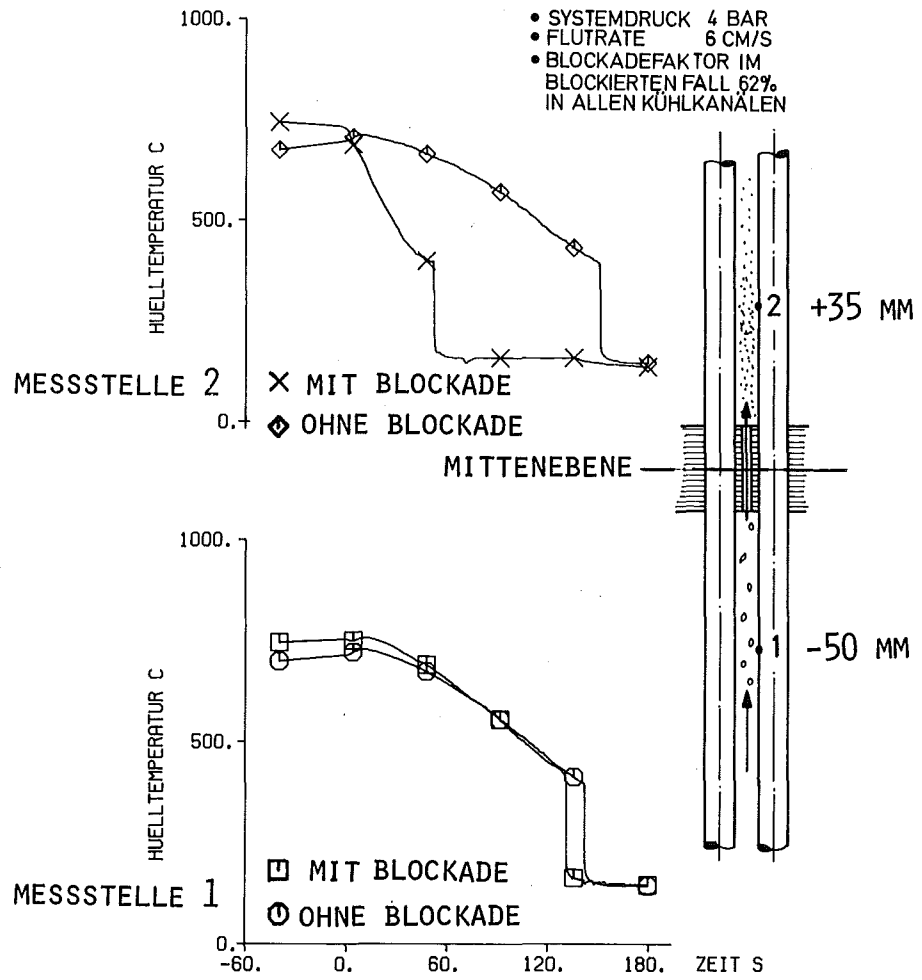


- SYSTEMDRUCK 4 BAR
- FLUTGESCHWINDIGKEIT 6 cm/s
- BLOCKADEFAKTOR IM BLOCKIERTEN FALL 62 %
- IN ALLEN UNTERKANALEN

HÜLLENTemperaturen

ABB. 4239-1

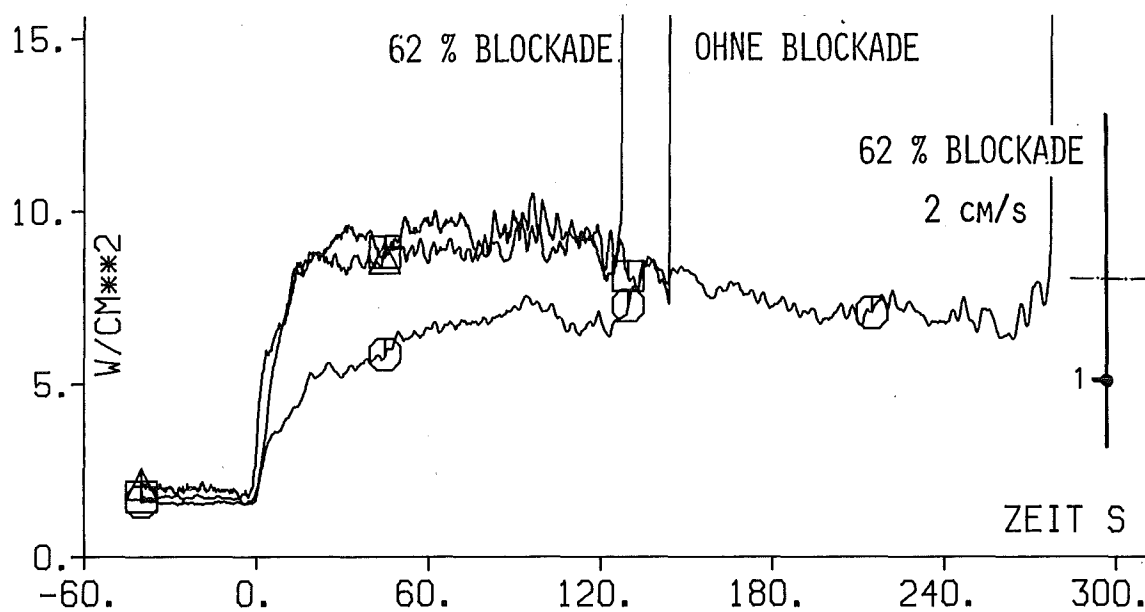
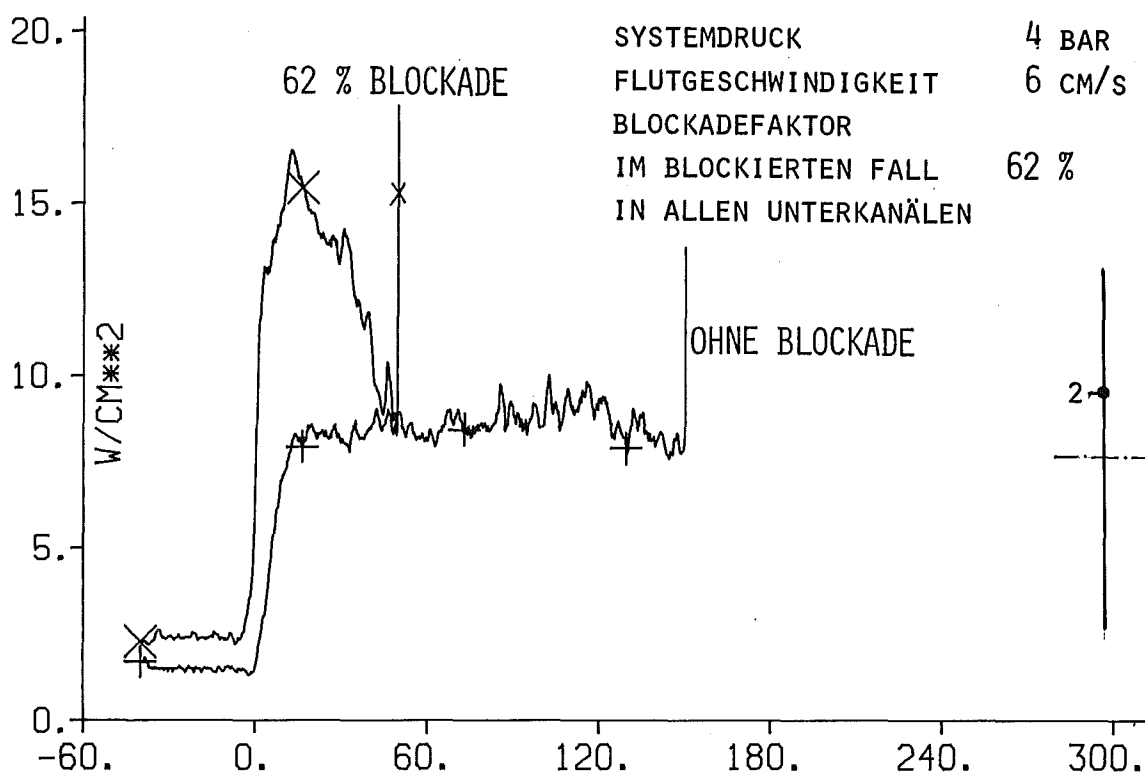
OHNE BLOCKADE, MIT 62 % BLOCKADE



HÜLLTEMPERATUREN

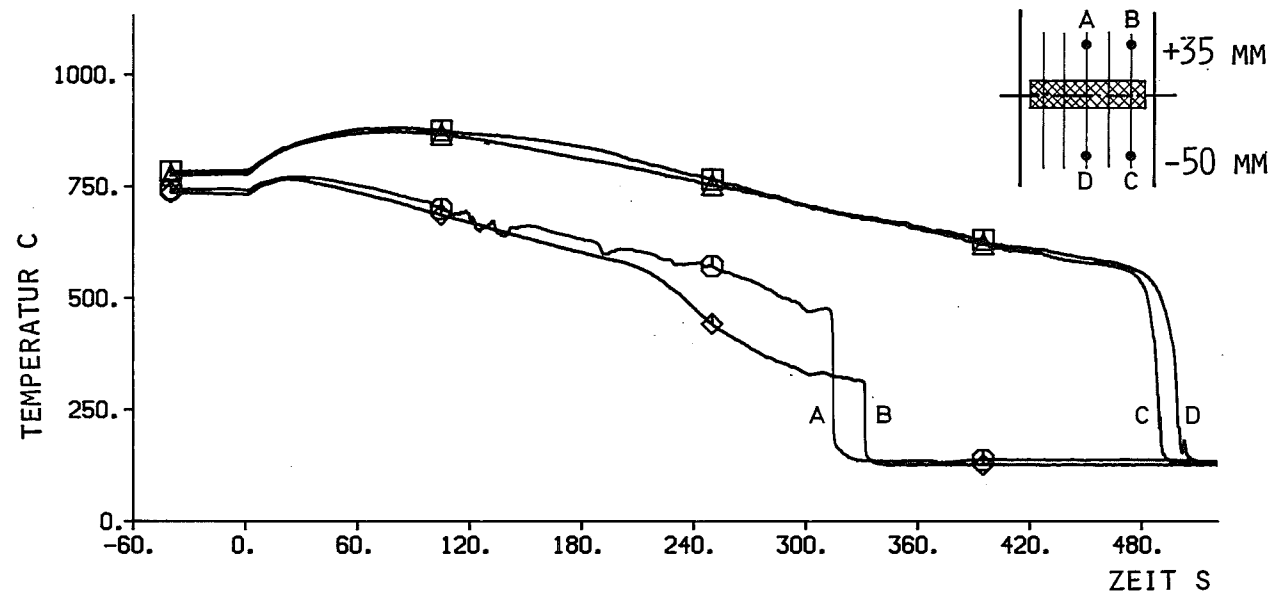
ABB. 4239-2

UNMITTELBAR VOR UND HINTER DER MITTENEBENE
MIT UND OHNE GITTERPLATTE ALS BLOCKADE



WÄRMEFLUSS AN DER STABOBERFLÄCHE
VOR UND NACH DER MITTENEBENE

ABB. 4239-3



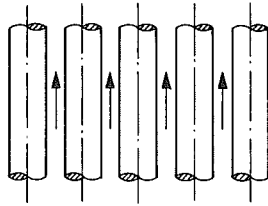
- SYSTEMDRUCK 1.5 BAR
- FLUTGESCHWINDIGKEIT 2 CM/S
- BLOCKADEFAKTOR GESAMT IM BÜNDELQUERSCHNITT 90 %
- MITTLERE UNTERKANÄLE 100 % BLOCKIERT

HÖLLENTEMPERATUREN BEI UMSTRÖMTER BLOCKADE

ABB. 4239-4

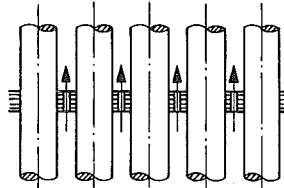
STABZAHL
PRO ANORDNUNG:

5 , 25 , 50



UNGESTÖRTE
BRENNSTABGEOMETRIE

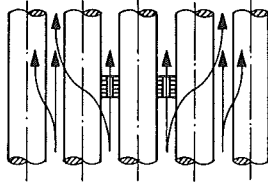
5 , 25



GESTÖRTE
BRENNSTABGEOMETRIE

ALLE KÜHLKANÄLE
TEILWEISE BLOCKIERT

(5) , 25 , 50



EINIGE KÜHLKANÄLE
TEILWEISE BLOCKIERT

- VERSUCHSPARAMETER:
- BLOCKADEFaktor
 - BLOCKADEFORMEN: LOCHPLATTE UND BEULE
 - GRÖSSE DES BLOCKIERTEN BEREICHES IM BÜNDEL
 - FLUTBEDINGUNGEN

VERSUCHSPRINZIP
ZUR UNTERSUCHUNG DER EINZELEFFEKTE
BEIM FLUTEN EINES TEILWEISE BLOCKIERTEN KERNS

ABB. 4239-5

4240 Kernschmelzen 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

Um die Verhältnisse im Kern noch realistischer zu simulieren, wurden im 2. Halbjahr 1977 Abschmelzversuche mit Bündeln in Dampf durchgeführt, bei denen der Zentralstab aus Vollpellets aufgebaut war. Dieser zentrale Stab war von 7 Wolframstab-beheizten Brennstabsimulatoren umgeben. Die Anordnung der Stäbe kann man aus dem Nummernfeld unter den Bildern erkennen. Dieses Nummernfeld gibt auch an, von welcher Seite das Bündel jeweils fotografiert wurde. Die achte mögliche Nachbarposition des Zentralstabes wurde freigelassen, um die Temperaturmessung des Zentralstabes zu gestatten.

Bei dem früher verwendeten Aufbau aus 3x3 beheiztem Kern und einer doppelten Reihe von Reflektorstäben war für einen zentralen Stab mit Vollpellets bei der verfügbaren maximalen Stromstärke von 1500 Amp. nur eine Temperatur von 1700 °C zu erreichen. Es mußte daher eine Anordnung geschaffen werden, die geringere Strahlungsverluste aufweist. Hierfür wurde ein Keramikfaserschirm aufgebaut. Er besteht aus einem inneren Zylinder von 2,5 cm Zirkonoxid-Faser und einem äußeren Zylinder mit 5 cm Aluminium-Silizium-Oxid-Faser. Die Faser hat eine Stärke von ca. 4 - 5 μ und ist zu einem Material mit über 90 % Porosität verpreßt. Das oxidische Grundmaterial liefert die hohen Schmelztemperaturen und die Beständigkeit gegen eine oxidierende Atmosphäre, während die Faserform eine ausreichende Thermoschockunempfindlichkeit und eine gute Isolationswirkung ergibt. Mit dieser Anordnung wurden Bündelversuche mit Temperaturen bis 2100 °C am Vollpelletzentralstab durchgeführt. Es wurden Experimente mit 30 cm und 50 cm langen Stäben gefahren. Die Bündelversuche an 30 cm langen Stäben wurden mit unterschiedlichen Temperaturanstiegen zwischen 4 °C/sec und 0,25 °C/sec aufgeheizt. Es sollte damit der Einfluß

der unterschiedlich starken Oxidation auf das Abschmelz- und Erstarrungsverhalten untersucht werden. Das Dampfangebot bei den Versuchen betrug 25 g/min.

Die Experimente haben gezeigt, daß je nach dem Oxidationsgrad sich drei Bereiche für das Verhalten der Hülle einteilen lassen. Für jeden Bereich ist ein typisches Experiment in den Abb. 1 - 3 wiedergegeben.

1. Bei großen Aufheizgeschwindigkeiten ist die Oxidschichtdicke des Zircaloy beim Erreichen seiner Schmelztemperatur noch so dünn, daß die Schmelze die Haut an vielen Stellen durchdringen kann. Es baut sich kein Druck im Innern der Oxidhülle auf.
Die Oxidschicht dient der Schmelze als Skelett, an dem das Schmelzgut haftet, und damit länger für Wechselwirkungsprozesse zur Verfügung steht.

Die Abb. 1 zeigt Aufnahmen von verschiedenen Seiten des mit 4 °C/sec auf 2050 °C aufgeheizten Bündels. Besonders das mittlere Bild, in dem die Stäbe 33, 32 und 31 wiedergegeben sind, läßt die verformte Oxidhaut mit der daran haftenden erstarrten Schmelze gut erkennen.

2. Bei mittleren Aufheizgeschwindigkeiten und mittleren Schichtdicken schließt die Oxidschicht die Schmelze aus Restzircaloy und aufgelöstem UO_2 ein, bis der Druck so groß wird, daß die Hülle versagt und das Schmelzgut austritt. Beim Abkühlen bilden sich Risse in der Hülle und die Oxidschicht platzt teilweise ab.

In der Abb. 2 sind Aufnahmen eines Bündels wiedergegeben, das mit 2 °C/sec auf 2000 °C aufgeheizt wurde. Hier hat sich schon eine beim Aufheizen formstabile Hülle ausgebildet, die beim Abkühlen aber ihren Zusammenhalt verliert.

3. Bei so langsamem Aufheizen, daß die Zircaloyhülle bis zum UO_2 hin durchoxidiert, ist kein metallisches Zircaloy zum Schmelzen beim Erreichen von 1850 °C mehr vorhanden. Die Schmelztemperatur des ZrO_2 liegt bei 2650 °C und die niedrigste Schmelztemperatur für Mischkristalle im System ZrO_2 bei 2500 °C. Unter diesen Bedingungen wird es also erst zwischen 2500 und 2650 °C zum Schmelzen des Stabes kommen.

In dem mit $0,25 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ auf $2050 \text{ }^{\circ}\text{C}$ aufgeheizten Bündelversuch (Abb. 3) bleiben die voll durchoxidierten Hüllen auch beim Abkühlen als nicht geplatze und gerissene Stäbe stehen. Nach dem Ausbau zeigte sich, daß bei den Stäben 18, 19, 25, 26, 32 und 33 nur die nach außen gewandten Seiten voll durchoxidiert waren. Trotz des an den Außenwandungen im Überschuß vorhandenen Dampfangebotes ist nicht genügend Dampf zwischen die Stäbe diffundiert.

Die inneren Seiten waren im mittleren Bereich weggeschmolzen (Abb. 4). Das linke Bild zeigt die Länge des Schmelzbereiches. Die rechte Vergrößerung zeigt das angeschmolzene Innere des Bündels. Die Bruchkante der entfernten Stäbe zeigt die völlige Durchoxidation der Hülle auf der Außenseite. Die entstandene Schmelze hatte sich am unteren Ende dieses Bereiches zwischen den Stäben gesammelt. Der Weg für den entstehenden Schmelzklumpen nach unten zwischen die Stäbe muß durch erstarrtes Schmelzgut versperrt gewesen sein, denn die angesammelte Schmelze hat sich ihren Weg zwischen den Stäben 19 und 26 zur Außenseite des Bündels gebahnt (Abb. 3; 3. Bild). Das Austreten der Schmelze erfolgte schlagartig in einem Ausstoß.

Im Reaktor hängt der Grad der Oxidation von der Position im Kern ab, da mit ihr auch die Aufheizgeschwindigkeit schwankt. Im Zentrum ist die Anstiegsrate am größten und nimmt nach außen hin ab. Ferner wird die Oxidation stark durch die Notkühlbedingungen bestimmt, da durch die zur Verfügung stehende Wassermenge sowohl der Temperaturanstieg als auch das Dampfangebot beeinflusst wird.

Im Zentrum der mit verschiedenen Temperaturanstiegsgeschwindigkeiten aufgeheizten Bündel befand sich jeweils ein aus Vollpellets aufgebauter Stab. Das Abschmelzen dieser Stäbe bestätigt das schon an Einzelstabversuchen gefundene Verhalten, daß der Schmelzangriff auf das UO_2 durch das Zircaloy unter den verschiedenen Bedingungen jeweils beim Vollpellet und beim Ringpellet des Brennstabsimulators mit W-Heizer das gleiche ist.

Vergleicht man das Eindringen der Schmelzfront bei nebeneinander stehendem Vollpellet- und Ringpelletstab vom gleichen Ausgangspunkt her, so ist das Eindringen am Ringpelletstab stärker. Dieses ist auch verständlich, da die Temperatur im Ringpellet vom Rand zum Zentrum ansteigt und damit

insgesamt höher liegt als im benachbarten Vollpellet. Die höhere Temperatur ermöglicht eine stärkere Diffusion des Zircalloys ins UO_2 .

Zur Stabilität der Vollpelletstäbe hat sich folgendes ergeben: Wie die Abb. 1, 2 und 3 (Bild ganz links) zeigen, blieb der Zentralstab bei allen Aufheizgeschwindigkeiten mit den 30 cm langen Bündeln bis nach dem Versuch als Säule stehen. Bei den später besprochenen Bündeln mit 50 cm langen Bündeln blieben die Zentralstäbe beim Aufheizen ebenfalls als Säule stehen, stürzten aber dagegen am Ende des Abkühlvorganges ab. Der abgebrochene Stab blieb in zwei bis drei Bruchstücken an der Isolation hängen.

Zum Abstürzen ist aber zu bemerken, daß der Zentralstab auf einer Seite keinen Nachbarstab hatte. Dieser war weggelassen worden, um die Temperatur des Zentralstabes messen zu können. Nach dieser Seite konnte der Zentralstab ausweichen. Im kompletten Bündel hätte der Stab nur 3 mm Platz für eine seitliche Verschiebung der Säule.

Betrachtet man die Abbildungen der in Wasserdampf mit den verschiedenen Anstiegsraten aufgeheizten Bündel in Bezug auf das Erstarrungsverhalten der entstehenden Schmelze innerhalb des Stabverbands, so bestätigt sich die bei den Bündelversuchen in He und in Sauerstoffmangel gefundene Neigung der Schmelze zum Hängenbleiben zwischen den Stäben. Es zeigt sich, daß diese Tendenz zunimmt, je stärker die Oxidation der Stäbe fortgeschritten ist. Dies hat 3 Ursachen:

1. Vergrößert sich der Durchmesser des Stabes durch die Oxidation und verringert damit den Spalt zwischen den Stäben.
2. Die Oberfläche der Stäbe wird rauher.
3. Das Oxid im Vergleich zum Metall wird weniger leicht aufgeschmolzen und bildet eine Matrix, an der das Schmelzgut hängenbleibt.

Um weitere Aussagen über das Erstarrungsverhalten zu gewinnen, haben wir Experimente mit längeren Bündeln (50 cm) durchgeführt, bei denen sich nur der obere Bereich des Bündels innerhalb der Keramikfaser-Isolation befand (Abb. 5). Der Aufbau dieser Bündel bestand wieder aus einem zentralen Vollpelletstab und 7 umgebenden beheizten Brennstabsimulatoren.

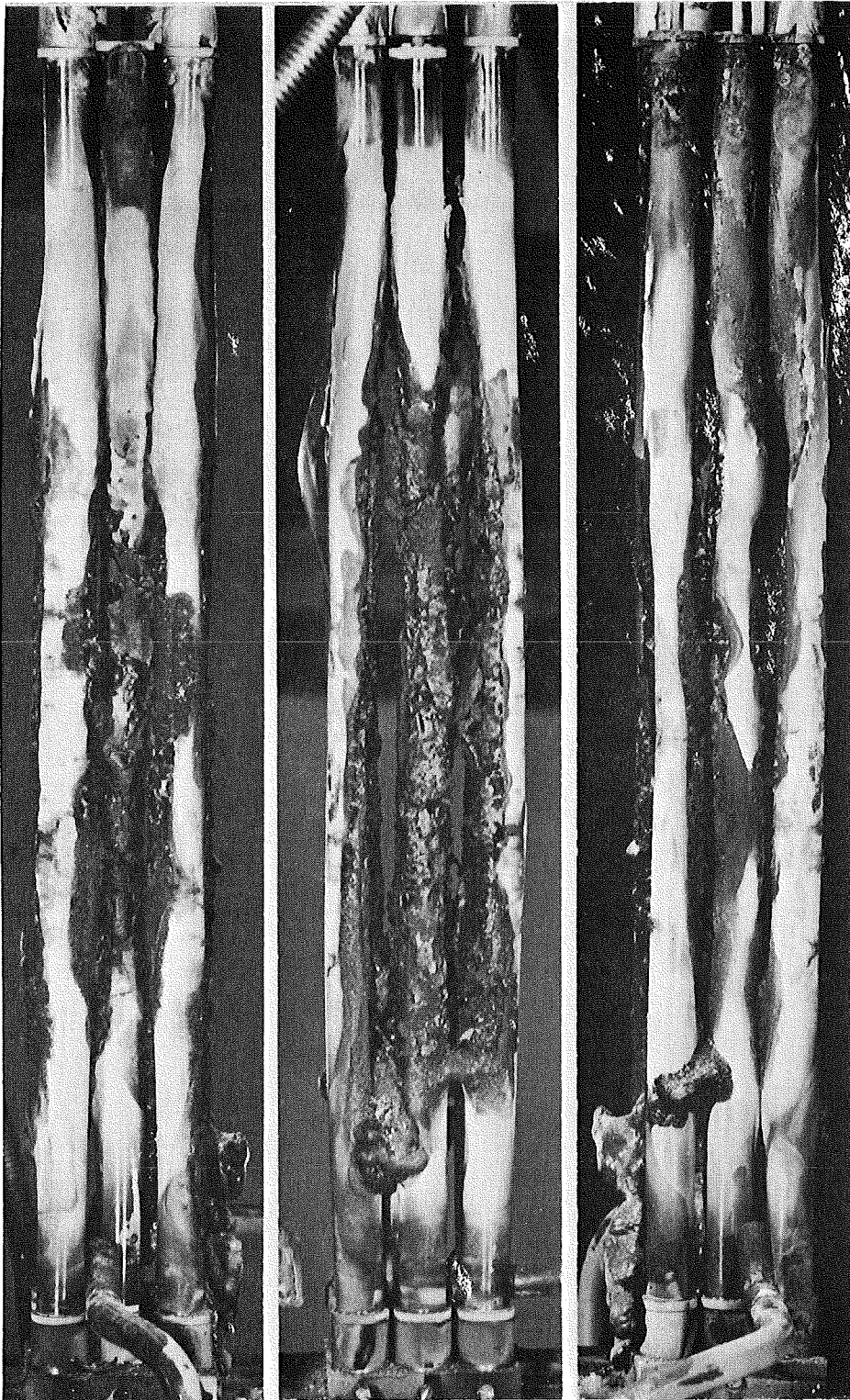
Um den Einfluß des Abstandshalters zu bestimmen, wurde der Versuch unter sonst gleichen Bedingungen mit einem zusätzlichen Abstandshalter am Zentralstab durchgeführt. Die Temperaturen am Zentralstab im heißen Bereich der Abschirmung lagen bei 2120 und 2040 °C. Dicht unterhalb der Abschirmung betrug die maximale Temperatur ca. 1400 °C.

Bei beiden Versuchen kam es zum Schmelzen auf der Innenseite der Stäbe mit der Ausbildung von erstarrtem Schmelzgut zwischen den Stäben am unteren Ende des isolierten Bereiches. Die Untergrenze des Erstarrungsbereiches lag 2 - 3 cm über dem Ende der Keramikisolation. Der Schmelzklumpen im Bündel mit Abstandshalter war deutlich größer und ist in der Abb. 8 wiedergegeben.

Trotz dieser Ausbildung von Schmelze tropfte bei beiden Versuchen während des Aufheizens kein Schmelzgut in den unteren Bereich. Eine Ausnahme machten nur einige Schmelztropfen, die beim Abschmelzen des Abstandshalters im Bereich des Kanals an der Position 24 aus dem isolierten Bereich herausfielen.

Diese Versuche deuten also darauf hin, daß unter entsprechenden Bedingungen es möglich ist, daß praktisch das gesamte entstehende Schmelzgut im Bereich des Kerns hängen bleibt. Zur Bewegung von Material aus dem Bereich der Isolation kam es erst beim Abkühlen des Bündels. Es platzten Stücke von den Stäben ab, die danach auf die untere Elektrode fielen.

Die Versuche mit Abstandshalter bei Temperaturen unterhalb der Schmelztemperatur des Zircaloy's haben gezeigt, daß durch die Oxidation der Angriff des Inconels auf das Zircaloy weitgehend vermieden wird. Es kommt zur Ausbildung einer stabilen Oxidschicht auf der ganzen Stablänge, die den Einfluß des Inconels in diesen Temperaturbereich voll unterdrückt. Der größere Schmelzklumpen im Bündelversuch mit dem Abstandshalter zeigt aber, daß der Einfluß des Abstandshaltermaterials nicht ganz verschwindet. Ferner konnten wir durch das Temperaturmeßloch im Faserschirm feststellen, daß der Zentralstab zuerst im Bereich des Abstandshalters abbrach. Das Gebiet des Abstandshalters stellt den schwächsten Bereich des Brennstabes dar.



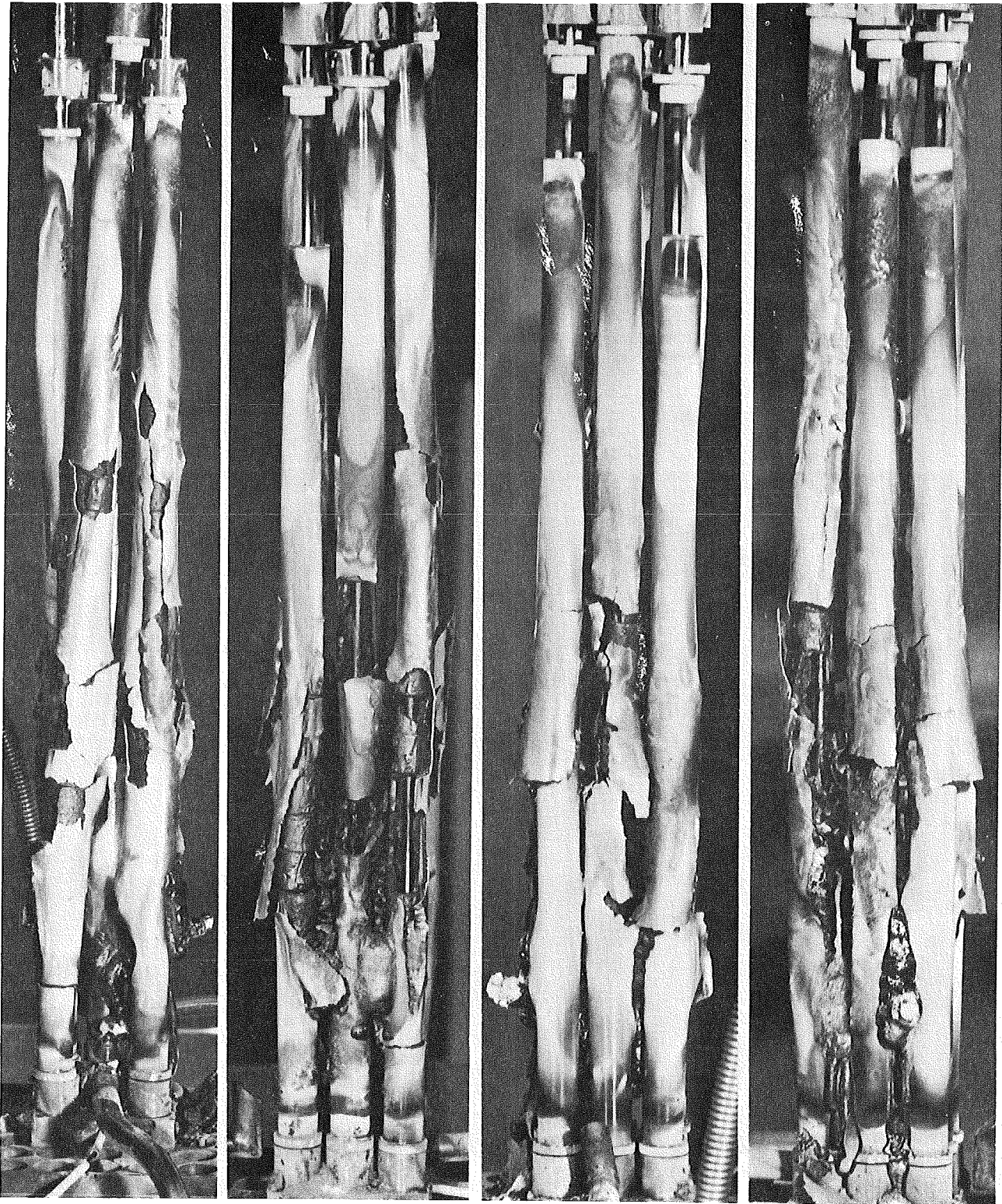
33 26 19
32 25 18
31 17

19 18 17
26 25
33 32 31

17 31
18 25 32
19 26 33

PNS 4321  IT

ABB. 4241-1
IN DAMPF MIT 4 °C/SEC AUF 2050 °C ZENTRALSTABTEMPERATUR AUFGE-
HEIZTES BÜNDEL. DER ZENTRALE VOLLPELLETSTAB IST VON 7 BEHEIZTEN
BRENNSTABSIMULATOREN UMGEBEN. KERAMIKFASERISOLATION.



33 26 19
32 25 18
31 17

19 18 17
26 25
33 32 31

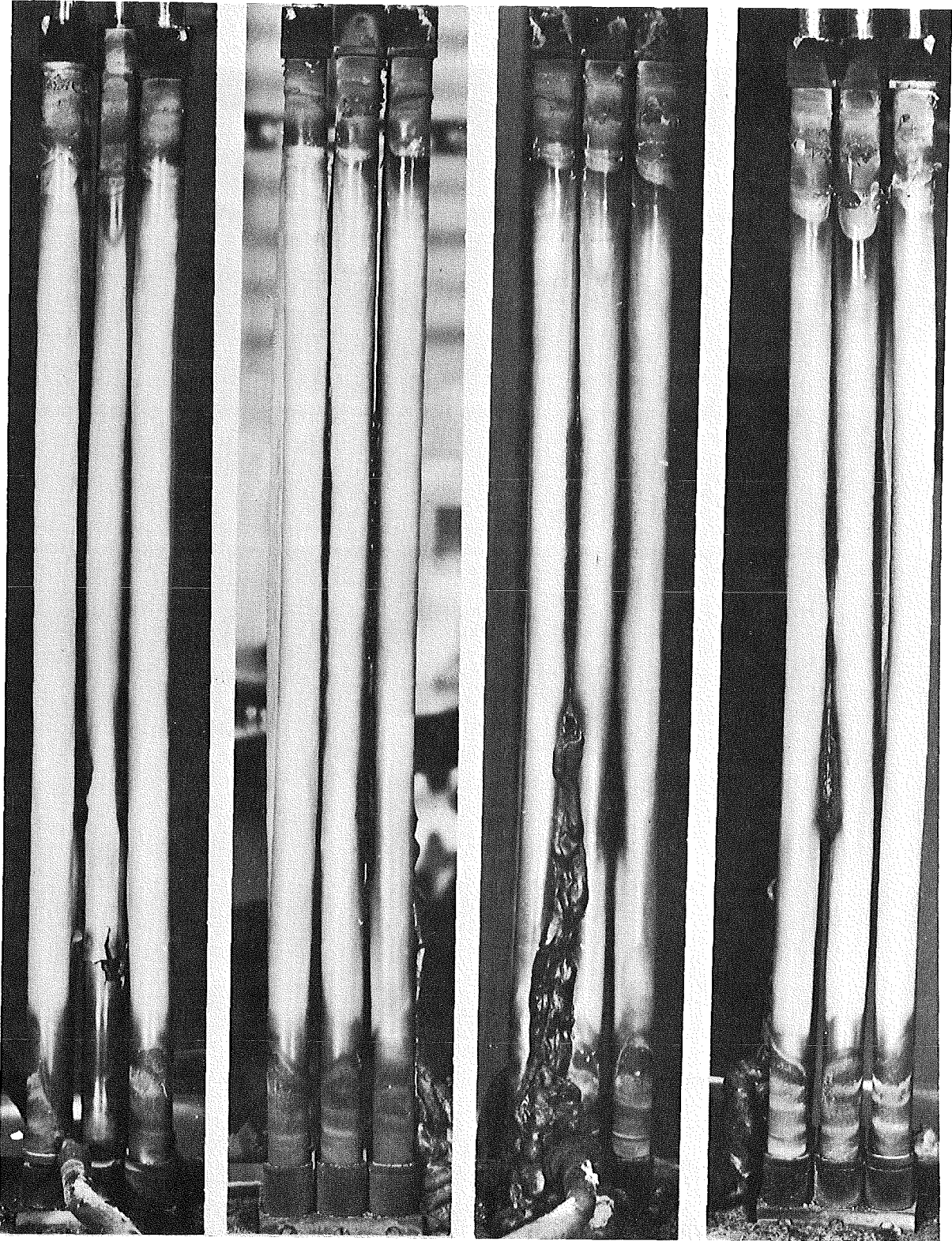
17 31
18 25 32
19 26 33

31 32 33
25 26
17 18 19

PNS 4321  IT

ABB. 4241-2

DIE VIER SEITEN EINES IN DAMPF MIT 2 °C/SEC AUF 2000 °C ZENTRAL-
STABTEMPERATUR AUFGEHEIZTEN BÜNDELS. DER ZENTRALE VOLLPELLETSTAB
IST VON 7 BEHEIZTEN BRENNSTABSIMULATOREN UMGEBEN. KERAMIKFASERISOLATION.



33 26 19
32 25 18
31 17

19 18 17
26 25
33 32 31

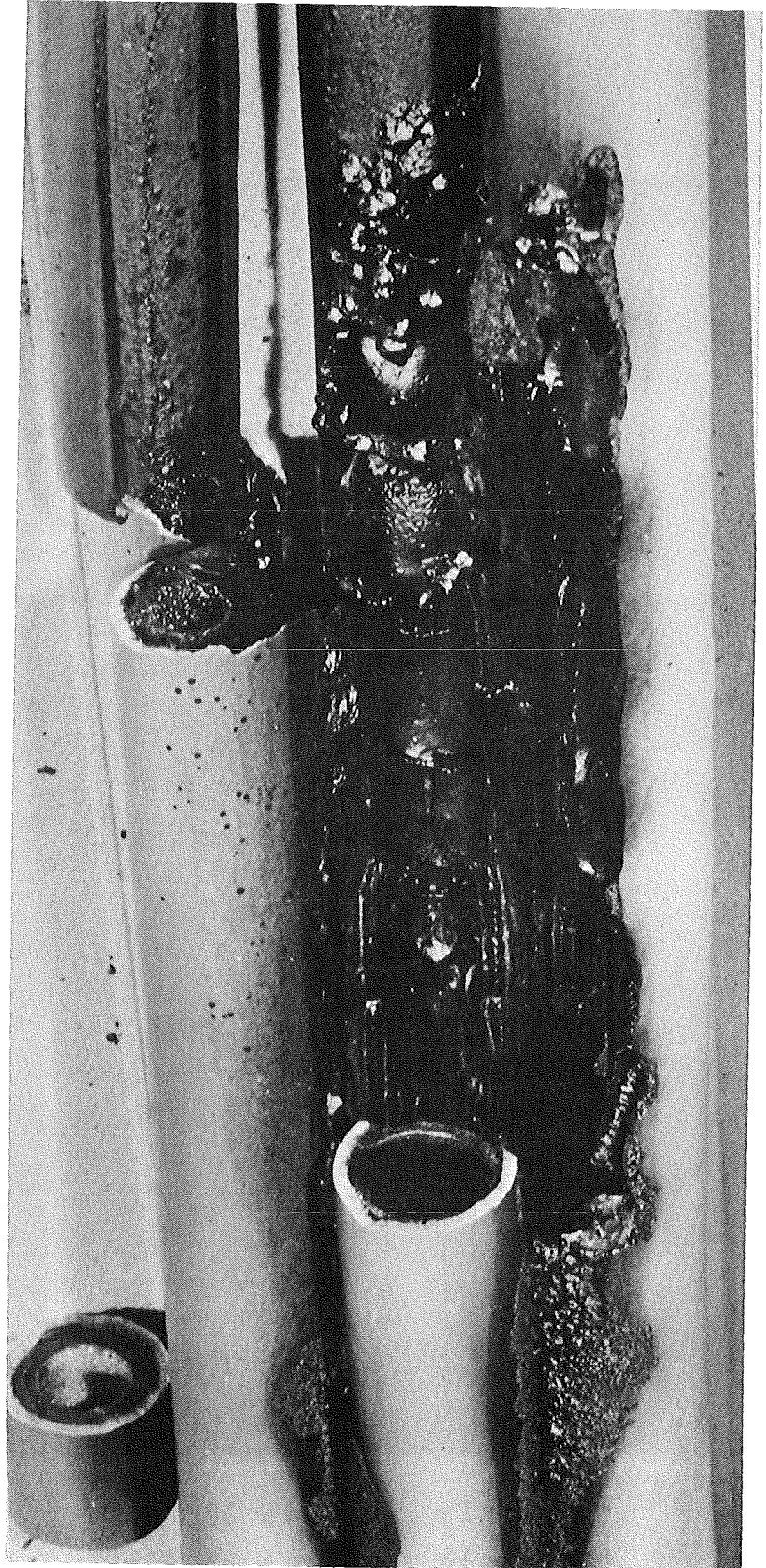
17 31
18 25 32
19 26 33

31 32 33
25 26
17 18 19

PNS 4321  IT

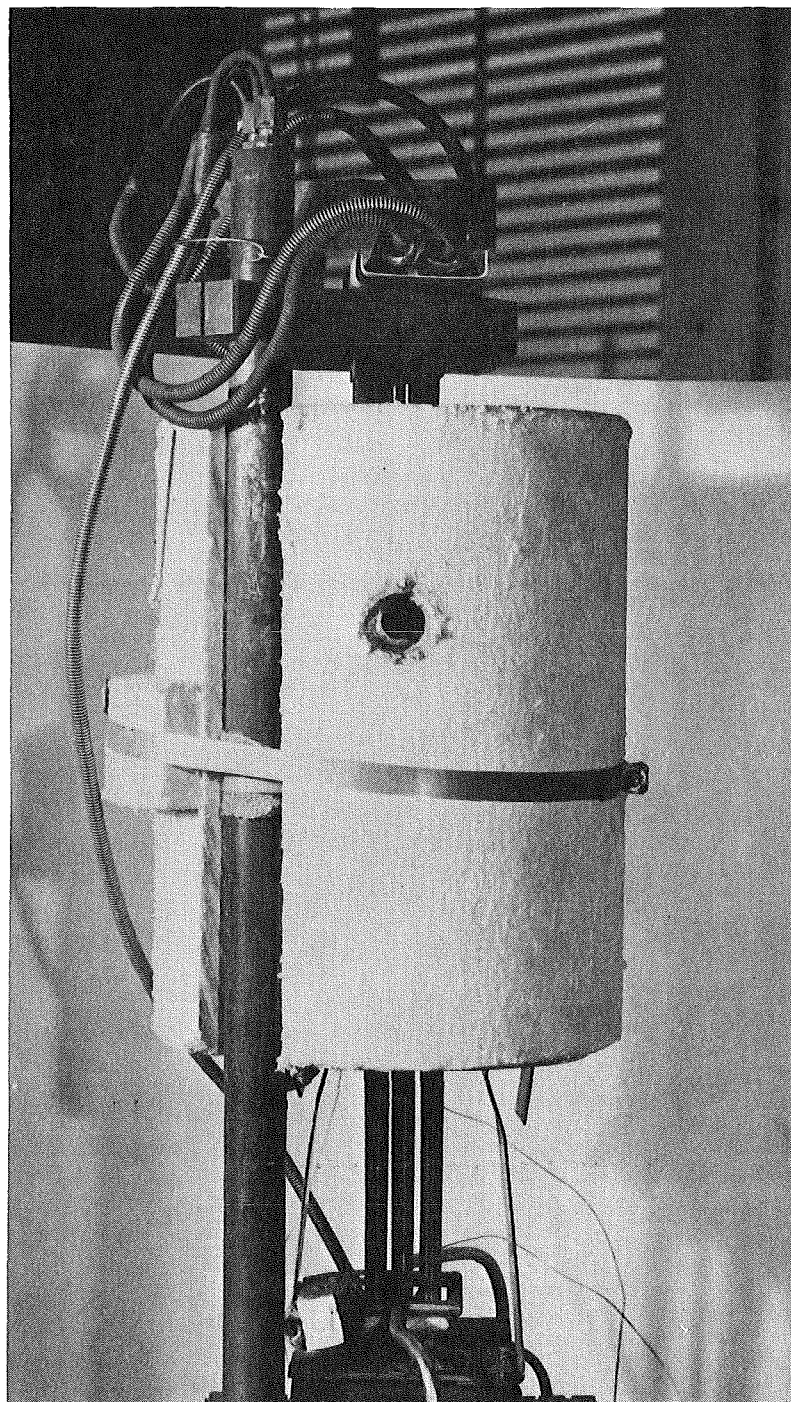
ABB. 4241-3

DIE VIER SEITEN EINES IN DAMPF MIT $0,25 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{SEC}$ AUF $2050 \text{ }^{\circ}\text{C}$
ZENTRALSTABTEMPERATUR AUFGEHEIZTEN BÜNDELS. DER ZENTRALE
VOLLPELLETSTAB IST VON 7 BEHEIZTEN BRENNSTABSIMULATOREN
UMGEBEN. KERAMIKFASERISOLATION.



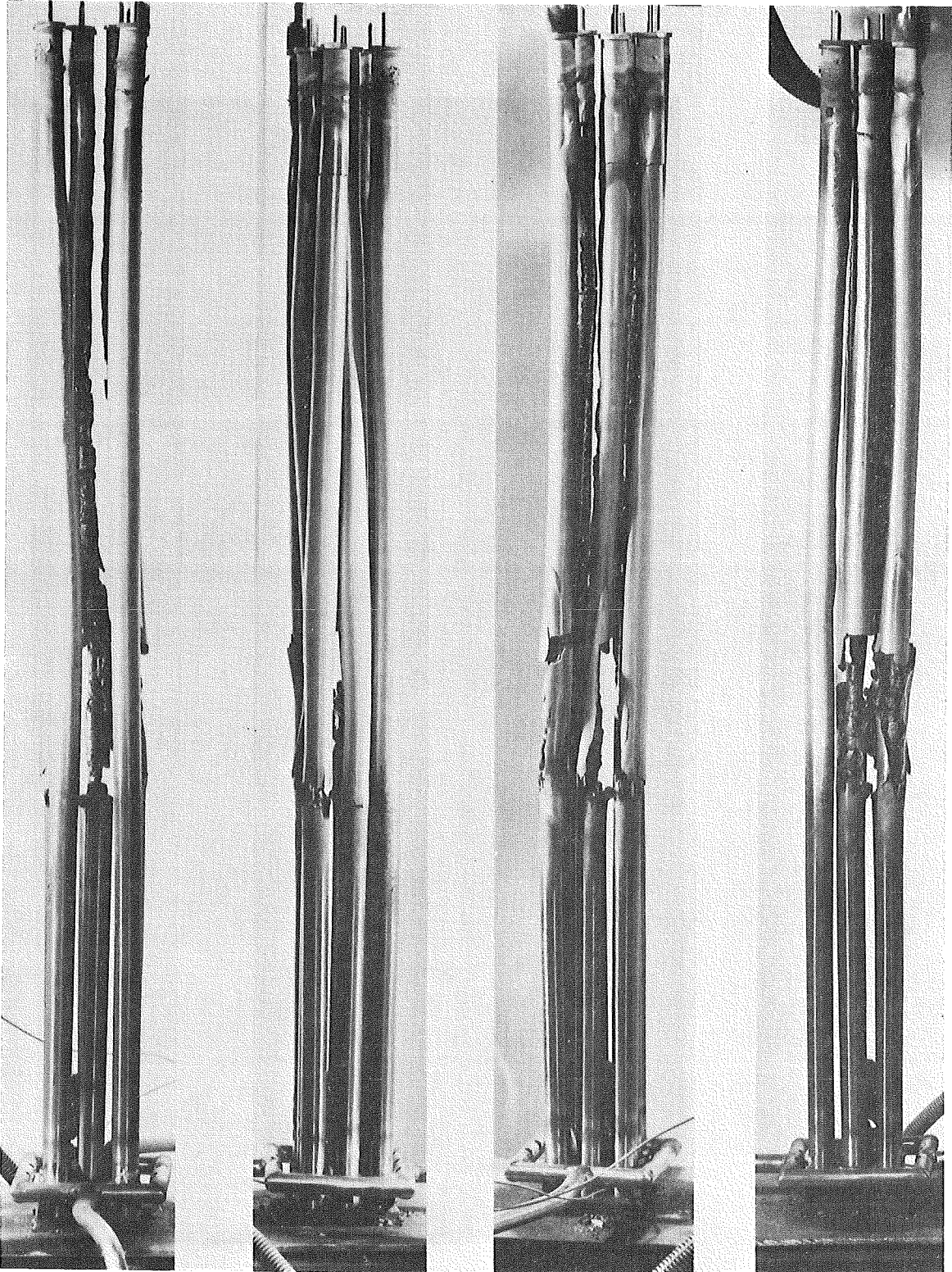
33 26 19
32 25 18

ABB. 4241-4: LINKS: BÜNDEL NACH ENTFERNEN DER BEIDEN BEHEIZTEN BRENNSTABSIMULATOREN 17 UND 31. RECHTS: VERGRÖSSERTER MITTLERER BEREICH DES BÜNDELS NACH DEM AUSBAU.



PNS 4321 **OK** IT

ABB. 4241-5|: ANORDNUNG DER KERAMIKFASERISOLATION FÜR DIE FOL-
GENDEN BÜNDEL MIT 1/2 M STÄBEN.



33 26 19
32 25 18
31 17

19 18 17
26 25
33 32 31

17 31
18 25 32
19 26 33

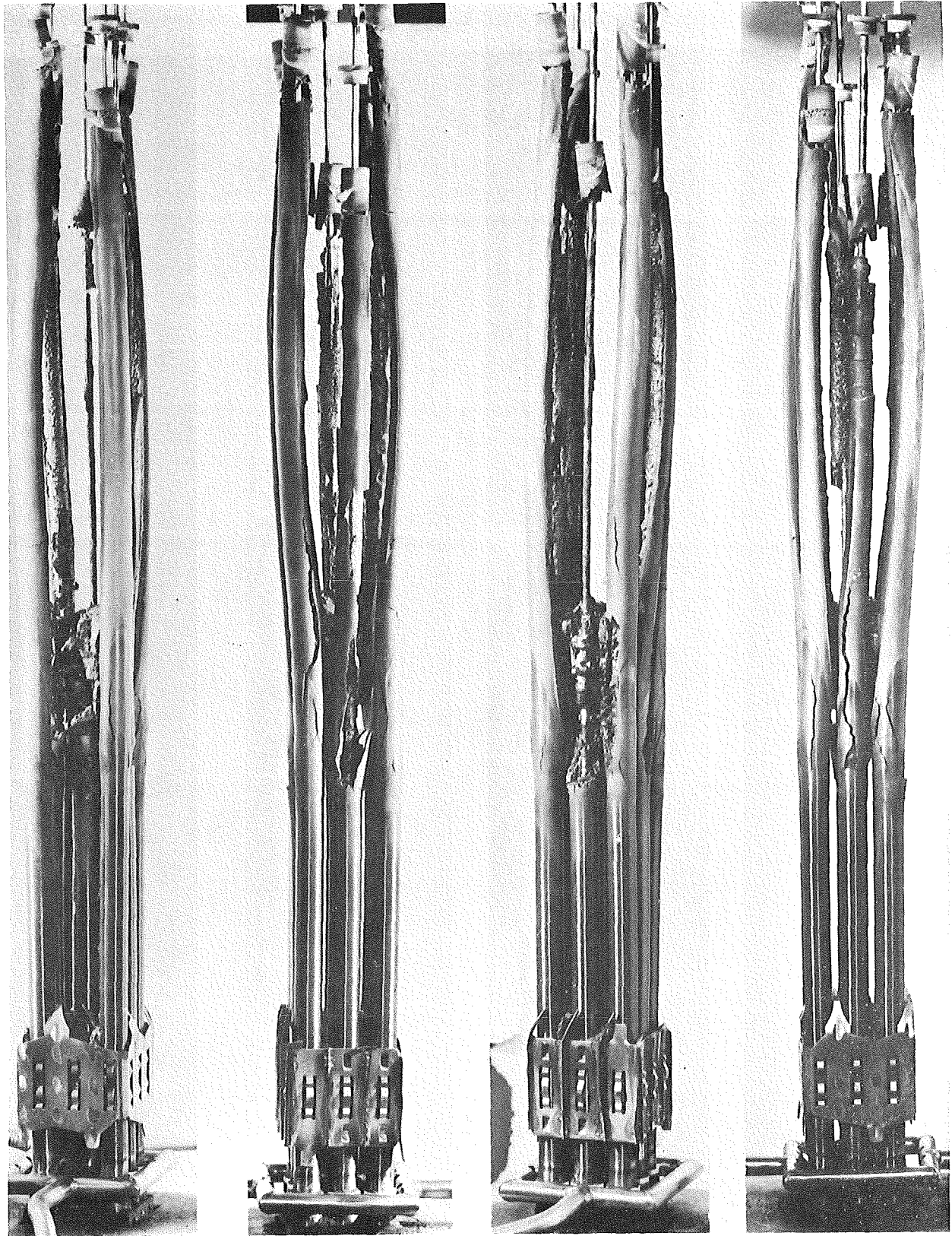
31 32 33
25 26
17 18 19

PNS 4321

QIK IT

ABB. 4241-6

DIE VIER SEITEN EINES IN DAMPF MIT 0,5 °C/SEC AUF 2120 °C
ZENTRALSTABTEMPERATUR AUFGEHEIZTEN BÜNDELS (ZENTRALER VOLL-
PELLETSTAB, 7 BEHEIZTE STÄBE). DIE KERAMIKFASERISOLATION UMGIBT
NUR DAS OBERE ENDE DES BÜNDELS (ABB. 5).



33 26 19
32 25 18
31 17

19 18 17
26 25
33 32 31

17 31
18 25 32
19 26 33

31 32 33
25 26
17 18 19

PNS 4321 **OK** IT

ABB. 4241-7

BÜNDEL, DAS IN DAMPF MIT 0,5 °C/SEC AUF 2040 °C AUFGEHEIZT
WURDE. KERAMIKFASERISOLATION IM OBEREN BEREICH DES BÜNDELS (ABB. 37).
AUF DEM ZENTRALEN VOLLPELLETSTAB BEFAND SICH EIN ABSTANDSHALTER.



PNS 4321 **OK** IT

ABB. 4241-8 : AM UNTEREN ENDE DES ANGEGRIFFENEN BEREICHES DES MIT $0,5 \text{ } ^\circ\text{C/SEC}$ AUF $2040 \text{ } ^\circ\text{C}$ AUFGEHEIZTEN BÜNDELS HAT SICH EIN DEUTLICH AUSGEPRÄGTER SCHMELZKLUMPEN GEBILDET.

4243 Untersuchung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten
beim Kernschmelzen

(H. Albrecht, V. Matschoß, K. Nolte, H. Wild, IRCH)

Einleitung

Die im vorausgehenden Halbjahresbericht (1) beschriebenen Freisetzungsexperimente bilden den Abschluß der Stufe I des Versuchsprogramms, in der Schmelzproben von 30 g Corium E zum Einsatz kamen. Dabei wurden Freisetzungsdaten für folgende Elemente bestimmt:

Cr, Mn, Fe, Co, Se, Zr, Mo, Cd, Sn, Sb, Te, I, Cs und U.

Ursprünglich war vorgesehen, in dieser Versuchsstufe noch weitere Spaltprodukte einzusetzen (z.B. Ru, Ag, Ba, Ce, Nd) und insbesondere den Einfluß der Wasserdampfatosphäre auf die Freisetzung genauer zu untersuchen. Es hat sich jedoch gezeigt, daß im Temperaturbereich 2500-2900°C eine Beeinflussung der Freisetzung durch Wechselwirkungseffekte zwischen dem ThO₂-Tiegel und der Schmelze nicht auszuschließen ist, wobei sich besonders das große Oberflächen/Volumen-Verhältnis der Schmelzproben auswirkt.

Deshalb sollen nach dem Umbau der Schmelzanlage SASCHA (Installation eines Hochfrequenzgenerators mit wesentlich erhöhter Leistung) alle weiteren Versuche mit Schmelzgutmassen von mindestens 100 g (Versuchsstufe II) bzw. 1 kg (Stufe III) durchgeführt werden. Außerdem wird die Freisetzung in Zukunft hauptsächlich im Temperaturbereich 1500-2500°C bestimmt, so daß wegen des kleineren O/V-Verhältnisses und der niedrigeren Maximaltemperaturen auch längere Haltezeiten der Schmelze möglich sind als bisher (ca. 3 min bei 2800°C).
Wegen des erwähnten Umbaus der Schmelzanlage waren im 2. Halbjahr 1977 keine Freisetzungsversuche möglich. Es wurden jedoch folgende, für das weitere Versuchsprogramm wichtige Arbeiten durchgeführt:

- a) Entwicklung und Einbau einer neuen Transport- und Filterstrecke für die in den Versuchsstufen II und III zu erwartenden höheren Aerosolströme. Sämtliche Rohre, Ventile, Filterhalter etc. wurden von NW10

auf NW40 umgestellt. Die effektive Fläche der Membranfilter wurde von 15 auf 60 cm² erweitert.

- b) Umstellung der Auswertungsprogramme für die γ -Spektren von einer IBM-Großrechenanlage auf eine Laboranlage mit PDP-Rechner. Da pro Freisetzungsversuch etwa 50 γ -Spektren (teils on-line, teils offline gemessen, vgl. (1)) anfallen und dabei häufig wechselnde Kalibrierungen von 3 Ge(Li)-Detektoren benötigt werden, erweist sich die Auswertung "vor Ort" als wesentlich rationeller. Durch die Neuentwicklung zusätzlicher Rechenprogramme (z.B. für die Aufstellung einer Aktivitätsbilanz nach den Freisetzungsversuchen) wurde das Auswertungsverfahren weiter automatisiert.
- c) Auswertung einer ersten Serie von 3 Versuchen zur Bestimmung der aerosolphysikalischen Eigenschaften der Freisetzungsprodukte. Die Durchführung und Auswertung dieser Versuche wird im folgenden ausführlich beschrieben.

1. Ziele der Aerosol-Experimente

Die aus der Kernschmelze freigesetzten Produkte kondensieren in der vergleichsweise kalten Atmosphäre sehr schnell und bilden ein Feststoffaerosol, dessen Partikelgrößenverteilung in zweifacher Hinsicht eine wichtige Kenngröße darstellt. Zum einen benötigt man die Größenverteilung dieser als Kondensationskerne wirkenden Aerosolpartikeln als Eingangsparameter für weiterführende Rechnungen und Experimente, die den Ablauf der Wasserdampfkondensation im Reaktorgebäude beschreiben sollen. Zum anderen beeinflussen die Partikeln durch ihre Sedimentation den zeitlichen Verlauf der luftgetragenen Aktivitätskonzentration im Reaktorgebäude.

Die Untersuchung der Eigenschaften von Kernschmelzen-Aerosolen stellt somit eine wichtige Ergänzung der bisherigen Freisetzungsversuche dar. Folgende Gesichtspunkte werden dabei als besonders wichtig angesehen:

- Erzeugung des Aerosols unter möglichst realistischen Bedingungen
- Untersuchung der Massen- und Größenverteilung sowie der Form der Aerosol-Partikeln

- Bestimmung der Abhängigkeit dieser Eigenschaften von den Einflußgrößen Zeit, Temperatur und Atmosphäre
- Bestimmung der chemischen Elementzusammensetzung der Aerosolpartikeln.

Im folgenden werden erste Ergebnisse der Untersuchung der Partikelgrößenverteilung mit der Aerosolzentrifuge nach Stöber (2) mitgeteilt. Zur Elementanalyse wurden Röntgen-Mikroanalysen in einem Raster-Elektronenmikroskop durchgeführt.

2. Kalibrierung der Aerosolzentrifuge

Die Kalibrierung der Aerosolzentrifuge wurde in Zusammenarbeit mit dem Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik (3) durchgeführt.

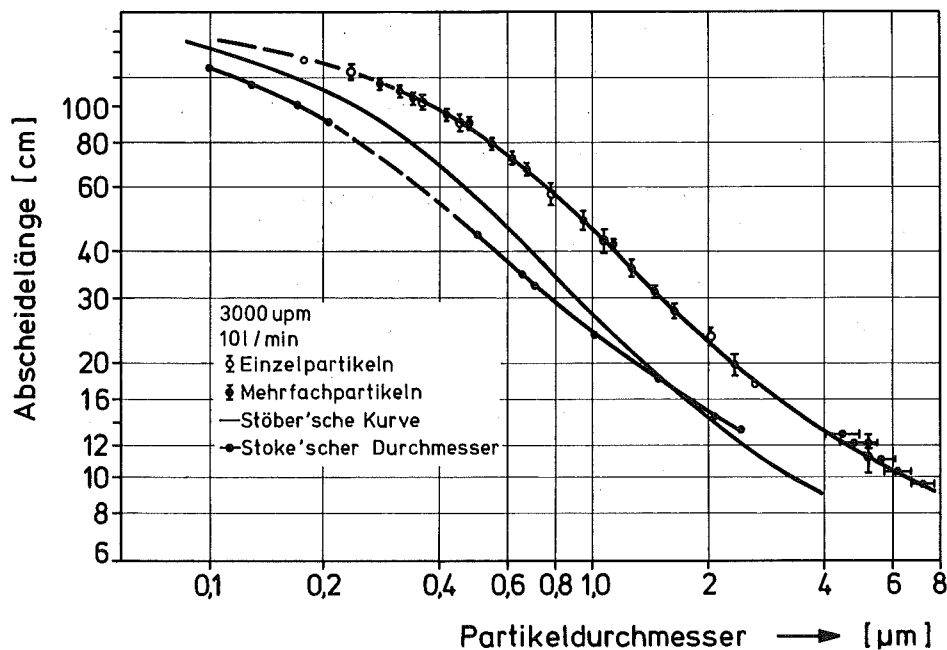


Abb. 4243-1: Kalibrierkurven der Aerosolzentrifuge

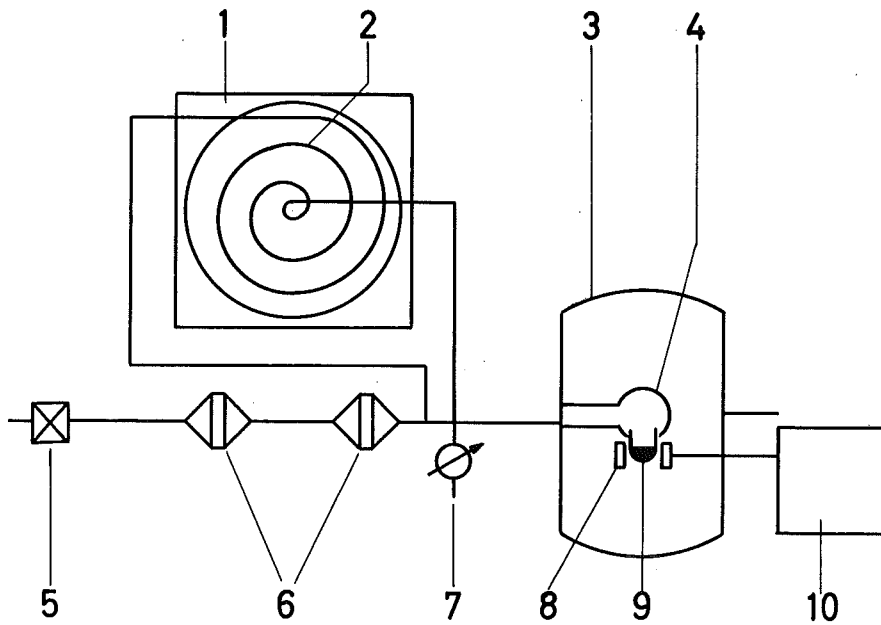
Das Gerät wurde mit monodispersen Latex-Partikeln zwischen 0,176 μm und 5,2 μm Ø geeicht. Abbildung 1 zeigt die so gewonnene Kalibrierkurve im Vergleich zur Kalibrierkurve der Laborversion der Zentrifuge im Institut für Aerobiologie nach Stöber. Es sind dabei neben den Meßpunkten für die Einzelpartikeln auch Messungen von Mehrfachpartikeln verwendet worden, deren aero-

dynamische Durchmesser mit den von Stöber angegebenen Formfaktoren bestimmt wurden. Diese Messungen fügen sich sehr gut in die Kurve ein. Die senkrechten "Fehlerbalken" zeigen die Breite des Niederschlages auf dem Band für die betreffenden Partikeln an. Die Messungen waren sehr gut reproduzierbar. Die Kalibrierung mit den $5,2 \mu\text{m}$ -Partikeln erwies sich als etwas komplizierter als mit den kleineren Partikeln. Der Niederschlag erstreckte sich nicht - wie aufgrund einer einheitlichen Teilchengröße erwartet - auf einen eng begrenzten Bereich des Bandes, sondern auf eine Zone von 4 cm Breite. Deshalb wurde der Durchmesser der abgeschiedenen Partikeln mit dem Lichtmikroskop an den verschiedenen Stellen untersucht. Diese Punkte sind mit waagrechten Fehlerbalken eingezeichnet, entsprechend den Fehlern in der Partikelgrößenbestimmung.

Sehr deutlich ist der Unterschied der beiden Kalibrierkurven für den Prototyp und für die käufliche Version der Zentrifuge. Man findet eine Verschiebung zum doppelten Durchmesser hin. Beide Kurven gelten für 10 l/min Gesamtgasdurchsatz von 3000 U/min. Man sieht also, daß für jedes Gerät eine individuelle Kalibrierung nötig ist. In die Abbildung ist ebenfalls eine Meßkurve eingetragen, die mit Kernschmelzen-Aerosolen gewonnen wurde. Dabei wurde der geometrische Durchmesser der kugelförmigen Partikeln bestimmt. Im mittleren Bereich von ca. $0,2 \mu\text{m}$ bis $0,5 \mu\text{m}$ wurde die Kurve interpoliert, da hier keine Kugeln, sondern kompliziert geformte Aggregatpartikeln vorlagen. Man kann aus der Differenz zwischen der Kalibrierkurve und der Meßkurve auf die Dichte des Partikelmaterials schließen. Es handelt sich hier um eine problemspezifische Kalibrierkurve nach Stoke'schen Durchmessern.

3. Versuchsaufbau

Die Aerosole aus der Kernschmelze wurden mit der Schmelzanlage SASCHA erzeugt. Als Ausgangsmaterial diente inaktives Corium-E. Die Aerosolzentrifuge wurde parallel zur Filterstrecke (Abb. 4243-2) aufgebaut. Der Druck gegenüber dem Atmosphärendruck am Ort der Probenahme wurde mit einem Präzisions-Differenzdruckmanometer überwacht und bis auf ± 5 mm Wassersäule konstant gehalten. Der Luftdurchsatz durch die Schmelzanlage betrug 5 l/min. Davon wurde ein Teilstrom von $0,2$ l/min abgezweigt und über die Zentrifuge geleitet. Bei zwei Versuchen wurde die Zentrifuge 1 bzw. 10 min



- | | |
|---------------------------|----------------------|
| 1. Zentrifuge | 6. Filter |
| 2. Spiralband | 7. Manometer |
| 3. Versuchskessel | 8. HF - Spule |
| 4. Glas - Absaug - System | 9. Corium - Schmelze |
| 5. Regel - Ventil | 10. HF - Generator |

Abb. 4243-2: Prinzipskizze zur Partikelgrößenmessung mit der Aerosolzentrifuge

lang während der Aufheizphase und einmal während der gesamten Versuchsdauer von 15 min betrieben. Auf das Abscheidungsband aus Aluminium wurden im erwarteten maximalen Niederschlagsbereich 8 Präparatträger (Grids) für die nachfolgende elektronenmikroskopische Untersuchung aufgeklebt.

Nach der Beaufschlagung wurde das Abscheideband in äquidistante, 5 cm lange Stücke zerschnitten. Diese wurden unter einem α -Zählstand ausgemessen. Die α -Aktivität rührt vorwiegend von den Zerfallsprodukten der Thoriumkette her. (Das Tiegelmateriale bestand aus Thoriumdioxid). Außerdem wurden die Proben elektronenmikroskopisch (mit Raster- und Transmissions-Elektronenmikroskop) sowie röntgenemissionsspektroskopisch untersucht.

4. Ergebnisse

Als wichtiges Ergebnis kann festgestellt werden, daß sich die Spiralzentrifuge zur Untersuchung von Aerosolparametern von Aerosolen aus Kernschmelzen gut eignet.

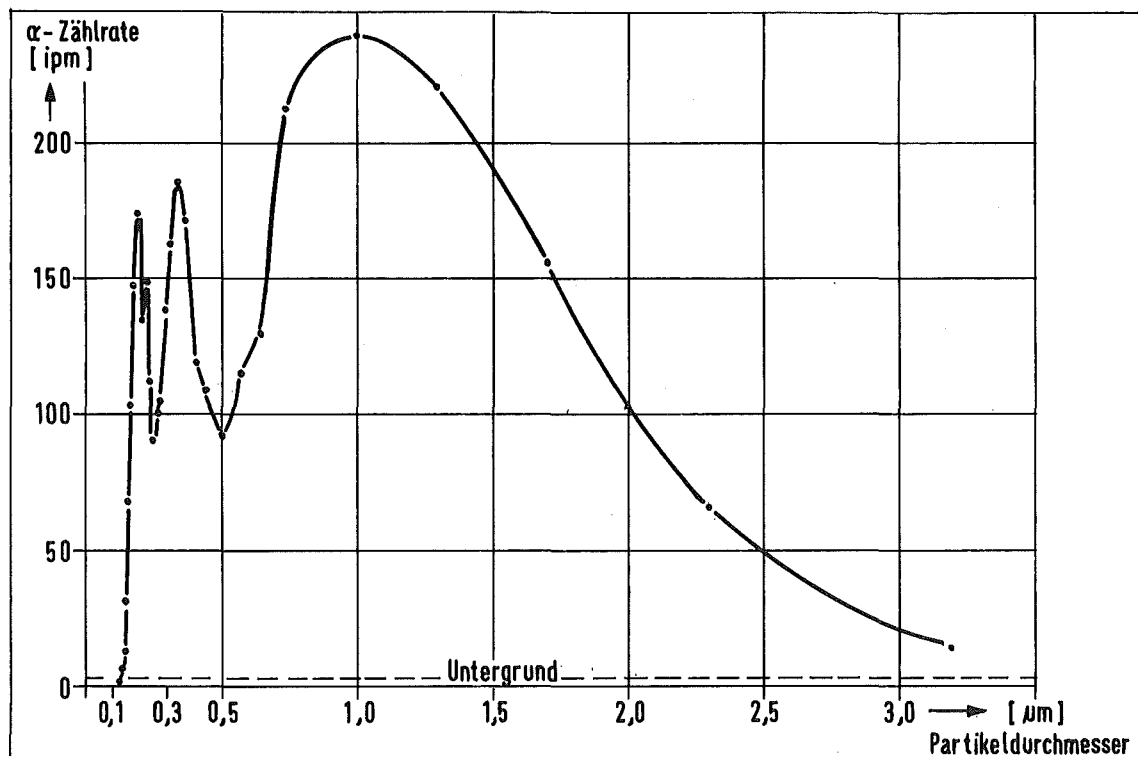


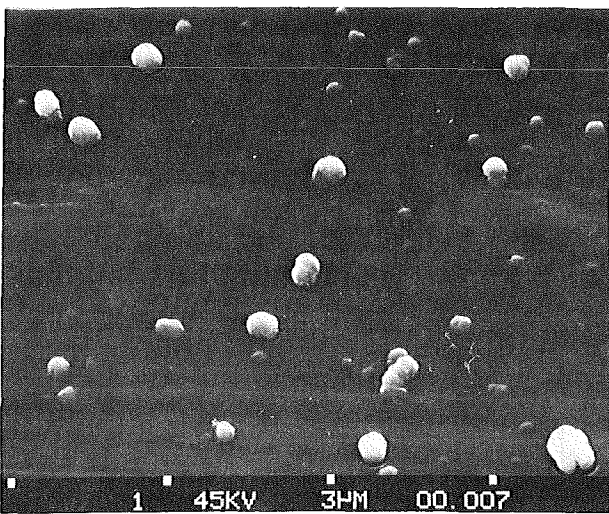
Abb. 4243-3: α-Zählrate von Kernschmelzen-Aerosolen in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser

Aus den bisherigen Versuchen ergaben sich folgende Betriebserfahrungen:

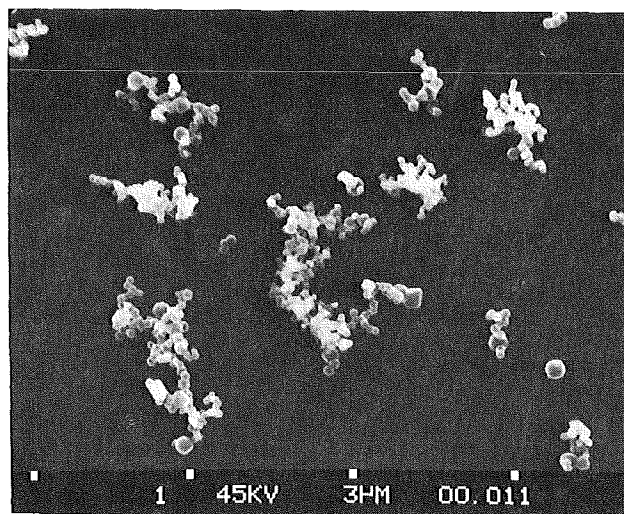
- Die Beaufschlagungsdauer von 10 Minuten während der Aufheizphase erbringt bei den gegebenen Versuchsbedingungen einen sehr gut auswertbaren Niederschlag auf dem Spiralband. Hingegen stellte sich heraus, daß der Niederschlag bei 1 Minute Betriebsdauer zu gering bleibt, während die Beaufschlagung über die gesamte Versuchsdauer von 15 Minuten einen zu dichten Niederschlag hervorruft.

- Bei der Auswertung der elektronenmikroskopischen Präparatträger stellte sich heraus, daß die Störung der Strömungsverhältnisse durch die um 150 μm über dem Abscheideband erhabenen Präparatträger auf die Größenseparation der Aerosolpartikel einen vernachlässigbaren Einfluß hat.

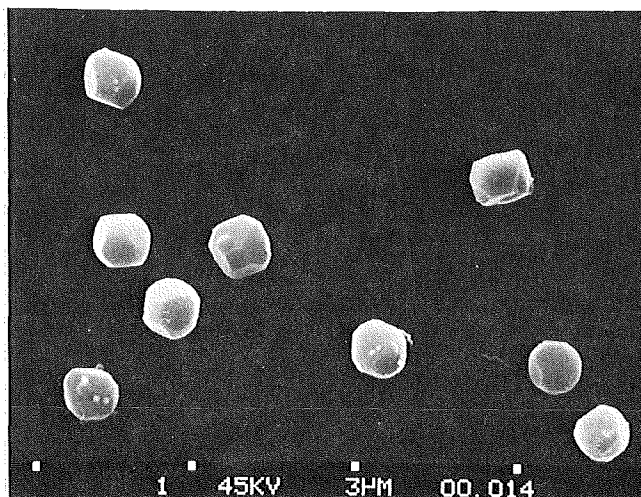
Durch die Messung der α -Aktivität wird eine Verteilung der Aerosolpopulation über dem Partikeldurchmesser gewonnen. Die Meßkurve (Abb. 4243-3) zeigt daß es sich dabei um eine trimodale Verteilung handelt. Die Maxima der Verteilung ergeben sich nach Abbildung 1 entsprechend einem Stoke'schen Durchmesser zu 0,18 μm , 0,35 μm und 1,0 μm .



Fraktion der kleinen Partikeln



Fraktion der mittelgroßen Partikeln



Fraktion der großen Partikeln

1 μm

Abb. 4243-4: Kernschmelzen Aerosole

Da selbst bei der erhöhten Belegungsdichte die Selbstabsorption während der α -Zählung vernachlässigbar ist, konnten die angeführten Ergebnisse durch die Ausmessung des Aluminiumbandes von demjenigen Experiment, bei dem sich die Beaufschlagung für elektronenmikroskopische Aufnahmen als zu dicht erwiesen hatte, in der Lage der Maxima in vollem Umfang reproduziert und bestätigt werden. Die elektronenmikroskopischen Aufnahmen von den Maxima der Verteilung zeigen (Abb. 4243-4), daß es sich dabei um Partikeln unterschiedlicher geometrischer Struktur handelt. Die kleinen und die großen Partikeln haben eine kompakte, zum Teil nahezu kugelförmige Gestalt, während die mittlere Partikelfraktion aus koagulierten Partikeln besteht.

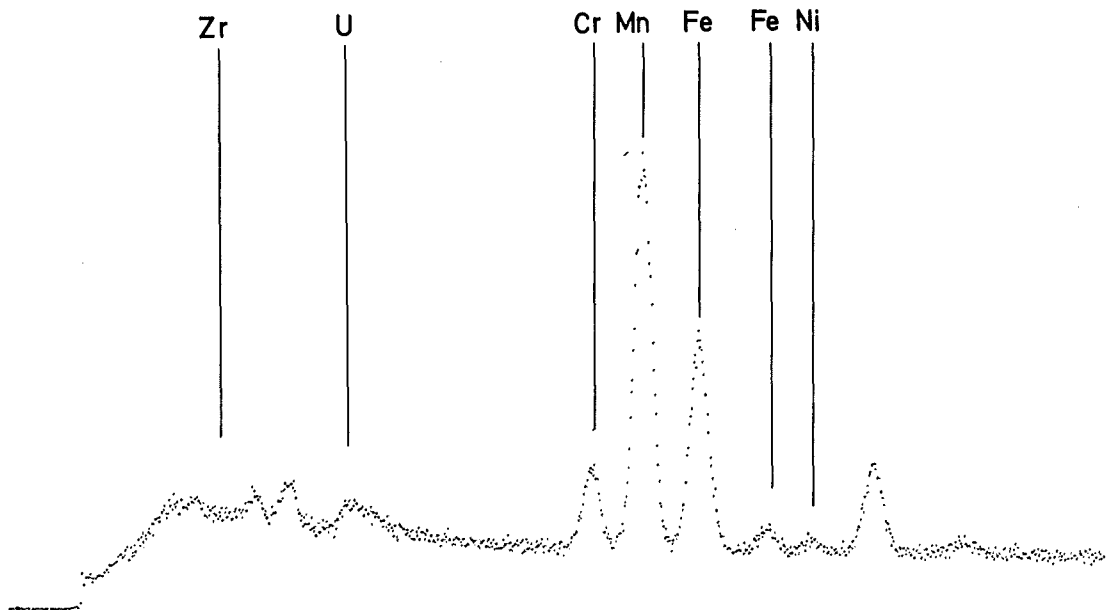


Abb. 4243-5: Röntgenemissionsspektrum einer 3,0 μm Partikel

Berechnet man aus dem Verhältnis des Stoke'schen und des aerodynamischen Durchmessers (Abb. 4243-1) die Dichte der Partikeln, so ergeben sich Werte zwischen 3 g/cm^3 und 5 g/cm^3 . Diese Werte sind im Vergleich zu den theoretischen Dichten der hier vorliegenden Metalloxide etwas geringer.

Das läßt angesichts der teilweise kompakten Form der Partikeln auf Hohlräume schließen. Über Dichteabweichungen von Kondensationsaerosolen haben auch andere Autoren (4) bereits berichtet.

Da an den Enden jeder Verteilung auch bei starker Beaufschlagung die Belegungsdichte nicht so hoch ist, konnte auch die Tatsache der unterschiedlichen geometrischen Struktur durch die elektronenmikroskopische Untersuchung der großen Partikelfraktion des stark beaufschlagten Abscheidungsbandes bestätigt werden.

Von mehreren Einzelpartikeln aus jedem der drei verschiedenen Maxima wurden Röntgenemissions-Spektren aufgezeichnet (Abb. 4243-5). Als überraschendes Ergebnis dieser Analyse ergab sich, daß in jeder der drei Größenklassen dieselbe Elementzusammensetzung nachgewiesen wurde. Außer Zirkon wurden alle Elemente der Ausgangszusammensetzung des Schmelzgutes gefunden:

U, Fe, Cr, Ni, Mn.

Für eine quantitative Analyse können jedoch diese Spektren aus zwei Gründen nicht herangezogen werden: Zum einen kann die quantitative Zusammensetzung von Partikel zu Partikel variieren, zum anderen dringt der Primärelektronenstrahl nur etwa $0,5 \text{ }\mu\text{m}$ tief in die Partikel ein, so daß bei einer großen Partikel eine möglicherweise innerhalb der Partikel vorhandene unterschiedliche quantitative Zusammensetzung nicht voll erfaßt werden kann.

Daß Zirkon trotz intensiver Suche nicht gefunden wurde, läßt die Aussage zu, daß der Massenanteil unter etwa $0,1 \%$ liegen muß. Dieser Schluß wird durch aktivierungsanalytische Untersuchungen bestätigt (1).

Die Partikelzahlverteilung (Abb. 4243-6) läßt ebenfalls deutlich die drei Maxima erkennen. Verständlicherweise sind die Maxima zu kleineren Durchmessern hin verschoben - im Vergleich zu der Aktivitätsverteilung (Abb. 4243-3). Die Maxima der Partikelzahlverteilung liegen bei $0,17 \text{ }\mu\text{m}$, $0,30 \text{ }\mu\text{m}$ und $0,73 \text{ }\mu\text{m}$.

Bei einem Vergleich der Abbildungen 3 und 6 zeigt sich, daß die Aktivitätsverteilung ein oberflächenproportionales Meßsignal darstellt. Dem es gilt:

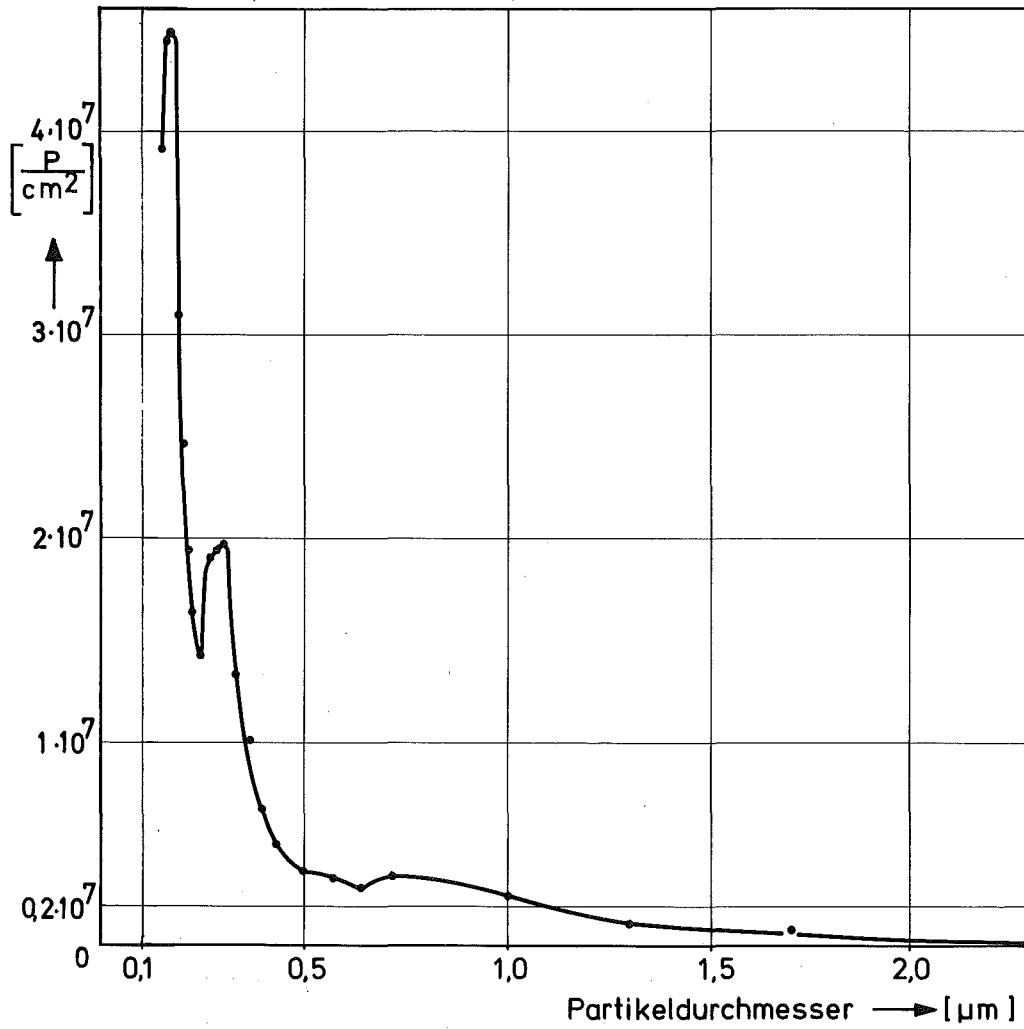


Abb. 4243-6: Mit der Aerosolzentrifuge abgeschiedene Partikeln in Abhängigkeit vom Durchmesser

$$A_n = K \cdot N_n \cdot d_n^2$$

A_n = Aktivität an der Stelle n

N_n = Anzahl der Partikeln an der Stelle n

d_n = Durchmesser der Partikeln an der Stelle n

Unter der Voraussetzung, daß die Proportionalitätskonstante K unabhängig vom Durchmesser ist, folgt daraus:

$$\frac{A_1}{N_1 \cdot d_1^2} = \frac{A_2}{N_2 \cdot d_2^2} = \frac{A_3}{N_3 \cdot d_3^2} = \dots = K$$

Tab.4243-1: Berechnung der Werte für K

d (μm)	A (ipm)	N (P/cm ²)	K (ipm/p)
0,15	85,5	$3,7 \cdot 10^7$	$0,10 \cdot 10^{-3}$
0,17	144,5	$4,6 \cdot 10^7$	$0,11 \cdot 10^{-3}$
0,18	158	$3,85 \cdot 10^7$	$0,12 \cdot 10^{-3}$
0,23	110	$1,5 \cdot 10^7$	$0,13 \cdot 10^{-3}$
0,24	88,5	$1,4 \cdot 10^7$	$0,11 \cdot 10^{-3}$
0,30	161	$1,75 \cdot 10^7$	$0,10 \cdot 10^{-3}$
0,35	174	$1,12 \cdot 10^7$	$0,12 \cdot 10^{-3}$
0,50	96,5	$3,5 \cdot 10^6$	$0,11 \cdot 10^{-3}$
0,64	127	$2,9 \cdot 10^6$	$0,10 \cdot 10^{-3}$
0,73	210	$3,6 \cdot 10^6$	$0,11 \cdot 10^{-3}$
1,0	238,5	$2,3 \cdot 10^6$	$0,10 \cdot 10^{-3}$
2,3	63	$9,8 \cdot 10^4$	$0,12 \cdot 10^{-3}$

$$\bar{K} = 0,11 \cdot 10^{-3}$$

In Tab.4243-1 ist die Konstante K für 12 Durchmesserwerte ausgerechnet. Dabei wurden die Anfangspunkte, Maxima, Minima, und Endpunkte der Kurven herausgegriffen. Die gute Konstanz von K beweist die Tatsache, daß die α -Aktivität an der Oberfläche der Partikeln konzentriert ist. Dieser Effekt ist für weitere Untersuchungen zur Aktivitätsverteilung bedeutsam, da er anzeigt, daß eine Aktivitätsverteilung nicht ohne weiteres massenproportional angenommen werden kann.

5. Diskussion der Ergebnisse

Von mehreren Autoren (5-20) wurde über das Verhalten von Reaktorbrandstoff-Aerosolen berichtet. In Tab.4243-2 ist ein Überblick über eine Literaturliteraturauswertung zusammengestellt, die die wichtigsten Angaben über die Aerosolerzeugung und die gemessenen Partikeldurchmesser enthält. Die Zielsetzungen standen in den Jahren vor 1969 hauptsächlich unter dem Gesichtspunkt der

Filtrationsmöglichkeit von nuklearen Aerosolen. Bis auf die beiden zuletzt bekannt gewordenen Arbeiten (19,20) bestand die Zielrichtung der Arbeiten nach 1970 vorwiegend in der Untersuchung des Verhaltens nuklearer Aerosole im Reaktorcontainment. Die Erzeugung der Aerosole erfolgte dabei nicht unter den Randbedingungen des Kernschmelzens. Dies war nur bei der vorliegenden Arbeit sowie bei den Arbeiten von Dahlgren et al. (19) und Powers (20) der Fall. Dabei kann für ein wichtiges Ergebnis dieser Arbeiten eine Übereinstimmung festgestellt werden: die Größenverteilungen sind multimodal (KFK: trimodal).

Die Auswertung der früheren Arbeiten zeigt, daß die Ergebnisse sehr stark von den jeweils gewählten Methoden und Parametern abhängen. Da diese wiederum problemorientiert nach den jeweiligen Erfordernissen der gesetzten Ziele ausgewählt werden, können die Ergebnisse nur in sehr begrenztem Umfang für Vergleiche herangezogen werden. Dabei fällt besonders auf, daß fast alle Autoren die Größenverteilung der Aerosolpartikeln durch eine logarithmische Normalverteilung darstellen. Diese mathematische Form mit einem Maximum kann prinzipiell auf jedes der im vorliegenden Fall einer trimodalen Verteilung vorhandenen Maxima angewandt werden.

Eine in sich geschlossene Erklärung für die Entstehung einer trimodalen Verteilung kann aufgrund der bisher durchgeführten Experimente noch nicht gegeben werden. Zwar kann man die Entstehung der mittleren Partikelfraktion wegen der geometrischen Struktur der Partikeln einem nach der Kondensation ablaufenden Koagulationsvorgang zuschreiben. Es ist aber erstaunlich, daß eine weitere Fraktion von Partikeln mit einem Durchmesser - maximum von $0,73 \mu\text{m}$ und einer kompakten geometrischen Form auftritt, die ebenfalls einem abgeschlossenen Kondensationsvorgang entspricht.

Weitere offene Fragen ergeben sich aus den Ergebnissen der Röntgenemissionspektren, in denen stets alle Elemente der Ausgangszusammensetzung gefunden wurden. Diese Tatsache ist insofern bedeutsam, weil somit die unterschiedliche geometrische Struktur der Partikeln bisher nicht als Folge einer unterschiedlichen Elementzusammensetzung erklärt werden kann.

Möglicherweise ergibt die quantitative Analyse aber doch gewisse Unterschiede in der Zusammensetzung verschieden großer Aerosolpartikel. Zur Klärung dieser offenen Fragen sind weitere Aerosoluntersuchungen notwendig. Da sich die Auswertung von inaktiven Niederschlägen auf dem Metallband der Aerosolzentrifuge als sehr zeitaufwendig erwies, sollen in Zukunft v.a.

Tab. 4243-2: Überblick zur Literaturlauswertung über Reaktorbrunnstoff-Aerosole

Mittlerer Durchmesser	Meßmethode	Art der Verteilung	Aerosol Erzeugungsmethode	T	Atmosphäre	Lit.-Zitat	Jahr
(μm)				$^{\circ}\text{C}$			
0,10	K.A.	K.A.	Elektrische Heizung	K.A.	Luft	5	1962
0,02	Filter Abscheidung	1.-n.	Reaktor-Transiente	> 900	Helium	6	1964
5,0	Filter-Abscheidung	1.-n.	Graphit-Verbrennung	> 900	K.A.	6	1964
0,03	K.A.	1.-n.	Reaktor Transiente	\sim 2800	Argon	7	1964
0,015-1,5	Filter-Abscheidung	1.-n.	In-pile-Schmelzen	> 2700	Helium, Luft, Wasserdampf	8	1965
0,01-1,0	Filter Abscheidung	K.A.	Induktions-Heizung	2800	Luft	9	1965
0,14	Thermal-Präzipitator	1.-n.	Licht-Bogen	K.A.	Luft	10	1968
0,18	Electrical Particle Counter	Self-Pre-serving	Licht-Bogen	K.A.	K.A.	11	1968
1,0-3,0	Impaktor	K.A.	Licht-Bogen	K.A.	Luft	12	1968
0,10	Thermal-Präzipitator	1.-n.	Widerstands-Heizung	2700	N ₂ , Argon	13	1968
0,20	Impaktor	K.A.	Licht-Bogen	K.A.	K.A.	14	1970
0,30	Impaktor	K.A.	K.A.	K.A.	K.A.	15	1970
0,35	Point-to-Plane	1.-n.	Stoßstrom	2800	N ₂	16	1974
0,10	Zentrifuge	K.A.	Stoßstrom	2800	N ₂	17	1974
0,2-1,5	Impaktor	K.A.	K.A.	K.A.	K.A.	18	1976
<10	K.A.	multimodal	K.A.	1400	K.A.	19	1977
0,30-0,50	K.A.	multimodal	K.A.	K.A.	K.A.	20	1977

K.A. = keine Angaben

1.n. = logarithmisch-normal

Versuche mit aktivem Fissium durchgeführt werden; dies erspart die Röntgenemissionsanalyse und erlaubt sogar eine quantitative Bestimmung der Elementverteilung in den Partikelfraktionen. Außerdem ist der Einsatz eines 8-stufigen Kaskaden-Abscheiders vorgesehen, der eine einfachere (wenn auch grobere) Erfassung der Größenverteilung der Aerosolpartikeln gestattet.

Weitere wichtige Informationen über die Aerosol-Eigenschaften werden durch eine Variation der Schmelzbedingungen erwartet. Daher sollen z.B. die Versuchsatmosphäre und die Aufheizgeschwindigkeit variiert und die Aerosolproben bei verschiedenen Temperaturintervallen der Schmelze entnommen werden.

Literatur

- (1) H. Albrecht, V. Matschoß, K. Nolte, H. Wild, D. Perinic, H. Knauß, A. Mack, B. Stuka, M.F. Osborne
Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen
KFK-Bericht 2500 (1978)
- (2) T.T. Mercer, P.E. Morrow, W. Stöber
Assessment of Airborne Particles
C. Charles Thomas-Verlag, USA (1972)
- (3) W. Muhr, H. Wild
Die Anwendung der Aerosolzentrifuge nach Stöber zur Untersuchung der beim Kernschmelzen auftretenden Aerosole
Vortrag auf der Aerosoltagung in Karlsruhe, 26.-28.10.1977
- (4) O. Preining, M. Matteson
Eigenschaften feinteiliger Kondensationsaerosole
Int. Staubtagung, Bad Godesberg, 26.-28.9.1972
- (5) G.W. Parker, G.E. Creek, W.J. Martin, R.A. Lorenz
Release of Fission Products on out-of-Pile Melting of Reactor Fuels
ORNL-Bericht 3319 (1962)
- (6) W.E. Browning Jr., C.E. Miller, B.F. Roberts, R.P. Shields
Behavior of Fission Products Released During In-Pile Destruction of Reactor Fuels
ORNL-Bericht 3547 (1964)

- (7) G.W. Parker, R.A. Lorenz, C.E. Miller Jr., J.G. Wilhelm
Release of Fission Products on In-Pile Melting of Reactor Fuels under
Transient Reactor Conditions
ORNL-Bericht 3691 (1964)
- (8) W.E. Browning, C.E. Miller, B.F. Roberts, R.P. Shields, W.H. Montgomery,
J.G. Wilhelm
Simulated Loss-of-Coolant Accidents in the ORR
ORNL-Bericht 3843 (1965)
- (9) R.K. Hilliard, J.D. McCormack
Fission Product Simulation in the Containment System Experiment
International Symposium on Fission Product Release and Transport under
Accident Conditions
5.-7. April, Oak Ridge (1965)
- (10) W.D. Yuille, R.E. Adams
Behavior of Oxide Aerosols of Uranium and Stainless Steel in Humid
Atmospheres
ORNL-Bericht 4198 (1968)
- (11) R.E. Adams, R.J. Davis, J.S. Gill, J. Truitt, H. Buchholz
Characterization of Radioactive Particulate Aerosols
ORNL-Bericht 4228 (1968)
- (12) L. Baumash, C.T. Nelson, R.L. Koontz
The Characterization of UO_2 -Aerosols by Aerodynamic Parameters
Proceedings of the Symposium on the Treatment of Airborne Radioactive Wastes
New York, 26.-30. August (1968)
- (13) F.L. Horn, A.W. Castleman Jr.
 PuO_2-UO_2-Na Aerosols Produced by Vaporization of Fast Reactor Core Materials
Proceedings of the Symposium on the Treatment of Airborne Radioactive Wastes
New York 26.-28. August (1968)
- (14) R.E. Adams, R.J. Davis, J.S. Gill, J.E. Savolainen, J. Truitt
Behavior of Radioactive Aerosols
ORNL-Bericht 4511 (1970)
- (15) R.J. Davis, J. Truitt, J.S. Gill, R.E. Adams
Removal of Radioactive Aerosols on High Efficiency Fibrous Filter Media
ORNL-Bericht 4524 (1970)

- (16) H. Jordan, W. Schikarski, H. Wild
Nukleare Aerosole im geschlossenen System
KFK-Bericht 1989 (1974)
- (17) J. Kops, G. Dibbets, L. Hermans, J.F. Van de Vate
The Aerodynamic Diameter of Branched Chain-Like Aggregates
Journal of Aerosol Science 6, 329 (1975)
- (18) G.W. Parker
Problems in Size Determination of Highly Concentrated Aerosols
Paper Presented at the Ninth Aerosol Technology Meeting at Battell's
Columbus Laboratories
October 21-22 (1976)
- (19) D.A. Dahlgren, L.D. Buxton, J.F. Muir, W.B. Murfin, L.S. Nelson,
D.A. Powers
Molten LWR Core Material Interactions with Water and with Concrete
Paper Presented at the Conference on Thermal Reactor Safety
Sun Valley, July 31-August 5 (1977)
- (20) D.A. Powers
Aerosol Emissions During the Interaction of Molten Core Material
with Concrete
NRC-Water Reactor Safety Meeting, Washington, November 7-11 (1977)

4244 Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Materialien beim Coreschmelzen

(H. Holleck, A. Skokan, K. Biemüller, Ch. Gosgnach, H. Janzer, K. Schäfer, G. Schlickeiser, H. Strömann)

Abdampfverhalten von Corekomponenten aus einer Corium E-Schmelze

Das Abdampfen von Komponenten aus der Schmelze ändert die Zusammensetzung, entzieht der Schmelze Wärme und Wärmequellen und bewirkt eine Aktivitätsfreisetzung in das Containment. Erste Versuche deuteten darauf hin, daß beim Aufschmelzen von Corium E Gewichtsverluste bis zu 30 % auftreten [1]. Diese hohen Abdampfverluste lassen sich jedoch nicht plausibel erklären. In Experimenten mit definierten Parametern und unter Berücksichtigung der Tiegelreaktionen wurde deshalb das Abdampfverhalten aus Corium E in Abhängigkeit von der Zeit bei Temperaturen von etwa 3000 K bestimmt. Nur diese hohen Temperaturen gewährleisteten ein vollständiges Aufschmelzen der Proben, was darauf hindeutet, daß der Schmelzpunkt von Corium E höher liegt als bisher angenommen (~ 2700 K). Abb. 4244-1 zeigt die Abdampfverluste von Corium E bei etwa 3000 K in Abhängigkeit von der Zeit. Es wurde eine große Zahl metallischer und keramischer Phasen auf ihre Gehalte an Eisen, Chrom, Nickel, Zirkon, Uran Thorium und Sauerstoff nach bestimmten Schmelzdauern untersucht. (Die metallischen Phasen wurden nach kombiniertem Säure-Schmelzaufschluß in schwefelsaurer Lösung unter Verwendung der Röntgenfluoreszenzspektrometrie analysiert, die keramischen Phasen nach Aufschluß mit Borax. Die Sauerstoffbestimmungen wurden mit Hilfe der Vakuum-Heißextraktion durchgeführt.) Die Abdampfverluste betragen bei 5 Minuten Haltezeit knapp 2 Gew.%, bei 10 Minuten knapp 4 %, und nehmen mit der Zeit linear zu. Die Abdampfverluste aus den Schmelzen sind im wesentlichen durch Verdampfung von Stahlbestandteilen und von an sie gebundenen Elementen gegeben. Um dies zu verstehen, können bei den komplexen Schmelzen nicht ohne weiteres die Dampf- und Partialdrücke der reinen Komponenten oder Verbindungen herangezogen werden. Dennoch sind in Abb. 4244-2 auch die Dampfdrücke dieser reinen Komponenten angegeben (aus-

gezogene Linien). Ausgehend von diesen Werten soll das Abdampfverhalten, so wie es sich hier darstellt, qualitativ erläutert werden. Betrachtet man die Dampfdrücke der reinen Komponenten in der Metallschmelze, so erkennt man, daß die Drücke z.B. bei 3000 K für Chrom oberhalb von 1 bar, für Eisen und Nickel bei 1 bar, für Uran und Zirkonium 2 Größenordnungen niedriger liegen, daß weiterhin bei der gleichen Temperatur die Gesamtdampfdrücke, d.h. die Summe aller Partialdrücke für die Oxidschmelze um 3 bis 5 Größenordnungen niedriger liegen. Berücksichtigt man, daß die Komponenten in Lösungen vorliegen und postuliert man in erster Näherung eine ideale Lösung, so kann man die Dampfdrücke berechnen und erhält bei Kenntnis der Zusammensetzung der Schmelzen die gestrichelten Dampfdruckkurven, die für Chrom, Nickel, Uran, Zirkon, z.B. um eine Größenordnung niedriger liegen als die der reinen Elemente. In ähnlicher Weise werden auch die Dampfdrücke der oxidischen Komponenten erniedrigt. Ein Vergleich zwischen den errechneten UO_2 -Partialdrücken für zwei Zusammensetzungen einer Oxidschmelze mit dem experimentell bestimmten Wert für eine bestimmte Zusammensetzung zeigt befriedigende Übereinstimmung. Die Stahlkomponenten bleiben auch bei diesem Modell die Elemente mit dem weitaus höchsten Dampfdruck, und wenn man berücksichtigt, daß die Abdampfgeschwindigkeit proportional dem Dampfdruck und umgekehrt proportional der Wurzel aus der Massenzahl ist, so unterstreicht dies die Aussage, daß das Abdampfen zumindest bis zu dem Punkt, wo alles Zry oxidiert ist, im wesentlichen von der Metallschmelze ausgeht. Da die Kenntnis des Abdampfverhaltens vor allem im Hinblick auf die Spaltproduktfreisetzung wesentlich ist, sind hier gezielte Untersuchungen im Gange, um die abdampfenden Spezies genauer zu kennen.

Spaltproduktverteilung in Abhängigkeit vom Oxidationsgrad der Schmelze

Die Kenntnis der Verteilung der Spaltprodukte als Hauptwärmequellen in den Schmelzen ist für die Beschreibung des Ablaufes eines hypothetischen Kernschmelzunfalles von großer Bedeutung. Die Verteilung in nicht oxidierten Kernschmelzen wurde schon früher beschrieben [2]. Mit fortschreitendem Oxidationsgrad der Schmelze treten neben den Corekomponenten auch zunehmend Spaltprodukte in die Oxidschmelze über. Einen ersten Über-

blick über die Reihenfolge dieses Übertritts in Abhängigkeit vom Sauerstoffpotential der Schmelze gibt Abb. 4244-3. Die Oxide der Seltenen Erden und Erdalkalimetalle sind so stabil, daß diese Spaltprodukte immer in der Oxidphase auftreten werden. Das Verhalten von U und Zr ist sehr empfindlich vom Oxidationsgrad abhängig. Die Spaltprodukte Mo und Tc werden erst später etwa gleichzeitig mit den Stahlkomponenten oxidiert und die Platinmetalle bilden keine stabilen Oxide, können aber bei hohen Temperaturen (besonders Ru) in Sauerstoff absublímieren. Wenn man davon ausgeht, daß die Kernschmelze beim Durchschmelzen des RDB noch metallisches Zry enthält, so ist dadurch das Sauerstoffpotential in der Schmelze auf einen sehr tiefen Wert festgelegt, d.h. die Oxidation der Corekomponenten und Spaltprodukte, die weniger stabile Oxide bilden, wird sich erst vollziehen, wenn der RDB durchgeschmolzen ist und die Core-schmelze mit Beton reagiert. Die Spaltprodukte, die in dieser Oxidationsphase oxidiert werden können und sich dann in der Oxidschmelze lösen, sind Mo und Tc. Gezielte Experimente, die die Verteilung der Spaltprodukte in Abhängigkeit vom Oxidationsgrad belegen sollten, wurden vorerst ohne Beton durchgeführt. Hierbei wurde Tc durch Mo simuliert. Im Vergleich zu der aus Abb. 4244-3 hervorgehenden Reihenfolge der Oxidation der Spaltprodukte ergaben sich geringfügige Änderungen, die durch die Reaktionen in dem komplexen Vielstoffsystem begründet sind. So wird Fe zumindest teilweise vor Mo oxidiert, da es in der Schmelze an Cr gebunden ist. Die Oxidation von Mo wird demgegenüber verzögert, da es in der metallischen Schmelze offensichtlich mit den Platinmetallen in metallischer Lösung gebunden ist. Da sowohl die Stahlkomponenten wie auch Mo bei der Auflösung von Beton oxidiert werden, müssen Stichproben an betonhaltigen Schmelzen diese Aussagen belegen und zusätzlich klären, welche Elemente immer in metallischer Form verbleiben.

Untersuchung der Wechselwirkung im komplexen System Kernschmelze + Spaltprodukt + Beton

Die Versuche in diesem komplexen System bestätigten die zuvor an den Systemen Kernschmelze + Spaltprodukte und Kernschmelze + Beton gewonnenen Befunde [2,3]. Darüberhinaus ergaben sich zusätzliche Befunde zur Spaltproduktverteilung bei der Erstarrung der oxidischen Schmelze. Abb. 4244-4 zeigt Schliffbilder eines Schmelzversuches an einer homogenen Pulvermischung

(Corium (A+R), 20 % Abbrand simuliert, + Karbonat-Beton, 2 : 1) im Wolframtiegel. Die Verteilung der Spaltprodukte, von denen aus dem gesamten Spektrum nur eine repräsentative Auswahl in Stellvertretung für die übrigen chemisch ähnlichen eingesetzt wurde, ist in Konzentrationsprofilen über die oxidischen Phasen und die metallischen Einschlüsse der erstarrten Schmelze in Abb. 4244-5 zu erkennen: Mo (stellvertretend auch für Tc) und Ru (als Vertreter auch der übrigen Platinmetalle Rh und Pd) werden zusammen mit Fe, Cr und Ni in der Stahlschmelze nachgewiesen, die übrigen in der Oxidschmelze. Diese Verteilung gilt für die Wechselwirkung von Kernschmelze mit Beton, gleichgültig ob der Betonzuschlag hauptsächlich Silikat oder erhebliche Anteile an Karbonat enthält. Im vorliegenden Fall enthielt der Betonanteil Karbonatzuschlag. Hier zeigte sich anhand der unterschiedlichen Profile z.B. für Uran und Zirkon in der erstarrten Oxidschmelze, daß beim Erstarren dieser Schmelze eine Differentiation in mehreren Phasen erfolgte. Unter Hinzuziehung von röntgenographischen Phasenanalysen konnten die Hauptphasen Ca_2UO_4 , Ca_2ZrO_4 , Ca-chromat und UO_2 ermittelt werden. Die Profile der Spaltprodukte zeigen, daß Neodymoxid (als Repräsentant für alle übrigen 3-wertigen Seltenen Erden) und Ceroxid in der uranhaltigen Phase auftreten, während Strontiumoxid (und damit wahrscheinlich auch Bariumoxid) in der zirkonhaltigen Phase vertreten ist. Bei den Proben, die Beton mit Silikatzuschlag erhalten, wurde diese Differentiation nicht beobachtet. Hier erstarrte die Oxidschmelze stets - auch bei sehr geringen Abkühlungsgeschwindigkeiten (1K/min) - als homogenes Glas, evtl. mit kristallinen UO_2 -Ausscheidungen.

Materialkundliche Auswertung der Thermitversuche

Es wurde Probenmaterial aus Schmelzversuchen untersucht, die an anderer Stelle mit gezündeten Al/Fe-oxid-Thermitmischungen in Betontiegeln durchgeführt wurden [4]. Von den geschnittenen Tiegeln der Versuche A, C, D, E, F und I wurden Proben aus dem Bereich der Oxidschlacke und z.T. aus dem metallischen Regulus genommen und auf ihre chemische Zusammensetzung und ihren Phasenbestand untersucht. Die Entnahmestellen der Proben sind in Abb. 4244-6 angegeben. Die Proben C1 und D1 sind auch dem metallischen Regulus der entsprechenden Tiegel, die anderen Proben sind aus der oxidischen Schlacke entnommen. Zur Charakterisierung der Proben dienten chemi-

sche Analysen (Tab. 4244-1 und 4244-2), metallographische bzw. keramographische Anschliffbilder zur Bestimmung des Gefüges (Abb. 4314-7 bis 4244-9), Mikrobereichsanalyse (Abb. 4244-10) und röntgenographische Beugungsuntersuchungen zur Phasenanalyse.

Ergebnisse:

a) Metallische Proben aus dem Regulus

Die chemischen Analysen der Proben C1 und D1 (Tab. 4244-1) zeigen, daß die metallische Schmelze praktisch kein Al enthält. Der Cr-Gehalt in Probe D1 lag in der Ausgangsmischung bei 10 %. Er ist durch Oxidation auf einen Wert von ungefähr 3,4 % abgesunken, während sich der Ni-Gehalt (in der Ausgangsmischung 5 %) nicht verändert hat. Die Anschliffbilder (Abb. 4244-7) zeigen zahlreiche kleine mehrphasige Oxideinschlüsse, die während ihres Aufstiegs durch die dichtere metallische Schmelze eingefroren wurden. Mikrobereichsanalysen haben gezeigt, daß die hellgraue Phase in dem großen Einschluß in Abb. 4244-7, die vor allem in einem sichelförmigen Bereich am linken oberen Rand konzentriert ist, Fe-oxid ist. Die dunklen Phasen enthalten vor allem Ca-silikat, daneben nur in sehr geringen Anteilen auch Al-oxid.

b) Oxidische Proben aus der Schlacke:

Ergebnisse der chemischen Analysen:

Die chemischen Analysendaten (Tab. 4244-1) zeigen, daß die Proben I1, I2 und I3 erhebliche Mengen an Magnesium enthalten, das weder in der Thermitmischung noch in dieser Größenordnung im Betontiegel vorhanden war. Die Ursache für den hohen Mg-Gehalt ist offensichtlich ein starker Angriff der MgO-Auskleidung des Kessels, in dem die Schmelze gezündet wurde. Dadurch enthielt die Oxidschmelze, die in den Betontiegel gegossen wurde, einen hohen Magnesiumanteil. Für die restlichen (nicht auf Mg analysierten) Proben wurde in Tab. 4244-2, in der die Umrechnung der Elementanalysen auf Oxidanteile dargestellt ist, der MgO-Anteil analog zu den Befunden an I1, I2 und I3 proportional zum Al_2O_3 -Gehalt angenommen.

Der dann resultierende Rest auf 100 % wurde in Tab. 4244-2 mit Ausnahme der Proben I1, I2, und I3, die auf Si analysiert wurden, als SiO_2 angenommen.

Die Proben A1 und E1, die aus der Kontaktzone zwischen Schlacke und Tiegel stammen und - da die Grenze sehr scharf ist - sowohl Schlacken- als auch Tiegelmateriale enthalten (vgl. Abb. 4244-9), weisen einen geringen Al_2O_3 -Gehalt (5 %) und entsprechend einen hohen SiO_2 -Gehalt (75 %) auf (vgl. Tab. 4244-2). Bei den übrigen Proben schwankt der Al_2O_3 -Gehalt zwischen 35 und 60 %, der SiO_2 -Gehalt zwischen 38 und 15 %. Diese Streubreite ist durch Inhomogenitäten bedingt. Der CaO-Gehalt ist an den SiO_2 -Gehalt gebunden, da beide Oxide aus dem Tiegelmateriale stammen. Der Fe-Gehalt (Tab. 4244-1 und 4244-2) ist im wesentlichen auf metallische Einschlüsse zurückzuführen, da für eine Berechnung als FeO die Sauerstoffkonzentration (Tab. 4244-1) nicht voll ausreicht. Es können nur Spuren an oxidiertem Eisen in der Oxidschmelze vorhanden sein. In den Proben aus dem Tiegelversuch D (D2 und D3) wurde ein Cr_2O_3 -Gehalt von ungefähr 8 %, dagegen kein Nickelgehalt nachgewiesen. Aus den Proben, die nicht aus der Kontaktzone entnommen wurden, ergibt sich nach diesen Befunden (Tab. 4244-2), daß die oxidische Thermitschmelze ($\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{MgO} + \text{Fe-Einschlüsse}$) zwischen ~ 17 und ~ 45 Gew.-%-Tiegelmateriale ($\text{SiO}_2 + \text{CaO}$) aufgenommen hat. Die geringsten Anteile an aufgelöstem Tiegelmateriale enthalten die Proben aus dem Tiegelversuch I, bei dem die metallische Thermitschmelze nicht mit der oxidischen zusammen in den Tiegel gegossen wurde. Dieser Befund erklärt sich aus dem in diesem Versuch raschen Temperaturabfall der Schmelze, der durch die fehlende Reaktionswärme aus der Metall-Wasser-Reaktion bedingt ist.

Ergebnisse der Phasen- und Gefügeuntersuchungen:

Die Schlacke besteht aus einer feinstkörnigen Grundmasse aus einem Gemenge verschiedener Ca-Mg-K-Al-Silikate, z.T. bei hohem SiO_2 -Gehalt glasartig, in der metallische Eisen-Tröpfchen und im wesentlichen zwei Typen von größeren oxidischen Ausscheidungspartikeln eingeschlossen sind (vgl. Abb. 4244-8 und 4244-10). Bei den beiden oxidi-

schen Ausscheidungstypen handelt es sich um Spinelle der Zusammensetzung $(Mg, Fe)[Al, Cr]_2O_4$ (im Anschliffbild durch die isometrische Form der Schnitte mit 60° - und 120° -Winkel zu erkennen) und stengelartige (Al, Cr) -oxidkristalle. Diese beiden Phasen weisen in diesem System die höchsten Erstarrungstemperaturen auf und sind daher als idiomorphe Erstausscheidungen aus der Schmelze auskristallisiert.

Die Probe E1 aus der Kontaktzone Tiegel/Schmelze enthält noch einen Bereich des nicht aufgeschmolzenen Tiegelmateriale (Abb. 4244-9). Hier zeigt sich, daß der Übergang sehr scharf ist.

Literatur:

- [1] P. Hofmann, H. Holleck, C. Politis, A. Skokan:
Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Komponenten
beim Coreschmelzen
KfK 2242, Februar 1976

- [2] PNS-Halbjahresbericht 1976/II
KfK 2435, S. 412

- [3] PNS-Halbjahresbericht 1976/I
KfK 2375, S. 415

- [4] dieser PNS-Halbjahresbericht 1977/II
Kap. 4246 (Perinic u.a.)

Tab.4244- 1:Chemische Analysenwerte der Proben aus der Schlacke und dem Metallregulus

	Al	Ca	Fe	Mg	Mn	Cr	Ni	Si	O	H	Σ	
Schlacke	A1	2,6	7,1	6,8	0,3	—			47,9	0,07	64,8	
	C2	21,3	4,4	11,8	0,3	—			38,4	0,1	76,3	
	C3	21,3	4,4	11,7	0,3	—			41,2	0,05	78,9	
	D2	25,6	2,8	3,9	0,1	5,7			39,9	0,05	78,0	
	D3	23,4	2,5	6,0			5,5		41,6	0,06	79,1	
	E1	2,5	6,5	8,9			—		44,8	0,1	62,8	
	E2	24,7	3,9	11,0	0,3	—			43,5	0,1	83,5	
	F1	19,0	4,2	9,6	0,1	—			41,7	0,08	74,7	
	F2	18,1	4,4	10,6	0,1	—			41,1	0,1	74,4	
	I1	32,5	1,3	5,6	11,0	0,1	—		> 7,0	34,8	0,07	92,4
	I2	26,5	3,5	5,7	9,0	0,2	—		> 11,0	41,2	0,20	97,3
	I3	28,4	2,4	6,7	10,0	0,1	—		9,0	36,7	0,24	93,5
	Regulus	C1	0,1				—	0,3		1,5		
D1		0,2		Rest			3,4	5,3	1,4			
D2 Tr		0,1		Rest		—	6,0		0,05			

Tab.4244-2: Chemische Zusammensetzung der Proben aus der Schlacke, errechnet aus den Analysenwerten in Tabelle 1.

	Al ₂ O ₃	CaO	Fe	MgO	MnO	Cr ₂ O ₃	SiO ₂	H ₂ O
A1	4,9	9,9	6,8	(1,5) ⁺	0,4	—	(75,9) ⁺⁺	0,6
C2	40,2	6,2	11,8	(12,1) ⁺	0,4	—	(28,4) ⁺⁺	0,9
C3	40,2	6,2	11,7	(12,1) ⁺	0,4	—	(28,9) ⁺⁺	0,5
D2	48,4	3,9	3,9	(14,5) ⁺	0,1	8,3	(20,4) ⁺⁺	0,5
D3	44,2	3,5	6,0	(13,3) ⁺	0,1	8,0	(24,5) ⁺⁺	0,5
E1	4,7	9,1	8,9	(1,4) ⁺	0,1	—	(75,0) ⁺⁺	0,9
E2	46,7	5,5	11,0	(14,0) ⁺	0,4	—	(21,7) ⁺⁺	0,7
F1	35,9	5,9	9,6	(10,8) ⁺	0,1	—	(36,8) ⁺⁺	0,9
F2	34,2	6,2	10,6	(10,3) ⁺	0,1	—	(37,7) ⁺⁺	0,9
I1	61,4	1,8	5,6	18,2	0,1	—	15,0	0,6
I2	50,1	4,9	5,7	14,9	0,3	—	23,5	1,8
I3	53,7	3,4	6,7	16,6	0,1	—	19,2	2,2

+ Nicht auf einen Analysenwert bezogen, sondern errechnet unter der Annahme, daß der MgO-Gehalt proportional dem Al₂O₃-Gehalt (30 %) ist, wie gemessen in den Proben I1, I2, I3. Diese Annahme ist vertretbar, da das MgO mit dem oxidierten Teil der Schmelze aus dem Futter des Kessels, in dem die Thermitmischung gezündet wurde, in die Schmelze gelangt ist.

++ Rest, als SiO₂ angenommen.

~ 3000 K

Abb. 4244-1: Abdampfverluste von Corium E bei 3000 K als Funktion der Zeit.

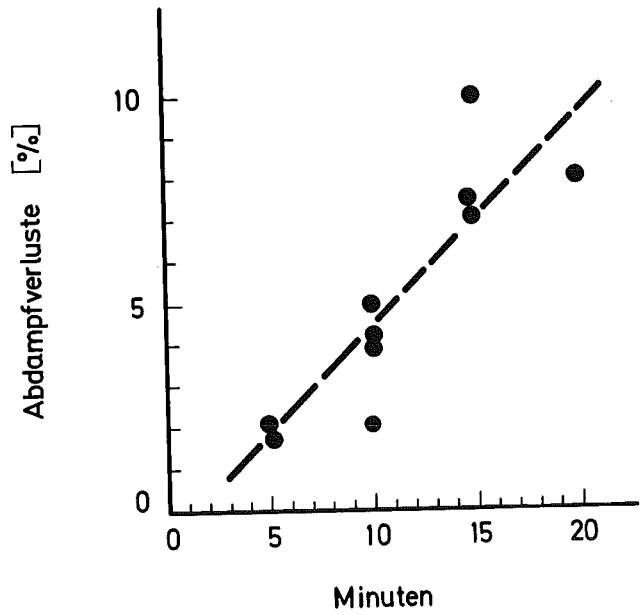
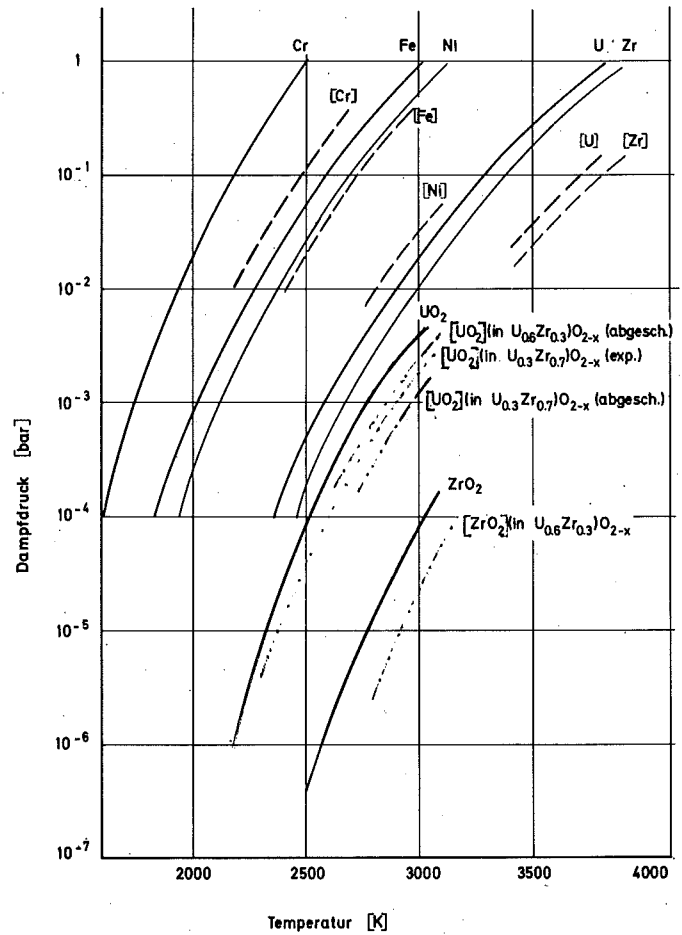


Abb. 4244-2: Dampfdrücke einzelner Corekomponenten (ausgezogene Linie) und ihre Partialdrücke in idealer Lösung (gestrichelt).



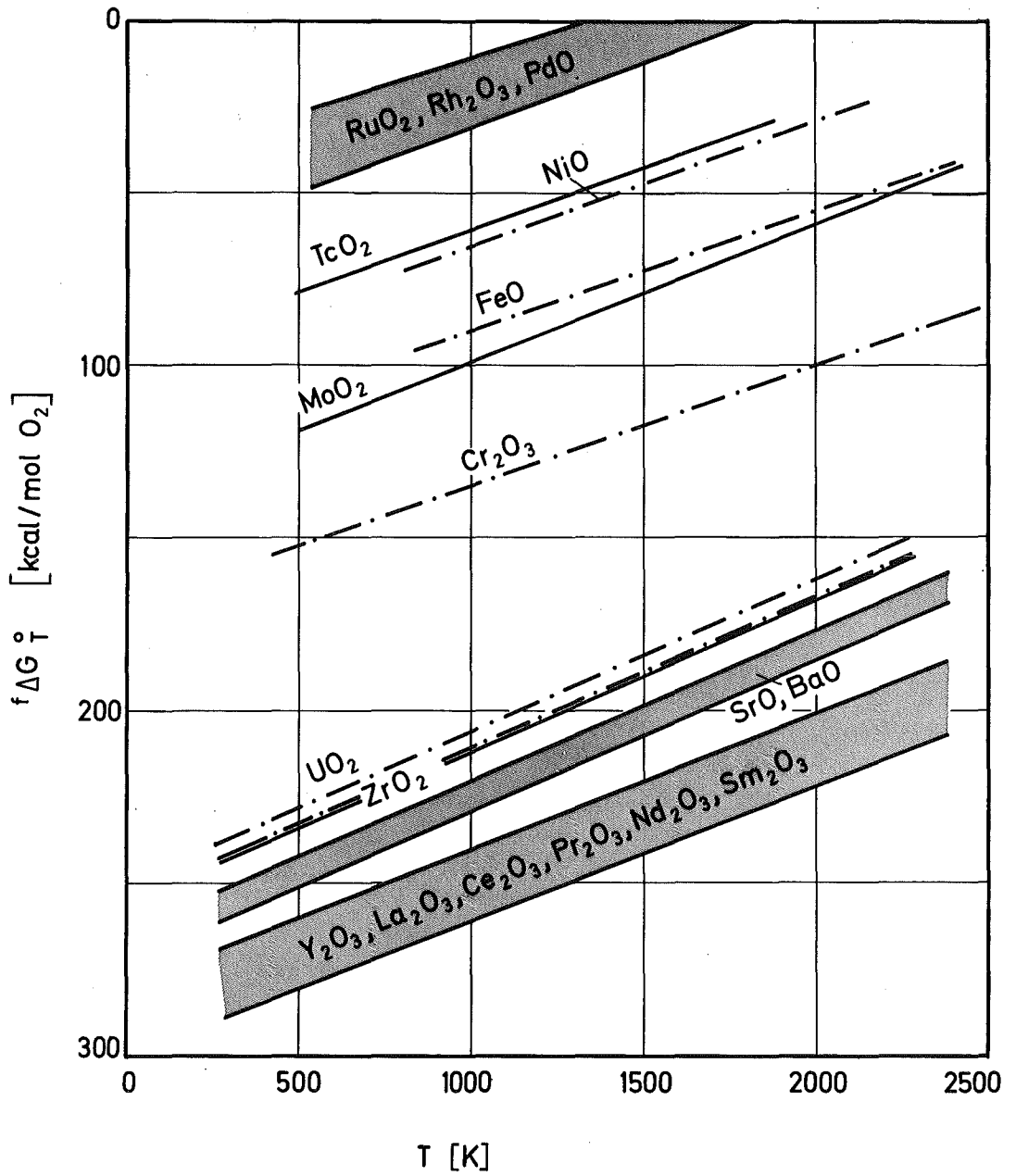
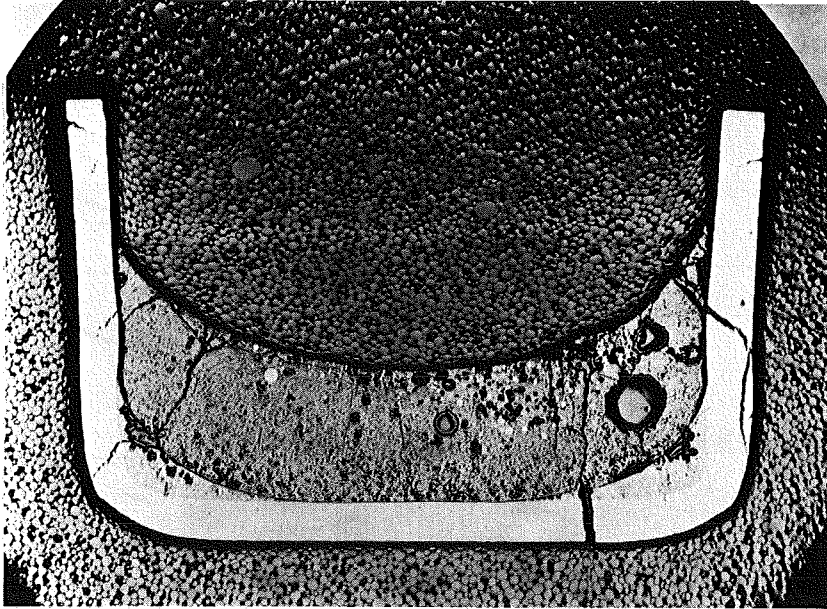
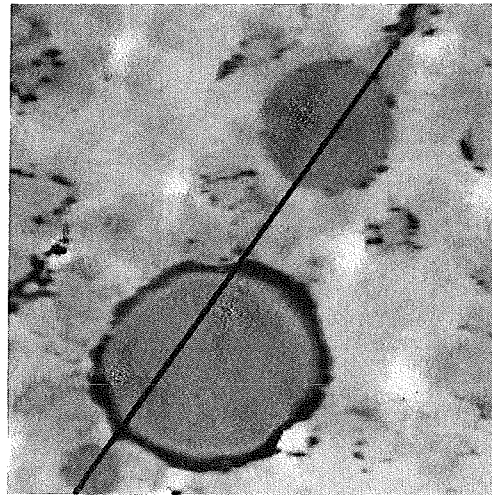


Abb.4244.-3: Bildungsenthalpien der Oxide von Corekomponenten (strichpunktiert) und Spaltprodukten (ausgezogene Linie, schematisch).



10 mm



200 μm

Abb.4244-4: Schmelzprobe aus Corium A+R (mit Spaltproduktanteil entsprechend 20 % Abbrand) und Beton (mit Karbonatzuschlag) im Wolframtiegel;
oben: Schliffbild
unten: Probenstrombild (Mikrosondenuntersuchung) mit Angabe der Lage der Konzentrationsprofile in Abb. 5

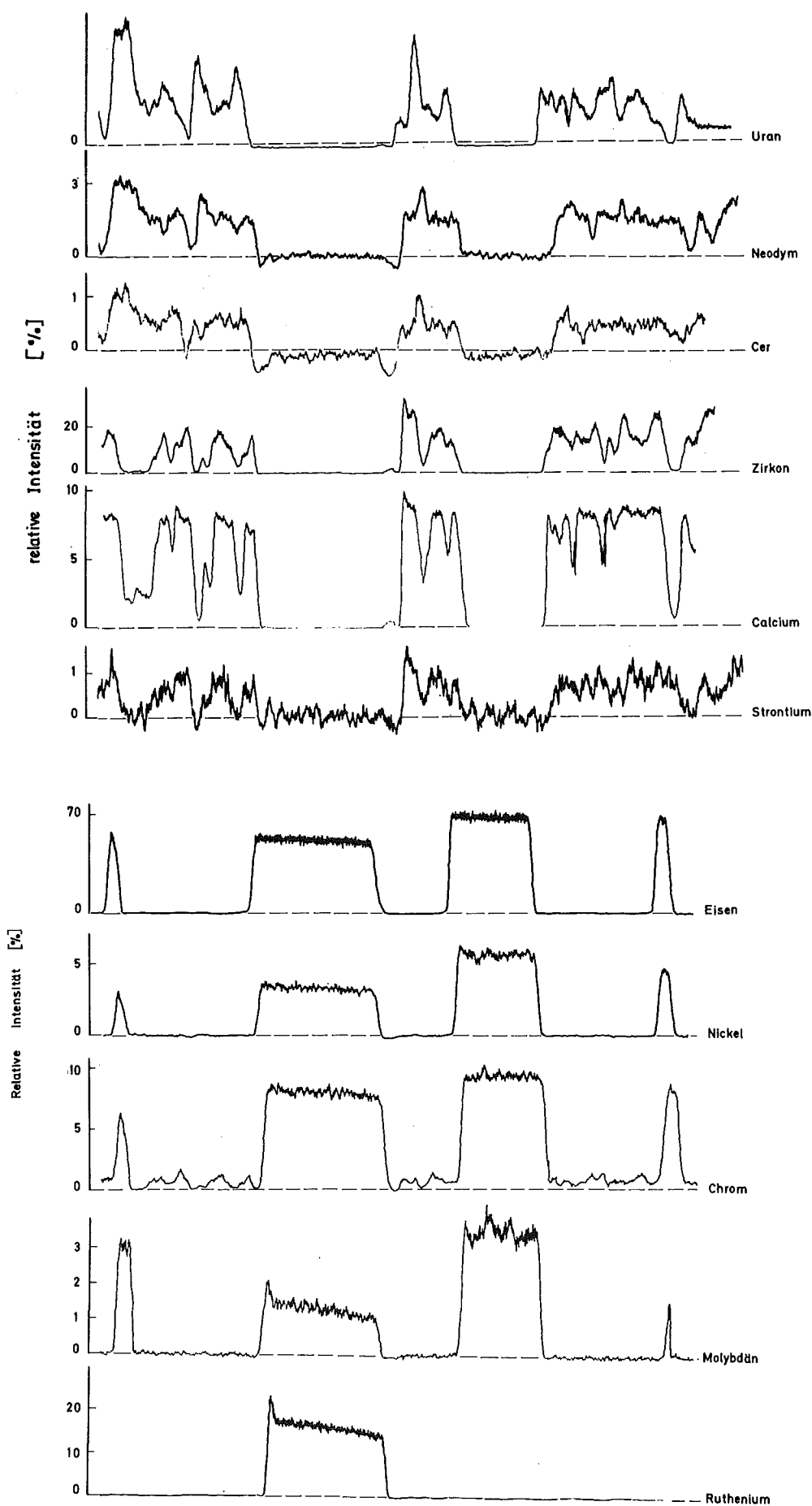
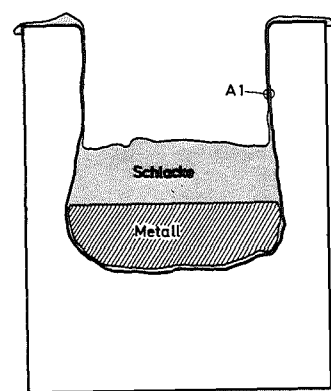
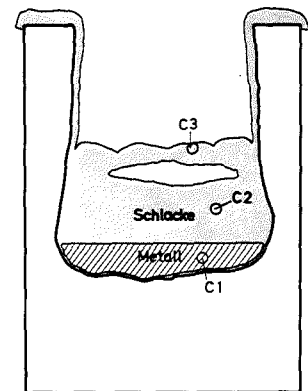


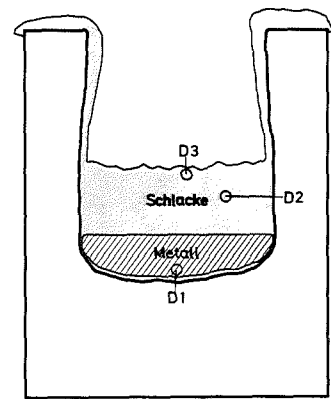
Abb.4244-5: Mikrobereichsanalyse:
Konzentrationsprofile der Hauptkomponenten und Spaltprodukte
über die Oxidphasen und metallischen Einschlüsse der in Abb.4
gezeigten Schmelzprobe



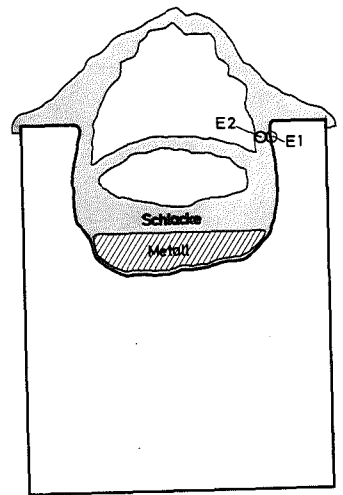
Tiegel A



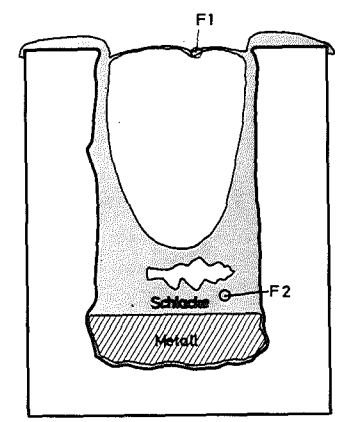
Tiegel C



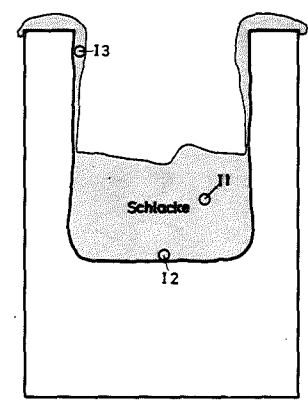
Tiegel D



Tiegel E

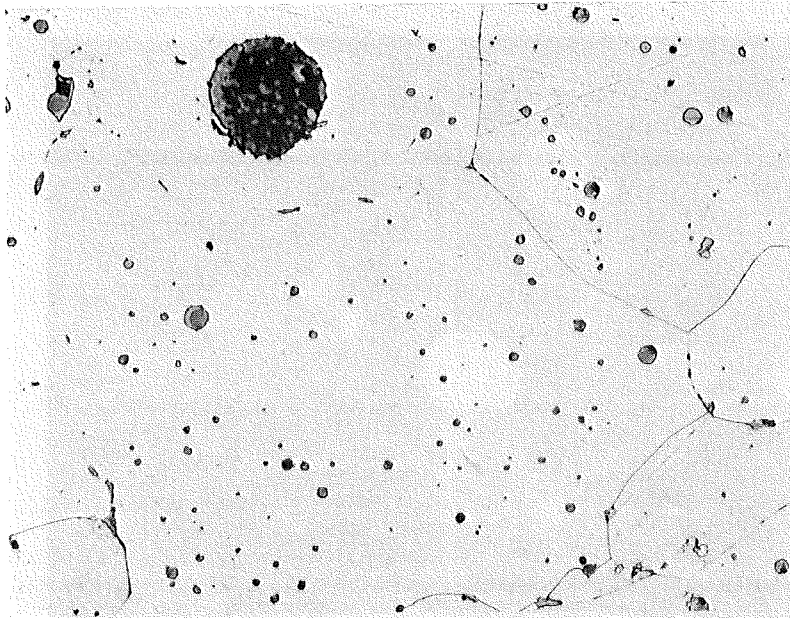


Tiegel F

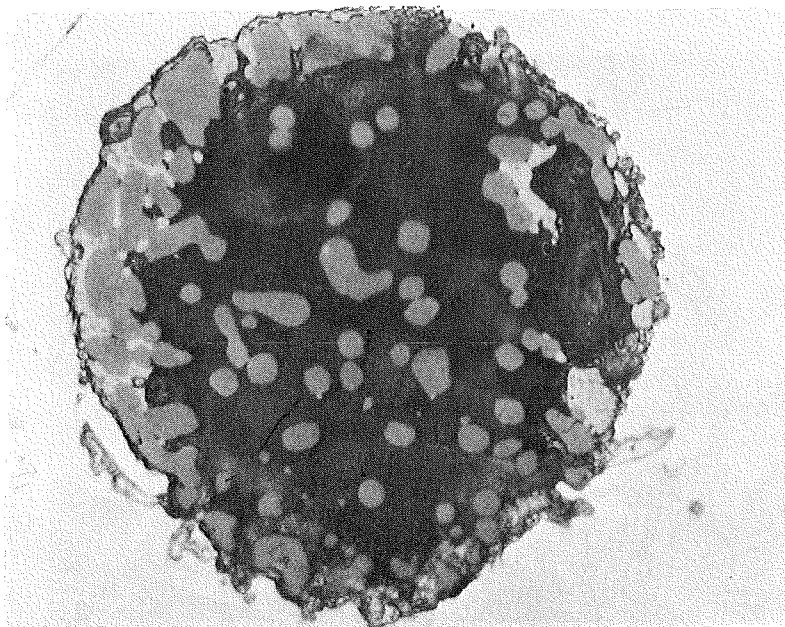


Tiegel I

Abb.4244-6: Probeentnahmestellen der Proben aus den geschnittenen Tiegeln A,C,D,E,F und I

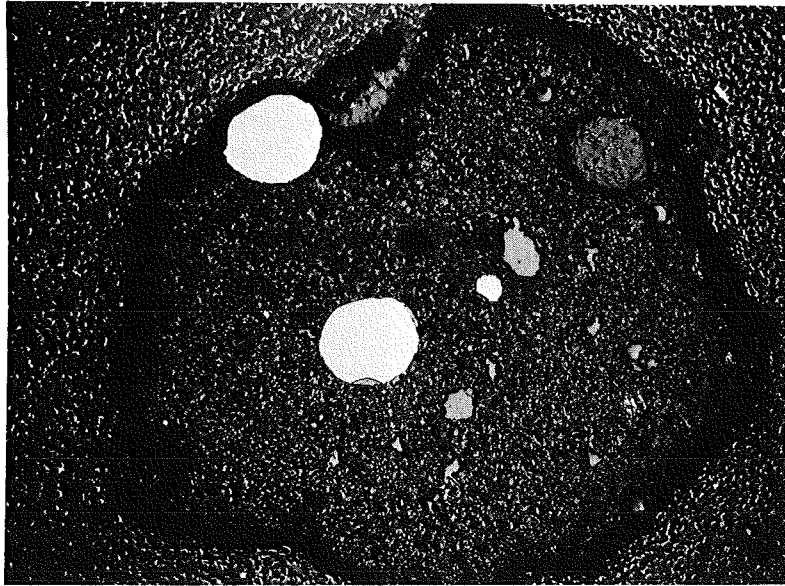


100 μm

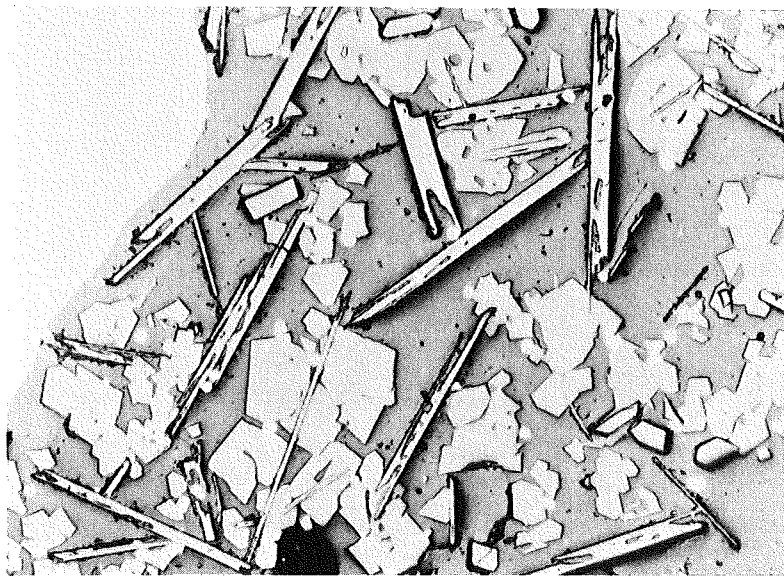


50 μm

Abb.4244-7: Schliffbilder der metallischen Probe C1

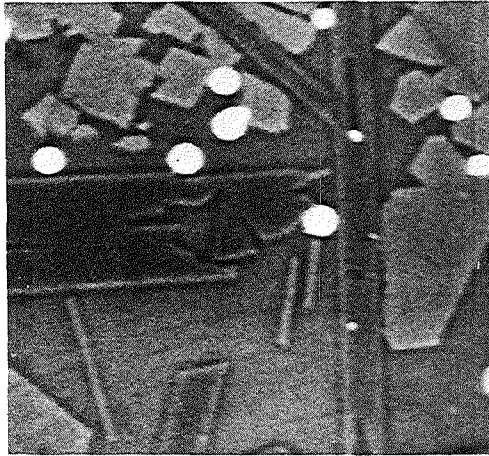


1 cm

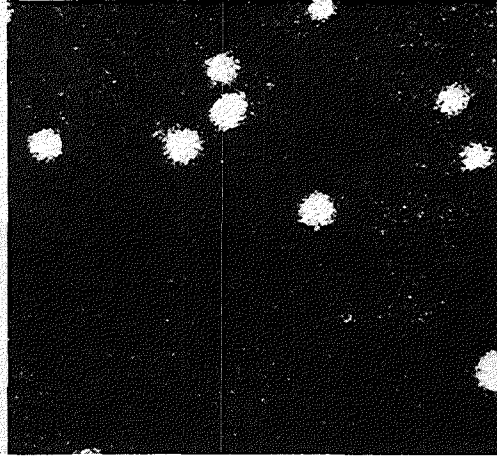


100 μm

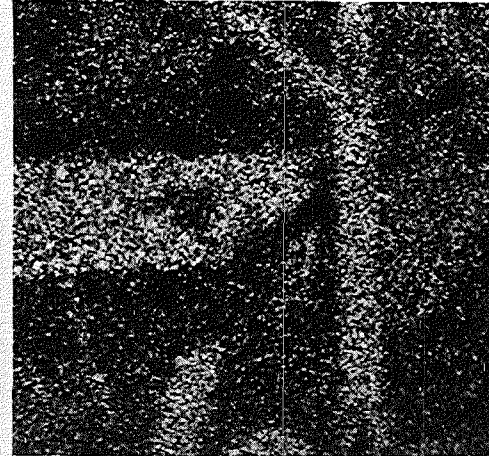
Abb.4244-8: Schliffbilder der oxidischen Probe D3



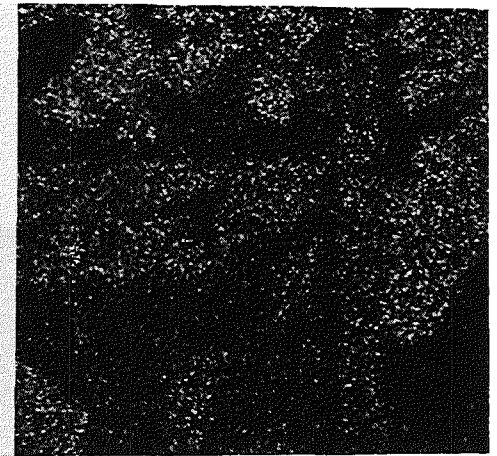
Probenstrombild



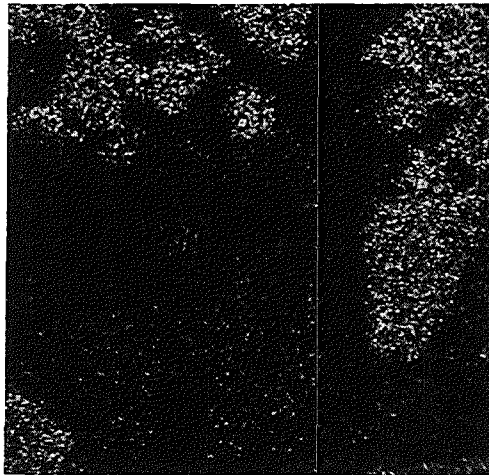
Eisen



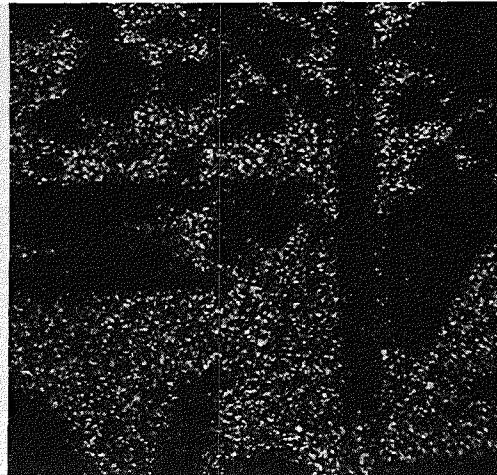
Aluminium



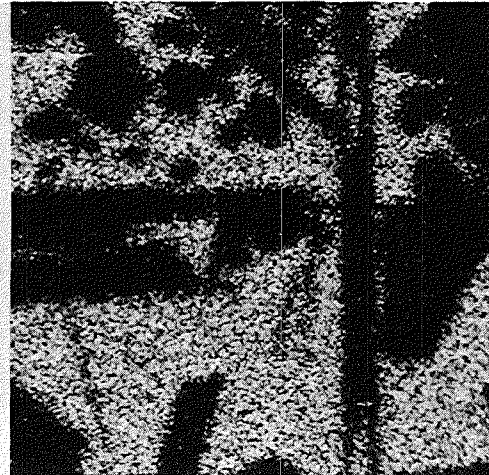
Chrom



Magnesium



Kalium

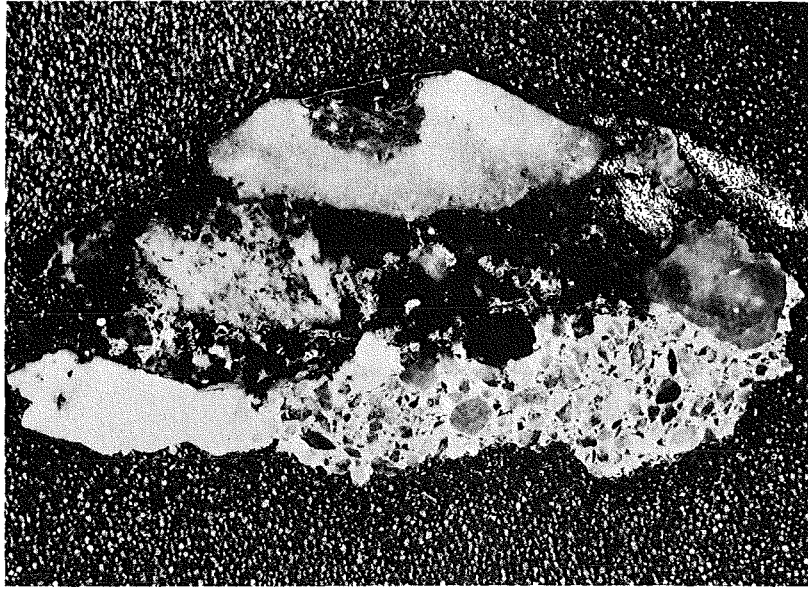


Calcium

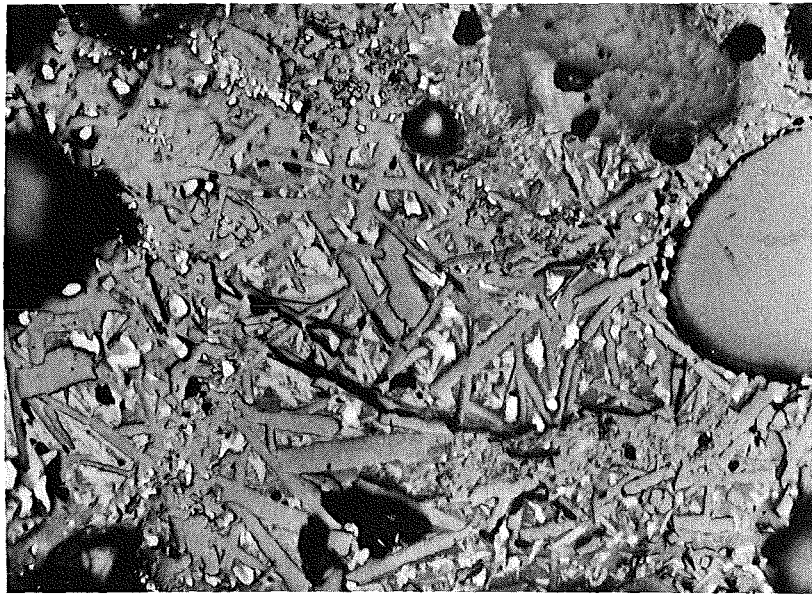


Silizium

Abb. 4244-10: Mikrobereichsanalyse der Probe D3; Kantenlänge des Bildausschnitts: 100 μm



1 cm



100 μm

- 4246 Experimente zur Wechselwirkung zwischen Stahlschmelzen und Beton
- Betontiegelversuche mit Thermitschmelzen -
(D. Perinic, B. Kammerer, H. Knauß, A. Mack, B. Stuka, RBT/IT)

1. Betontiegelversuche mit Thermitschmelzen

Im Berichtszeitraum wurden die im April und Mai 1977 durchgeführten Betontiegelversuche mit Thermitschmelzen ausgewertet und die Ergebnisse in einem Bericht zusammengefaßt.

Es wurden insgesamt neun Großversuche durchgeführt. Eine Übersicht der wichtigsten Daten ist aus der Abb. 4246-1 ersichtlich.

1. Betontiegeldaten

1.1 Beton

Die Betontiegel wurden in Anlehnung an die Spezifikation des Reaktorbetons der Firma Hochtief für den Bereich unterhalb des Reaktordruckbehälters beim KKW Biblis hergestellt.

Zusammensetzung der Betonbestandteile vor dem Abbinden:

Portland Zement PZ 350 F	330 kg/m ³	Beton ...	14,3 %
Rheinsand 0...2 mm	750 kg/m ³	Beton ...	32,6 %
Rheinkies 2...8 mm	450 kg/m ³	Beton ...	19,6 %
Rheinkies 8...16 mm	600 kg/m ³	Beton ...	20,1 %
Wasser	170 kg/m ³	Beton ...	7,4 %

Ein Segment des Tiegelbodens (Tiegel E) wurde chemisch analysiert. Die Ergebnisse der Analyse können der Abb. 4246-2 entnommen werden.

Die Betondichte wurde an einem Bodensegment des Tiegels I von rund 1 l Inhalt gemessen. Die Probe hatte nach einer Trockenlagerung von 2 Monaten die Dichte von 2,34 kg/l. Anschließend wurde die Probe ca. 3 h unter Wasser gelagert. Dabei ist die Dichte auf 2,43 kg/l angestiegen. Man kann von der Annahme ausgehen, daß die mittlere Betondichte bei allen Versuchen aufgrund der Alterung der Tiegel unter Wasser rund 2,4 kg/l betragen hat.

1.2 ___ Betonalterung

Alle Tiegel wurden mindestens vier Wochen naßgelagert. Der Innenraum der Tiegel wurde mit Wasser gefüllt, wobei über die Tiegel Plastiksäcke gestülpt wurden. Damit konnte sichergestellt werden, daß die Tiegel bis zu Beginn der Versuche mit Wasser gesättigt waren.

1.3 ___ Tiegelkonstruktion

Als Außengeometrie der Tiegel wurde im Hinblick auf die später vorgesehene induktive Beheizung der Schmelze eine stehende Zylinderform gewählt (Abb. 4246-3). Wegen des Ankopplungswirkungsgrades soll dabei das Verhältnis des Induktorquerschnitts zum Schmelzbadquerschnitt nicht größer als 2 sein. Daraus folgen verhältnismäßig dünne Wandstärken. Zum Schutz des Induktors bei einem möglichen Ausbruch der Schmelze wurde eine Zweischalenkonstruktion verwendet. Der Betontiegel wird von einem Asbest-Zementrohr umgeben. Der Zwischenspalt (10 mm) wurde bei den Tiegeln B, E, F und G mit einer hochschmelzenden keramischen Watte (Saffil) ausgestopft. Die Watte soll gewisse Wärmedehnungen der Betontiegel nicht behindern und gleichzeitig als thermische Barriere dienen. Bei Tiegel A wurde der Spalt leer belassen. Der Tiegel D wurde ohne Spalt hergestellt, wobei jedoch das Asbestzementrohr zur Kompensation der Tangentialspannungen geschlitzt wurde. Die Tiegel C, H und I wurden ohne Asbest-Zementrohre eingesetzt.

1.4 Bewehrung

Wegen der später vorgesehenen induktiven Ankoppelung der Schmelze kommt eine Stahlbewehrung nicht in Frage. Alle Tiegel (außer Tiegel C) wurden mit einem Glasfaser-Gittergewebe bewehrt. Die Bewehrung wurde in die äußere Randzone einbetoniert. Diese Bewehrungsart konnte bisher sowohl in Kleinversuchen mit Coriumschmelzen bis zu 500 g als auch bei den Eingießversuchen mit Graugußschmelzen bis zu 160 kg zum Teil erprobt werden. Die Glasfasergewebesicht wurde jedoch gegenüber den früheren Versuchen wesentlich verstärkt. Bei den Kleinversuchen wurden nur eine Lage, bei den Graugußversuchen vier Lagen und bei den Thermitversuchen zehn Lagen des Glasfasergitters einbetoniert.

Technische Daten des Gewebes:

Hersteller: Leuze & Rilling GmbH, Wannweil

Gewebe-Nr. 11229

Bahnbreite: 1600 mm

Maschenweite: 20 mm

Kett- und Schußfäden 3 x 0,5 mm, wobei der Kettfaden wesentlich geringere Dichte aufweist (Abb. 4323-4).

Das Gewebe ist mit einem Acryl-Mischpolymerisat gegen Alkali- und Säureangriff imprägniert.

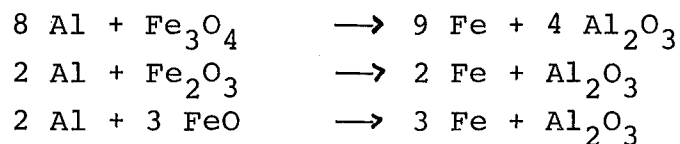
Das Gittergewebe wurde vor dem Eingießen des Betons in die Form kreuzweise eingelegt. Während der Verdichtung wurde darauf geachtet, daß deren ursprüngliche Lage weitgehend erhalten geblieben ist.

Die Abb. 4246-4 zeigt das einbetonierte Gewebe in einer Bruchfläche des Tiegels I.

Der Tiegel C wurde mit Stahl bewehrt. Es wurden etwa die gleichen Bewehrungsstäbe und soweit möglich auch die gleichen Stababstände wie im Fundament des KKW Biblis eingehalten. Mit diesem Tiegel sollte der Einfluß der Stahlarmierung auf die Schmelzbadausbreitung untersucht werden, um festzustellen inwieweit sich der Versuchsablauf von demjenigen in glasfaserbewehrten Tiegeln unterscheidet.

2. Schmelze

Um möglichst hohe Temperaturen der Schmelzen zu erreichen, wurden die Schmelzen im Thermit-Verfahren dargestellt. Es handelt sich dabei um die aluminothermische Reaktion des Aluminiumpulvers mit einer Mischung aus verschiedenen Eisenoxiden:



In einem der Versuche wurde eine andere Reaktionsmischung mit Zusatz von Nickel und Chrom zur Simulation einer Edelstahlschmelze verwendet. Ni und Cr wurden dabei in metallischer Form zugemischt. Nach Ablauf der Reaktion, bei welcher max. Temperaturen von 3 000° C erreicht wurden, erfolgt eine rasche Segregation aufgrund der großen Dichteunterschiede zwischen der oxidischen und metallischen Phase.

Bei Versuchen mit Ausgangsmassen von ca. 250 kg betrug die Zeitdauer zwischen Zünden des Thermitpulvers und Abstich des Reaktionstiegels etwa 30 s. Aufgrund der raschen Segregation fließt aus dem Tiegel zuerst die metallische Schmelze ($\rho_{fl} \approx 5,8 \text{ g/cm}^3$) und anschließend die spezifisch wesentlich leichtere oxidische Phase ($\rho_{fl} \approx 2,3 \text{ g/cm}^3$) heraus. Trotz der zum Zeitpunkt des Abstichs praktisch abgeschlossenen Segregation liegen weder die metallische noch die oxidische Phase in völlig reinem Zustand vor. Die metallische Phase beinhaltet Anteile

des nichtoxidierten Aluminiums, wobei die oxidische Phase eine Mischoxidschmelze aus Al-, Fe-, Ni-, Cr- und Si-Oxiden darstellt.

Die chemische Analyse der beiden Thermitmischungen in Ausgangszusammensetzung ist aus der Abb. 4246-5 ersichtlich.

3. Versuchsaufbau

Alle Tiegel (außer Tiegel E) wurden mit heißer Thermit-Schmelze gefüllt, die zuvor in dem höher angeordneten Reaktionstiegel aus Thermitpulver dargestellt wurde. Der Reaktionstiegel mit dem kompletten Aufbau wurde von der Firma Elektro-Thermit GmbH, Essen leihweise zur Verfügung gestellt.

Die Prinzipskizze, Abb. 4246-6, verdeutlicht den Querschnitt des Tiegels. Zunächst ist der Stahlblechmantel mit einer Schicht aus gestampftem Klebsand ausgekleidet. Darauf ist das eigentliche Tiegelfutter aus einer dicken Magnesit-Schicht (MgO) gestampft. Der obere Teil des Tiegels besteht aus gestampftem Klebsand.

Den unteren Tiegelabschluß bildet ein gesinterter keramischer Bodenstopfen, dessen Abstichbohrung vor jedem Versuch mit einem Stahlstift und etwas Klebsand mit Asbest verschlossen wird. Durch Einschlagen des Stahlstiftes wird der Tiegel abgestochen. Der Reaktionstiegel wiegt etwa 1900 kg. Er ist verwendbar für Thermitmassen bis zu 800 kg.

Über eine schwenkbare Rinne fließt die Schmelze in den tiefer angeordneten Versuchstiegel. Durch seitliches Schwenken der Rinne können bei einem Abstich zwei Versuchstiegel mit Schmelze beaufschlagt werden.

4. Meß- und Überwachungstechnik

Die bei den Versuchen eingesetzten Meß- und Überwachungsgeräte wurden in der Abb. 4246-7 zusammengestellt.

4.1 Versuchsablauf

Als Beispiel wird hier der Versuch B beschrieben.

Versuchsdatum: 19.4.1977

Thermitmasse im Reaktionstiegel: 250 kg

In den Betontiegel wird Fe- und Oxidschmelze eingegossen.

Tiegelinnendurchmesser: 380 mm

Tiegelinnenhöhe: 500 mm

Zeit

- | | |
|-------|--|
| 0" | Zündung im Reaktionstiegel |
| 25" | Abstich. Nach dem Auftreffen des Gießstrahles steigen sofort dunkle Rauchschwaden auf, die den Tiegel einhüllen. (Tiegel nicht mehr sichtbar.) |
| 45" | Spritzer erkennbar. |
| 50" | Starker Rauch. Tiegel nur z.T. erkennbar. |
| 59" | Tiegel gefüllt. Nachlaufende Schmelze läuft über den Tiegelrand. Starkes Kochen und Auswurf von Schmelzgut. |
| 1'12" | Eingießvorgang beendet. |
| 1'15" | Schmelze kocht. Durch hochperlendes Gas entstehen Fontänen auf der Schmelzenoberfläche (Höhe ca. 50 cm \varnothing 3 - 5 cm). Starker Auswurf. |
| 1'30" | Fontänenaktivität klingt ab. Schmelze wird dickflüssiger. Erste Blasen erkennbar. |
| 2'5" | Nur noch vereinzelte Spritzer, die wenig Masseverlust im Tiegel verursachen. |
| 2'20" | Oberfläche ist bis ca. 20 cm unter die Tiegeloberkante abgesunken. Keine nadelförmigen Spritzer mehr. |

Zeit

- 2'40" Gassonde wird 20 cm über der Tiegeloberkante eingeschwenkt.
- 2'55" Gassonde wird zurückgezogen.
- 3'5" Starke Bewegungen auf der Schmelzenoberfläche.
- 3'20" Dunkle Schicht schwimmt auf der Schmelze.
- 3'45" Teigiger Zustand der Schmelze. Auf der Oberfläche pulsierende Blasen, die durch aufsteigendes Gas aufgebläht werden und bei einem maximalen Durchmesser von $d/2$ (d = Tiegelinnendurchmesser) zerplatzen. Beim Zerplatzen der Blasen entstehen gelbe Stichflammen bis zu 0,5 m Höhe.
- 4'45" Frequenz der Blasenpulsation 2 - 3 Hz. Flächenhafte Verbrennung über dem Schmelzbad.
- 4'50" Oberfläche wird ruhiger. Schwimmende Kruste bildet sich aus.
- 5'20" Auf der Oberfläche 4 - 5 pulsierende Blasen. Blasenentstehungsort bleibt konstant.
- 6'15" Keine Einzelblasen mehr. Gesamte Oberfläche wird rhythmisch hochgewölbt.
- 6'50" Kruste bildet sich stärker aus. Risse sind erkennbar.
- 7'35" Beim Aufreißen der Kruste entstehen Stichflammen.
- 8'5" Schmelze unter der Kruste ist noch flüssig.
- 10'5" Schwache Bewegung der Oberfläche. Vereinzelt Stichflammen.
- 10'40" Keine Bewegung der Oberfläche mehr erkennbar.
- 11'5" Schwache Flammen am Rande der Schmelzbadoberfläche.

5. Auswertung und Ergebnisse

5.1 Äußerliche Begutachtung der Tiegel

Im folgenden wird der äußerliche Zustand der Tiegel nach den Versuchen beschrieben:

Die Asbestzementrohre sind bei keinem der Versuche gerissen. Außen weisen sie aufgrund der Einwirkung von Schmelzenspritzern an verschiedenen Stellen schuppenartige Abplatzungen auf. Die Dicke der abgeplatzten Schichten beträgt max. 5 mm.

Die Betontiegel selbst sind an mehreren Stellen unregelmäßig gerissen. Die Querrisse verlaufen in Höhe der unteren Schmelzbadfront. Die Rißbreite beträgt an der äußeren Oberfläche des Tiegels max. 2 mm. In der Regel ist sie jedoch kleiner. An der Außenfläche ist der Beton durch Spritzer bzw. durch herunterlaufende Schmelze nur geringfügig - bis zu einer Tiefe von max. 3 mm - angegriffen.

Bei allen Tiegeln sind die obere Stirnfläche des Tiegels und die Innenwand mit erstarrtem Auswurf bedeckt. Die Oberfläche dieser Schicht ist vorwiegend oxidisch und vereinzelt mit gut erkennbaren Metallspritzern überdeckt.

Die Kruste des Schmelzbades selbst ist oxidisch, wobei auch hierin bei einigen Versuchen kleinere metallische Spritzer auszumachen sind. Die Form und die Beschaffenheit der Kruste variiert von Versuch zu Versuch sehr stark.

Als Beispiel wird hier der Tiegel B beschrieben.

5.1.1 Tiegel B (Füllgut: Fe + Al₂O₃)

Die Oberfläche des erstarrten Auswurfs auf der oberen Stirnfläche und an der Innenwand des Tiegels ist vorwiegend oxidisch.

Die Metallspritzer sind kleiner als die oxidischen.

Die Schmelzbadkruste ist oxidisch. Sie liegt mit ihrem Rand rund 250 mm unterhalb der Tiegeloberkante. In der Mitte ist die Kruste aufgebläht. Sie ist dort um rund 45 mm höher als am Rande.

5.2 Tiegeltrennen, Untersuchung der Tiegelschnitte

5.2.1 Tiegeltrennen

Zur Herstellung von axialen Tiegelschnitten wurde die gleiche Technik angewandt, die bereits bei den früheren Graugußversuchen erprobt wurde. Dabei handelt es sich um eine mobile Trennanlage, die aus einem hydrostatischen Antriebsaggregat und der eigentlichen Trenneinheit besteht. Die Trenneinheit wird auf dem Tiegel mit Dübeln befestigt. Sie besteht aus einer hydrostatischen Vorschubeinrichtung und einer hydrostatisch angetriebenen diamantbestückten Trennscheibe. Mit dieser Trennscheibe kann der Beton, das Asbestzementrohr und der oxidische Schmelzkuchen ohne Schwierigkeiten getrennt werden. Die Trennung der Metallreguli ist jedoch nicht möglich, da die Diamant-Schneidkanten der Scheibe vom Metall verschmiert werden. Deshalb wird der Trennvorgang in Einzelschnitten um den Metallregulus herum durchgeführt, der selbst ganz erhalten bleibt.

5.2.2 Untersuchung der Tiegelschnitte - Regulusformen^{*}, Eindringtiefen der Schmelze, Dehydrierte Zonen

Nach der Trennung der Tiegel wurden die Schnitte durch direkte Messungen und anhand von Fotoaufnahmen quantitativ ausgewertet. Die axialen und radialen Eindringtiefen der Schmelze, der Verlauf der Schmelzfront sowie die Reguluskontur wurden am Schnitt direkt vermessen. Die dehydrierten und die zum Teil dehydrierten Zonen wurden mit Hilfe von Diapositiv-Projektionen im Maßstab 1 : 1 aufgezeichnet. Aus den in dieser Weise gewonnenen Zonen- grenzen- und Flächendarstellungen wurden unter Annahme einer

^{*}) Erstarrter Schmelzkörper bestehend aus Metall- und Oxidanteil

rotationssymmetrischen räumlichen Geometrie die entsprechenden Volumen bestimmt.

Der Verlauf der Schmelzfront konnte mit einer Genauigkeit von $\pm 2,5$ mm wiedergegeben werden.

Als dehydrierte Schicht wird hier die Betonschicht bezeichnet, die an der geschmolzenen Zone anliegt und bei Berührung zerbröckelt. Sie hebt sich durch ihre graue Färbung deutlich von der nächsten Schicht des Betons ab. Die Genauigkeit der Bestimmung des Grenzflächenverlaufs beträgt ± 5 mm.

Als zum Teil dehydrierte Schicht wird hier diejenige Betonschicht bezeichnet, die noch eine gewisse Festigkeit aufweist, sich aber in ihrer Färbung deutlich von der dehydrierten Schicht und von dem restlichen Beton unterscheidet. Ihre Färbung ist gelb-bräunlich. Die Genauigkeit der Bestimmung ihres Grenzflächenverlaufes beträgt ± 10 mm.

Durch unterschiedliches Schrumpfverhalten ist zwischen Metallregulus und Beton ein Spalt von rund 5 mm entstanden. Nur bei Tiegel A ist der Spalt bis zu 10 mm breit, was möglicherweise auf die bei diesem Versuch eingefüllte größere Metallmasse zurückgeführt werden kann (Abb. 4246-8).

Den Übergang von der Metallschmelze zum Beton bildet eine 2-3 mm dicke aufgeschmolzene, glasartige, anthrazitfarbene Schicht (Abb. 4246-8).

Alle Betontiegel sind gerissen. Die Rißbreite in der Schmelzfrontfläche liegt immer unter 0,5 mm. An der Tiegelaußenwand erreicht die Rißbreite maximal 2 mm. Charakteristisch sind die Vorzugsrichtungen der ausgebildeten Risse im Beton. Sie verlaufen nach außen hin senkrecht zur Regulusfläche.

Die Metallreguli (außer Tiegel D) haben eine genarbte und glänzende, jedoch nicht metallisch blanke Oberfläche. Die Reguli zeigen lokal auch nach viermonatigem Witterungseinfluß keine Korrosionserscheinungen, da sich während der Erstarrung eine dichte oxidische Schutzschicht ausgebildet hat. Diese Schutzschicht ist in ihrer Oberflächenfärbung hellgrau.

Die Kontaktfläche des Metallregulus zum Beton stellt einen Negativabdruck des Betons mit der gut sichtbaren Kieselsteinstruktur dar - ein Anzeichen dafür, daß die Schmelzfront die Beontstruktur nicht gleichförmig angreift. Ein derartiges Fortschreiten der Schmelzfront erklärt sich möglicherweise daraus, daß zuerst die zementgebundene Sandschicht zwischen den einzelnen Kieselsteinen aufschmilzt und anschließend diese selbst durch die Schmelze herausgespült, hochgeschwemmt und aufgelöst werden.

Die Zahlenwerte für Eindringtiefen der Schmelze sowie über die dehydrierte und die zum Teil dehydrierte Zonen sind in den Tabellen Abb. 4246-9 und 4246-10 dargestellt.

Die radialen bzw. axialen Eindringtiefen der Schmelze wurden in Form der maximalen Abstände der Schmelzfront von den ursprünglichen Tiegelkonturen eingetragen.

Die Stärken der dehydrierten bzw. zum Teil dehydrierten Zonen wurden senkrecht zur Schmelzfront gemessen und nach radialer und axialer Ausdehnungsrichtung gesondert ausgewiesen.

Als Beispiel wird hier der Tiegel B beschrieben.

5.2.2.1 Tiegel B

Der Regulus hat keine stark ausgeprägte Birnenform, er ist jedoch im unteren Teil deutlich erweitert. Die untere Oberfläche des Regulus ist metallisch, dagegen haftet der seitlichen Fläche eine Betonschicht an. Die Kruste ist oxidisch.

Die Oberfläche des Metallregulus ist ungleichförmig genarbt, wobei die Kieselabdrücke gut erkennbar sind.

Der erstarrte Auswurf auf der oberen Stirnfläche des Tiegels ist bis zu 35 mm und an der Innenwand bis zu 20 mm dick. In den Spalt zwischen Betontiegel und Asbestzementrohr ist ausgeworfene Schmelze bis auf 30 mm tief eingedrungen.

Zwei seitliche Thermoelemente sind fest in den Regulus eingeschmolzen. Sie liegen in der oxidischen Zone rund 90 mm oberhalb des Metallregulus.

Die Eindringtiefe beträgt axial 52 mm und radial 27 mm (Abb. 4246-11).

5.3 Temperaturverläufe

5.3.1 Tiegel B (Abb. 4246-12, 4246-13)

Thermoelemente:

Die TE sprechen in der Reihenfolge 4, 1, 5, 2, 6, 3 an. Alle TE außer 4 zeigen ausgeprägte Haltestufen bei ca. 100°C . Wegen der hohen Wärmestromdichte in Tiegelwandnähe wird die Haltestufe von TE 4 schnell überfahren. Die TE 4, 1, 5 und 2 steigen nach Überschreiten der 100°C -Stufe mit ca. 280°C/s bis zur Zerstörung zwischen $1300 - 1400^{\circ}\text{C}$. TE 6 erreicht nach 30 min einen Maximalwert von 600°C , TE 3 nach 60 min einen Maximalwert von 550°C . TE 6 und 3 sind nach 11 h auf 30°C abgekühlt.

Pyrometer:

Beide Pyrometer zeigen synchronen Verlauf der Oberflächentemperatur an. Die durch Rauchwolken geschwächte Intensität des Gießstrahles (\varnothing ca. 15 mm) reicht für die Pyrometermessung in den ersten 20 s nicht aus.

Nach 20 s wird kurzzeitig eine Gießstrahltemperatur von max. 3000°C gemessen. Der sprunghafte Abfall der Pyrometeranzeige wird durch Rauchschwaden verursacht.

Nach der Auswurfphase (90 s) sinkt die Temperatur auf 1400°C ab. Die Temperaturschwankungen werden durch dunkle Schichten auf der Schmelzenoberfläche verursacht, die zeitweise von den aufsteigenden Blasen weggespült werden. Beim Absinken der Schmelzenoberfläche (2 - 3 min) kühlt die Oberfläche auf 1200°C ab. Danach folgt eine lineare Temperatursenkung. 15 min nach Eingießbeginn wird die Ansprechgrenze des Quotientenpyrometers von 1100°C unterschritten.

5.4 Fortschrittsgeschwindigkeit der Isothermen und der Schmelzfront

Die Geschwindigkeiten der 100°C -, der 800°C - und der Schmelzfront sind als Funktion der Schmelzbadtemperatur in den Abb. 4246-14, -15, -16 aufgetragen.

Die Schmelzbadtemperatur wurde durch Bildung des integralen Mittelwertes aus der Oberflächentemperatur (Pyrometermessung) ermittelt. Aufgrund der Tauchsondenmessungen liegt die Schmelzbadtemperatur ca. 300°C über der pyrometrisch gemessenen Oberflächentemperatur. Bei der Ermittlung des integralen Temperaturmittelwertes wurden die Pyrometerkurven bis zum Abstichbeginn extrapoliert.

Für die Bestimmung der Schmelzfrontgeschwindigkeit wird der Versagenspunkt der im Beton eingebetteten CrNi-TE benutzt. Die Versagenstemperatur liegt zwischen $1300 - 1400^{\circ}\text{C}$. Sie wird von den TE mit steilem Temperaturanstieg durchfahren. Beim Abschmelzen der Meßstelle läuft die Thermospannung an die obere Grenze des Schreibermeßbereichs (100 mV).

5.5 Massenbilanzen

Eine eindeutige Bestimmung der Schmelzgutmassen im Tiegel als Funktion der Zeit war bei den Versuchen durch direkte Messung nicht möglich. Für die Anfangs- und Endzustände konnten nur folgende Massen durch direkte Messung bestimmt werden:

- Ausgangsmasse der Thermitmischung vor der Reaktion.
- Ausgangsmasse des Tiegels.
- Masse des Tiegels mit Schmelzgut nach dem Versuch.

Durch Planimetrierung der Tiegelschnitte konnte außerdem das Volumen des geschmolzenen - und des dehydrierten Betons und somit auch der Wasserverlust sowie die Masse des Schmelzkuchens annähernd bestimmt werden. Zur Aufstellung von genauen Massenbilanzen als Funktion der Zeit fehlen jedoch Angaben, wie z.B. zeitliche Massenzunahme während der Eingießzeit und Massenabnahme während der Versuchsdauer sowie eine genaue Kenntnis der eingegossenen Schmelzmasse und der Endmasse des Schmelzkuchens. Die Bestimmung der Masse des Schmelzkuchens (speziell des Metallregulus) kann später durch direkte Wägung nachvollzogen werden, sobald die Auswertung der Tiegelschnitte endgültig abgeschlossen ist.

Trotz der grundsätzlichen Schwierigkeiten wurde so genau wie möglich versucht, durch Auswertung des Filmmaterials und Rechnung eine Massenbilanz zu erstellen. Für den Tiegel B ist die Massenbilanz aus der Abb. 4246 -17 ersichtlich.

5.6 Körperschallmessung

Die absolute Anzahl der "burst" Signale pro Zeiteinheit wurden bei den Tiegeln C, D und E mit etwa 1000 pro Sekunde gemessen. Die Signaldichte klingt mit einer Zeitkonstante von $\alpha = 0,0214 \text{ s}^{-1}$ ab. Bei Tiegel I, mit der rein oxidischen Schmelze, ist die Anfangsdichte der Signale kleiner und nimmt außerdem schneller ab als bei Versuchen mit der metallischen Schmelze.

5.7 Dampfdetektion

Der Dampfdetektor wurde nur im Tiegel F eingesetzt. Dabei sollte untersucht werden, wie schnell der Wasserdampf durch die Tiegelfwand dringt. Der Tiegel F hat mit 130 mm die größte Wandstärke aller eingesetzten Betontiegel.

Der Dampfdetektor hat bereits 11 s nach dem ersten Kontakt der Schmelze mit dem Tiegel angesprochen.

5.8 Gasprobenahme

Die auf Gasmäuse gezogenen Gasproben wurden gaschromatographisch analysiert. Die Meßgenauigkeit beträgt $\pm 3 - 5 \%$. Bei allen Proben wurde eine fast luftähnliche Zusammensetzung nachgewiesen. Der Anteil des Wasserstoffs betrug zwischen 0 % bei Tiegel B und 0,76 % bei Tiegel D. Der Kohlendioxidanteil wurde mit 0,0245 und 0,3600 % nachgewiesen.

Trotz des geringen axialen Abstandes von 200 bis 300 mm der Gaseinlassöffnung von der Tiegelloberkante wurde offensichtlich bei allen Versuchen hauptsächlich Umgebungsluft eingesaugt. Vermutlich ist die Turbulenz der Konvektionsströmung der umgebenden Luft über dem Tiegel so intensiv, daß es bereits in einem Abstand von weniger als 300 mm zu einer Vermischung und Verdünnung der Abgase kommt.

Für spätere Versuche soll eine neue Gasprobenahmesonde entwickelt werden, die eine Absaugung der Abgase direkt über der Oberfläche der Schmelze im Tiegellinneren ohne Fremdluft ermöglicht. Die Peripherie, d.h. Gasmäuse mit Absperrarmaturen und Vakuumpumpe, haben einwandfrei funktioniert.

Mit den im Gasstrom des Probennahmesystems eingebauten Thermoelementen wurden Gastemperaturen von max. 120°C gemessen.

Tiegel	Versuchstag	Bewehrung	Asbestzement- rohr	Spaltfüllung	Schmelze	Innere Form	Zündmasse / kg /
A	18.4.1977	Glasfaser	ja	Luft	Eisen	Zylinder	500
B	19.4.1977	Glasfaser	ja	SAFFIL	Eisen, Schlacke	Zylinder	250
C	2.5.1977	Stahl	nein	--	Eisen, Schlacke	Zylinder	250
D	3.5.1977	Glasfaser	ja	ohne Spalt, Rohr getrennt	Eisen, Chrom, Nickel, Schlacke	Zylinder	250
E	9.5.1977	Glasfaser	ja	SAFFIL	Eisen, Schlacke	Zylinder flach	60 + 40
F	20.4.1977	Glasfaser	ja	SAFFIL	Eisen, Schlacke	Zylinder tief	250
G	10.5.1977	Glasfaser	ja	SAFFIL	Eisen, Schlacke	Halbkugel	100
H	11.5.1977	Glasfaser	nein	--	Eisen, Schlacke	Zylinder	400
I	11.5.1977	Glasfaser	nein	--	Scklacke	Zylinder	

Abb. 4246-1

PNS
4246

BETONTIEGEL - VERSUCHE MIT THERMITSCHMELZEN
TECHNISCHE DATEN ZU DEN VERSUCHEN

GFK
RBT/IT


	<i>Untersuchungsergebnis</i>		<i>Proben-Nr.</i>
<i>Datum:</i> 9.9.77	<i>Auftraggeber:</i> H.Perinic	<i>Bezeichnung der Probe:</i> Betonprobe E	
Die Probe enthält:			
	SiO ₂	:	61,18 %
	Ca(OH) ₂ + CaCO ₃	:	27,96 %
	Fe ₂ O ₃	:	1,54 %
	Al ₂ O ₃	:	4,06 %
	MgCO ₃	:	0,75 %
<i>Leopoldshafen, den</i> 16.9.77			<i>OK</i>
	KERNREAKTOR Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. b. H. Karlsruhe		FR2 RB/B

Abb. 4246-2

PNS 4246.	BETONTIEGEL - VERSUCHE MIT THERMITSCHMELZEN CHEMISCHE ANALYSE DES BETONS	GFK RBT/IT
--------------	---	---------------

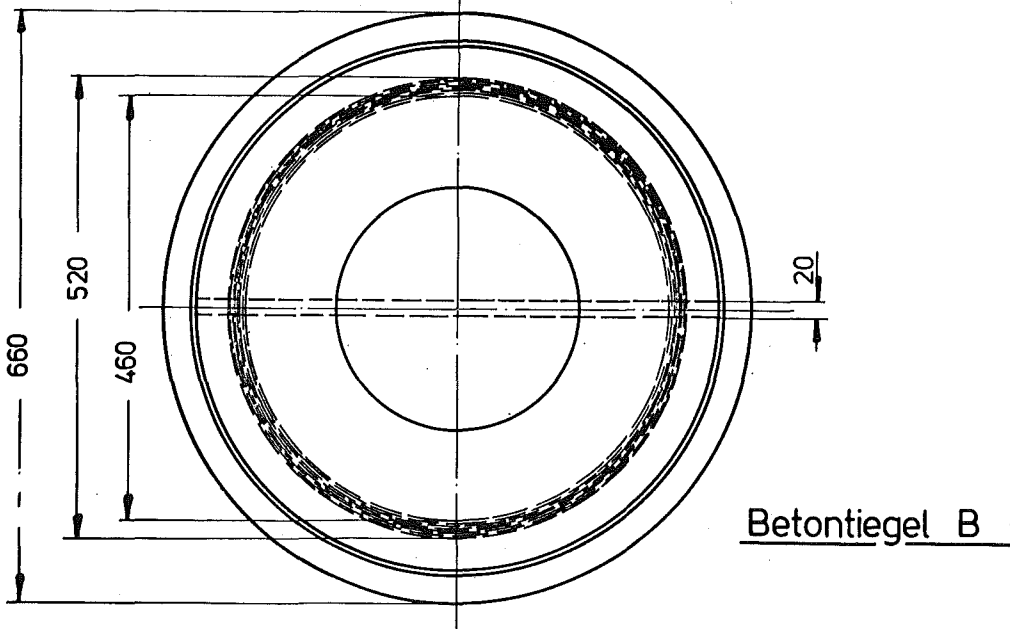
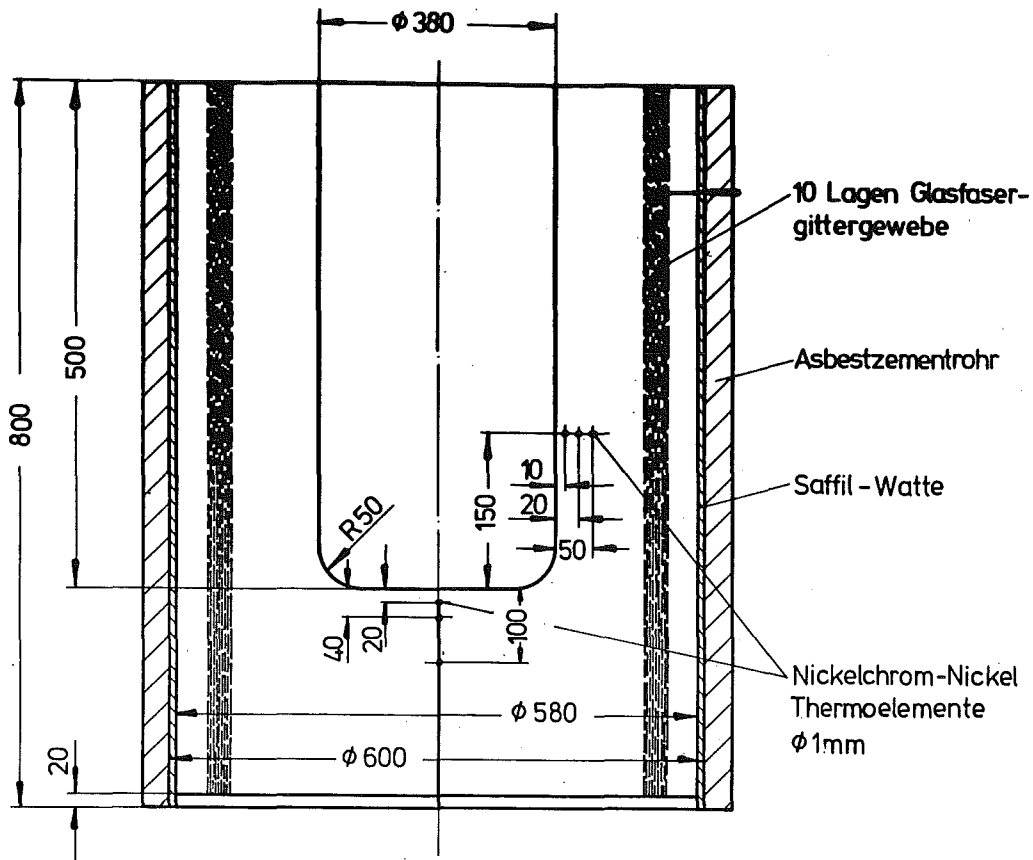


Abb. 4246-3

PNS 4246	BETONTIEGEL - VERSUCHE MIT THERMITSCHMELZEN TIEGEL B - MASS-SKIZZE	GFK RBT/IT
-------------	---	---------------

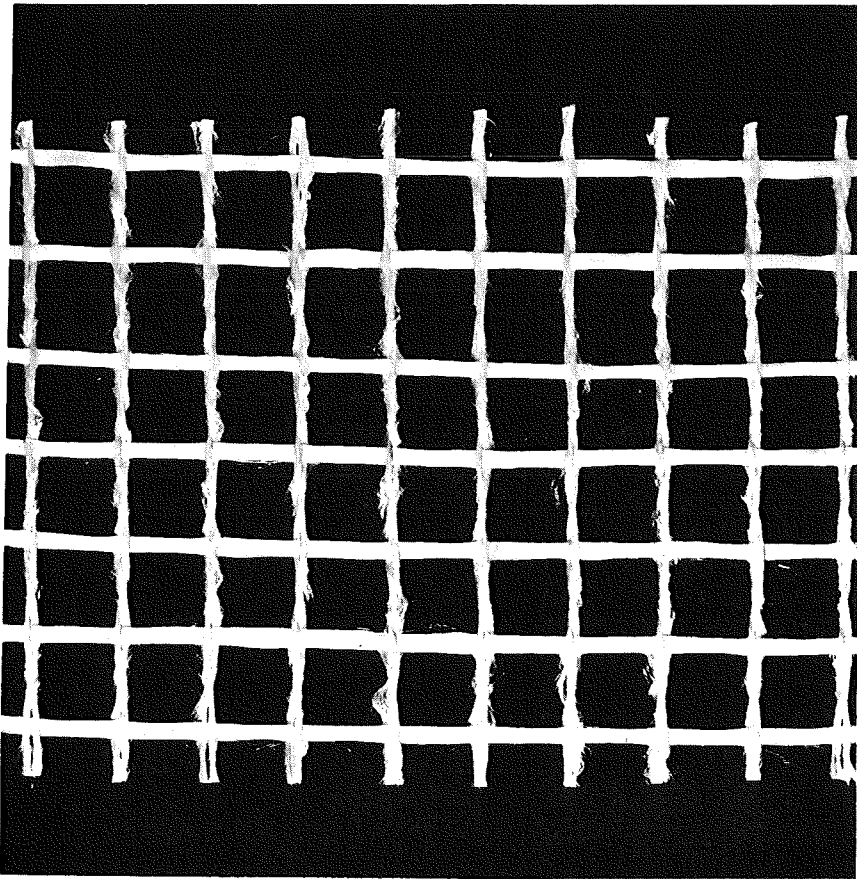
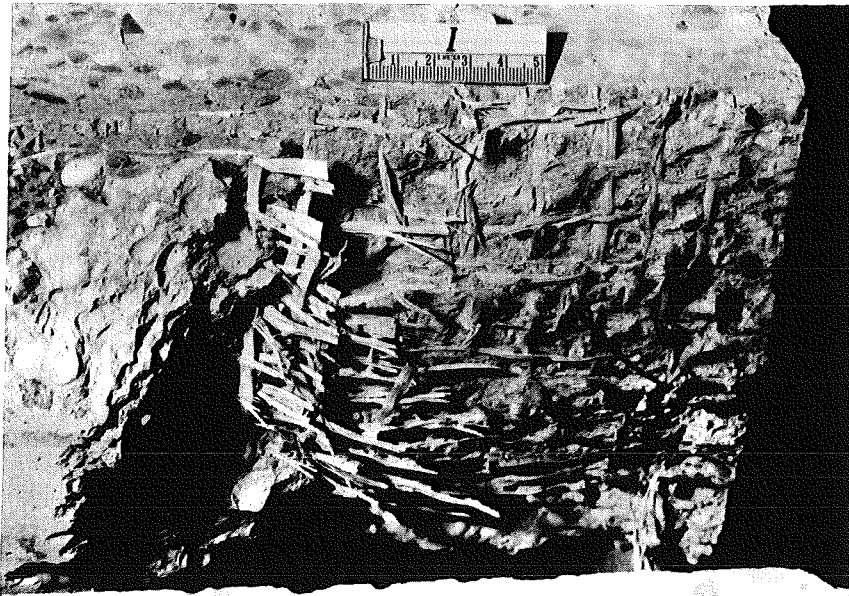


Abb. 4246-4

PNS
4246

BETONTIEGEL - VERSUCHE MIT THERMITSCHMELZEN
TIEGEL I - BODENSEGMENT MIT GLASFASERBEWEHRUNG

GFK
RBT/IT

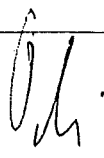

	<i>Untersuchungsergebnis</i>		<i>Proben-Nr.</i>
<i>Datum:</i> 15.9.77	<i>Auftraggeber:</i> H.Perinic	<i>Bezeichnung der Probe:</i> Thermit-Proben	
	Thermit	Thermit (Ni,Cr)	
SiO ₂	2,50 %	0,14 %	
Fe (gesamt)	59,75 %	44,70 %	
Al	14,38 %	18,81 %	
Cr	-	16,11 %	
Ni	-	4,15 %	
Leopoldshafen, den 23.9.77			
	KERNREAKTOR Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. b. H. Karlsruhe		FR2 RE/B

Abb. 4246-5

PNS 4246	BETONTIEGEL - VERSUCHE MIT THERMITSCHELMELZEN CHEMISCHE ANALYSE DER THERMITMISCHUNG IM AUSGANGSZUSTAND	GFK RBT/IT
-------------	--	---------------

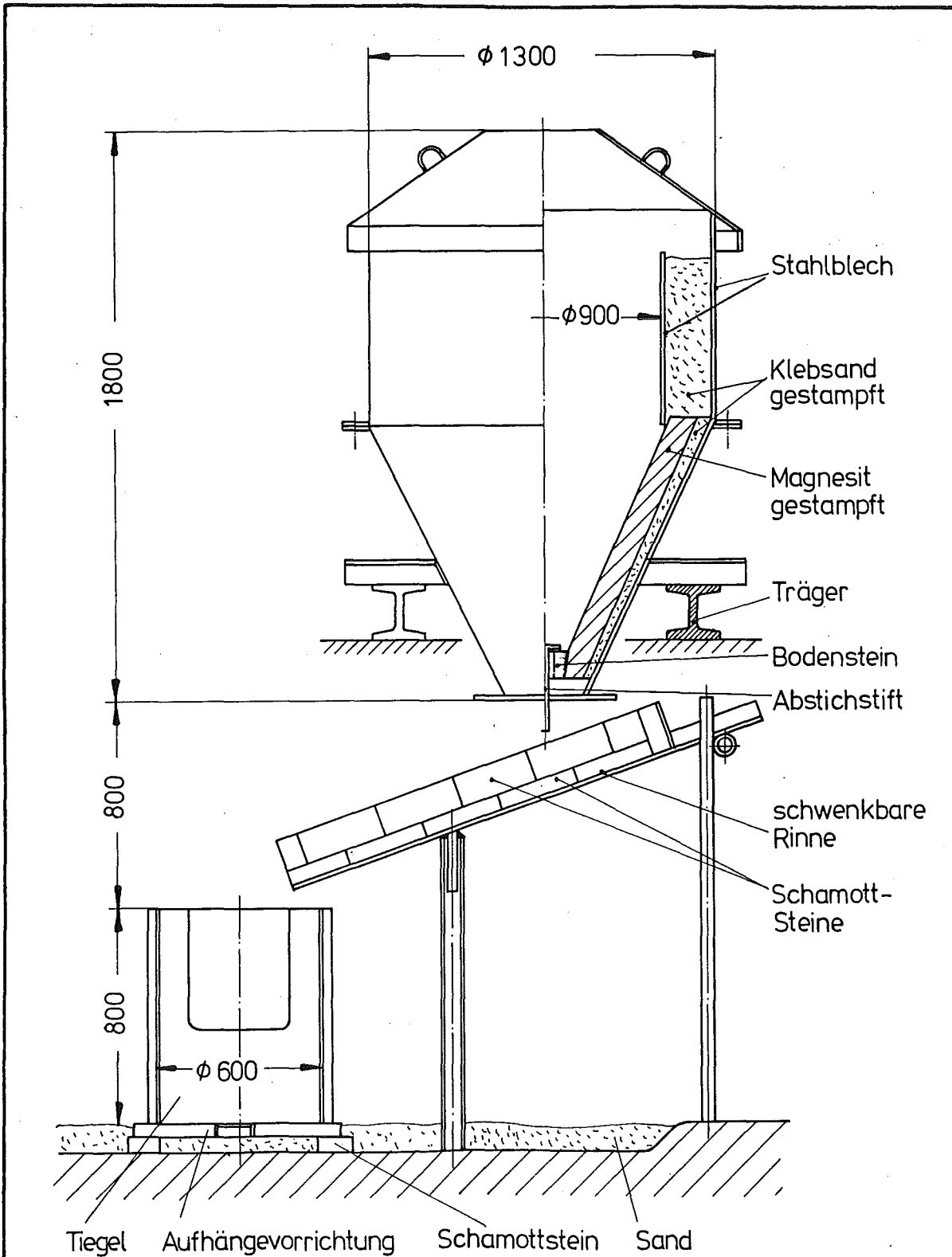


Abb. 4246-6

PNS 4246	BETONTIEGEL - VERSUCHE MIT THERMITSCHMELZEN SCHMELZANLAGE, PRINZIPSKIZZE	GFK RBT/IT
-------------	---	---------------

Tiegel	A	B	C	D	E	F	G	H	I
Thermoelemente im Beton axial	3 *	3	3	3	3	3	3	3	3
Thermoelemente im Beton radial	3 *	3	3	3	3	3	3	3	3
Thermoelemente an der Bewehrung	--	--	3	--	--	--	--	--	--
Eintauchthermoelemente	--	--	--	1	5	--	3	--	4
Pyrometer	2	2	2	2	2	2	2	1	1
Dampfdetektor	--	--	--	--	--	1	--	--	--
Körperschall-Aufnehmer	--	--	1	1	1	--	1	1	1
Gasprobe	--	1	1	1	1	1	1	1	--
Gasthermoelemente	--	2	2	2	2	2	2	2	--
Kinokamera	2	2	2	2	2	2	1	2	2
Fernsehkamera	--	--	1	1	--	--	--	--	--
Fotokamera	1	1	1	1	1	1	1	1	1

* wegen Durchschmelzen der Thermoelementleitungen ausgefallen

Abb. 4246-7

PNS

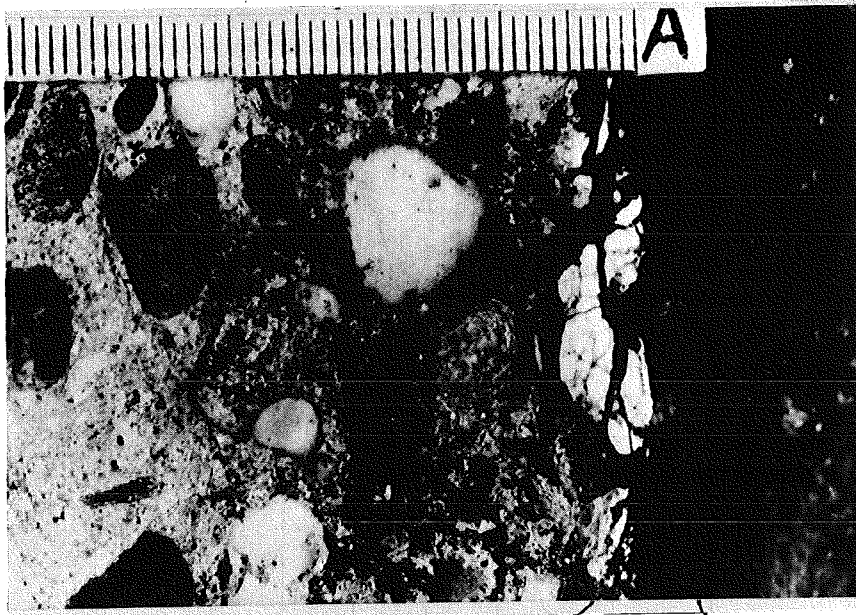
4246

BETONTIEGEL - VERSUCHE MIT THERMITSCHMELZEN

TABELLARISCHE ÜBERSICHT DER MESS- UND ÜBERWACHUNGSGERÄTE

GFK

RBT/IT



ANTHARZITFARBENE SCHMELZSCHICHT

REGULUSSPALT

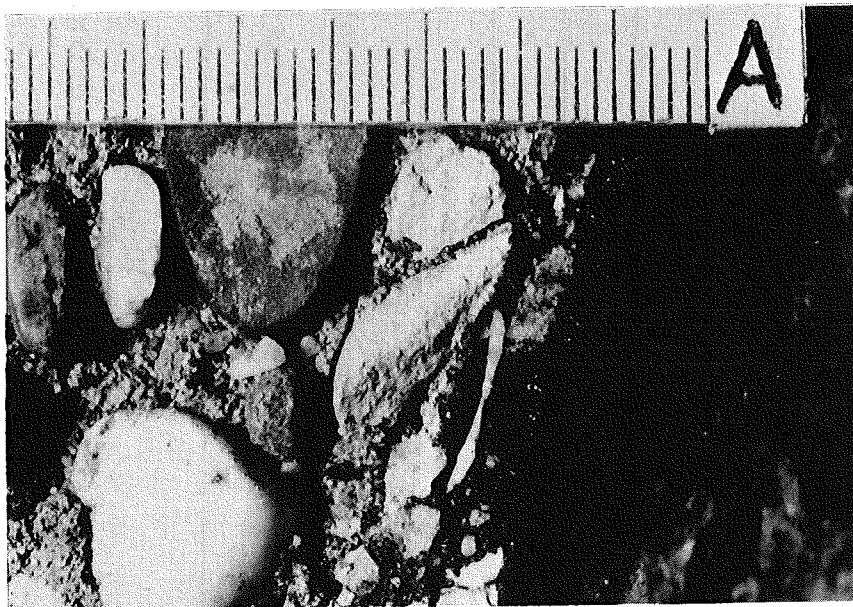


Abb. 4246-8

PNS
4246

BETONTIEGEL - VERSUCHE MIT THERMITSCHMELZEN
REGULUSSPALT, ANTHRAZITFARBENE SCHMELZSCHICHT

GFK
RBT/IT

Tiegel	max. Eindringtiefe der Schmelze		Verhältnis axial : radial	max. Stärke der dehydrierten Betonschicht		max. Stärke der zum Teil dehydrierten Betonschicht	
	axial / mm /	radial / mm /		axial / mm /	radial / mm /	axial / mm /	radial / mm /
A	42	52	0,81	48	35	56	>Tiegelrand
B	52	27	1,93	50	60	63	>Tiegelrand
C	59	53	1,11	57	45	132	>Tiegelrand
D	48	23	2,08	35	70	70	>Tiegelrand
E	78	23	3,39	50	40	74	35
F	39	38	1,03	60	50	>Tiegelrand	>Tiegelrand
G	45 [*]	45 [*]	1,00	25	40	30	35
H	61	36	1,70	37	51	52	44
I	5	12	0,42	42	43	62	>Tiegelrand

*) gemessen in Richtung 45° von der Mittellinie

Abb. 4246-9

PNS
4246

BETONTIEGEL - VERSUCHE MIT THERMITSCHMELZEN
EINDRINGTIEFEN DER SCHMELZE, DEHYDRIERTE ZONEN

GFK
RBT/IT

Tiegel	Metall- Regulus kg	axial		radial		Übergangsgebiet		Gesamtvolumen		Gesamtmasse (Beton $\rho = 2,4$)	
		geschmol- zen dm ³	dehy- driert dm ³	geschmol- zen dm ³	dehy- driert dm ³	geschmol- zen dm ³	dehy- driert dm ³	geschmol- zen dm ³	dehy- driert dm ³	geschmol- zen kg	dehy- driert kg
A	147,80	3,11	4,73	14,01	18,12	0,70	3,30	17,82	26,15	42,77	62,76
B	81,74	3,60	4,73	10,78	21,47	0,58	4,12	14,96	30,32	35,90	72,77
C	58,90	3,32	5,25	13,91	19,93	1,12	2,61	18,35	27,79	44,04	66,70
D	73,93	3,29	4,21	9,02	24,96	0,62	2,54	12,93	31,71	31,03	76,10
E	47,00	5,67	6,23	4,60	14,85	0,57	1,54	10,84	22,62	26,02	54,29
F	80,69	3,09	3,79	11,68	17,98	1,05	2,76	15,82	24,53	37,97	58,87
G	45,70	3,40	3,18	5,96	11,86	--	--	9,36	15,04	22,46	36,10
H	41,90	3,02	3,49	10,56	17,51	0,59	0,99	14,17	21,99	34,01	52,78
I	81,50*	0,196	4,23	2,30	15,44	0,33	0,61	2,83	20,28	6,78	48,67

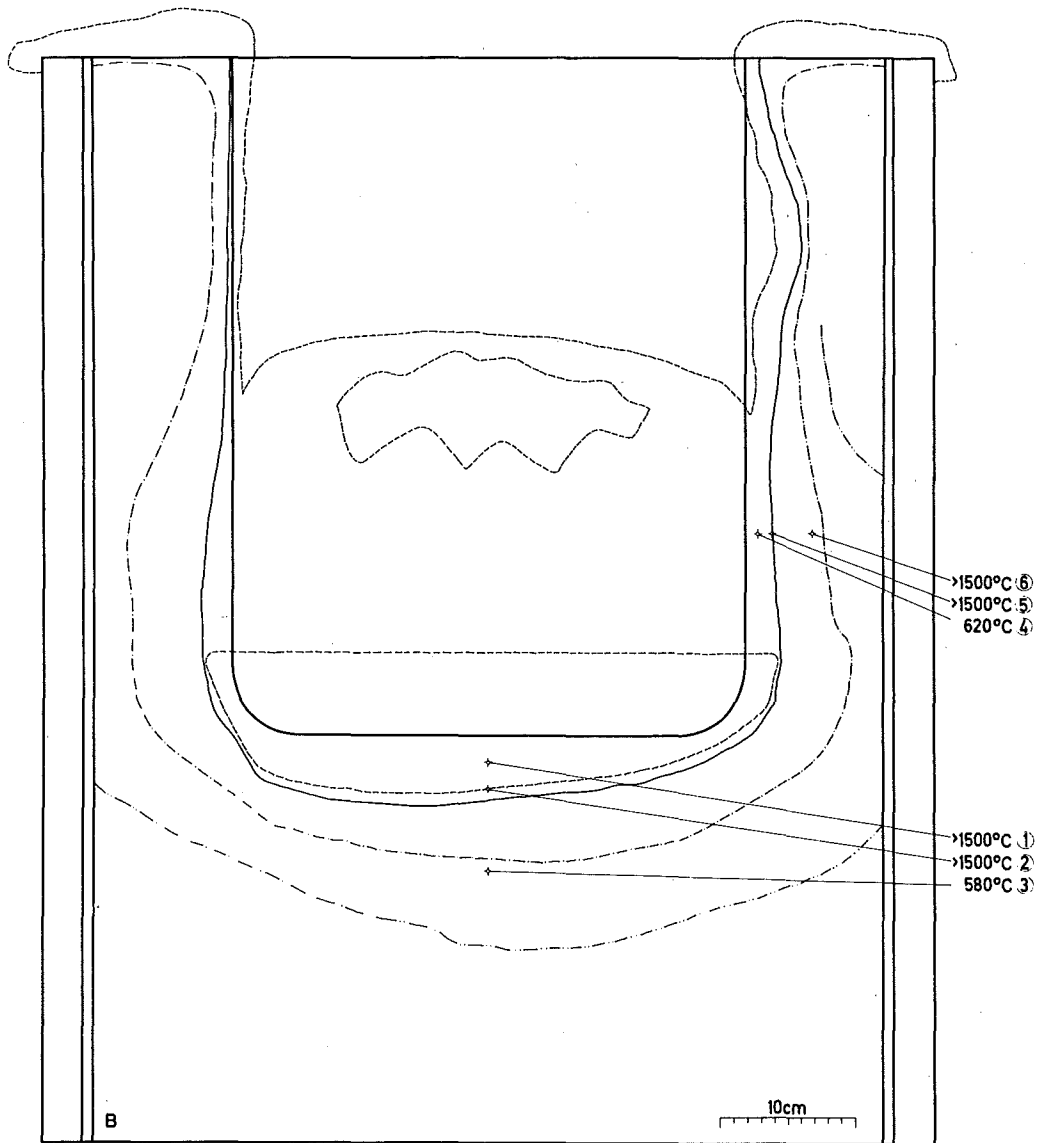
* Oxid $\rho = 2,92 \text{ g/cm}^3$

Abb. 4246-10

PNS
4246

BETONTIEGEL - VERSUCHE MIT THERMITSCHMELZEN
GESCHMOLZENER UND DEHYDRIRTER BETON: VOLUMEN UND MASSEN

GFK
RBT/IT



- Ursprüngliche Kontur
 - - - Schmelzfront
 - Konturen der erstarrten Schmelze
 - - - Kontur der dehydrierten Zone
 - · - Kontur der z.T. dehydrierten Zone
- TE in die Schnittebene eingezeichnet

Abb. 4246-11

PNS 4246	BETONTIEGEL - VERSUCHE MIT THERMITSCHMELZEN! TIEGEL B - SKIZZE DES TIEGELSCHNITTS	GFK RBT/IT
-------------	--	---------------

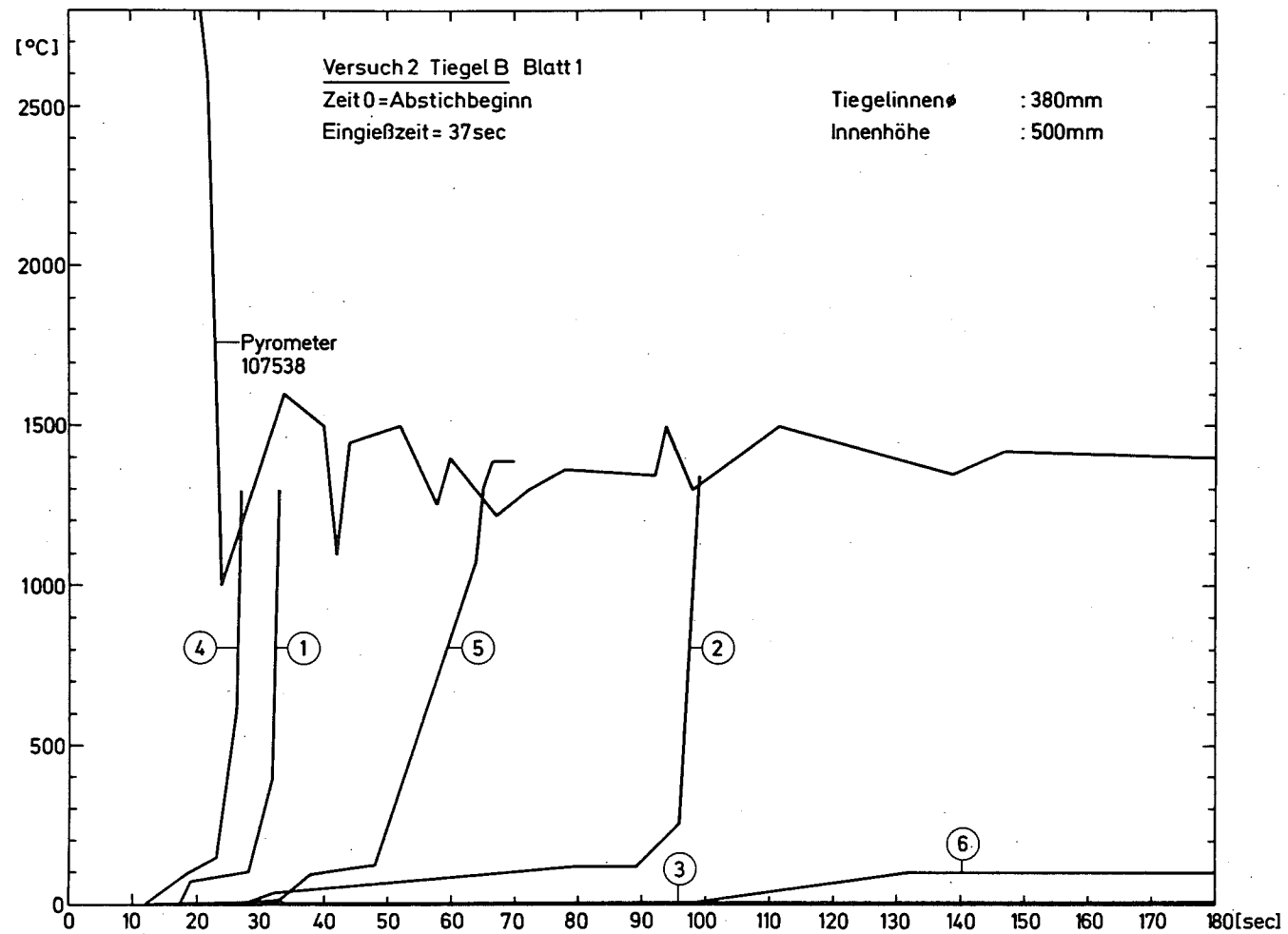


Abb. 4246-12

PNS
4246

BETONTIEGELVERSUCHE MIT THERMITSCHMELZEN
 TIEGEL B - TEMPERATURVERLÄUFE I

GFK
RBT/IT

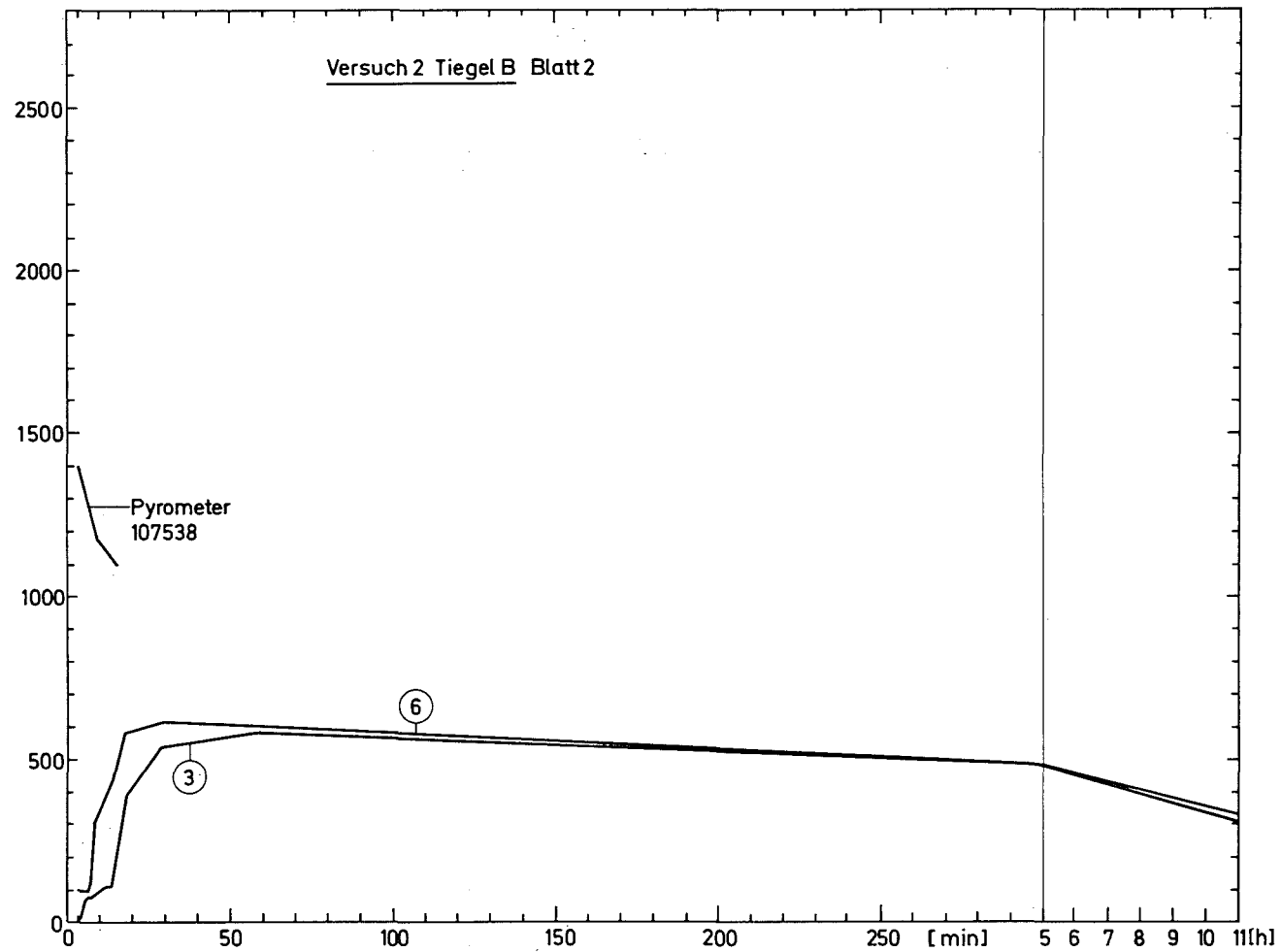


Abb. 4246-13

PNS
4246

BETONTIEGELVERSUCHE MIT THERMITSCHMELZEN
TIEGEL B - TEMPERATURVERLÄUFE II

GFK
RBT/IT

Geschw. d. 100°C-Isothermen

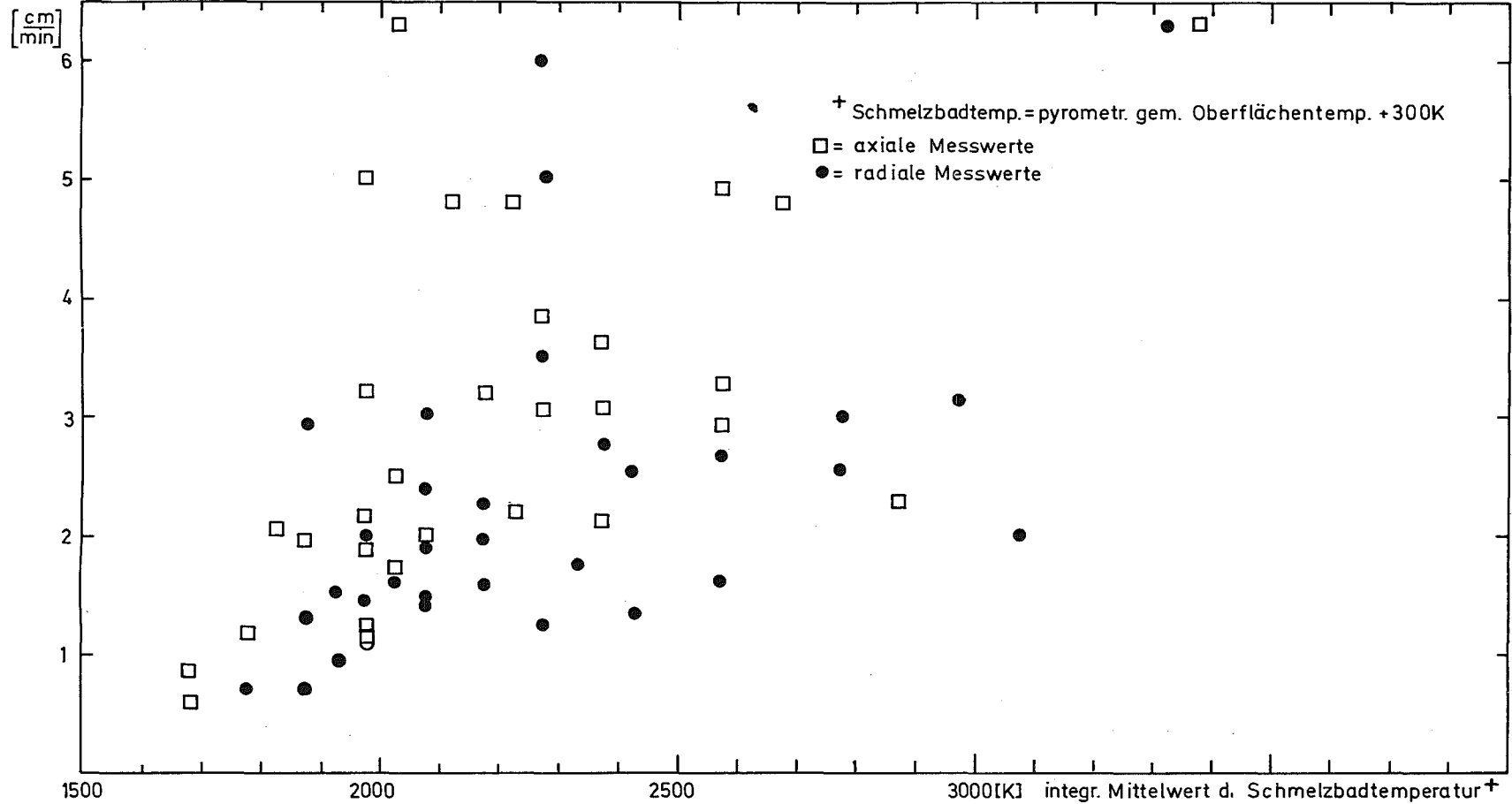
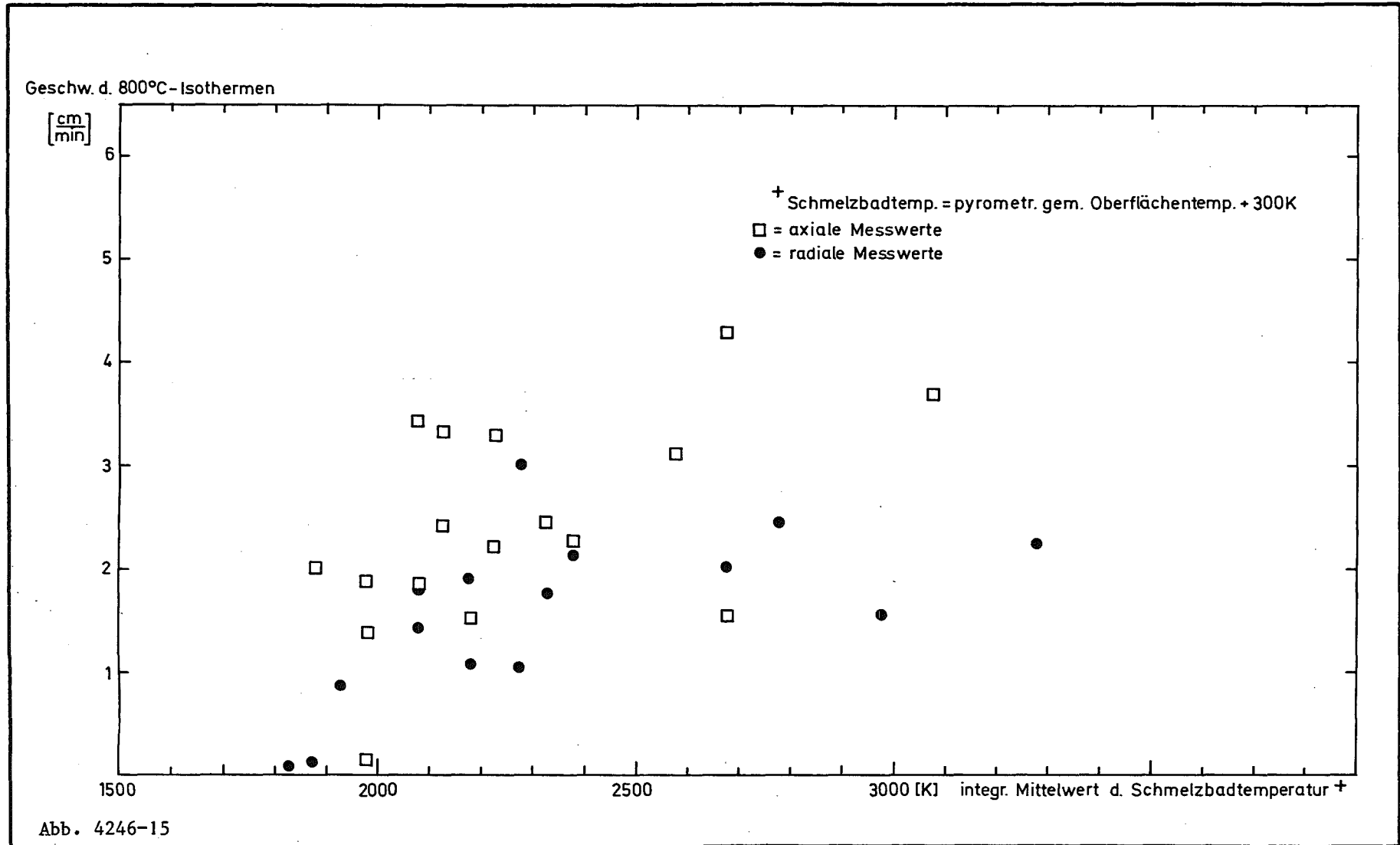


Abb. 4246-14

PNS
4246

BETONTIEGELVERSUCHE MIT THERMITSCHMELZEN
GESCHWINDIGKEIT DER 100°C-ISOTHERME IM BETON

GFK
RBT/IT



PNS
4246

BETONTIEGELVERSUCHE MIT THERMITSCHMELZEN
 GESCHWINDIGKEIT DER 800°C-ISOTHERME IM BETON

GFK
RBT/IT

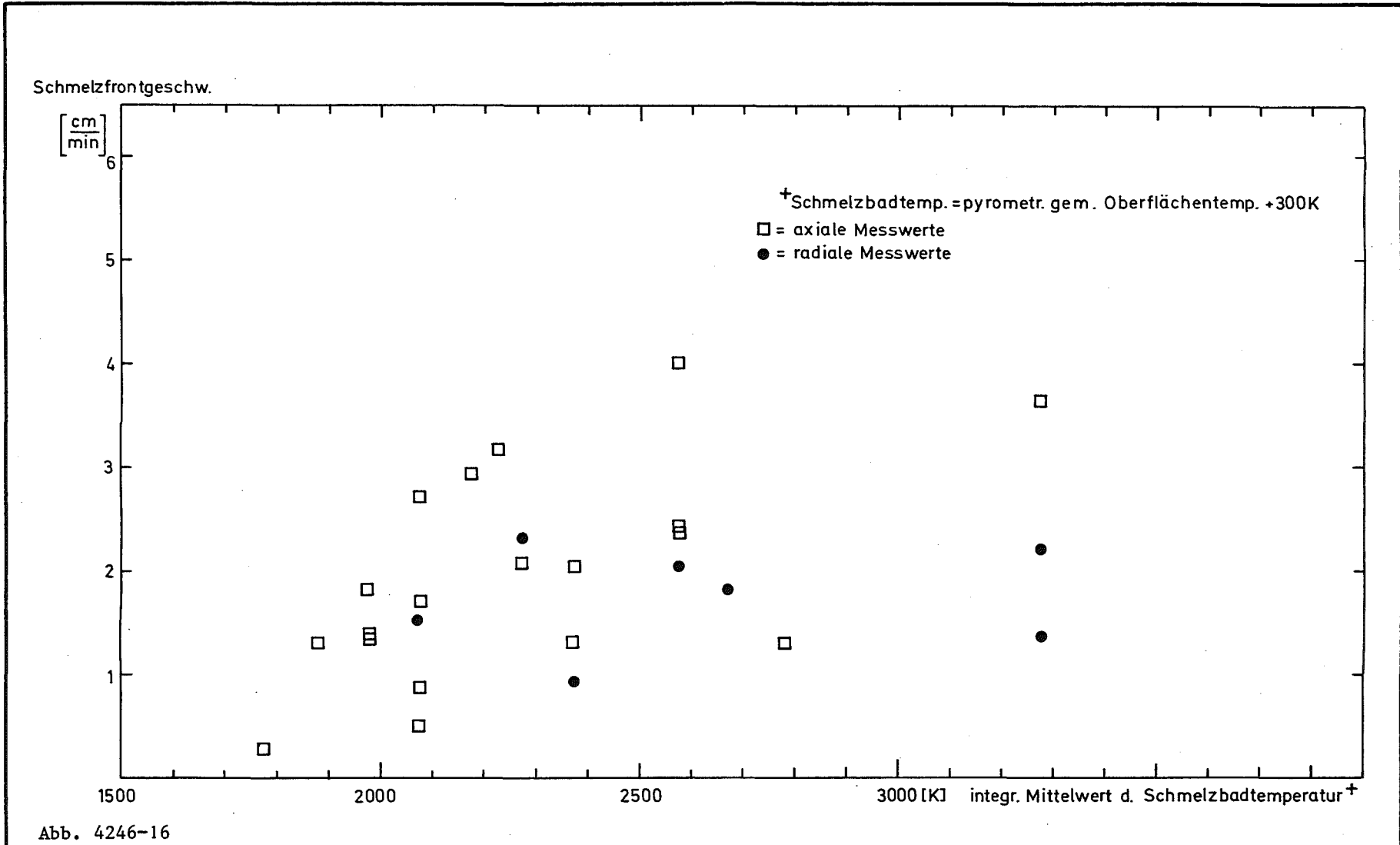


Abb. 4246-16

PNS 4246	BETONTIEGELVERSUCHE MIT THERMITSCHMELZEN GESCHWINDIGKEIT DER SCHMELZFRONT IM BETON	GFK RBT/IT
-------------	---	---------------

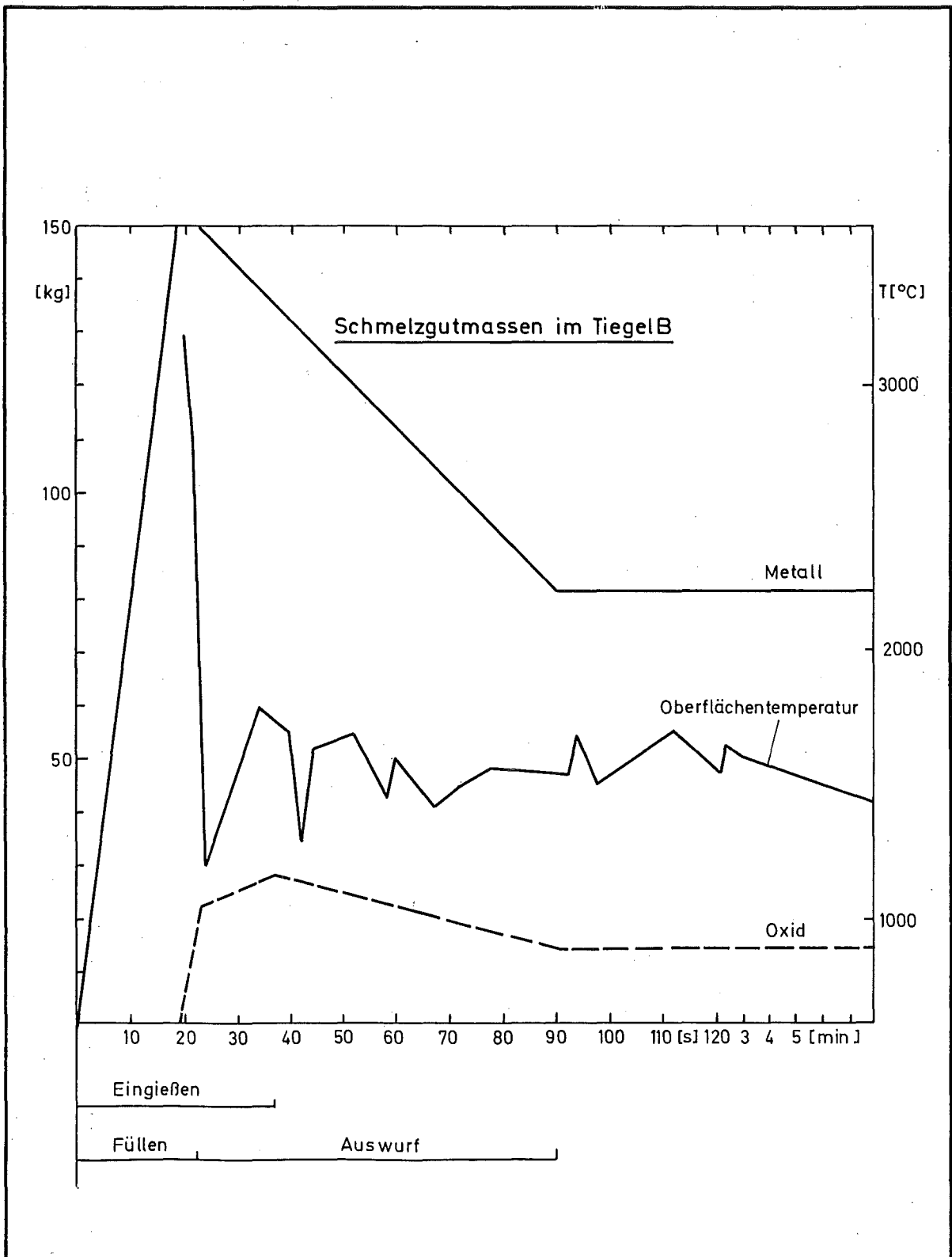


Abb. 4246-17

PNS 4246	BETONTIEGELVERSUCHE MIT THERMITSCHEMELZEN SCHMELZGUTMASSEN IM TIEGEL B	GFK RBT/IT
-------------	---	---------------

4247 Hydrodynamische und thermische Modelle zur Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton

(H. Alsmeyer, W. B. Murfin, M. Reimann, IRB)

1. Problemstellung

Bei einem Kühlmittelverluststörfall eines Leichtwasserreaktors wird die Nachzerfallswärme durch die Kernnotkühlung abgeführt. Bei einem hypothetischen Versagen dieser Kühlung würde der Reaktorkern niederschmelzen und nach Durchschmelzen des Druckbehälters auf das Betonfundament des Sicherheitsbehälters fließen.

Um die Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton quantitativ zu erfassen, ist es notwendig,

- die thermo- und fluiddynamischen Vorgänge in der Schmelze,
- die stoffliche Wechselwirkung in der Schmelze,
- den Wärmeübergang von der Schmelze zum Beton und
- die von der übertragenen Wärmemenge abhängige Betonzerstörung

zu untersuchen. Dies sind im einzelnen schon recht komplexe Vorgänge, die sich zudem noch stark gegenseitig beeinflussen. Deshalb ist ein stufenweises Vorgehen und eine gute Abstimmung zwischen Modellentwicklung und Versuchsprogrammen erforderlich. Dabei steht die Notwendigkeit größerer Versuche mit metallischen und oxidischen Schmelzen auf Beton (Simulationsversuche PNS 4246) außer Zweifel. Da jedoch solche Versuche relativ aufwendig sind, ist es nicht möglich, das weite Parameterfeld der möglichen Zustände mit Simulationsversuchen abzudecken.

Deshalb ergibt sich die Notwendigkeit, nach einer ersten Identifikation der Vorgänge in Simulationsversuchen, Einzelphänomene in überschaubaren, leicht handhabbaren Modellexperimenten zu untersuchen. Nach der Konzipierung von theoretischen Modellen für diese Einzelphänomene werden Gültigkeit und Grenzen der Modelle in quantitativen Modellversuchen überprüft. Die überprüften, theoretischen Modelle werden in Rechencodes zusammengefaßt. Mit diesen Rechen-codes kann das sinnvolle Zusammenwirken der Modelle und die Übertragbarkeit der Modellvorstellungen auf den Kernschmelzenfall durch Nach- bzw. Vorausberechnung von Simulationsversuchen geprüft werden.

In den folgenden Abschnitten werden die im Berichtszeitraum durchgeführten Modell- und Rechencodeentwicklungen beschrieben und einige Ergebnisse diskutiert.

2. Ergebnisse des Betonzerstörungsmodells und des Filmmodells

Die bisherigen Ergebnisse der Modellentwicklung /1, 2/ wurden in zwei Rechenprogrammen zusammengefaßt. Mit dem Programm BEZENT kann die Betonzerstörungsenthalpie in Abhängigkeit von der Betonzusammensetzung berechnet werden. Das Programm FILM beschreibt zur Zeit die Wechselwirkung einer heißen Schmelze mit einer horizontalen Betonfläche, wobei die Existenz eines durchgehenden Dampffilmes zwischen Schmelze und Beton vorausgesetzt wird und die Schmelze zunächst als isotherm angesehen wird.

Das quasistationäre Betonzerstörungsmodell wird allgemein für n Schichten entwickelt, wobei an den Grenzen zwischen den Schichten durch chemische oder physikalische Umwandlungsprozesse Wärme verbraucht wird. Der Gewichtsanteil der die Schicht i durchströmenden Gase sei ψ_{gi} und die Porosität des Betons ϕ_{gi} . Mit der Lösung der quasistationären Energiegleichung folgt für die Abschmelzgeschwindigkeit:

$$\dot{\zeta} = \frac{Q/A}{\rho_b \Delta H_b} \quad (1)$$

mit der Betonzerstörungsenthalpie

$$\Delta H_b = (1 - \psi_{go}) \rho_b h_{do} + (\rho c)_{\text{eff } o} (T_{do} - T_{oo}) \quad (2)$$

wobei

$$(\rho c)_{\text{eff } i} = \rho_{si} c_{si} (1 - \phi_{gi}) + \rho_{gi} c_{gi} \phi_{gi} \left(1 + \frac{\psi_{gi} \rho_b}{\phi_{gi} \rho_{gi}}\right); \quad (3)$$

$$k_{\text{eff } i} = k_{si} (1 - \phi_{gi}) + k_{gi} \phi_{gi}$$

ist und die Temperaturdifferenz $T_{do} - T_{oo}$ mit der Rekursionsformel

$$T_{di-1} - T_{oi-1} = T_{di-1} - T_{di} + \frac{\psi_{di} \rho_b h_{di} + (T_{di} - T_{oi}) (\rho c)_{\text{eff } i}}{(\rho c)_{\text{eff } i-1}} \quad (4)$$

berechnet werden kann.

Das Rechenprogramm BEZENT behandelt die thermische Zersetzung von Betonarten mit den Komponenten Ca(OH)_2 , CaCO_3 , SiO_2 und freiem Wasser, woraus durch chemische Reaktionen im fest/flüssigen Zustand zusätzlich CaO und gegebenenfalls CaSiO_3 (Wollastonit) und als gasförmige Zersetzungsprodukte Wasserdampf und CO_2 entstehen. Es wird vereinfachend vorausgesetzt, daß die auftretenden Phasenwechsel wie auch die chemischen Zersetzungen und Umsetzungen bei definierten Temperaturen ablaufen. Tabelle 1 enthält die bei den entsprechenden Temperaturen auftretenden Reaktionen und die entsprechenden Reaktionswärmen. Weiter sind in dieser Tabelle die ausgewählten typischen Zusammensetzungen für silikatischen und karbonischen Beton angegeben. Die exotherme Bildung von Wollastonit kann zusätzlich zugelassen werden.

Der Enthalpieverlauf im Beton in Abhängigkeit von der Temperatur kann für die Schicht j durch

$$H_j = \sum_{i=n-1}^j \left\{ \frac{(\rho c)_{\text{eff } i}}{\rho_b} (T_i - T_{i+1}) + \Delta H_i \right\} \quad (5)$$

berechnet werden. Der erste Term in der Klammer charakterisiert die Aufheizung des Betons und der zweite Term die auf die Betonmasse bezogene chemische Reaktionswärme. Daraus ergibt sich ein stufenförmiges Enthalpieprofil. Andererseits kann der Enthalpieverlauf aus den Messungen der spezifischen Wärmekapazität von Peehs /3, 4/ durch

$$H(T) = \int_{T_u}^T c_p(T) dT \quad (6)$$

ermittelt werden. Die Messungen wurden bis zu Temperaturen von 1100°C durchgeführt. Aus den Messungen geht hervor, daß die chemischen Reaktionen jeweils in einem Temperaturintervall erfolgen. Ein Vergleich zwischen gemessenen und berechneten Enthalpieverläufen wird in Bild 1 für silikatischen Beton und in Bild 2 für karbonatischen Beton durchgeführt. In diese Bilder sind auch die aus Plasmaversuchen ermittelten integralen Meßwerte der Zerstörungsenthalpie /3/ eingetragen. Für silikatischen Beton ist die Übereinstimmung zwischen diesem Meßwert und dem (ohne Wollastonitbildung) berechneten Wert gut, wobei das für trockenen Beton berechnete Enthalpieprofil durch die ausgewerteten c_p -Messungen noch gestützt wird. Für karbonatischen Beton stimmen die ausgewerteten c_p -Messungen /4/ ebenfalls mit dem berechneten Profil für trockenen Beton überein, der integrale Meßwert der Betonzerstörungsenthalpie liegt aber für

diese Betonart drastisch unter dem berechneten Wert. Die hohe Differenz zwischen Rechnung und integralem Meßwert ist auch nicht durch die exotherme Wollastonitbildung erklärbar, die ebenfalls bei den Rechnungen berücksichtigt werden konnte. Weitere experimentelle Untersuchungen von karbonatischem Beton zur Interpretation dieser Diskrepanz erscheinen notwendig.

Aus dem Filmmodell folgt für den Wärmeübergang von einer heißen Schmelze zu einer horizontalen, abschmelzenden Betonoberfläche

$$\text{Nu}_{\text{cond}} = 0.431 \left\{ \frac{\text{Gr Pr Ste}}{\psi_{\text{go}}} \frac{1}{1 + \text{Nu}_{\text{cond}} / \text{Nu}_{\text{rad}}} \right\}^{1/4} \quad (7)$$

mit

$$\left. \begin{aligned} \text{Nu} &= \frac{Q/A \cdot a}{k_g (T_1 - T_{\text{do}})} ; \\ \text{Gr} &= \frac{g \rho_g (\rho_l - \rho_g) a^3}{\mu_g^2} ; \\ \text{Pr} \cdot \text{Ste} &= \frac{\mu_g \Delta H_b}{k_g (T_1 - T_{\text{do}})} . \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

Im Rechenprogramm FILM wird die Betonzerstörungsenthalpie als Eingabeparameter gehandhabt. Das Programm ermöglicht die Berechnung der Betonzerstörungsgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Schmelzbadtemperatur; es ist besonders geeignet, um Parameterstudien durchzuführen. So kann zum Beispiel der Einfluß der Betonzerstörungsenthalpie und des Gewichtsanteils der gasförmigen Zersetzungsprodukte auf die Zersetzungsgeschwindigkeit untersucht werden. Da die Übereinstimmung zwischen Meßwerten und berechneten Werten für die Betonzerstörungsenthalpie von silikatischem Beton gut ist, kann die Berechnung der Wechselwirkung von silikatischem Beton, dessen Zerstörungsenthalpie $H_{\text{silik.}} = 2075 \text{ J/g}$ ist, mit einer Stahlschmelze als Referenzbeispiel aufgefaßt werden und mit den Ergebnissen für karbonatischen Beton verglichen werden. Als Zerstörungsenthalpie wird dafür zum einen der Meßwert von Peehs /3/, $H_{\text{karb.1}} = 1445 \text{ J/g}$, und zum anderen der Wert der BEZENT-Rechnungen, $H_{\text{karb.2}} = 2591 \text{ J/g}$, verwendet. Die Ergebnisse der FILM-Berechnungen sind in Bild 3 wiedergegeben. Im oberen Teil des Bildes ist der spezifische Gasmassenstrom und im unteren Teil die Zersetzungsgeschwindigkeit über der Schmelzentemperatur aufgetragen. Man erkennt, daß durch den erhöhten Gewichtsanteil der gasförmigen Zersetzungsprodukte bei

karbonatischem Beton ein dickerer Gasfilm ausgebildet wird, der den Wärmeübergang verschlechtert. So ist trotz der geringeren Zerstörungsenthalpie $H_{\text{karb.1}}$ die Betonzerstörungsgeschwindigkeit nahezu die gleiche wie bei silikatischem Beton, wobei jedoch etwa der dreifache Gasmassenstrom freigesetzt wird. Bei Verwendung von $H_{\text{karb.2}}$ folgt im Vergleich mit silikatischem Beton eine geringere Zersetzungsgeschwindigkeit, der freigesetzte Gasmassenstrom ist aber immer noch wesentlich höher als bei silikatischem Beton.

3. Entwicklung des Rechencodes WECHSL

Der Rechencode WECHSL baut auf dem Code INTER /5/ auf, der in den Sandia Laboratories entwickelt wurde. Mit diesem Code kann das zeitabhängige Verhalten einer Schmelze und das Fortschreiten der Betonzerstörungfront berechnet werden. Als Ausgangsgeometrien können Halbkugelsymmetrie und Zylinder mit flachem oder halbkugelförmigen Boden gewählt werden.

Der Wärmeübergang von der Schmelze an den Beton wird wahlweise durch eine empirische Wärmeübergangsbeziehung oder durch das Filmmodell bestimmt. Die Schmelze liegt in zwei Schichten vor, einer metallischen und einer oxidischen Komponente. Jede Schicht wird als homogen und isotherm mit Ausnahme einer dünnen Grenzschicht betrachtet. Die Wärmeübertragung zwischen den Schichten findet in diesen Grenzschichten statt, deren Dicken durch die Heftigkeit der hydrodynamischen Vorgänge in der Schmelze festgelegt werden. Für die Grenzschichtdicken werden im Code WECHSL empirische Beziehungen verwendet. Der schematische Temperaturverlauf in der Schmelze wird in Bild 4 dargestellt. Weiter wird das Abkühlen der Schmelze durch Abstrahlung von der Schmelzbadoberfläche und durch den Energietransport des Gasstromes berücksichtigt.

Die Bewegungen von Materialien werden schematisch in Bild 5 dargestellt. Es werden z. B. durch die Reaktion von Wasserdampf und Kohlendioxid mit der metallischen Komponente der Schmelze Metalloxide gebildet, die in die oxidische Komponente übergehen. Die Oxidschicht wird durch die festen und flüssigen Zersetzungsprodukte des Betons weiter verstärkt.

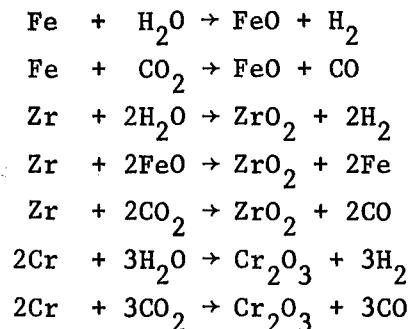
Die Wärmezufuhr in eine Komponente der Schmelze setzt sich aus der inneren Wärmequelle durch die Nachzerfallswärme, dem Enthalpietransport durch einström-

mende, heiße Materialien, exothermen Reaktionen und Wärmezufuhr von der anderen Schicht der Schmelze zusammen. Durch Strahlungsverluste, Enthalpietransport durch einströmende, kältere Materialien, Energieverbrauch durch die Betonzerstörung, Wärmeabfuhr in die andere Schicht der Schmelze und endotherme Reaktionen wird Wärme aus der betrachteten Schicht abgeführt.

Für alle festen und flüssigen Materialien in der Schmelze wird angenommen, daß sie beim Austritt aus der Schicht die isotherme Zentraltemperatur der Schicht haben. Die Aufstiegs geschwindigkeit der Gasblase ist jedoch so hoch, daß die Gase nicht in thermodynamisches Gleichgewicht mit der Schicht kommen. Die Temperatur der austretenden Gase wird durch das Verhältnis von der Schicht höhe zu einer abgeschätzten "Gleichgewichtsschichthöhe" festgelegt.

Dichte, spezifische Wärmekapazität, Oberflächenspannung, Zähigkeit und Wärmeleitfähigkeit sind als temperaturabhängige Näherungsfunktionen in den Code eingebaut. Die Bestandteile der Schmelze sind in der oxidischen Phase UO_2 , ZrO_2 , FeO , CaO , Cr_2O_3 , SiO_2 und Al_2O_3 und in der metallischen Phase Zr , Cr , Fe und Ni .

Folgende Reaktionen werden in der Schmelze berücksichtigt:



Vereinfachend wird angenommen, daß die Reaktionsgeschwindigkeiten vernachlässigt werden können; d. h., daß die Reaktionen bis zum Erreichen des entsprechenden chemischen Gleichgewichtes ablaufen. Diese Annahme wird durch ein in /1/ abgeleitetes Diffusionsmodell gestützt, wo eine aufsteigende Wasserdampfblase in einer reinen Fe-Schmelze untersucht wurde. Es ergaben sich Steighöhen in der Größenordnung von 1 mm bis zum Erreichen des chemischen Gleichgewichtes.

Zunächst läuft immer die Zr/FeO-Thermitreaktion ab. Danach reagieren die Gase mit der metallischen Schmelze in der Reihenfolge Zr, Cr, Fe. Aus einem Richardson-Diagramm können die Partialdruckverhältnisse $p_{\text{H}_2\text{O}}/p_{\text{H}_2\text{O}}$ und $p_{\text{CO}_2}/p_{\text{CO}_2}$ entnommen werden (Tabelle 2). Solange Zirkon und Chrom in der Schmelze sind, erfolgt demnach nahezu vollständige Reduktion von Wasserdampf zu Wasserstoff bzw. von Kohlendioxid zu Kohlenmonoxid. Sind diese Komponenten aus der metallischen Schmelze verschwunden, so strömen bei der Oxidation von Eisen schon erhebliche Mengen von Wasserdampf und Kohlendioxid aus der Schmelze. Ist nur noch Nickel übrig geblieben, so kommen die Oxidationsvorgänge praktisch zum Erliegen.

Die gemittelte Dichte der Schichten wird laufend kontrolliert. Unterschreitet die Dichte der unten liegenden Schicht diejenige der oberen Schicht, so wird spontane Umschichtung angenommen.

Mit dem Rechencode WECHSL wurden die Simulationsversuche (Vorhaben 4246) nachgerechnet. Dazu wurden noch zusätzliche empirische Modelle für den relativ langen Eingießvorgang (etwa 20 sec), für den Materialauswurf und für die zusätzliche Kühlung durch die heftige Bewegung der Schmelzbadoberfläche eingebaut. Von besonderem Interesse zur Überprüfung des Rechencodes sind transiente Daten wie die zeitliche Änderung der Schmelzbadtemperatur und das Fortschreiten der Betonzerstörungsfront. Bild 6 zeigt die Ergebnisse für den Temperaturverlauf in der metallischen und der oxidischen Schicht und an der Schmelzbadoberfläche. Bild 7 gibt die Erosionstiefe über der Zeit wieder.

Der Zeitpunkt des Einsetzens von Erstarrungsvorgängen wie auch die maximale Erosionstiefe stimmen größenordnungsmäßig mit den Versuchsbeobachtungen überein.

4. Erweiterung des Filmmodells auf geneigte Wände

Zur grundlegenden Klärung der hydrodynamischen und thermischen Vorgänge bei der Zersetzung von geneigten Platten wurden Modellversuche an absublimierendem Trockeneis in Wasser durchgeführt /6/. Dabei wurden Badtemperatur und Neigungswinkel variiert. Die Badtemperatur wurde mit einem Thermostaten über die Versuchsdauer konstant gehalten. Der Volumenstrom des entweichenden Kohlendioxidgases konnte zeitabhängig mit einem Schwebekörperrotameter gemessen werden.

Aus dem gemessenen Gasstrom wurde die Wärmeübertragung vom Wasserbad an das Trockeneis berechnet, wobei die Sublimationswärme und die fühlbare Wärme bis zur Erreichung der mittleren Filmtemperatur berücksichtigt wurden.

Bei Neigungswinkeln der Trockeneisplatten von unter 30° überwiegt der Einfluß der Taylor-Helmholtz-Instabilität; das Gas strömt in Einzelblasen ab. Bei Neigungswinkeln über 30° verschwindet dieser Einfluß. Der Gasfilm strömt geschlossen entlang der Trockeneisoberfläche, wobei die Gasströmung im unteren Bereich der Platte laminar, weiter oben jedoch turbulent ist (Bild 8). Der Umschlagpunkt von laminarer zu turbulenter Strömung kann nach Herausnahme der Trockeneisplatte aus dem Wasserbad besonders deutlich gesehen werden. Im Bereich der laminaren Strömung ist die Oberfläche der Platte glatt, bei turbulenter Strömung wird der Oberfläche nach ausreichender Versuchsdauer eine Riffelung aufgeprägt. Nach Bild 9 liegt der Umschlagspunkt bei etwa 8 cm.

Das Wärmeübergangsmodell wird wieder in Analogie zum Filmsieden entwickelt (z.B. nach Hsu und Westwater, zitiert in /7/). Für den laminaren Bereich $0 < s < L_0$ folgt mit den Bezeichnungen von Bild 10

$$Nu_{lam} = 0.806 \{ Gr_{L_0} Pr Ste \sin\phi \}^{1/4} \quad (9)$$

Die laminare Grenzschicht wächst an, bis eine kritische Grenzschichtdicke erreicht wird. Dafür wird in der Literatur eine kritische Reynolds-Zahl

$$Re^+ = \frac{\rho_g w_m \delta}{\eta_g} = 100 \quad (10)$$

(δ : Filmdicke; w_m : mittlere Geschwindigkeit im Film)

angegeben. Für den Umschlag laminar/turbulent ist die maßgebliche Grashof-Zahl

$$Gr_{L_0} = 2.37 Re^{+4} \cdot \frac{1}{\sin\phi} (Pr Ste)^3 \quad (11)$$

Für den turbulenten Strömungsbereich $L_0 < s < L$ mit laminarer Unterschicht (Index g) und turbulenter Kernströmung (Index c) gilt die Beziehung

$$Nu_{turb} = \frac{1}{C} \left\{ \frac{2}{3} C \left(1 - \frac{L_0}{L}\right) + \left(C Nu_{lam}\right)^{2/3} \right\}^{3/2} - Nu_{lam}$$

$$\text{mit } C = \frac{3A}{3B+1}$$

(12)

$$\text{und } \left\{ \begin{array}{l} A = \frac{Gr_L}{Re^+} \frac{\rho_g}{\rho_c} \sin\phi \\ B = Pr Ste \left[1 + \frac{1}{2} \cdot \frac{\rho_c}{\rho_g} Re^+ f_{TP} \right] + 1, \end{array} \right. \quad (12)$$

wobei der Reibungsfaktor f_{TP} in Abhängigkeit von der Relativgeschwindigkeit der Phasentrennfläche ebenfalls in /7/ mit Werten zwischen 0.01 und 0.02 angegeben wird.

Der Vergleich zwischen theoretischen und experimentellen Ergebnissen für den Wärmeübergangskoeffizienten in Abhängigkeit vom Neigungswinkel bei einer Badtemperatur von 17°C wird im Bild 11 für eine Platte der Länge $L = 0,3$ m durchgeführt. Die berechnete Länge L_0 für den Umschlagspunkt laminar/turbulent liegt bei dieser Temperatur in guter Übereinstimmung mit den beobachteten Werten zwischen 8,8 cm ($\phi = 30^\circ$) und 7 cm ($\phi = 90^\circ$).

Literatur

- /1/ H. Alsmeyer, L. Barleon, J.N. Koster, I. Michael, U. Müller, M. Reimann;
Ein Modell zur Beschreibung der Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton, KfK 2395 (Oktober 1977).
- /2/ H. Alsmeyer, M. Reimann;
Nuclear Reactor Safety Heat Transfer, The Winter Annual Meeting of the ASME, Atlanta, Nov. 27 - Dec. 1977, p. 47 - 53.
- /3/ M. Peehs et al.;
(1977) unveröffentlicht
- /4/ M. Peehs, Kraftwerk Union AG, Erlangen;
Persönliche Mitteilung
- /5/ W.B. Murfin
A Preliminary Model for Core/Concrete Interactions, SAND 77-o37o, Sandia Laboratories, August 1977.
- /6/ B. Geißler;
Experimentelle Bestimmung von Wärmeübergangs- und Strömungsvorgängen an sublimierendem Trockeneis unter Wasser, Diplomarbeit, Institut für Reaktorbauelemente, KfK, Dez. 1977.

/7/ Jordan, D.P.:

Advances in Heat Transfer 5(1968), 55 - 128

Index i	Temperatur T_{di} K	Reaktion	Reaktionswärme h_{di} kJ/mol	Betonzusammensetzung	
				ψ_{di} silik.	karbon.
o	1573	$SiO_{2s} \rightarrow SiO_{2l}$	8.53	0.71	0.36
1	1167	$CaCO_3 \rightarrow CaO + CO_{2g}$	165.5	0.08	0.46
2	796	$Ca(OH)_2 \rightarrow CaO + H_2O_g$	99.5	0.17	0.14
3	400	$H_2O_l \rightarrow H_2O_g$	39.4	0.04	0.04

Tab. 4247-1: Reaktionen bei der Zersetzung von Beton

Partialdruckverhältnis Schmelzenkomponente	P_{H_2} / P_{H_2O}	P_{CO} / P_{CO_2}
ZrO ₂	10 ⁶	10 ⁷
Cr ₂ O ₃	100	500
FeO	1.6	6.3
NiO	0.008	0.05

Tab. 4247-2: Partialdruckverhältnisse bei chemischem Gleichgewicht

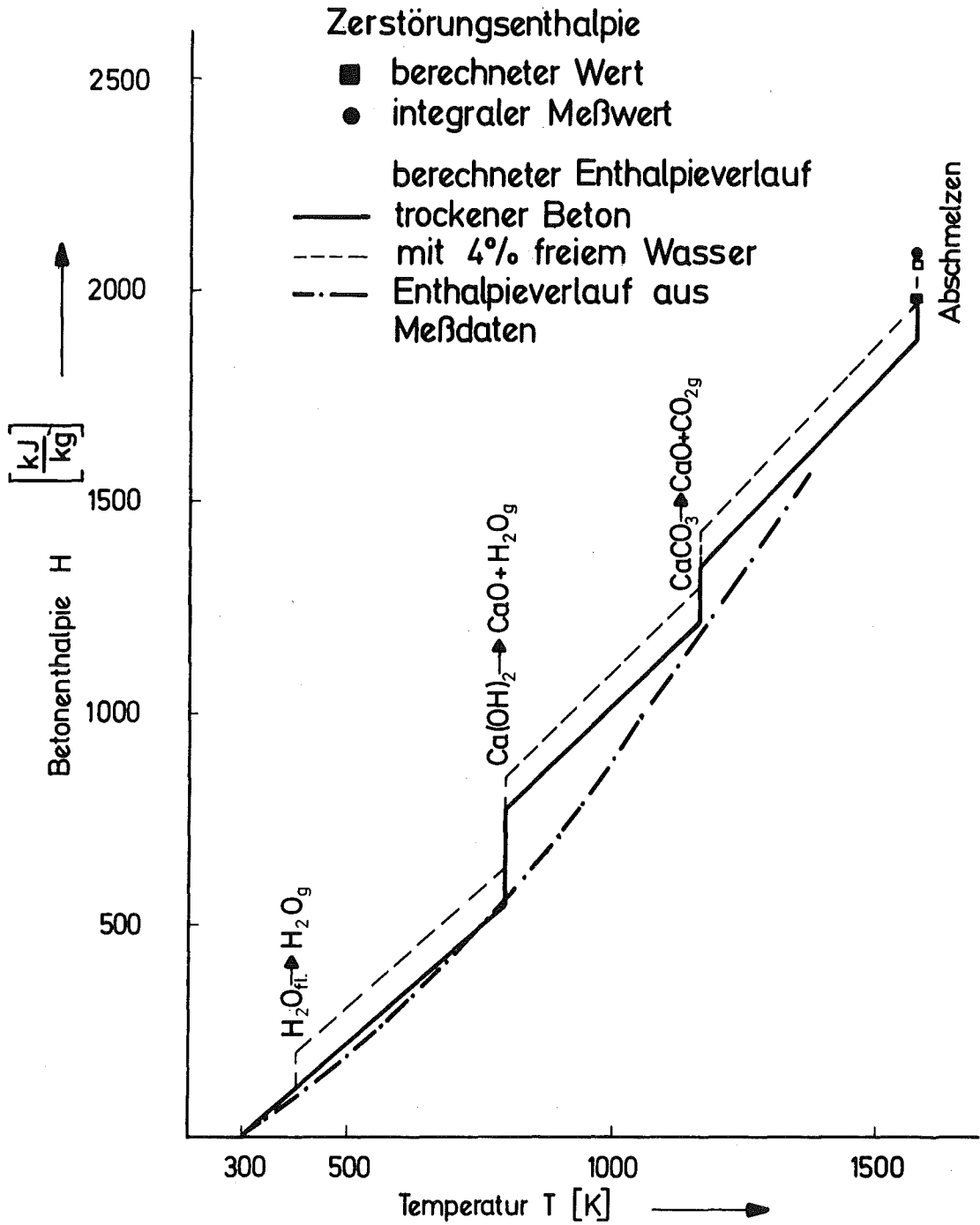


Abb. 4247 - 1: Silikatischer Beton: BetONENTHALPIE als Funktion der Temperatur.

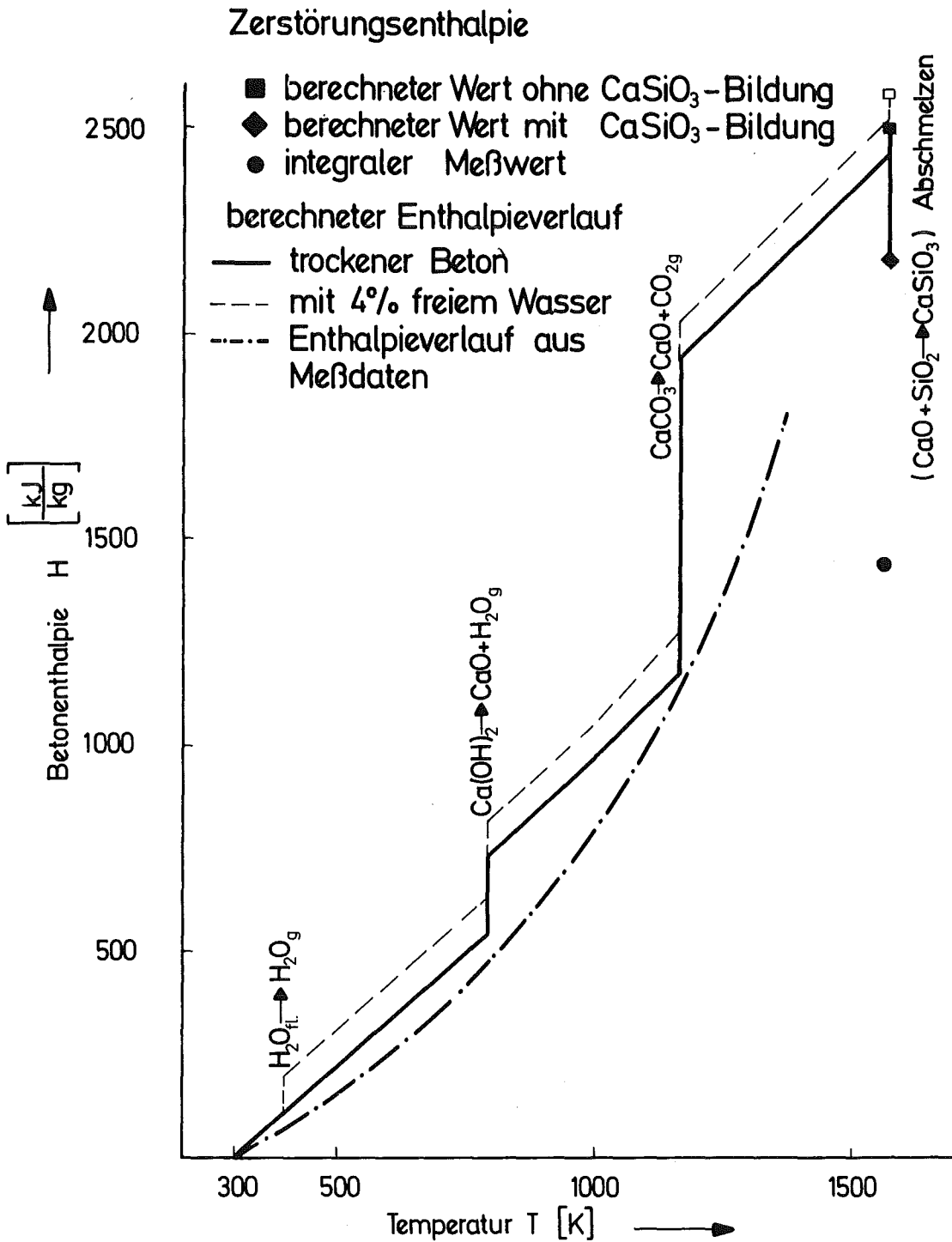


Abb. 4247- 2 : Karbonatischer Beton: Betonenthalpie als Funktion der Temperatur.

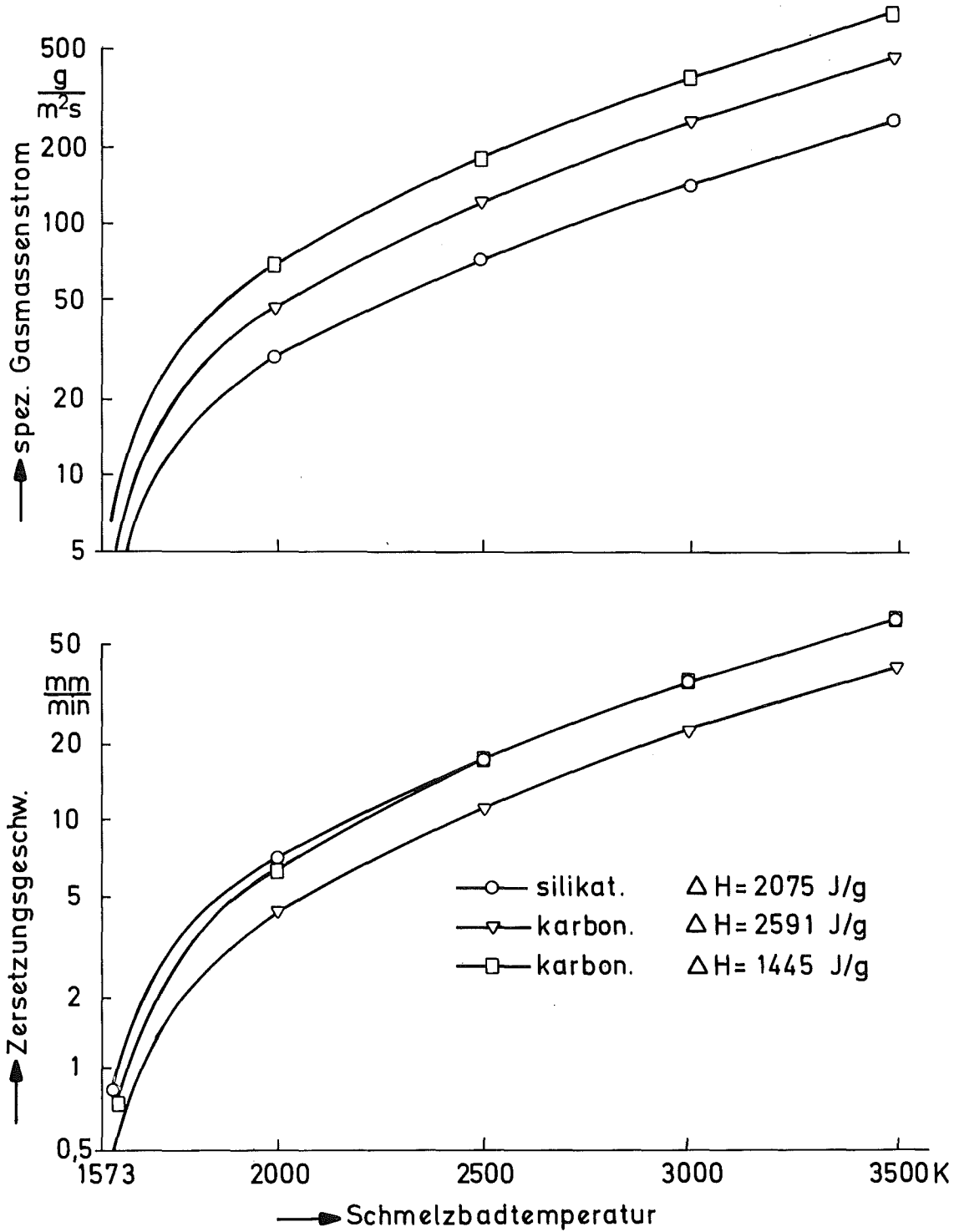


Abb. 4247 - 3 : Einfluß der Betonart auf Betonzerstörungsrate und freigesetzten Gasmassenstrom

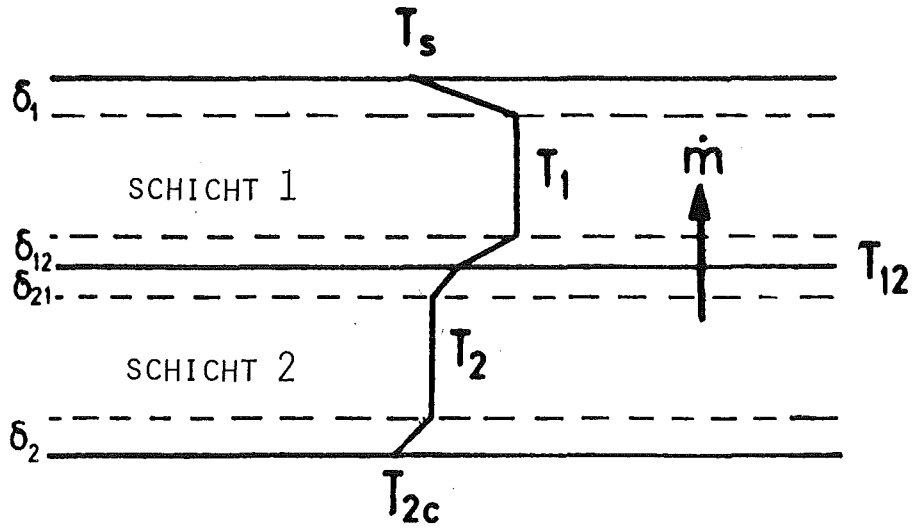


Abb. 4247 - 4: Annahmen für das Temperaturprofil im Schmelzbad für den WECHSL-Code.

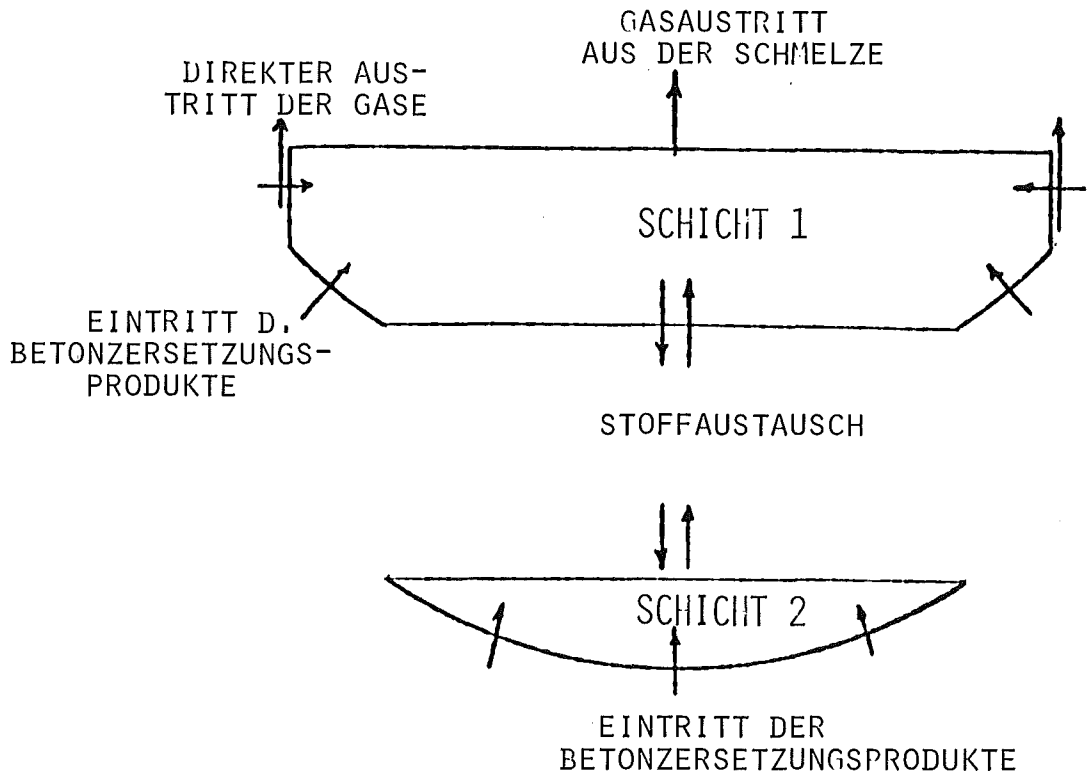


Abb. 4247 - 5 : Materialtransport im Schmelzbad.

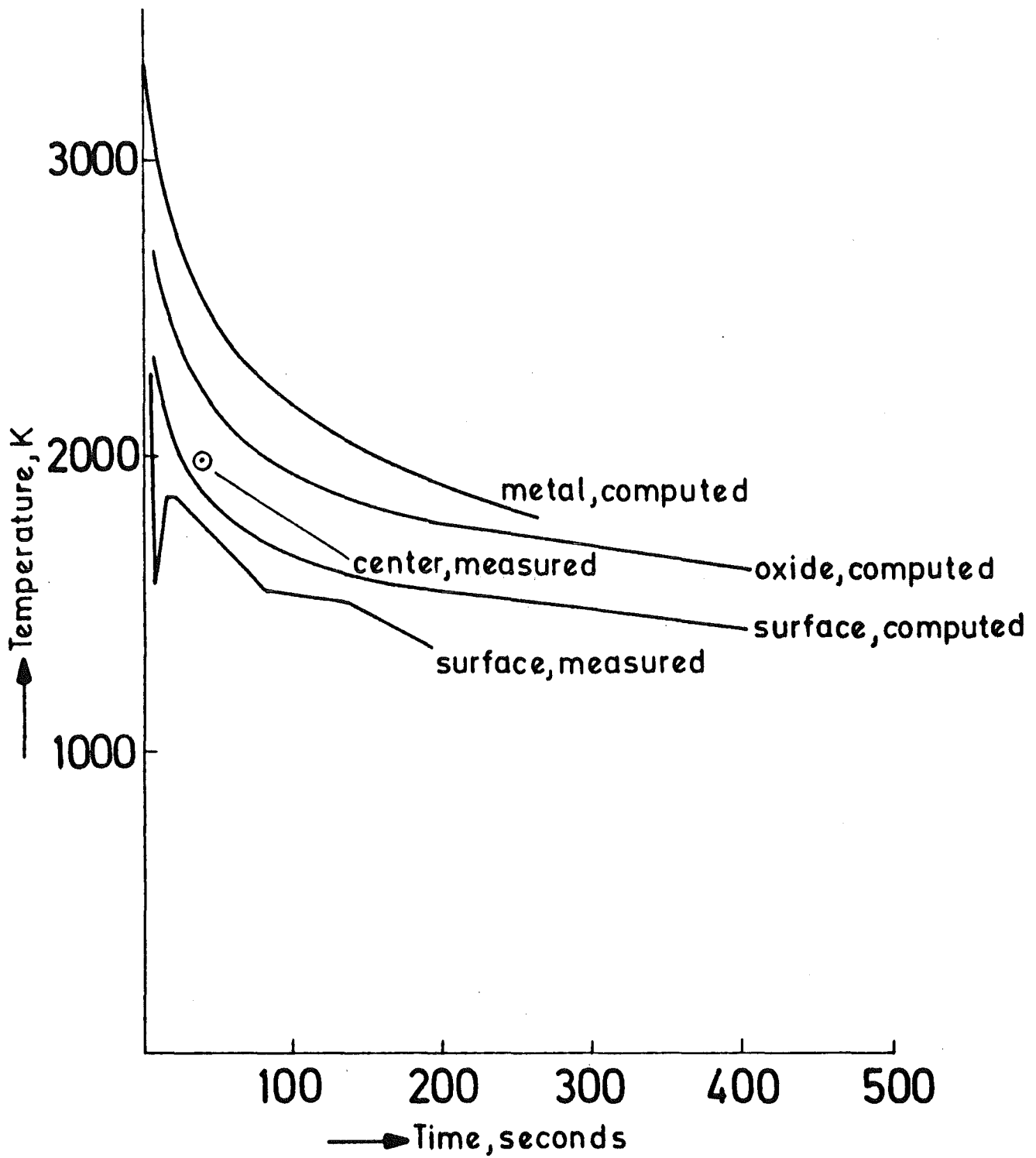


Abb. 4247 - 6 :: Temperaturverläufe bei Versuch G (WECHSL Code).

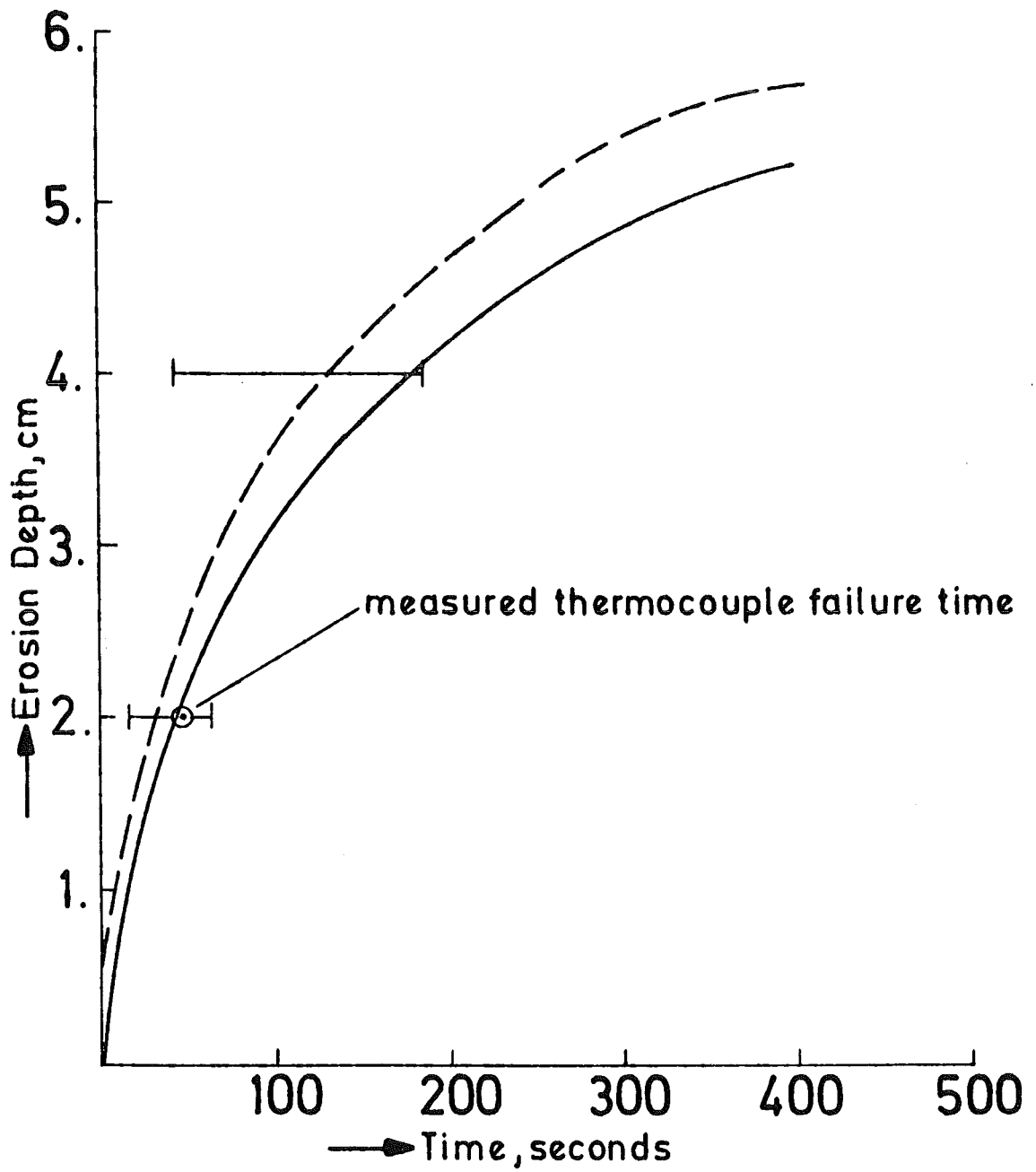
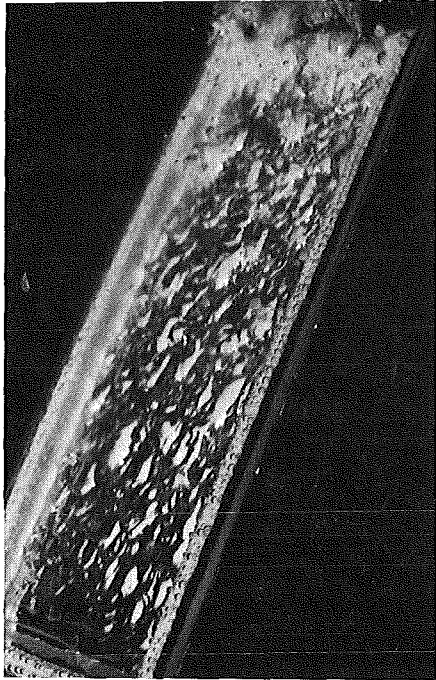
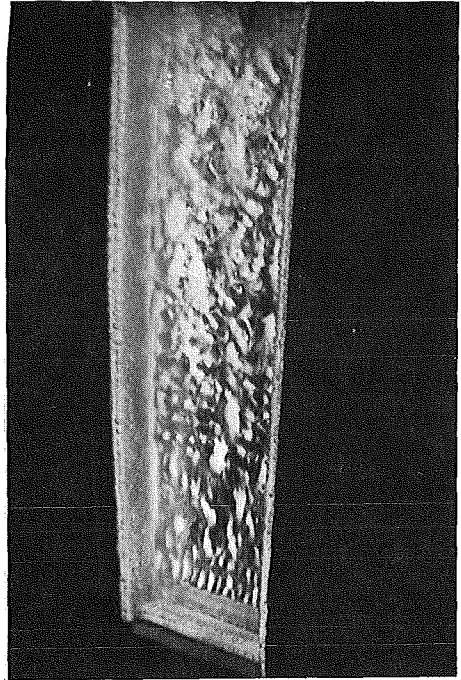


Abb. 4247 - 7 : Verlauf der Betonerosion bei Versuch G (WECHSL Code).



a) $\phi = 60^\circ$



b) $\phi = 90^\circ$

Abb. 4247 - 8: Gasfilm an absublimerenden Trockeneisplatten.

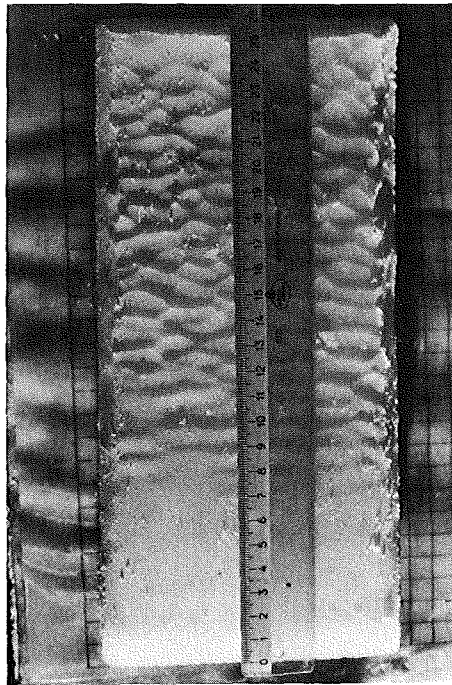


Abb. 4247 - 9: Trockeneisplatte nach Versuchsende.

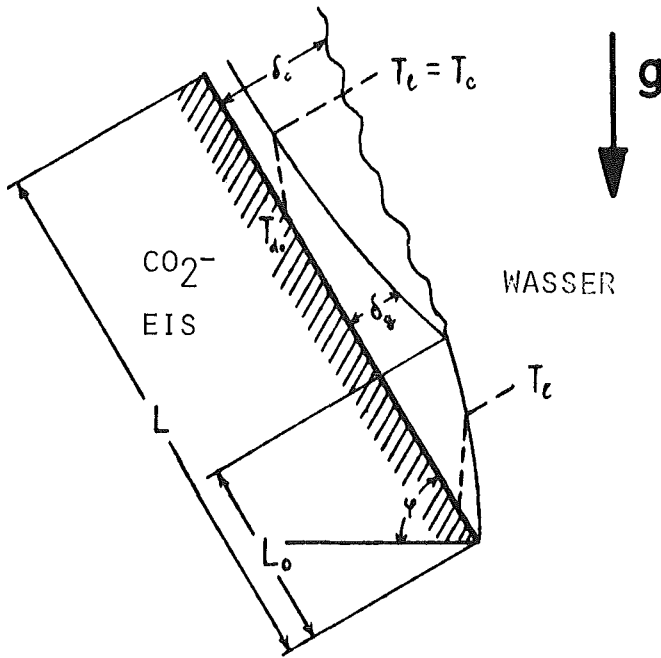


Abb. 4247 - 10: Bezeichnungen für das Filmmodell an geneigten Wänden.

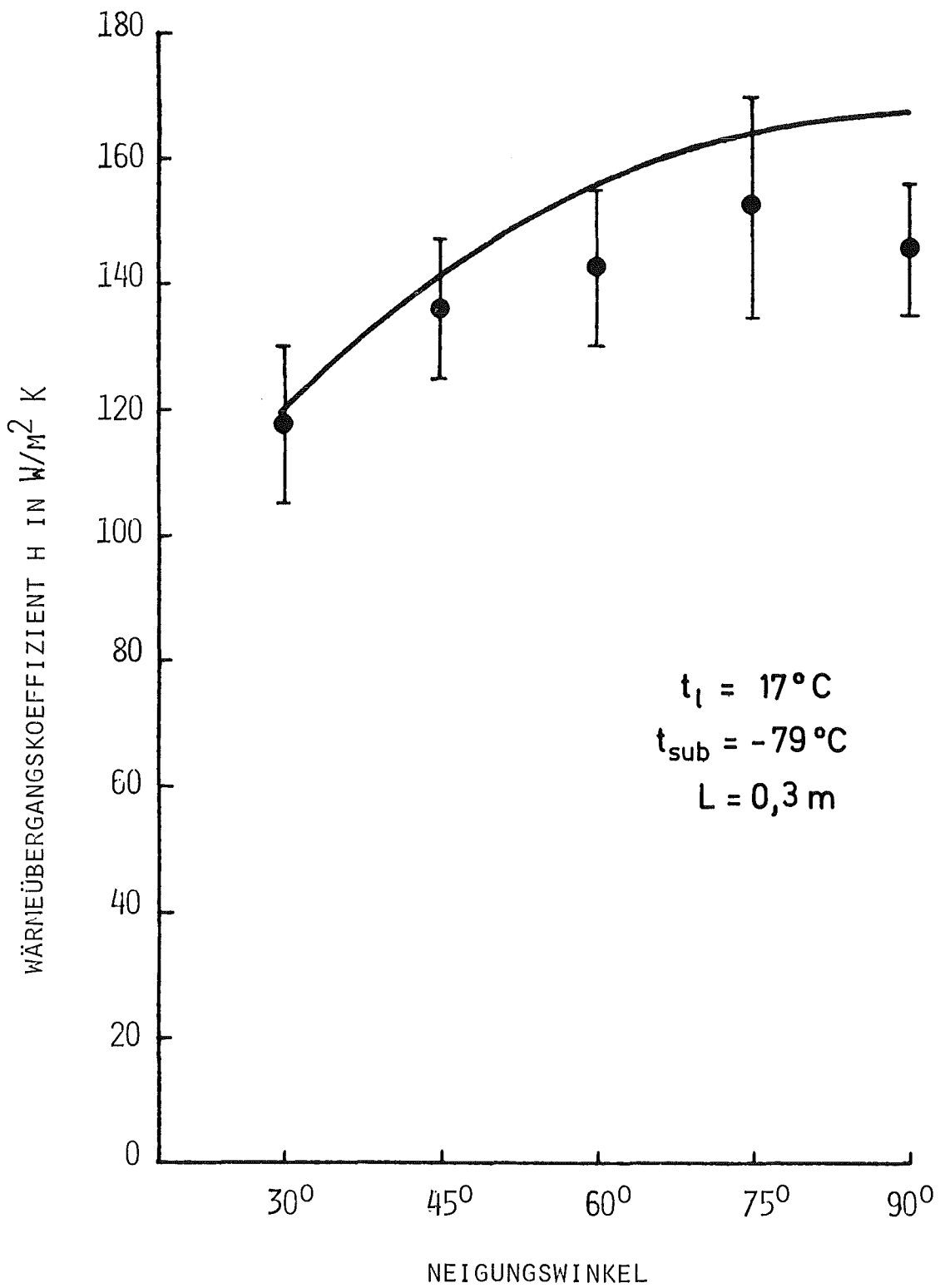


Abb. 4247 - 11: Vergleich von berechneten und experimentellen Werten für geneigte Trockeneisplatten.

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)

Im Mittelpunkt der Arbeiten im Berichtszeitraum stand der Aufbau des Ver-
suchsstands und der Beginn der Kondensationsversuche.

Die Arbeiten an der Modellversion NAUA-Mod2 wurden abgeschlossen. Die
modelltheoretischen Aktivitäten konzentrieren sich jetzt auf die Auswertung
der experimentellen Ergebnisse.

1. Modelltheorie

1.1 Stand des NAUA-Modells

Mit dem Einbau der Temperaturfunktionen in das Rechenprogramm wurde die
Entwicklung der Version Mod2 des NAUA-Modells abgeschlossen. Die Verbesserung,
insbesondere des Programmteils, der die Kondensation berechnet, ist nur
anhand der Ergebnisse der begonnenen Kondensationsexperimente möglich.
Weitere Verbesserungen in der Berechnung der Aerosolprozesse sind, wie
sich aus bisher durchgeführten Formfaktorexperimenten ergibt, nur in ge-
ringem Maße zu erwarten [1].

Die vollständige Modellgleichung der Version Mod2 lautet:

$$\begin{aligned}
 (1) \quad \frac{\partial}{\partial t} n(r_K, t) &= -(\alpha_D(r_K) + \alpha_S(r_K) + \alpha_T(r_K)) \cdot n(r_K, t) \\
 &\quad - \sum_{i=1}^N K(r_i, r_K) \cdot n(r_i, t) \cdot n(r_K, t) \\
 &\quad + \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N K(r_i, r_j) \cdot 1/2 \cdot n(r_i, t) \cdot n(r_j, t) \cdot \beta_{ij}^k \\
 &\quad + (1 - \delta_{1K}) \cdot \frac{\dot{v}(r_{K-1}, t)}{v_K - v_{K-1}} \cdot n(r_{K-1}, t) - \frac{\dot{v}(r_K, t)}{v_{K+1} - v_K} \cdot n(r_K, t); \\
 &\quad K = 1, \dots, N
 \end{aligned}$$

mit

$n(r_K, t)$: Anzahldichte zur Zeit t der Partikel mit dem massen-
äquivalenten Radius r_K in $[\bar{P}/\text{cm}^3]$

$\left. \begin{array}{l} \alpha_D(r_K), \\ \alpha_S(r_K), \\ \alpha_T(r_K) \end{array} \right\}$: Abscheidekoeffizienten aufgrund der Diffusion, Sedi-
mentation und Thermophorese in $[\bar{1}/\text{sec}]$

$K(r_i, r_K)$: Koagulationswahrscheinlichkeit für Partikel der Radien r_i
und r_K in $[\text{cm}^3/\text{P} \cdot \text{sec}]$

β_{ij}^k : Interpolationskoeffizient
 $= \frac{v_{K+1} - (v_i + v_j)}{v_{K+1} - v_K}$ für $(v_i + v_j) \in [v_{K-1}, v_{K+1}]$

$= 0$ sonst

$v_K = \frac{4\pi}{3} r_K^3$ Volumen der Partikel

$\dot{v}(r_K, t)$: Volumenwachstumsgeschwindigkeit aufgrund der Kondensation
mit

$$(2) \quad \dot{v}(r_K, t) = 4\pi r_K \cdot \frac{S \cdot \exp\left(\frac{2L}{R \cdot T} \cdot \frac{M}{\rho_w \cdot R \cdot T} \cdot r_K\right)}{\frac{L \cdot \rho_w}{K \cdot T} \left(\frac{L \cdot M}{R \cdot T} - 1\right) + \frac{\rho_w \cdot R \cdot T}{M \cdot D \cdot P_S(T)}}$$

mit

S : Übersättigung

M : Mol-Gewicht von Wasser

ρ_w : Dichte von Wasser

T : absolute Temperatur

L : latente Wärme von Wasser

K : Wärmeleitfähigkeit des Trägergases

D : Diffusionskonstante

P_S : Sättigungsdampfdruck

Die Gleichung (2) beschreibt das Wachstum von Wassertropfen in einer über-
sättigten Wasserdampf-atmosphäre mit dem Mason-Ansatz. Dies besagt aber
auch, daß die Kondensation an als Kondensationskerne wirkenden Feststoff-
aerosolen nur dann richtig beschrieben wird, wenn die Partikeln voll-
ständig mit Wasser umhüllt sind. Da nun bei einer hochübersättigten Wasser-
dampf-atmosphäre, wie sie im Containment nach einem schweren Störfall er-
wartet werden muß, die Übergangsphase vom Trockenaerosol zum Tröpfchen-aero-
sol extrem kurz ist, ist die Benutzung der Mason-Gleichung gerechtfertigt,
wenn zur Beschreibung der Übergangsphase eine geeignete Korrektur ver-
wendet wird. Diese zu bestimmen ist eine der Hauptaufgaben des experimen-
tellen Programms.

Zusätzlich wurden gegen Ende des Berichtszeitraums begonnen, eine Weiterentwicklung des NAUA-Codes zu erstellen, die in der Lage ist, den Feststoff- und den Wassergehalt des Aerosols nach Teilchengrößen getrennt zu bilanzieren. Die Arbeiten dazu sind noch nicht abgeschlossen. Das Programm befindet sich in der Testphase.

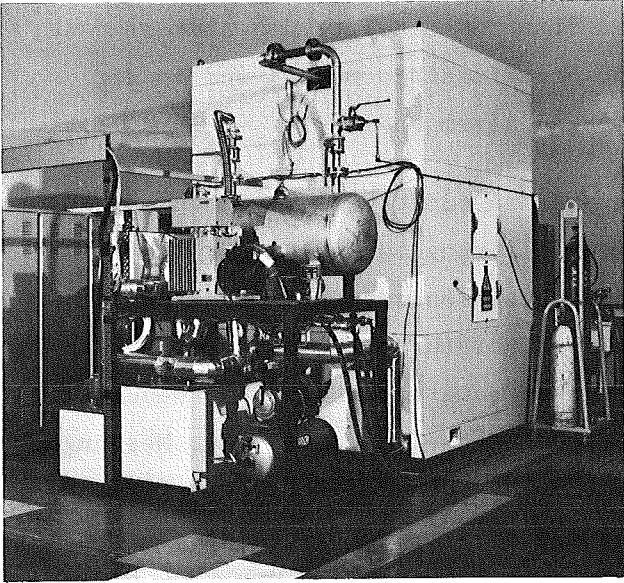
1.2 Vorausrechnung der Experimente im NAUA-Versuchsstand

Das bereits in [2] erwähnte Programm NAUEX wurde um einen Modul erweitert, der es gestattet, die Kondensation des Wasserdampfs an einer Partikelverteilung zu berechnen, wie sie sich unter den besonderen thermodynamischen Randbedingungen des Versuchsstandes ergibt. Es wird dabei die Mason-Gleichung (2) verwendet, so daß die o.g. grundsätzlichen Probleme auch hier bestehen. Der Vergleich mit den ersten durchgeführten Experimenten bestätigt dies auch. Durch das Programm lassen sich Temperaturverlauf, Druck, Übersättigung, Menge des kondensierten Wasserdampfs u.a. als Funktion des thermodynamischen Anfangszustands (Anfangssättigung, Druck, Temperatur, Menge an Luft) sowie der Daten des verwendeten Aerosolsystems (Anzahlkonzentration, mittlerer Radius, Standardabweichung) und der Expansionsgeschwindigkeit berechnen. Ziel ist es, durch eine Modifikation des Mason-Ansatzes für den Bereich der Kondensation am Trockenaerosol eine Übereinstimmung mit den Experimenten zu erreichen und somit eine auch für die numerische Rechnung brauchbare Formel für dieses Problem zu entwickeln. Hierbei kann möglicherweise auf bestehende Ansätze für Kondensation an löslichen Kernen zurückgegriffen werden [3].

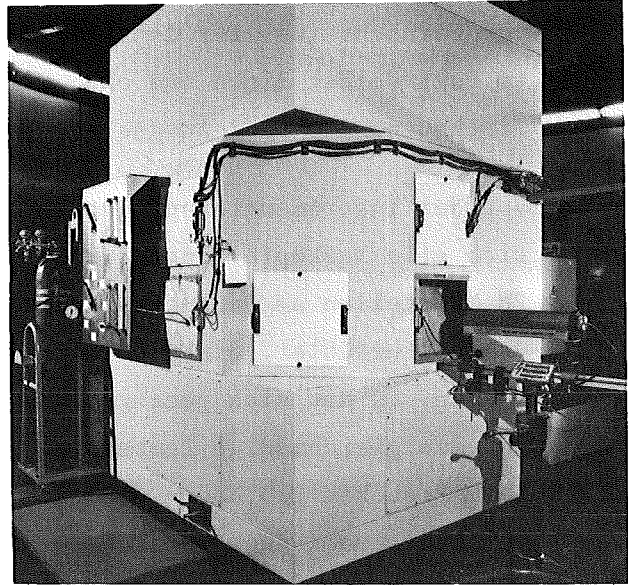
2. Experimentelles Programm

2.1 Versuchsstand

Ende September wurde der Versuchsstand geliefert und aufgebaut. Die endgültigen Spezifikationen wurden bereits im letzten Halbjahresbericht [2] angegeben. Abb. 4311-1 zeigt drei Ansichten. In Abb. 4311-1a ist der Versorgungsteil zu sehen; unten von links der Hilfsthermostat, der Hauptthermostat und der Kompressor für die Ventilsteuerungen, darüber liegend der Abblasetank hinter der Vakuumpumpe. Abb. 4311-1b zeigt links die Flansche für die Temperaturmessung, rechts den Flansch für die optische Tröpfchengrößenmessung mit Laser. Die Flansche befinden sich hinter den quadratischen Deckeln und sind mit Isoliermaterial ausgestopft. Abb. 4311-1c zeigt die Ansicht der Schalt- und Meßwarte. Die wichtigen Bedienungselemente



a)



b)



c)

Abb. 4311-1: Ansichten des NAUA-Versuchsstands

und die gesamte Meßtechnik sind in dem Pult zentral zusammengefaßt, links der Fernschreiber für den Display der direkten Meßwerte und Alarmsignale, im Pult selbst links und oben die Meßwerterfassung, rechts und in der Tischebene die Bedienungselemente und die Alarmgeber.

Von der Instrumentierung ist auf den Bildern nicht viel zu erkennen, da sich alle Meßköpfe innerhalb der Wärmeisolierung befinden. Zur Zeit sind 28 Meßstellen am Datenerfassungsgerät angeschlossen. Davon sind allein 15 Temperaturfühler, die die Wand- und Gastemperaturen an verschiedenen Stellen messen. Es hat sich gezeigt, daß dieser Aufwand tatsächlich notwendig ist, um eine gleichmäßige Temperatur im Versuchskessel einzustellen. Messungen beim Probetrieb haben außerdem ergeben, daß von der Herstellerfirma des Versuchsstands noch Änderungen am Thermostatisierungssystem durchgeführt werden müssen, um die geforderten Toleranzen einhalten zu können. Diese Arbeiten werden eine mindestens vier Wochen dauernde Unterbrechung des Betriebs im März 1978 erfordern.

Weitere sechs Meßstellen sind für Druckmessung belegt, davon ist eine die schnelle Druckmessung mit dem Kapazitätsmanometer, das problemlos arbeitet. Die anderen Druckmesser dienen der Kontrolle des Drucks im Volumen, im Kompensator und im Abblasetank. Die dazu verwendeten Druckaufnehmer weisen zum Teil erhebliche Mängel auf, insbesondere wird die vom Herstellungsgarantierte Temperaturunabhängigkeit nicht eingehalten. Auch hier werden noch Abhilfemaßnahmen mit der Lieferfirma diskutiert.

Alle anderen Meßsysteme und die Datenerfassung arbeiten den Spezifikationen entsprechend und störungsfrei. Insbesondere erwies sich die fotometrische Tröpfchengrößenbestimmung als sehr zuverlässig. Die Fotometrie hat gegenüber der Spektrometrie den Vorteil größerer Empfindlichkeit bei gleichzeitig erheblich einfacherem Aufbau des Geräts, liefert aber nur eindeutige Ergebnisse bei monodispersen Aerosol. Da bei den Kondensationsversuchen mit adiabatischer Expansion gesichert ist, daß alle Tröpfchen gleich groß sind, wird zunächst nur ein Laser-Fotometer zur Messung des Tröpfchenwachstums verwendet, das sowohl Streuung als auch Extinktion mißt. Abb. 4311-2 zeigt die Extinktion des Laserlichts an Wassertröpfchen als Funktion des Tröpfchendurchmessers. Die Wellenstruktur der Kurve ermöglicht eine eindeutige Zuordnung von Meßgröße und Durchmesser.

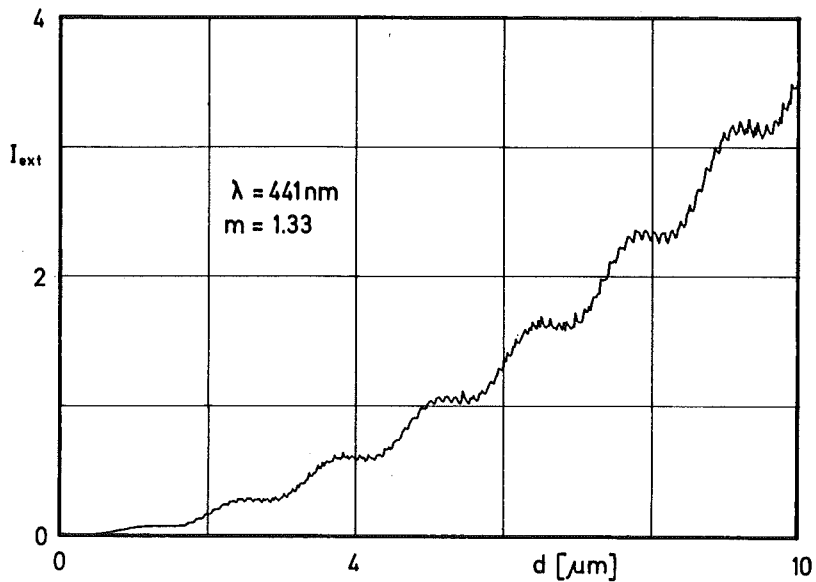


Abb. 4311-2: Extinktion von Laserlicht an Wassertröpfchen

Das Auswerteprogrammsystem wurde fertiggestellt und nach dem Probetrieb des Versuchsstands auf die angefallenen Daten angewendet und verbessert. Die Notwendigkeit und das Ausmaß dieses Systems wird durch einige Erfahrungswerte veranschaulicht. Während der 17-tägigen Testversuche fielen rund 1.9 M-bytes an Meßdaten an, die ausnahmslos in nicht-physikalischen Größen vorliegen und einer zum Teil aufwendigen Umwandlung bedürfen. Unter diesen Daten gehören zu einem Expansionsversuch und zu einer typischen Meßgröße (z.B. Temperatur) nur etwa dreißig Meßwerte (vgl. z.B. Abb.4311-6).

Unter der Voraussetzung, daß bei allen Experimenten jede Meßgröße aufgezeichnet werden muß, um sie für zukünftige Auswertungen aufgrund besserer Kenntnisse noch verfügbar zu haben, ist leicht einzusehen, daß die Ordnung und Archivierung der Daten besonders wichtig ist. Positiv anzumerken ist, daß die Meßwerterfassung und -Auswertung bisher ohne Ausfälle arbeiten.

2.2 Aerosolerzeugung

Weitere Vorversuche zur Erzeugung von UO_2 -Aerosol im Lichtbogen wurden durchgeführt. Durch Verwendung neuer Elektrodenformen konnte das Problem der Konstanz der Aerosolquelle im wesentlichen gelöst werden. Es wurden Brenndauern von 20 min erreicht, dabei wurden bei einer Leistung von 4kW insgesamt 2.6 g UO_2 verdampft. Diese Leistungsdaten sind für die Kondensationsversuche bei weitem ausreichend. In Abb. 4311-3 sind EM-Aufnahmen des gealterten Aerosols gezeigt. Das Aerosol besteht aus zwei Komponenten,

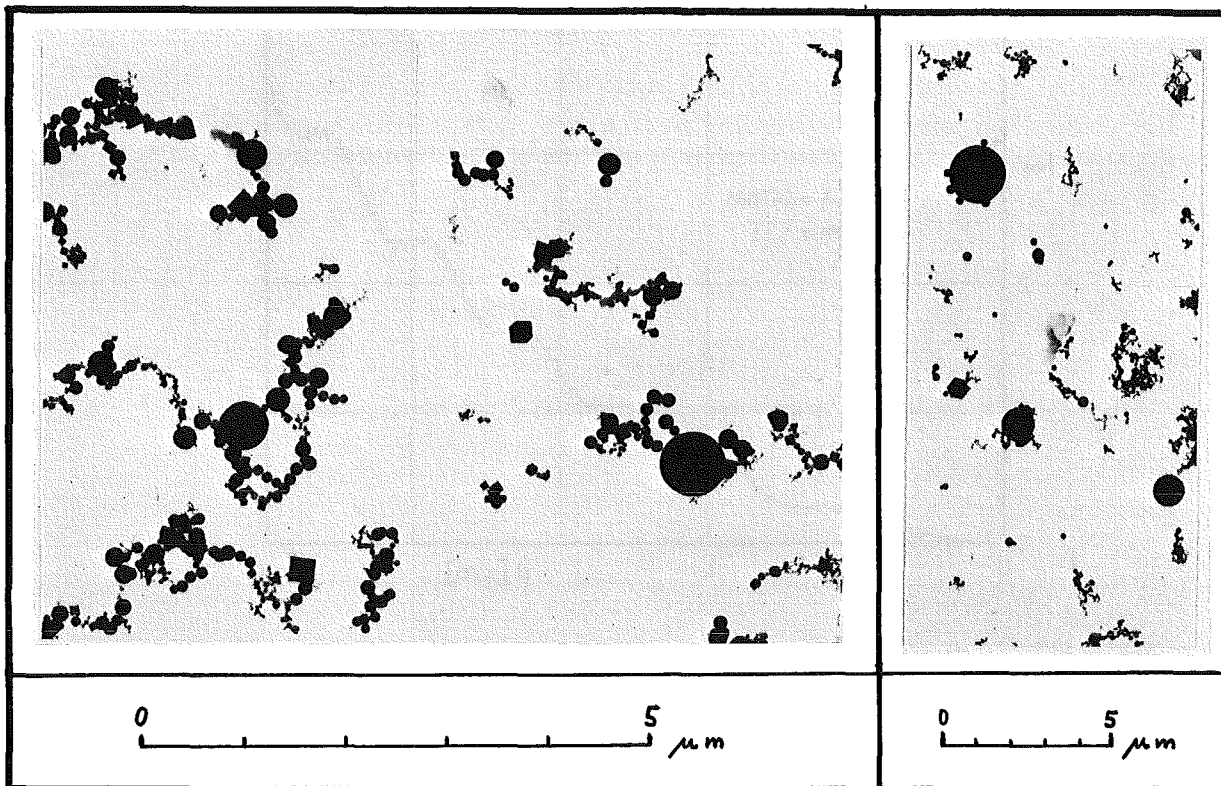


Abb. 4311-3: Gealtertes Aerosol des UO_2 -Aerosolgenerators

UO_2 -Kugeln und die selteneren würfelförmigen Kristalle, die vermutlich von der Ta-Gegenelektrode stammen. Auffällig ist der große Durchmesser der kugelförmigen Primärpartikeln. Dies liegt an der hohen Temperatur des Lichtbogens und an der großen Ausdehnung der heißen Zone.

Der bei den ersten Versuchen einzusetzende Platinoxidaerosolgenerator liefert dagegen ein sehr viel feineres Aerosol mit Aggregaten höherer Primärpartikelzahl. Damit ist zu erwarten, daß sich das Kondensationsverhalten beider Aerosolarten quantitativ unterscheidet. Die Kondensationsexperimente mit UO_2 -Aerosol gewinnen damit an grundsätzlicher Bedeutung.

2.3 Testbetrieb

Es wurde ein insgesamt 17 Tage dauernder Probetrieb des Versuchsstands durchgeführt. Davon entfielen die ersten vier Tage auf Funktionstests und die restliche Zeit auf einen Dauerbetrieb bei $100^\circ C$ mit ersten Kondensationsexperimenten.

Das Hauptziel der Funktionstests war, die der Konstruktion des Expansionsmechanismus zugrundegelegten Berechnungen zu verifizieren. Der am oberen Deckel des Kessels innen angeschweißte Federbalgkompensator hat einen

Durchmesser von 1000 mm und eine Länge von 700 mm. Der Hub beträgt ± 100 mm, was allerdings nach unten nicht voll ausgenutzt werden kann, weil die Träger für die Temperaturfühler im Weg sind. Es hat sich jedoch gezeigt, daß die zur Verfügung stehenden 130 l Expansionsvolumen zunächst ausreichen, so daß vorläufig keine Umbauten notwendig sind. Der Kompensator wird durch den Druck im Inneren gesteuert, beim Expansionsvorgang wird der Inhalt in den Abblasetank abgeblasen. Die Geschwindigkeit dieses Vorgangs ist durch die Öffnung der in der Abblaseleitung liegenden Ventile kontrollierbar. Eintypischer Wert für die Gesamtdauer einer Expansion ist 4 bis 5 sec. Die Temperatur-, Druck- und Sättigungsfunktionen, die für die Expansion vorausberechnet worden waren, wurden bestätigt. Eine Einschränkung ist zur Zeit dadurch gegeben, daß die Thermostatisierung noch Mängel aufweist. Wegen kalter Stellen im Kessel ist der Wasserdampfgehalt beim Beginn der Expansion so niedrig, daß der Expansionshub gerade ausreicht, um den Sättigungspunkt zu erreichen. Für die unten beschriebenen Experimente wurde so verfahren, daß zusätzlich zur Expansion des Kompensators ein Teil des Kesselinhalts ins Freie abgeblasen wurde. Dies geht selbstverständlich nur so lange, wie kein UO_2 -Aerosol für die Versuche verwendet wird. Nach dem Umbau der Thermostatisierung durch die Herstellerfirma wird diese Einschränkung wegfallen und die Expansionsexperimente werden wie geplant durchführbar sein.

2.4 Kondensationsexperimente

Während des Probetriebs des Versuchsstands wurden 14 Expansionsexperimente durchgeführt, die zur Erprobung der Versuchstechnik dienten. Zur Zahl der Experimente ist anzumerken, daß selbst bei hochgefahrenem Versuchsstand nicht mehr als maximal vier Expansionen pro Tag durchgeführt werden können, da die Erholungszeit nach der Expansion relativ lang ist, bis sich das thermische Gleichgewicht zwischen Behälter und Gasphase wieder eingestellt hat.

Im letzten Halbjahresbericht [2] wurde bereits gezeigt, wie sich der relative Wasserdampfgehalt verhält, wenn bei der Expansion der Sättigungspunkt überschritten wird.

In Abb. 4311-4 ist S_∞ eine fiktive Größe, die angibt, wieviel Wasserdampf bei der Expansion im Idealfall kondensieren kann. Die Kurve S_∞ wird durchlaufen, wenn der ganze Vorgang reversibel durch Gleichgewichtszustände geführt wird, und wenn die Mason-Gleichung exakt richtig ist. Es ergibt sich

wegen der freiwerdenden Kondensationswärme ein scharfer Knick in der Kurve und der Anstieg ist vor Erreichen der Sättigung sehr viel steiler als nachher.

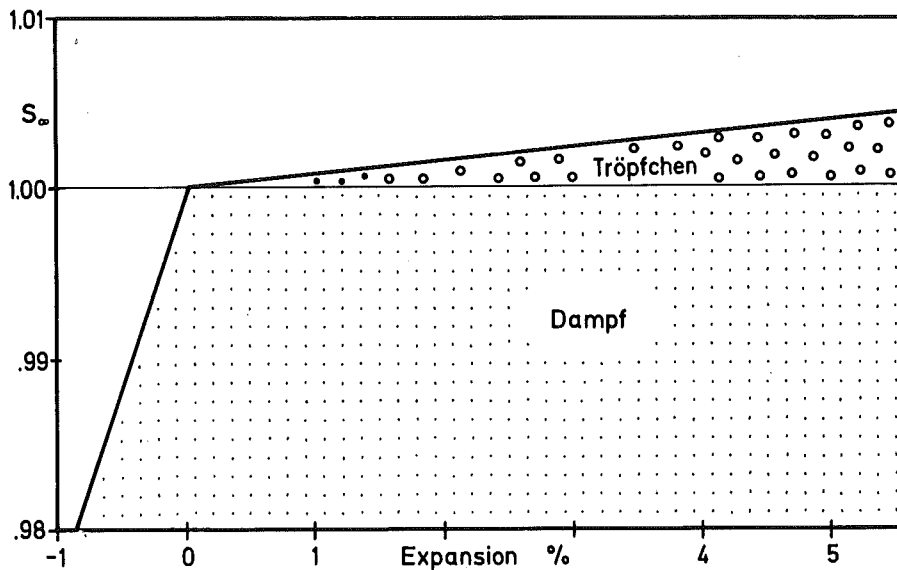


Abb. 4311-4: Gleichgewichtswasserdampfsättigung bei adiabatischer Expansion

Abweichungen von diesem Idealverhalten werden hervorgerufen einerseits durch die Dynamik des kondensierenden Systems, die das Erreichen der Gleichgewichtszustände nicht zulässt, und andererseits durch die Abweichungen von der Mason-Gleichung. Die Dynamik wird im Programm NAUEX berechnet, die Abweichungen von der Mason-Gleichung werden durch die Experimente bestimmt. Das folgende Beispiel soll das Verfahren erläutern.

In Abb. 4311-5 ist eine dynamische Rechnung mit NAUEX unter Versuchsstandverhältnissen gezeigt, wobei die unkorrigierte Mason-Gleichung (2) verwendet wurde. Gezeigt ist der relative Gehalt S an kondensierbarem Wasser, d.h. Dampf plus Tröpfchen, im Verlauf einer Expansion. Nach Überschreiten des Sättigungspunkts, $S = 1$, nimmt der Dampfanteil zunächst zu, bis die Kondensation an den Partikeln zu so großen Tröpfchen führt, daß aller freiwerdender Dampf auch tatsächlich kondensiert. In diesem Moment verringert die freiwerdende Kondensationswärme den weiteren Anstieg der Kurve, kurz danach haben sich Angebot und Verbrauch von Wasserdampf auch schon ausgeglichen. Die Kurve verläuft in geringem Abstand parallel zur Gleichgewichtskurve S_{∞} .

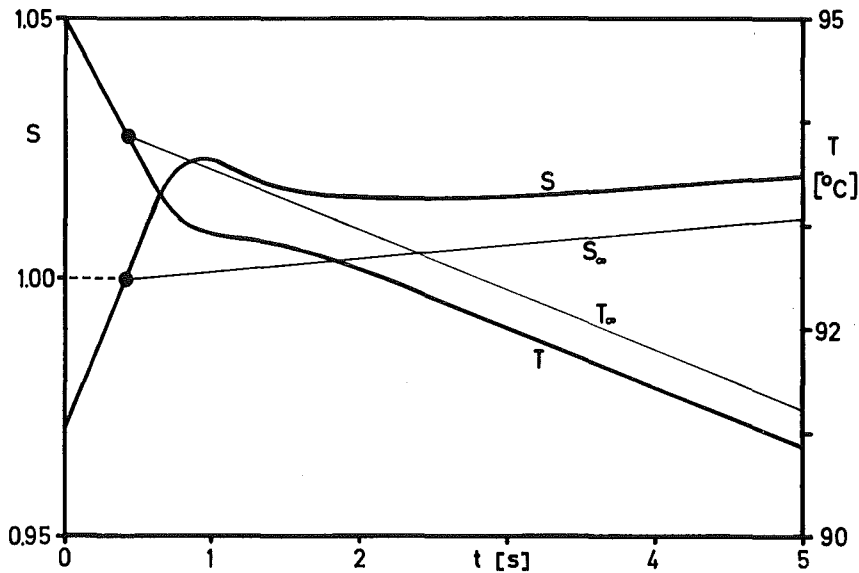


Abb. 4311-5: Temperatur und Sättigung bei Kondensation am Aerosol

Meßtechnisch wichtig ist außerdem der Verlauf der zugehörigen Gastemperatur, der als Kurve T in Abb. 4311-5 gezeigt ist. Die T-Kurve spiegelt den Verlauf der S-Kurve sehr genau wieder. Außerdem ist der Meßeffect hier sehr groß im Gegensatz zur Messung des Gasdrucks, der ursprünglich als Meßgröße für den Wasserdampfgehalt vorgesehen war. Die Änderung des Druckabfalls beim Überschreiten des Sättigungspunkts ist nur sehr gering, so daß wir nun den Temperaturknick als charakteristisches Merkmal zur Bestimmung des Sättigungspunkts verwenden.

Dieses theoretisch erwartete Verhalten ist mit dem gemessenen zu vergleichen. In Abb. 4311-6 ist die Temperatur T während eines Expansionsexperiments gezeigt. Der Verlauf vor und nach Überschreiten des Sättigungspunktes ist parallel zur Gleichgewichtstemperatur T_0 . (durchgezogene Linien). Das beweist, daß aller Wasserdampf im Volumen kondensiert. Während des Expansionsvorgangs sind in keinem Experiment Effekte beobachtet worden, die auf irgendeinen Wandeinfluß deuten könnten.

Der Einsatz der Kondensation wird durch den beginnenden Abfall in den optischen Transmissionswerten I angezeigt. Man sieht, daß genügend weit entfernt von dieser Stelle die Meßwerte mit der Berechnung gut übereinstimmen, d.h. daß die Kondensation wie erwartet nur im Bereich des Übergangs von trockenen Partikeln zu fertig ausgebildeten Tröpfchen von der Mason-Gleichung abweicht.

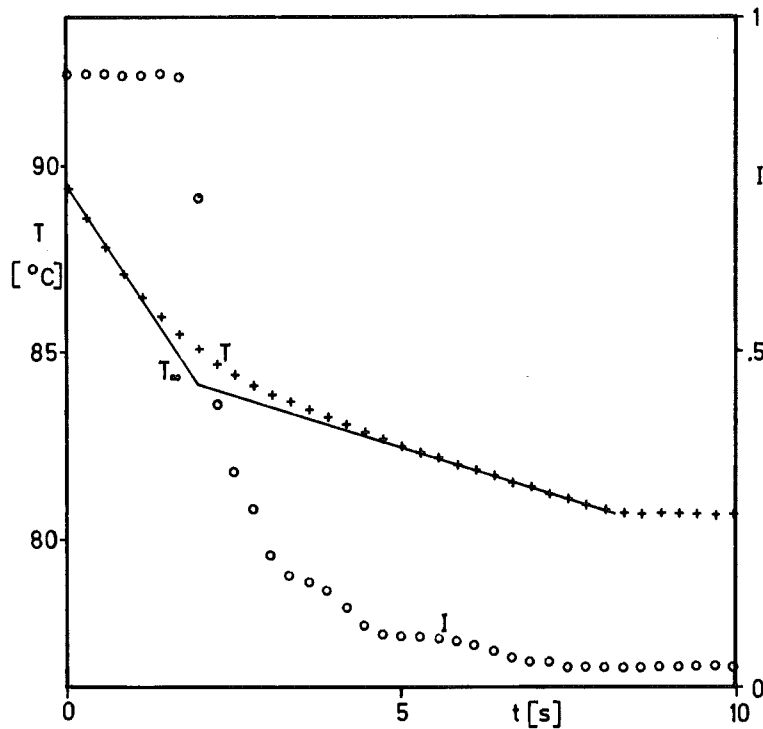


Abb. 4311-6: Temperatur und optische Transmission bei einem Expansionsexperiment

Wichtig ist nun die Richtung der Abweichung. Während in Abb. 4311-5, d.h. bei gültiger Mason-Gleichung, die Temperatur über T_{∞} hinausschwingt, bis die Kondensation voll wirksam wird, zeigen die Meßdaten in Abb. 4311-6 ein entgegengesetztes Verhalten. Hier setzt die Kondensation schon vor dem Sättigungspunkt langsam ein, ein Überschwingen tritt nicht auf. Dieses Verhalten ist ähnlich dem bei löslichen Aerosolen beobachteten und liegt daran, daß das Platinoxidaerosol wegen seiner porösen Struktur bereits vor dem Sättigungszustand Wasserdampf kondensiert. Dies war zwar zu erwarten, das Ausmaß des Effekts ist jedoch überraschend. Meßfehler sind mit Sicherheit auszuschließen, die Zeitauflösung der Messung und die Empfindlichkeit sind völlig ausreichend. Außerdem markiert der Abfall der optischen Transmission sehr scharf den Einsatzpunkt des Tröpfchenwachstums, er liegt deutlich hinter dem Beginn des Temperaturknicks. Auch das deutet darauf hin, daß zunächst Dampf in die Poren der Partikeln hineinkondensiert und damit schon Kondensationswärme freisetzt, ehe ein echtes Wachstum der Partikeln meßbar wird.

So leicht sich diese Ergebnisse auch qualitativ erklären lassen, so schwierig ist ihre Quantifizierung. Die Übernahme dieser Ergebnisse in das NAUA-Modell ist ja auch Gegenstand der Kondensationsversuche im Jahre

1978. Es gilt dabei einen auch bei anderen Temperaturen gültigen Korrekturfaktor zur Mason-Gleichung zu finden und zu verifizieren. Dies gelingt nur durch Parametervariationen mit dem NAUEX-Programm, wobei eine Rückwirkung auf das experimentelle Programm sich schon jetzt abzeichnet.

Literatur

- [1] H. Bunz, W. Muhr, W. Schikarski
Untersuchungen zum Verhalten von Rekondensationsaerosolen in geschlossenen Behältern
5. Jahreskongress der Gesellschaft für Aerosolforschung, Karlsruhe, 26.-28. Oktober 1977
- [2] H. Bunz, C. Sack, W. Schöck
PNS-Halbjahresbericht 1977/1, KFK 2500
- [3] B.J. Mason
The Physics of Clouds
2nd Edition, Oxford, 1971

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

(H. Dilger, J. Hiller, W. Hübschmann, K. Nester, D. Papadopoulos, H. Schüttelkopf, P. Thomas, S. Vogt, ASS)

Gemeinsames Ziel der Untersuchungen ist die Verbesserung der Kenntnis der Schadstoffausbreitung in der Atmosphäre sowie die Entwicklung von Modellen zur Berechnung der Strahlenbelastung in der Umgebung kerntechnischer Anlagen, insbesondere nach störfallbedingter Aktivitätsfreisetzung. Dazu wurden folgende Einzelarbeiten durchgeführt: Ausbreitungsversuche und deren Auswertung (Kap. 1), Turbulenzmessungen über Flächen geringer Rauigkeit (Kap. 2), Vorbereitung und Durchführung von Tetroonflügen (Kap. 3) und ein Vergleich der konservativen mit einer realistischen Dosisabschätzung (Kap. 4).

1. Ausbreitungsversuche

1.1 Durchführung

(J. Hiller, H. Schüttelkopf, P. Thomas)

Im zweiten Halbjahr 1977 fanden die sechs in Tab. 4320-1 zusammengestellten Ausbreitungsversuche statt. Bei allen Versuchen wurden simultan die Tracer CBr_2F_2 und CFCl_3 von Plattformen des meteorologischen Mastes freigesetzt. Die Probenahme zur Bestimmung der Konzentrationsverteilung erfolgte in zwei Sammelperioden à 30 min Dauer an mehr als 55 Positionen im Lee des Mastes. Die Entfernung der Probenahmestellen zum Mast betrug zwischen 0,1 und 10 km.

Tab. 4320-1 Im zweiten Halbjahr 1977 durchgeführte Ausbreitungsversuche

Laufende Nr.	Stabilitäts-kategorie	Datum	Probenahmezeit	Emissionshöhe in m für die Leitsubstanzen	
				CBr_2F_2	CFCl_3
49	F	27. 7.	20 ³⁰ - 21 ³⁰	60	100
50	E	2. 8.	21 ⁰⁰ - 22 ⁰⁰	60	100
51	D/E	16. 8.	20 ³⁰ - 21 ³⁰	60	100
52	B	28. 9.	14 ⁰⁰ - 15 ⁰⁰	160	190
53	D	26.10.	14 ⁰⁰ - 15 ⁰⁰	160	190
54	D/E	13.12.	14 ⁰⁰ - 15 ⁰⁰	160	190

1.2 Untersuchung der Unterschiede zwischen den Jülicher und den Karlsruher Ausbreitungsparametern

(P. Thomas)

Die an der KFA Jülich experimentell ermittelten Ausbreitungsparameter unterscheiden sich von denen des KfK teilweise beträchtlich. Eine mögliche Ursache ist die Anwendung unterschiedlicher Auswerteverfahren. Um dies zu prüfen, wurden fünf in Jülich durchgeführte und ausgewertete Experimente zusätzlich mit dem in Karlsruhe entwickelten Verfahren (P. Thomas, K. Nester, KfK 2286 (1976)) ausgewertet. Die Versuche beziehen sich auf die Ausbreitungskategorien A, B, C, D, E und eine Emissionshöhe von 100 m. Der Vergleich der beiden so gewonnenen σ_y - und σ_z -Kurvenscharen zeigt folgendes: Die Übereinstimmung beim σ_z ist zufriedenstellend; beim σ_y treten größere Unterschiede auf. Die auf der Auswertung beruhenden Unterschiede entsprechen denjenigen, die auch zwischen den Parametersätzen auftreten, die auf jeweils Jülicher bzw. Karlsruher Versuchen und Auswerteverfahren basieren. Sie sind jedoch teils zu gering und teils zu uneinheitlich, um die oben genannten Unterschiede allein zu klären.

Die weitere Ursache für die Unterschiede ist möglicherweise die unterschiedliche Probenahmedauer. Bei den Versuchen am KfK werden die Luftproben in mehreren aufeinanderfolgenden Perioden von jeweils 30 min Dauer gesammelt. Die Emission beginnt vor und endet nach der Probenahme. Die Transportzeit der Tracer ist dabei berücksichtigt. Bei der KFA Jülich dagegen dauert die Probenahme so lange, daß die gesamte vorüberziehende Tracerwolke erfaßt wird.

Der Einfluß der Probenahmedauer wurde bei den im KfK durchgeführten Versuchen Nr. 14 (Ausbreitungskategorie C), 15 (D), 17 (D), 18 (B) und 24 (D) untersucht. Die Emissionshöhe betrug 100 m; der Tracer war tritiiertes Wasserdampf. Die Emissionsrate blieb innerhalb eines Versuchs konstant.

Zunächst wurden die einzelnen Sammlerperioden eines Versuchs (Dauer jeweils 30 min) ausgewertet. Anschließend wurden für alle Probenahmestellen die arithmetischen Mittelwerte der Konzentrationen jeweils zweier aufeinanderfolgender Perioden gebildet. Diese Mittelwerte beziehen sich auf eine Probenahmezeit von 60 min. Die in die Auswertung eingehende Windgeschwindigkeit wurde ebenfalls gemittelt.

Bei der Auswertung dieser Mittelwerte konnte keine Änderung des σ_z durch die Verdoppelung der Probenahmezeit festgestellt werden. σ_y nimmt dagegen mit der Probenahmezeit zu, wenn während der Probenahme monotone Drehungen der Windrichtung auftreten.

1.3 Zusammenfassung der Jülicher und Karlsruher Ausbreitungsparameter

(K. Nester)

Wie die Untersuchung der Unterschiede zwischen den an beiden Standorten bestimmten σ -Kurvenscharen gezeigt hat, lassen sich die Abweichungen nicht nur auf unterschiedliche Durchführung und Auswertung der Ausbreitungsexperimente zurückführen. Da die σ -Parameter auch für Ausbreitungsrechnungen an anderen Standorten in der Bundesrepublik Verwendung finden sollten, ist eine Zusammenfassung der Ergebnisse beider Experimentreihen zweckmäßig. Die Zusammenfassung wurde für die Ausbreitungskategorien A bis F auf der Basis von 17 Jülicher und 16 Karlsruher Experimenten durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4320-2 und in den Abbildungen 4320-1 und -2 dargestellt.

Tab. 4320-2 Zusammengefaßte Koeffizienten der Ausbreitungsparameter σ_y und σ_z

$$\sigma_y = \sigma_{y0} \times^{P_y} y; \quad \sigma_z = \sigma_{z0} \times^{P_z} z$$

Kategorie	σ_y		σ_z	
	σ_{y0}	P_y	σ_{z0}	P_z
A	0,24	0,99	0,055	1,34
B			0,035	1,25
C	0,31	0,89	0,10	1,02
D	0,57	0,78	0,19	0,88
E	2,11	0,65	1,00	0,55
F	2,56	0,69	0,66	0,52

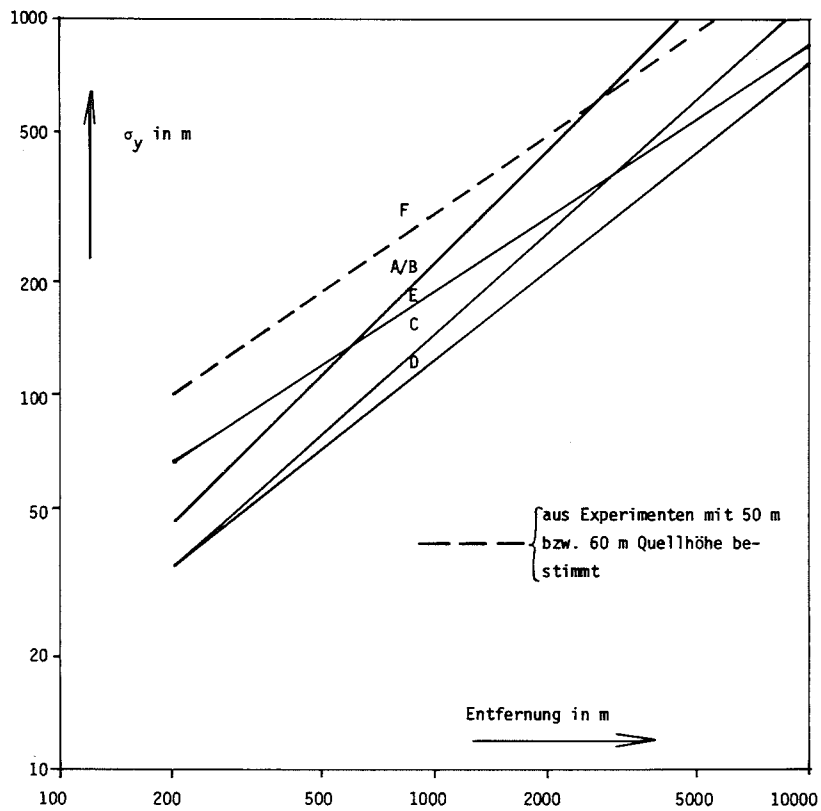


Abb. 4320-1

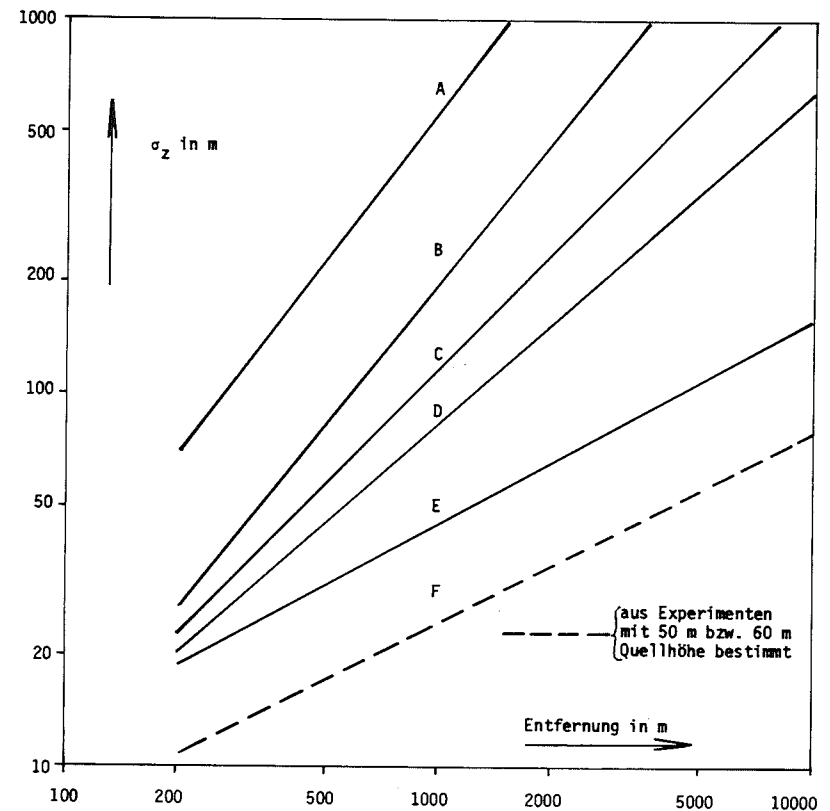


Abb. 4320-2

Zusammengefaßte Ausbreitungsparameter σ_y und σ_z für 100 m Quellhöhe

2. Feldmessungen

(H. Dilger)

In der Nähe der Ortschaft Spöck ist auf einem Wiesengelände (Rauhigkeitsstufe II) ein Kurbelmast aufgestellt. Seit Ende Januar 1977 werden u.a. die Meßwerte σ_ϕ und σ_θ der in 15 m Höhe montierten Vektorfahne analog registriert. Das automatische Datenerfassungsgerät wurde nur für einige Probelaufe eingesetzt, weil der von der Lieferfirma zugesagte Grenzwert der Stromaufnahme deutlich überschritten wurde. Die Umrüstung auf stromsparende Spannungswandler ist noch nicht abgeschlossen.

Es wurde die Streuung σ_ϕ der Monate Februar bis Juni 1977 ausgewertet. Dabei wurden die 10-min-Werte aus Spöck nach den im KfK bestimmten Ausbreitungskategorien eingeteilt, s. Tab. 4320-3.

Tab. 4320-3 Streuung der Vertikalfluktuation σ_ϕ im KfK und in Spöck

Meßort und -höhe	Ausbreitungskategorie					
	A	B	C	D	E	F
KfK, 100 m Bereich des σ_ϕ in Grad	> 15,0	11,1-15,0	7,6-11,0	3,6-7,5	2,1-3,5	0,0-2,0
Spöck, 15 m Mittelwert σ_ϕ in Grad	7,8	7,0	6,2	4,1	2,9	3,2

Für die labilen Kategorien A - C und Kategorie D ergeben sich in 15 m über dem Gelände der Rauhigkeitsstufe II niedrigere σ_ϕ -Werte als in 100 m über Gelände der Rauhigkeitsstufe III. Auffallend ist der relativ hohe Mittelwert in Kategorie F. Das bedeutet, daß sich während dieser Situationen in Spöck noch keine stabile Schichtung ausgebildet hatte. Umgekehrt tritt bei neutraler Kategorie D im KfK eine größere Zahl von Situationen mit $\sigma_\phi < 1^\circ$ als in Spöck auf. Insgesamt gesehen ist nach den vorläufigen Auswertungen keine durchgängige Übereinstimmung der Ausbreitungskategorien an den beiden Standorten vorhanden. Weitere Auswertungen mit einem Wertekollektiv werden sich

u.a. auf den Vergleich der Tagesgänge am KfK und in Spöck erstrecken, um so die Zeiträume für die Abweichungen in den Ausbreitungskategorien feststellen zu können.

3. Ausbreitung von Schadstoffen im Mesoscale

(P. Thomas, S. Vogt)

Die bisher aufgelassenen Tetroons wurden teils mit dem WF3-Radar des Meteorologischen Instituts der Universität Karlsruhe, teils mit dem Radar MBVR-120 (Mobiles Ballon-Verfolgungs-Radar) des Amtes für Wehrgeophysik verfolgt. Dabei zeigte sich, daß auf den Einsatz von Transpondern nicht verzichtet werden kann (siehe PNS-Halbjahresbericht 1977/I, KfK 2500). Die Verhandlungen über die Lieferung von Transpondern und die entsprechende Umrüstung der Radaranlagen ergaben folgendes:

Die Vertriebsfirma des WF3 lehnt dessen Umbau als zu kostspielig ab; außerdem kann die technische Leistungsfähigkeit des WF3 nach einem Umbau nicht definiert werden. Philips, der Hersteller des MBVR-120, bot an, eigene Transponder zu entwickeln und herzustellen. Umbauten am MBVR-120 entfallen; die Radar-Empfangseinheit muß vor einem Transpondereinsatz in geeigneter Weise "verstimmt" werden. Ein Vorversuch mit einem Transponder verlief erfolgreich (siehe PNS-Halbjahresbericht 1977/I, KfK 2500).

Philips erhielt den Auftrag zur Herstellung von fünf Mustertranspondern und zur Ausarbeitung einer Anleitung zum Verstimmen des MBVR-120.

Im August fanden drei weitere Tetroonflüge statt. Startplatz und Standort des Radar war der 860 m hohe Witthoh 6 km südlich von Tuttlingen. Die Bahn-
daten lieferte das MBVR-120 des in Neuhausen ob Eck stationierten geophysikalischen Meßzuges. Die Tetroons waren mit passiven Aluminiumreflektoren ausgerüstet. Bezogen auf den Standort des Radar flogen sie in Höhen zwischen 500 m und 700 m. Die Reichweiten lagen zwischen 14 km und 24 km; der Radarkontakt ging nach 31 bis 55 min verloren. Die Ziele dieses Versuches waren der Test der Mobilität des Radar und der Zusammenarbeit mit der Bedienungsmannschaft des geophysikalischen Meßzuges in Neuhausen, sowie die Gewinnung

von Eingabedaten für Auswerteprogramme. Das Ergebnis war positiv.

Die fünf zuletzt gestarteten Tetroons trugen jeweils eine Mitteilung, die den Finder aufforderte, den Ballon gegen eine Belohnung von DM 50,-- an das KfK zurückzusenden und den Fundort mitzuteilen. Von diesen 5 Tetroons wurden bisher 3 zurückgesandt. Damit wird auch beim späteren Einsatz von Transpondern ein Teil der relativ teuren Geräte zurückgewonnen und kann wieder eingesetzt werden.

4. Radiologische Belastung der Bevölkerung in der Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe - die Kluft zwischen konservativer und realistischer Abschätzung

(W. Hübschmann, D. Papadopoulos)

Die radiologische Belastung der Bevölkerung durch radioaktive Stoffe aus kerntechnischen Anlagen ist wesentlich niedriger als die natürliche und die durch Kernwaffen-Fallout erzeugte Belastung. Daher ist eine direkte Messung der Immission nicht oder nur in Einzelfällen möglich. Zur Ermittlung der radiologischen Belastung der Bevölkerung werden die Emission und die meteorologischen Parameter gemessen; mit Hilfe dieser Meßwerte und der Modellvorstellungen über die Verbreitung der radioaktiven Stoffe wird die Äquivalentdosis einzelner Personen in der Umgebung abgeschätzt. Diese Rechnung ist "konservativ", d.h. die Dosen werden überschätzt. Der Grad der Überschätzung ist jedoch meist unbekannt.

Anhand der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) wurde die Kluft zwischen der "konservativen" und einer realistischen Dosisabschätzung aufgezeigt /1/. Es wird der Betrieb der WAK in den Jahren 1972 - 1976 zugrundegelegt. Die konservative Abschätzung stützte sich auf das in Gutachten der GRS verwendete Verfahren.

Folgende Gründe tragen zu einer Überschätzung der konservativ abgeschätzten Dosen bei (Zahlenwerte s. Tab. 4320-4):

- 1) Es wird weniger Aktivität abgeleitet als beantragt. Wegen der relativ langen Stillstandszeiten der Prototypanlage WAK (55 % der Gesamtzeit)

sind die Emissionen auf die reine Betriebszeit bezogen, d.h. die zulässige Emission wurde um den relativen Anteil der Stillstandszeit gekürzt.

- 2) Die Kaminüberhöhung durch den Impuls und den thermischen Auftrieb der Abgasfahne wird vernachlässigt. Der Faktor 1,4 entspricht einer Überhöhung von 10 m bei 60 m Kaminhöhe.
- 3) Es wird jeweils das Maximum der Ortsdosis ermittelt, unabhängig davon, ob sich an diesem Ort Personen ständig aufhalten oder ob er landwirtschaftlich genutzt wird. Die realistisch abgeschätzten Maximaldosen werden demgegenüber für die nächste Ortschaft (Submersions- und Inhalationsdosis), für die nächste Viehweide (Schilddrüsendosis durch Jod-Ingestion) und für das nächste Ackerland (Sr-90-Ingestionsdosis) ermittelt.
- 4) Die Dosisfaktoren werden überschätzt:
 - Bei externer Beta-Strahlung wird die Selbstabschirmung der Haut vernachlässigt.
 - Bei der Berechnung der Inhalationsdosis radioaktiver Aerosole wird der Dosisfaktor des Nuklidgemischs durch denjenigen des Nuklids höchster Radiotoxizität ersetzt.
 - Der Schilddrüsen-Dosisfaktor für Jod-Ingestion über den Weide-Kuh-Milch-Pfad wurde seitens der vorgesetzten Behörde vorgeschrieben.
 - Bei der Berechnung von Äquivalentdosen durch die Ingestion von Strontium über den Verzehr von Gemüse und pflanzlichen Produkten werden konservative Faktoren verwendet, die insgesamt zu einer erheblichen Überschätzung der Ingestionsdosis führen.

Die Zusammenfassung dieser verschiedenen Effekte, s. Tab. 4320-4, zeigt, daß zum Teil eine ganz erhebliche Diskrepanz zwischen konservativ und realistisch abgeschätzten Äquivalentdosen besteht. Die Diskrepanz ist umso größer, je mehr Faktoren bei der Berechnung eines Expositionspfades zu berücksichtigen sind; sie ist am größten bei den Ingestionsdosen.

Literatur

- /1/ W. Hübschmann, D. Papadopoulos;
Seminar on Radioactive Effluents from Nuclear Fuel Reprocessing
Plants, Karlsruhe, 22./25.11.1977, Commission of the European
Communities

Tab. 4320-4 Überschätzungsfaktoren der einzelnen Belastungspfade

Nuklid bzw. Nuklidgruppe	Kr-85	α -aktive Aerosole	β -aktive Aerosole	J-129		Sr-90	
	externe β - Strahlung	Inhalation	Inhalation	Inhalation	Ingestion	Ingestion	
Körperteil bzw. Organ	Haut	Knochen	Lunge	Schilddrüse		Knochen	Ganzkörper
Dosis-Überschätzung durch							
Aktivitätsemission	3,8	2,2	12,5	1,0		3,3	
Kaminüberhöhung	1,4	1,4	1,4	1,4		1,4	
ungünstigster Auf- punkt	8	8	8	8	160	3,2	
Dosisfaktor	1,3	4,7	1,5	1	10,8	2,1	35
Gesamt-Überschätzung	55	115	210	11	2400	30	520

4320 -TUH Erstellung und Erprobung eines neuen Rechenprogramms für die Berechnung der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre unter instationären Bedingungen in ausgedehnten Regionen
(H. Schultz, E. Voelz, C.D. Wüneke, Arbeitsgr. f. Technischen Strahlenschutz der T.U. Hannover

Beide Versionen des Programms XPIC zur Berechnung der atmosphärischen Schadstoffausbreitung nach der particle-in-cell-Methode (PIC) wurden weiter verbessert und ergänzt. Dabei wird mit der Version A die Ausbreitung einer einzelnen Schadstoffwolke in einem expandierenden Zellensystem und mit der Version B die Schadstoffausbreitung in einem sehr großen festen Zellensystem simuliert.

Im einzelnen sind folgende Verbesserungen und Erweiterungen vorgenommen worden:

A) Programmtechnische Verbesserungen.

1. Datenübergabe von Version A zu Version B.

Beide Versionen können jetzt die Schadstoffausbreitung von vorgegebenen Quellteilchenverteilungen bis zum maschinellen Ausdruck der Isoplethen der Belastung am Erdboden in einem durchgehenden Rechenlauf behandeln. Darüberhinaus können aber auch beide Versionen in Kombination verwendet werden, wobei die Schadstoffwolke solange mit dem expandierenden System (Version A) verfolgt wird, bis sie die Anfangsbedingungen der Version B erfüllt und in Form einer Teilchenverteilung in das feste Zellensystem übernommen werden kann. So lassen sich Inhomogenitäten in einem größeren interessierenden Bereich besser behandeln.

2. Erfassung der Ablagerung.

Durch Einführung einer zusätzlichen Teilchensinkgeschwindigkeit zur Advektionsgeschwindigkeit in Verbindung mit dem schon vor-

handenen statistischen Verfahren zur Verminderung der Teilchenzahl in der bodennahen Zellschicht durch "Russisches Roulette" ist es jetzt möglich, auch Ablagerungsprobleme zu erfassen, sofern die zugehörigen Bestimmungsgrößen bekannt sind.

3. Maschinelles Zeichnen von Belastungsisoplethen

Aus der nach jeder Rechnung vorliegenden Belastungsverteilung am Erdboden werden abschließend bei bestimmten Grenzwerten für die Belastung automatisch Kurven gleicher Belastung, Isoplethen, gezeichnet, wobei diese Grenzwerte entweder frei wählbar oder bereits in festen Stufen vorgegeben sind. Außerdem wird in diesem Zeichenausdruck die Lage des Belastungsmaximums markiert, bzw. die Trajektorie der Wolkenmittelpunkte aufgezeichnet.

4. Verkürzung der Rechenzeit

Durch programminterne Optimierung und spezielle Maßnahmen zur besseren Ausnutzung der Rechanlage konnte die Rechenzeit um 15% verkürzt werden.

B) Vergleich theoretischer und experimenteller Turbulenzmodelle

Belastungsrechnungen für gleiche meteorologische Situationen mit höhenabhängigen und zeitkonstanten, turbulenten vertikalen Diffusionskoeffizienten K_z aus unterschiedlichen theoretischen Ansätzen ergaben beträchtliche Abweichungen untereinander und gegenüber Messungen im Kernforschungszentrum Karlsruhe. Rechnungen mit Diffusionskoeffizienten, die über den Prandtlischen Mischungslängenansatz aus Windgeschwindigkeiten und -fluktuationen abgeleitet wurden, führten zu wesentlich besserer Übereinstimmung mit den Karlsruher Ergebnissen /Dilger, 1977 mdl./.

Außerdem wurde mit höhenkonstanten aber transportzeitabhängigen Diffusionskoeffizienten nach der statistischen Theorie gerech-

net. Wenn man dabei die neuen Standardabweichungen σ nach Pasquill [1974] verwendet, lassen sich auch Bodenrauigkeiten berücksichtigen. Mit den Daten für größere Rauigkeitslängen z_* können dann die Ausbreitungsverhältnisse in vielen Fällen, zumindest für die neutrale Diffusion, realistischer als bisher nachgebildet werden.

Abb. 1 zeigt für 100 m Emissionshöhe bei neutralen Diffusionsbedingungen die mit verschiedenen Diffusionskoeffizienten mit XPIC berechneten Belastungen.

1. Turbulente vertikale Diffusionskoeffizienten, höhenabhängig aber zeitkonstant,
 - 1.1 gemäß Lösung der Navier-Stokesschen Gleichungen nach Wippermann [1973]
 - 1.2 gemäß der Prandtlschen Mischungslängenhypothese, Lösung nach Blackadar [1962]
 - 1.3 gemäß der Prandtlschen Mischungslängenhypothese, mit Rückführung auf Karlsruher Fluktuationmessungen, Dilger mündlich [1977]
2. Turbulente vertikale Diffusionskoeffizienten, höhenkonstant aber transportzeitabhängig,
 - 2.1 abgeleitet aus dem bisherigen Ausbreitungsmodell nach Pasquill [1962]
 - 2.2 abgeleitet aus den neuen Daten von Pasquill [1974] für verschiedene Bodenrauigkeiten
 - 2.2.1 Rauigkeitslänge $z_* = 0,01$ m
 - 2.2.2 " $z_* = 0,10$ m
 - 2.2.3 " $z_* = 1,00$ m

Die Berechnungen nach 1.3 und 2.2.3 kommen den Meßergebnissen in Karlsruhe am nächsten.

Durch schrittweise Anwendung der aus dem Pasquillschen Ausbreitungsmodell abgeleiteten Diffusionskoeffizienten wurde die Ausbreitung über Gebieten mit unterschiedlicher Bodenrauigkeit

berechnet. Dabei wurde zu einer Berechnung mit XPIC übergegangen, sobald das Gaußverteilungsmodell wegen der Inhomogenitäten im Wolkenbereich zu große Fehler ergeben hätte. Es zeigte sich, daß die Lage und der Betrag des Belastungsmaximums weitgehend von der vorgeschalteten Gaußverteilungsrechnung abhängen.

C) Vereinfachte Berechnungsmethode für die Belastung.

In einem PIC-Programm sind zwei Arten der Belastungsberechnung möglich:

1. In einem ortsfesten Zellensystem können an einem festen Ort die zeitlich aufeinanderfolgenden Konzentrationsbeiträge aufsummiert werden oder
2. in einem mit der Abluftwolke mitbewegten System können wie im Gaußschen Abluftmodell zu einem festen Zeitpunkt alle ortsabhängigen Konzentrationsanteile aufsummiert werden, die zeitlich aufeinanderfolgend über dem Empfänger vorbeistreichen werden.

Die zweite Möglichkeit spart rechentechnisch Zeit und Speicherplätze. Sie darf aber nur bei einer höhenkonstanten Windgeschwindigkeit angewendet werden und dann, wenn sich die Konzentrationsverteilung während des Vorbeistreichens am Empfänger nicht wesentlich ändert. Im Gaußschen Abluftmodell werden diese Bedingungen vernachlässigt. Durch geeignete Kombination der Verfahren 1. und 2. zur Belastungsberechnung wird es vermutlich möglich sein, eine passende Ersatzgeschwindigkeit zu 2. zu ermitteln, mit der diese zeit- und kapazitätssparende Methode auch dann bei XPIC eingesetzt werden kann, wenn die beiden Bedingungen nicht unmittelbar erfüllt sind.

Literatur

Blackadar, A.K.: The Vertical Distribution of Wind and
Turbulent Exchange in a Neutral Atmosphere, J.Geophys.
Research, Vol. 67, No. 8, July (1962), S. 3095

Pasquill, F.: Atmospheric Diffusion [1. Ed.],
van Nostrand, London 1962

Pasquill, F.: Atmospheric Diffusion [2. Ed.],
John Wiley Sons, London 1974

Wippermann, F.: The Planetary Boundary Layer of the
Atmosphere, Annalen der Meteorologie, Deutscher
Wetterdienst, Offenbach
"Analen der Meteorologie", Neue Folge Nr. 7 (1973) s. 314-321

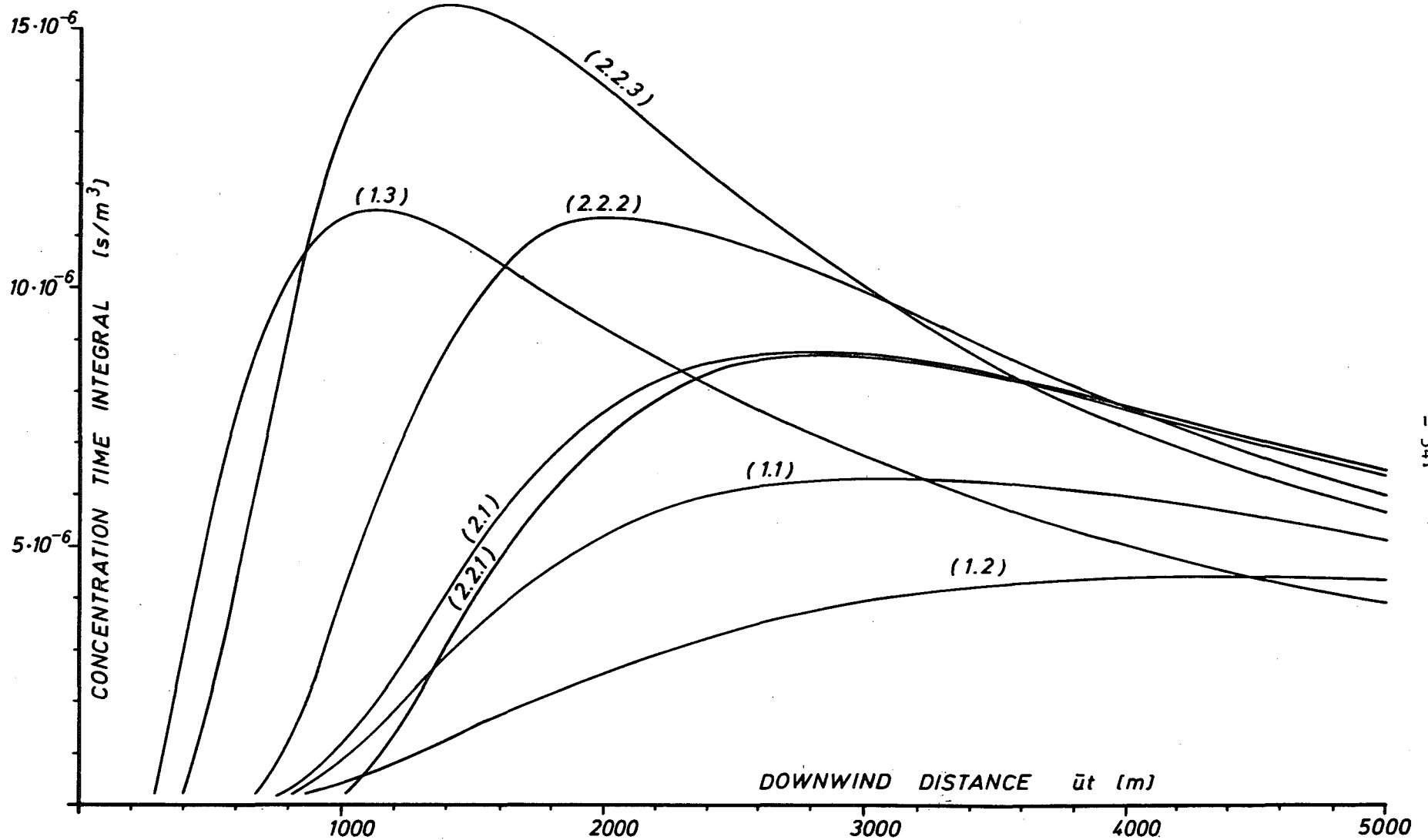


Abb.1 Belastungen nach einer loom hohen Emission bei neutraler Diffusion mit Windrichtungsscherung, berechnet mit der "particle-in-cell"-Methode mit unterschiedlich bestimmten vertikalen Diffusionskoeffizienten K_z , Bestimmungsmethoden s. Text.

4330 Untersuchung der radiologischen Folgen von Reaktorunfällen unter probabilistischen Gesichtspunkten

(W. Hübschmann, S. Vogt, ASS;
A. Bayer, K. Burkart, M. Schückler, INR)

1. Gesamtdarstellung des Unfallfolgenmodells

Im Rahmen der deutschen Risiko-Studie (DRS) zur Beurteilung der Sicherheit von Kernkraftwerken mit Druckwasserreaktoren an Standorten in der Bundesrepublik erstellt KfK/PNS das Unfallfolgenmodell. Unter Unfallfolgen sind die möglicherweise auftretenden gesundheitlichen Schäden der Bevölkerung in der Umgebung der Anlage zu verstehen.

Über das Programmsystem UFO(=Unfallfolgen) wurde in /1/, /2/ und /3/ berichtet.

Das Unfallfolgenmodell beschreibt im wesentlichen

- a) die Ausbreitung der aus dem Kernreaktor freigesetzten radioaktiven Schadstoffe in der Atmosphäre sowie ihre Ablagerung auf dem Boden,
- b) die dadurch hervorgerufene Strahlenexposition und die gesundheitlichen Schäden der betroffenen Personen,

es berechnet

- c) die Zahl der von akuten oder späten Schäden betroffenen Personen unter Berücksichtigung eventueller Gegenmaßnahmen wie Räumung oder Evakuierung, und
- d) das Gesamtrisiko der verschiedenen Unfalltypen für die Bevölkerung.

Erste Ergebnisse der DRS wurden in /2/ und /3/ berichtet. Die gezeigten Ergebnisse stellen nicht das endgültige Resultat einer Risikostudie dar.

Sie dienen einerseits dazu, die Vorgehensweise und typische Ergebnisse des Unfallfolgenmodells exemplarisch aufzuzeigen. Andererseits können mit ihrer Hilfe die bei der Untersuchung schwerer Störfälle zu beachtenden Probleme eingegrenzt, und die Modelle anhand der amerikanischen-Reaktor-Sicherheits-Studie geprüft werden.

2. Standortregionen

Da die Berechnung der Unfallfolgen aus Gründen der Rechenzeit und des Speicherplatzes nicht an allen realen Standorten durchgeführt werden kann, wurden sogenannte Standortregionen abgeleitet:

- Norddeutsche Tiefebene
- offene Flußlage in Süddeutschland (Oberrheinische Tiefebene)
- Hochebene in Süddeutschland (Isar - Donauebiet)
- eingeschlossene Tallage am Beispiel des Neckartales

Die vier Standortregionen überdecken im wesentlichen das Gebiet der Bundesrepublik. Es wurde sichergestellt, daß die benötigten meteorologischen Daten für diese Regionen vorhanden sind.

3. γ -Strahlung vom Boden

Für zukünftige Modellentwicklungen insbesondere hinsichtlich Evakuierungs- und Räumungsmaßnahmen ist der zeitliche Aufbau der γ -Strahlung von den am Boden abgelagerten Nukliden von Interesse. Daher wurden für den angenommenen Unfall "Spätes Überdruckversagen" und verschiedene Wetterabläufe die Knochenmarksdosen aufgrund der Strahlung vom Boden berechnet. In Abb. 4330-1 ist als Beispiel die Knochenmarksdosis in 1 km Entfernung unter der Fahnenachse bei neutralen Ausbreitungsbedingungen dargestellt.

Bei Freisetzungsphase 1 und 2 handelt es sich um eine "kalte" Abluftfahne; in Phase 3 (Freisetzung beim Überdruckversagen nach 30 h) wird thermische Energie freigesetzt, die zu einem Aufstieg der Abluftfahne auf 105 m führt. Der Nullpunkt der Zeitskala ist festgelegt durch den Zeitpunkt, an dem die Abluftfahne der ersten Phase den ersten Aufpunkt erreicht.

Den größten Beitrag zur Gesamtdosis liefern die Nuklide, die in der zweiten Emissionsphase freigesetzt werden. Der Beitrag der in der dritten Phase freigesetzten Nuklide ist geringer, da die zeitliche Verzögerung der Freisetzung die Integrationszeit reduziert. Außerdem ist, bedingt durch erhöhte Windgeschwindigkeit und größere Emissionshöhe, die atmosphärische Verdünnung in der dritten Phase etwa 4 mal wirkungsvoller als in der zweiten Phase. Weiterhin zerfallen die für kurze Integrationszeiten wirkungsvollen kurzlebigen Jodisotope in der Zeit zwischen Beginn der zweiten und dritten Phase (29 Stunden) zu einem beträchtlichen Teil. Durch diese Einflüsse wird die etwa 10-fach höhere Emission der Jodisotope der dritten Phase kompensiert.

Für längere Integrationszeiten werden vor allem Cs-134 und Cs-137 zu den wichtigsten Nukliden (siehe unten). Die Cs-137-Emission der Phasen 1 und 3 verhält sich wie 1,0 : 1,4. Dies und das Verhältnis der Ausbreitungsfaktoren erklärt für lange Integrationszeiten das stärkere Ansteigen der Knochenmarksbelastung in der 1. Phase gegenüber der 3. Phase. Mit dieser Aufschlüsselung in die Beiträge der einzelnen Phasen wird gezeigt, daß es nicht immer möglich ist, eine Emissionsphase schon nach der freigesetzten Aktivitätsmenge eindeutig als in gesundheitlicher Hinsicht gefährlichste Phase anzusprechen.

Infolge der unterschiedlichen Halbwertszeiten der Nuklide ist es nicht notwendig, alle Nuklide bei der Berechnung der Langzeitdosis durch Strahlung vom Boden zu berücksichtigen. Um ab einer Bestrahlungsdauer von 30 d die Dosis auf 1 % Genauigkeit zu berechnen, genügt es, folgende 10 Nuklide in die Berechnung einzubeziehen:

Co-60
Nb-95
Zr-95
Ru-103
Ru-106
J-131
Cs-134
Cs-136
Cs-137
Ba-140

Diese Nuklidliste stimmt weitgehend mit der in WASH-1400 angegebenen überein. Anstelle von Co-58 erscheint hier aber Ba-140. Es muß betont werden, daß diese Liste nur auf der Freisetzungsmatrix des Unfalls "Spätes Überdruckversagen" basiert. Andere Freisetzungsmatrizen können diese Liste verändern.

4. Berechnung der Unfallfolgen

Die Ergebnisse der Schadensberechnungen /4/ sind in den Abb. 4330-2 und 4330-3 für die Schadensarten "akute Todesfälle, somatische Spätschäden und genetische Schäden" in Form von bedingten komplementären Wahrscheinlichkeitsverteilungen dargestellt.

Bei den akuten Todesfällen wurde ein Vergleich des Einflusses von verschiedenen Dosis-Wirkungs-Beziehungen durchgeführt. Neben der in der Reactor Safety Study (WASH-1400) verwendeten Beziehung FV-B wurde eine von der GSF vorgeschlagene Kurve berücksichtigt (Abb. 4330-4). Die Ergebnisse unterscheiden sich nur geringfügig, da die akuten Schäden bei hohen Dosen auf geringe Entfernungen beschränkt bleiben. Bei den somatischen Spätschäden (Krebsfälle) wurde die Schadens-Eintrittswahrscheinlichkeit durch protrahierte Bestrahlung entsprechend dem "central estimate" der Reactor Safety Study (WASH 1400) angewandt (Abb. 4330-5). Als Gegenmaßnahmen wurden neben den Bevölkerungsbewegungen durch Evakuierung und Umsiedlung (Abb. 4330-6) noch das Verwerfen von Milch und Ernten berücksichtigt.

Parallel zur Erzielung erster Ergebnisse wurde das Programmsystem UFO-DOWI in einigen Details weiterentwickelt /5-7/.

In den Berichtszeitraum fiel auch der Beginn der Arbeiten zum Evakuierungsmodell für die deutsche Risikostudie. In Diskussionen und beim Literaturstudium wurde klar, daß in der Bundesrepublik erhebliche Bedenken gegen das Evakuierungs- und Umsiedlungsmodell bestehen, das bei der amerikanischen Studie WASH-1400 Verwendung fand. Es wurden die Grundlagen des amerikanischen Modells analysiert und Vorstellungen zum Vorgehen bei der deutschen Studie entwickelt.

Im Rahmen einer Reihe von Besprechungen während einer USA-Dienst-
reise konnten einige Zweifelsfälle bei der Interpretation der
Modelle der Reactor Safety Study (WASH-1400) klargestellt werden
sowie laufende und zukünftige Untersuchungen auf dem Gebiet der
Risikoanalyse in Erfahrung gebracht werden /8/.

Literatur:

/1/ Projekt Nukleare Sicherheit, 10. Halbjahresbericht 1976/II,
KFK 2345

/2/ W. Hübschmann, A. Bayer, F. Horsch, M. Schückler, S. Vogt,
Das Unfallfolgenmodell der deutschen Risikostudie aus:
1. GRS-Fachgespräch, München 1977
GRS-Bericht (in Vorbereitung)

/3/ PNS-Jahreskolloquium in Karlsruhe 1977, KFK 2570

/4/ 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 (überarbeiteter Zwischen-
bericht) Okt. 1977 (unveröffentlicht)

/5/ A. Bayer, M. Schückler,
Unfallfolgenmodell der deutschen Risikostudie -
Ortsraster der Bevölkerungsverteilung und der meteorologischen
Aufpunkte
Okt. 1977 (unveröffentlicht)

/6/ M. Schückler,
Untersuchungen zur Verknüpfung der Ortsdosen mit der Bevölkerungs-
verteilung im Fernbereich des Unfallfolgenmodells der deutschen
Reaktor-Risiko-Studie
Nov. 1977 (unveröffentlicht)

/7/ A. Bayer,

Die Berechnung der genetisch signifikanten Dosis
Dez. 1977 (unveröffentlicht)

/8/ A. Bayer,

Teilbericht einer USA-Reise, Nov./Dez. 1977
Dez. 1977 (unveröffentlicht)

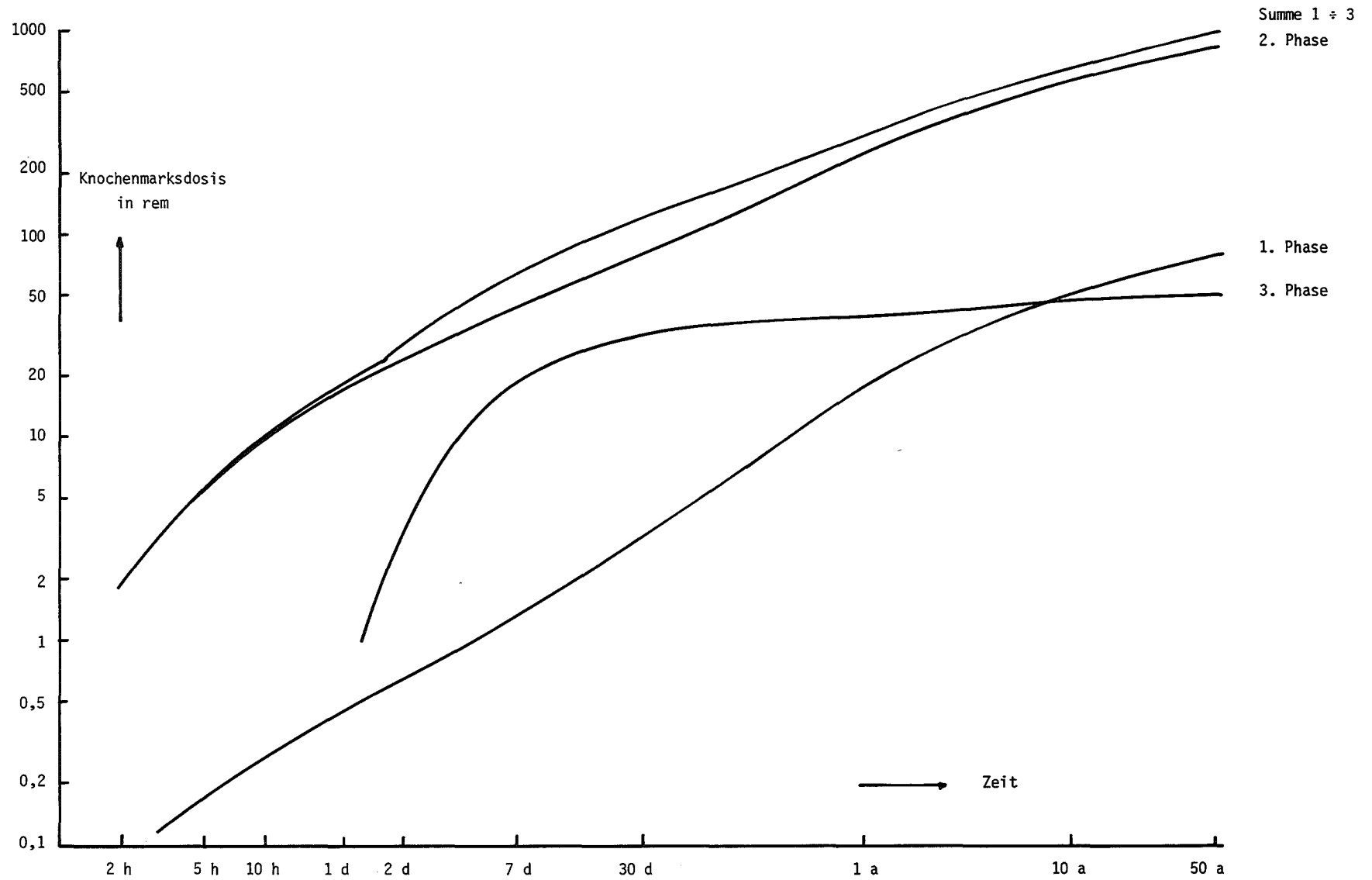


Abb. 4330-1 γ - Strahlung vom Boden in 1 km Entfernung, Wetterverlauf a

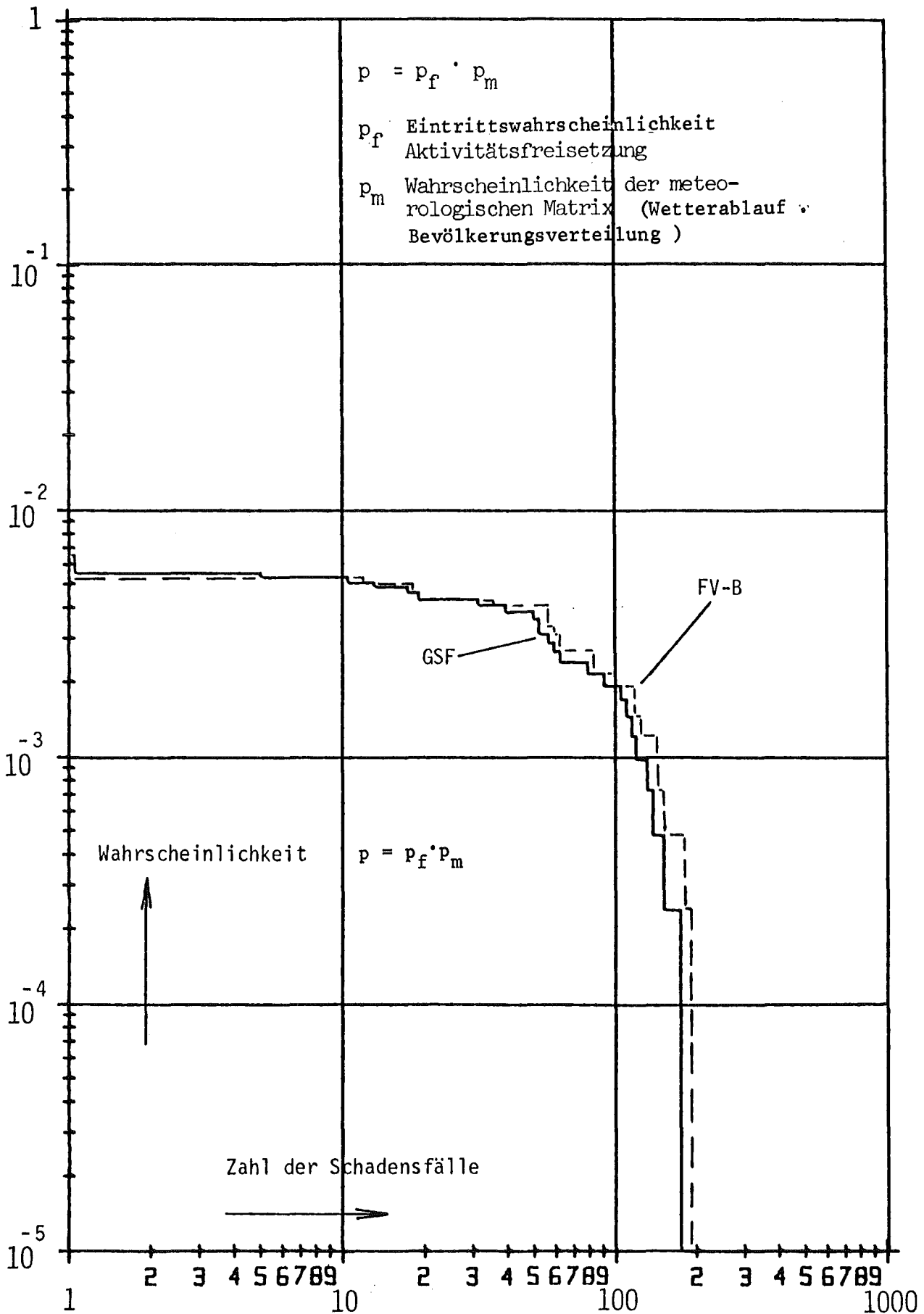


Abb. 4330-2: Verteilungsfunktion für die Schadensart "akuter Tod"
 Unfalltyp: Spätes Überdruckversagen

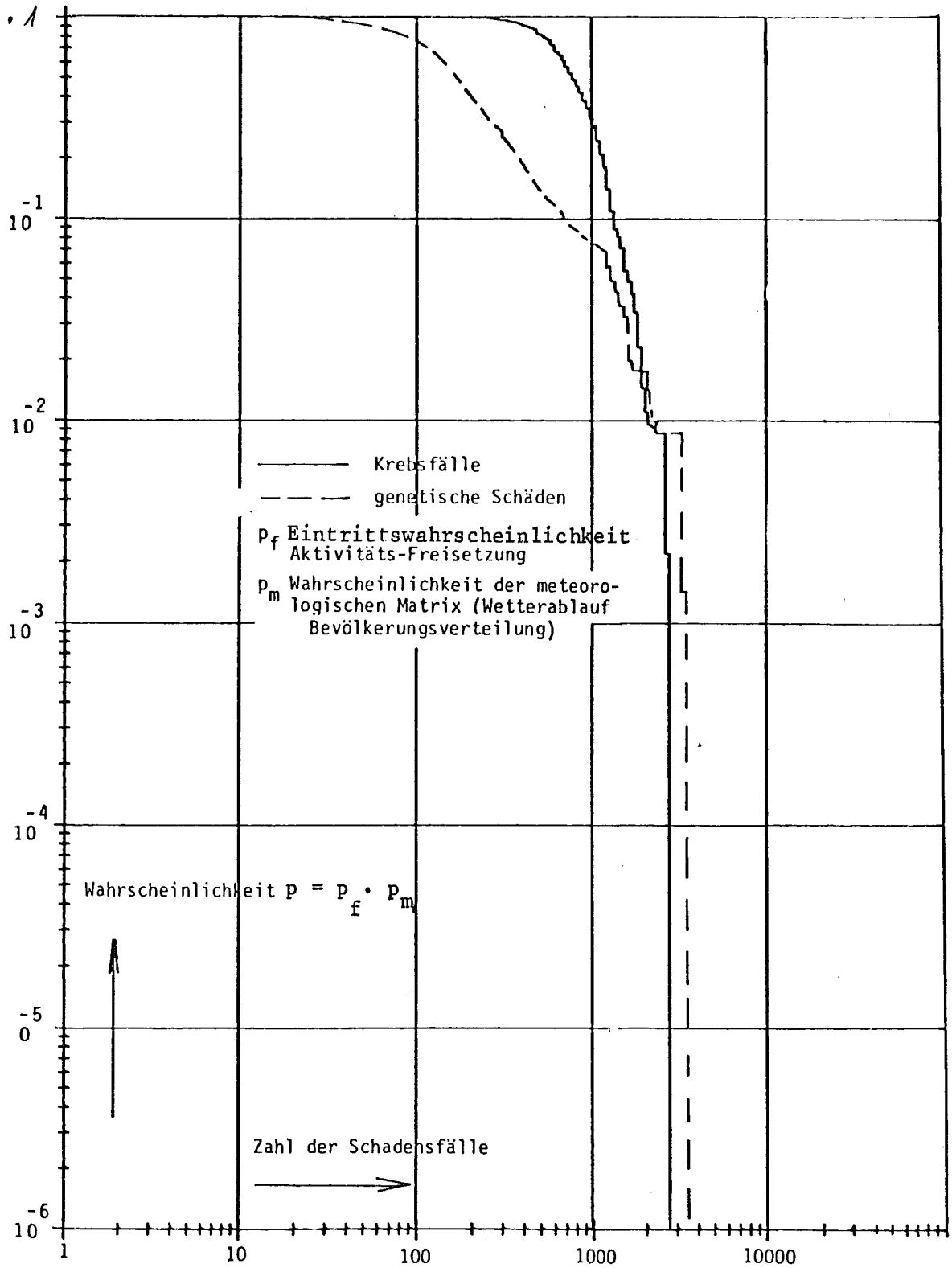


Abb. 4330-3: Verteilungsfunktion für die Schadensart somatische Spätschäden (Krebsfälle) und genetische Schäden
Unfalltyp: "Spätes Überdruckversagen"

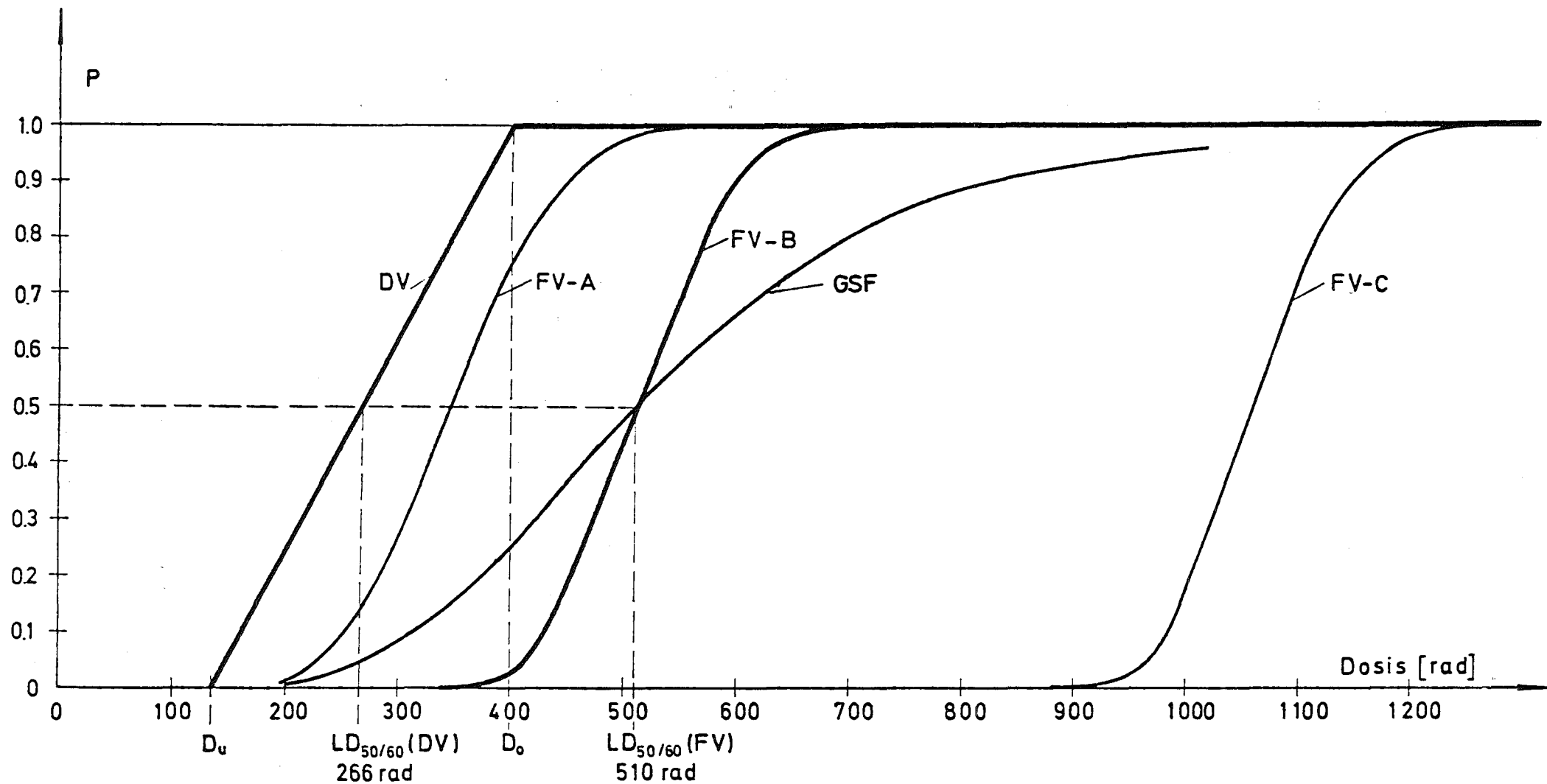


Abb. 4330-4: Wahrscheinlichkeit für "akuten Tod"

FV: aus WASH-1400 (Final Version)

GSF: von der Gesellschaft für Strahlenforschung, Neuherberg, vorgeschlagen

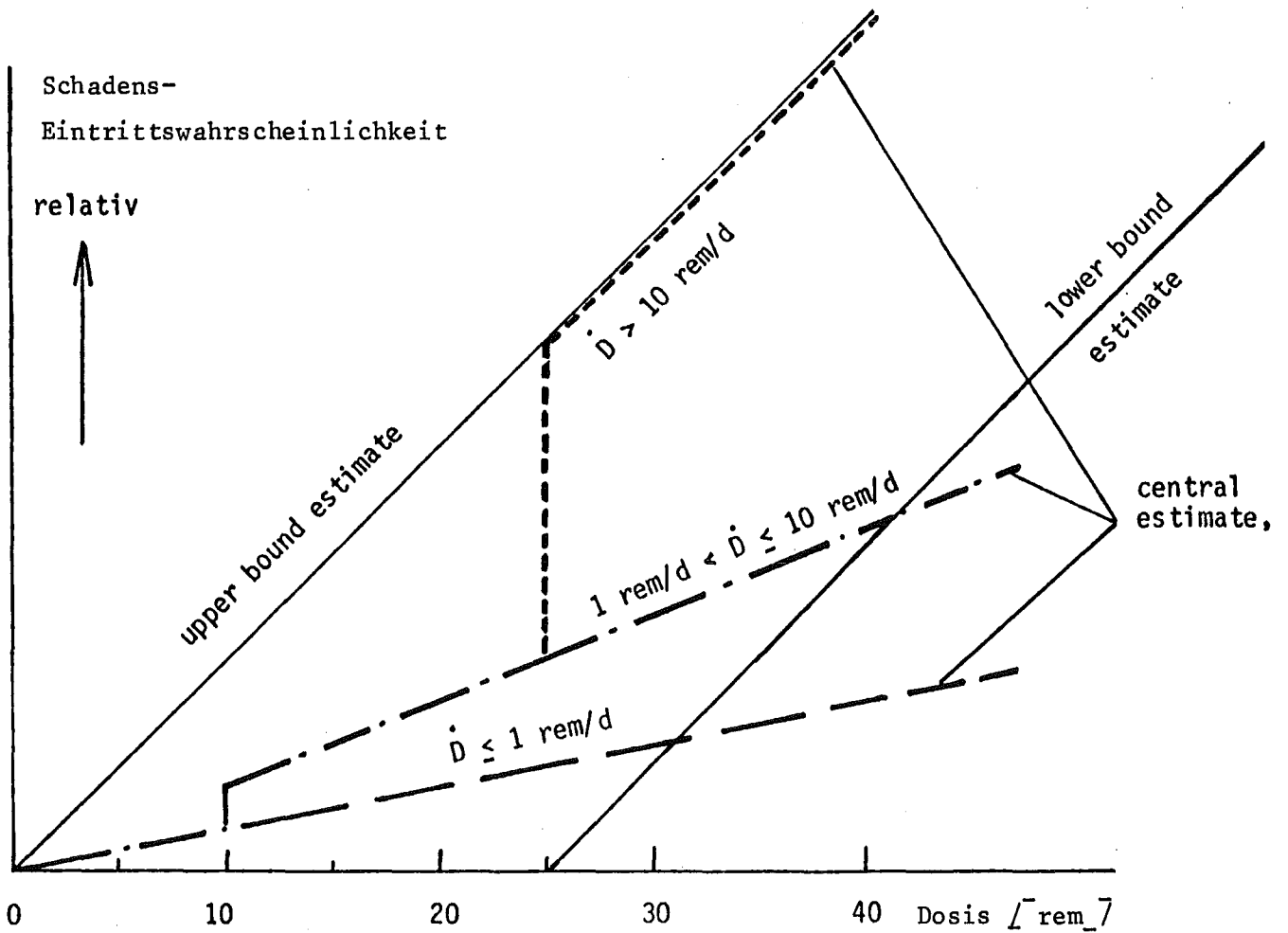


Abb. 4330-5: Risikofaktoren somatischer Spätschäden (Krebsfälle)
aus WASH-1400 (Final Version)

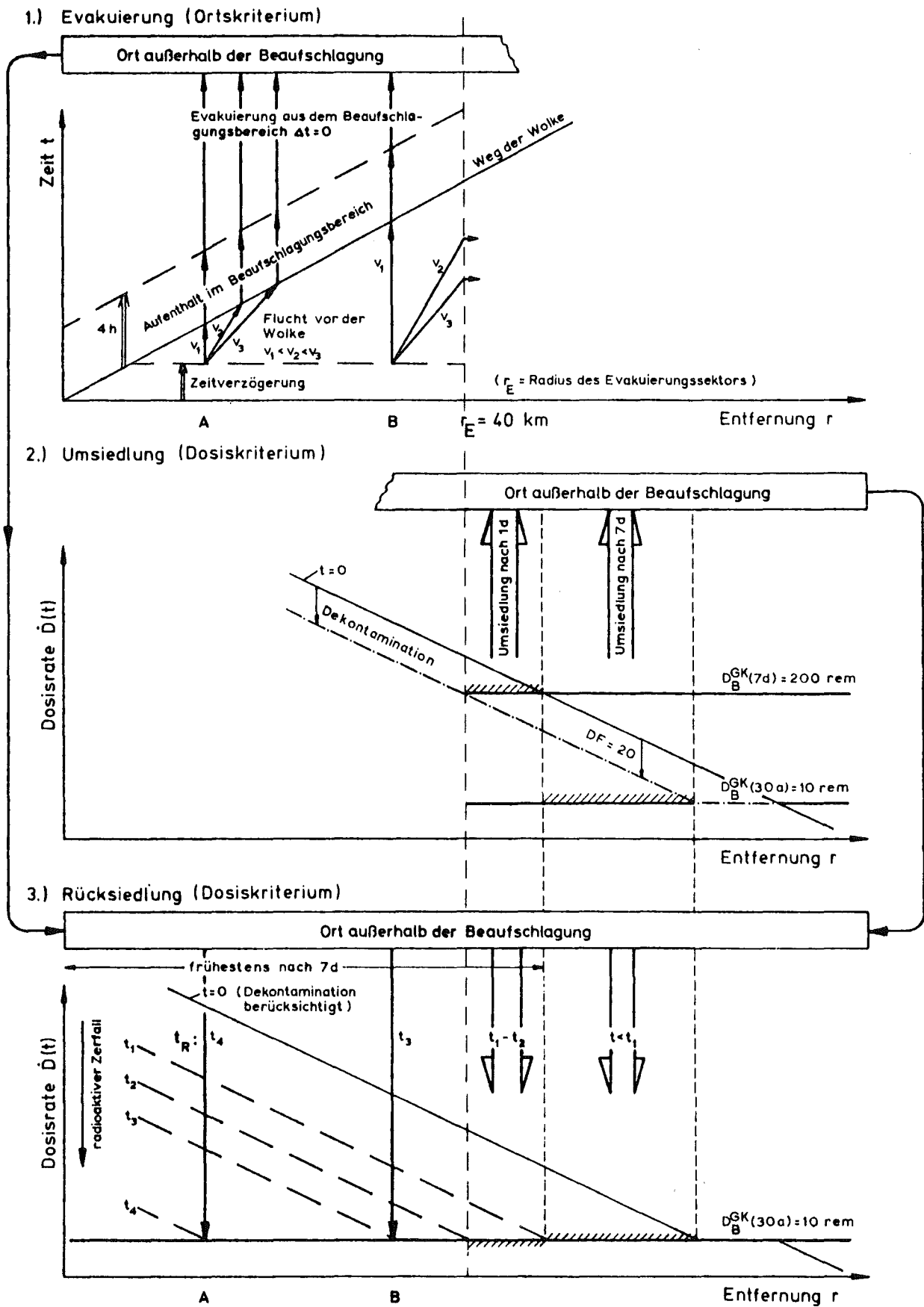


Abb. 4330-6: Bevölkerungsbewegungen als Gegenmaßnahmen gegen akute und chronische Schäden

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)

Am Ende des 1. Halbjahres 1977 zeigte der entwickelte alkalische Reiniger im Vergleich mit dem 1973 entwickelten sauren Reiniger, daß

1. die Dekontaminationswirkung an allen untersuchten Oberflächen geringfügig erhöht werden konnte,
2. durch weitere Reduzierung der Schaumwerte die störungsfreie Aufarbeitung der radioaktiven Abwässer noch verbessert und
3. die für das Bituminieren der Reinigerrückstände erforderliche thermische Stabilität erreicht wurde.

Als Nachteil stellte sich - trotz dieser Verbesserungen - die auftretende Trübung dieses Reinigers heraus. Aufgabe und Ziel weiterer Versuche war es, diese Trübung durch Lösungsvermittler zu beheben. Außerdem konnten die vergleichenden Untersuchungen der in kerntechnischen Anlagen und radiochemischen Laboratorien verwendeten Reinigungsmittel abgeschlossen werden.

Erzielte Ergebnisse

1. Vergleichende Untersuchungen von Reinigern

Die Ergebnisse von 25 auf dem Markt erhältlichen Reinigungsmitteln (siehe Tabelle 4411-1+2) zeigen, daß nur drei der geprüften Produkte wie Muster 14 (fest, alkalisch reagierend, vorwiegend anorganischer Zusammensetzung), Muster 23 und 25 (flüssig, sauer reagierend, vorwiegend organischer Zusammensetzung) gleichzeitig den drei Anforderungen an Dekontaminationswirkung, Schaumverhalten und thermischer Stabilität zufriedenstellend entsprechen.

Es wurde festgestellt:

Muster 14 - sehr gute thermische Stabilität, zufriedenstellende Schaumwerte und Dekontaminationswirkung

Muster 23 + 25 - sehr gute Dekontaminationswirkung und Schaumwerte, zufriedenstellende thermische Stabilität.

2. Ergebnisse mit Lösungsvermittlern

Die geringsten Mengen an Lösungsvermittler wurden bei Verwendung von neutralem Phosphatester (1 Gew.-% wasserfreie Substanz) (siehe Tabelle 4411-4) gebraucht. Die Dekontaminationsergebnisse dieses Reinigers sind aus Tabelle 4411-3 zu entnehmen. Es ist ersichtlich, daß der entwickelte Reiniger gute Wirkung zeigt. Die für das Bituminieren notwendige thermische Stabilität von mindestens 200° C wurde erreicht.

3. Erprobung des entwickelten Reinigers

Mehrere 10 kg-Chargen dieses Reinigers wurden im Labor hergestellt und in der Gerätedekontamination der Abteilung Dekontaminationsbetriebe (ADB) getestet. Kontaminationen an Fußböden, Manipulatoren etc. konnten mit Erfolg entfernt werden.

Durchgeführte Arbeiten

1. Vergleichende Prüfungen

Diese umfaßten die Bestimmung des pH-Wertes (Glaselektrode), des Feststoffgehaltes nach dem Trocknen bei 105° C und nach dem Veraschen bei 875° C, der Schaumentwicklung und -beständigkeit durch Reibung einer Perlonbürste an einem Siebzylinder bei konstanter Tourenzahl (nach Dr. H. Wilmsmann) sowie die Dekontaminationswirkung.

2. Dekontaminationswirkung

2.1. 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- und/oder salpetersauren Radionuklidmischung, welche ^{144}Ce , ^{106}Ru , ^{137}Cs und ^{60}Co in annähernd gleicher Konzentration enthält (spez. Aktivität der Lösung ca. 2 $\mu\text{Ci/ml}$) kontaminiert und bei 40° C zwei Stunden eingetrocknet.

2.2. 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 Reinigungslösung bei 60° C gerührt, die Plättchen herausgenommen, 10 Sekunden in destilliertem Wasser gespült, getrocknet und die Restaktivität entweder über γ -Messung an einem Vielkanalanalysator oder über β -Messung an einem digitalen Strahlungsmeßplatz bestimmt.

3. Thermische Stabilität

Die zu prüfenden Substanzen bzw. Dekontaminationsmittel wurden im Vakuumtrockenschrank bei $60^{\circ} \pm 2^{\circ}$ C und 10 bis 20 mm Hg 24 Stunden entwässert, kurz herausgenommen, umgerührt und nochmals 24 Stunden unter gleichen Bedingungen entwässert. Anschließend wurde die thermische Stabilität mit Hilfe der Differential-Thermoanalyse (DTA) ermittelt. Als Vergleichssubstanz diente bei ca. 1.000° C ausgeglühtes Aluminiumoxidpulver. Bei festgelegter Aufheizgeschwindigkeit und vorgewählter Endtemperatur von 350° C wurden alle endo- und exothermen Vorgänge aufgezeichnet.

Ausblick

Die Laborentwicklung des Reinigers ist abgeschlossen. In Kürze werden von diesem alkalisch-reagierenden Reiniger mehrere größere Chargen angesetzt und in der Praxis erprobt.

Tabelle 4411-1 EIGENSCHAFTEN VON REINIGERN

Reiniger	pH-Wert		Feststoffgehalt in %		Schaumentwicklungsrate		Schaumbeständigkeit in min.		Differential-Thermoanalyse			
	original	1 %-ige Lsg.	nach 2h b.105°C	nach 1h b.875°C	in ml/min bei 95°C der Lösung		bei 95°C der Lösungen		Reaktion in °C			
					0,5 %ig	10 %ig	0,5 %ig	10 %ig	endotherm schwach	endotherm stark	exotherm schwach	exotherm stark
Haushaltsreiniger												
1	10,5	9,5	16,0	2,6	40	180	2	0,5		125	228	
2	fest	8	95,1	63,2	> 300	260	10	15	60		191	
3	dickflüssig	7,1	55,0	11,3	180	270	5	X	111		209	
4	7,6	7,1	40,1	4,4	300	300	30	> 30	141		215	
Fußbodenreiniger												
5	10,6	7,8	56,0	6,4	160	180	6,5	X				
6	11,0	9,8	22,0	4,8	120	190	X	1		119		
7	9,4	8,8	46,0	4,2	20	240	< 0,1	6	133			
8	10,3	9,6	42,1	7,0	100	170	3	3	48	147		
Industriereiniger												
9	fest	11,8	94,7	84	> 300	> 300	X	X	82	223		
10	13	11,4	10,4	7,5	200	300	5	5		116	171	
11	4,4	5,0	34,1	10,2	170	120	6	3		124	230	
12	12,6	11,8	51,3	34,9	60	160	5	5		86		
Metallreiniger												
13	fest	5	99,8	66,7	30	< 5	< 0,5	< 0,5		169		
14	fest	10,1	99,3	94,9	80	20	2	2			247	
15	fest	12,8	92,6	80,8	150	20	2	5		96		
Dekontaminationsmittel												
16	13	11,6	14,2	7,2	160	180	10	9		136	305	
17	13,9	12,3	24,5	23,6	120	70	4	3		144		
18	13,5	10,8	16,2	11,2	80	200	3	8		96	216	
19	8,1	7,7	41,4	0,8	210	300	10	8		118		212
20	4,7	4,9	14,1	2,7	170	200	5	9	69	124		249
21	13,2	10,2	13,5	12,4	100	280	2	4		120	274	
22	14,0	11,9	16,4	11,2	170	210	2	X		132	197	
23	4,2	4,9	37,9	2,1	30	20	0,25	0,3	180			
24	fest	4,1	89,2	1,6	70	120	1	6		96		283
25	4,5	4,7	38,8	1,8	20	30	0,5	0,1		150		

x = Schaummenge größer als Meßvolumen

Tabelle 4411-2: Dekontaminationsergebnisse mit Reinigern an verschiedenen Oberflächen

Reiniger	Restaktivität in % nach 20 Minuten an			
	Edelstahl	PVC-Bodenbelag	Epoxidbeschichtung	Glas
<u>Haushaltsreiniger</u>				
1	6,3	0,8	0,1	0,4
2	10,9	4,2	0,2	9,5
3	13,1	4,3	0,5	8,4
4	12,6	3,6	0,6	9,3
<u>Fußbodenreiniger</u>				
5	14,1	4,7	1,4	19,0
6	2,1	0,8	0,1	4,3
7	4,1	2,2	0,2	3,7
8	11,9	2,3	0,4	3,7
<u>Industriereiniger</u>				
9	13,9	1,4	0,3	1,6
10	17,6	2,0	0,4	0,1
11	3,9	1,4	1,3	0,1
12	16,1	1,7	0,4	0,3
<u>Metallreiniger</u>				
13	18,4	2,9	1,4	0,8
14	2,8	0,8	0,2	0,7
15	29,8	19,5	1,4	29,1
<u>Dekontaminationsmittel</u>				
16	20,5	2,9	0,4	10,4
17	15,3	3,4	2,7	0,9
18	10,3	3,2	0,3	11,1
19	3,7	0,9	0,4	4,4
20	4,6	1,0	0,2	0,3
21	20,9	1,8	0,5	2,2
22	28,9	4,8	0,4	5,4
23	1,1	0,6	0,05	< 0,05
24	1,8	0,7	0,1	2,4
25	0,8	0,5	0,05	0,2

Tabelle 4411-3: Dekontaminationsergebnisse mit den geeignetsten Reinigern für spezielle Radionuklide

Dekontaminations- mittel	Kontaminations- träger	Restaktivität in %							
		nach 10 Minuten				nach 20 Minuten			
		Ce-144	Ru-106	Cs-137	Co-60	Ce-144	Ru-104	Cs-137	Co-60
Muster 14	Edelstahl (1.4541)	0,3	0,8	0,1	0,2	0,2	0,6	0,1	0,2
Muster 23		0,1	0,8	0,1	0,1	0,1	0,6	< 0,1	< 0,1
Muster 25		0,2	0,5	0,1	0,2	0,1	0,5	< 0,1	0,2
entwickelter Reiniger		< 0,1	< 0,1	< 0,1	0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Muster 14	Epoxid- beschichtung	1,3	1,7	1,0	1,4	0,6	0,6	0,3	0,4
Muster 23		0,4	0,2	0,2	0,3	0,3	0,6	0,1	0,3
Muster 25		0,6	0,1	0,1	0,4	0,4	0,4	< 0,1	0,3
entwickelter Reiniger		0,1	0,1	0,1	0,2	0,1	0,1	< 0,1	0,1
Muster 14	PVC-Boden- belag	0,4	0,8	0,4	0,3	0,3	0,5	0,3	0,2
Muster 23		0,5	0,8	0,3	0,3	0,2	0,5	0,1	0,2
Muster 25		0,5	0,7	0,4	0,3	0,3	0,5	0,2	0,2
entwickelter Reiniger		0,3	0,2	0,1	0,2	0,3	0,1	0,1	0,2
Muster 14	Borosilikat- glas	0,2	0,5	0,1	0,2	0,2	0,1	< 0,1	0,1
Muster 23		0,3	0,7	0,1	0,4	0,1	0,3	< 0,1	0,1
Muster 25		0,3	0,5	0,1	0,2	0,3	0,4	0,1	0,1
entwickelter Reiniger		0,3	0,1	0,1	0,2	0,2	< 0,1	< 0,1	0,1

Tabelle 4411-4: Ergebnisse von Lösungsvermittlern zur Entfernung der Trübungen im entwickelten, alkalischen Reiniger

Lösungsvermittler	erforderliche wasserfreie Mengen in Gew.-%	Thermische Stabilität des klaren alkalischen Reinigers/Zersetzungs- beginn ° C	
		endotherm	exotherm
Natriumcumolsulfonat	6	220	
p-Toluolsulfonsäure	7	146	180
Na-cumolsulfonat+p-Toluols.	3 + 4	206	219
saurer Phosphatester	1,6		235
neutraler Phosphatester	1,0		237

2. Optimierung der Systemdekontamination

(Dr. D. Hentschel, ABRA)

Erzielte Ergebnisse

In den Tabellen 4411-5 bis 4411-7 sind die Dekontaminationsergebnisse zusammengefaßt, die mit "AP-Prozessen" an kontaminierten Edelstahlproben erzielt wurden. Bei diesen Prozessen wird das Dekontaminationsobjekt mit einer alkalischen Kaliumpermanganatlösung von 80° C vorbehandelt, ehe das eigentliche Dekontaminationsmittel, eine Komplexbildnerlösung, bei einer Temperatur über 80° C zur Anwendung kommt. Aus den Tabellen lassen sich folgende Aussagen im Hinblick auf Dekontaminationswirkung der Chemikalien und Optimierung der Konzentration treffen.

- AP-Prozesse unter Verwendung ammoniakalischer Citronensäure (AC) geben bei allen untersuchten Konzentrationen keine befriedigenden Dekontaminationsergebnisse (Restaktivitäten sind > 10 %). Eine Verlängerung der Einwirkzeiten bringt keine besseren Ergebnisse, da sich die nach einer Stunde erzielte Restaktivität nur geringfügig von der nach zwei Stunden gemessenen unterscheidet. Außerdem sollten aus Einsparungsgründen wenn möglich nur Dekontaminationsmittel eingesetzt werden, bei denen man mit kurzen Einwirkzeiten auskommt.
- Setzt man zu der AC-Lösung Äthylendiamintetraessigsäure (Na-Salz), so erzielt man keine entscheidenden Verbesserungen in den Dekontaminationsresultaten. Es gilt das für AC gesagte.
- Tabelle 4411-5 zeigt, daß man bei Vorbehandlung mit einer 18/3-AP-Lösung (alkalische Kaliumpermanganatlösung mit 18 g Natriumhydroxid und 3 g Kaliumpermanganat in 100 ml Wasser) bei Verwendung von Oxalsäure (Ox), dibasischem Natriumnitrat/Oxalsäure (Citrox N) und ammoniakalischer Citronensäure/Oxalsäure (Citrox) als Dekontaminationsmittel gute Ergebnisse (Restaktivitäten \leq 10 %) erzielt.

- Die Wirksamkeit dieser Dekontaminationslösungen wird geringfügig herabgesetzt, wenn die Konzentration auf ein Viertel der Ausgangslösung vermindert wird. Die so erzielten Ergebnisse sind weiterhin als gut zu betrachten. Lediglich bei der 0,25 %-igen Oxalsäure wurde eine deutliche Verschlechterung der Dekontaminationsergebnisse beobachtet.
- In Tabelle 4411-6 sind die Versuchsergebnisse zusammengefaßt, die sich bei der Vorbehandlung mit einer 9/3-AP-Lösung (9 g Natriumhydroxid und 3 g Kaliumpermanganat in 100 ml Wasser) unter Verwendung der oben genannten Dekontaminationslösungen ergaben. Es ist ersichtlich, daß sich für Oxalsäure und Citrox zum Teil wesentliche höhere Restaktivitäten ergaben als für Proben, die mit der 18/3-AP-Lösung vorbehandelt waren. Unter Berücksichtigung der schlechten Reproduzierbarkeit der Ergebnisse läßt sich sagen, daß nur Citrox N, dessen Verdünnung auf ein Viertel der Ausgangskonzentration, Oxalsäure und Citrox in ihren üblichen Konzentrationen (siehe Tabelle) gute Dekontaminationsergebnisse liefern.
- Aus Tabelle 4411-7 ergibt sich, daß beim Einsatz einer 9/2-AP-Lösung (9 g Natriumhydroxid und 2 g Kaliumpermanganat in 100 ml Wasser) nur noch Citrox N, Oxalsäure sowie deren Verdünnungen auf ein Viertel der Ausgangskonzentration gute Dekontaminationsergebnisse liefern.

Die Versuchsergebnisse lassen folgende Aussagen über eine Optimierung der Dekontamination zu:

Entscheidend für die anfallende Abfallmenge ist in erster Linie die alkalische Permanganatlösung, da sie in ihrer Grundzusammensetzung mit 18 bzw. 3 g mehr Chemikalien enthält als das Dekontaminationsmittel (siehe Tabelle 4411-6). Ihr Einsatz ist aber für die Dekontamination bedeutend. Eine Senkung der Konzentration auf 9/3 g bzw. 9/2 g ist möglich, wenn man nach der AP-Behandlung die geeigneten Dekontaminationsmittel Oxalsäure oder Citrox N einsetzt. Dabei lassen sich auch, wie Tabelle 4411-6 und 4411-7 zeigt, Konzentrationen, die ein Viertel der Originallösung ausmachen, einsetzen. Allerdings sind in diesen Fällen geringfügig höhere Restaktivitäten als bei der Verwendung der 18/3-AP-Lösung zu erwarten. Die Optimierung stellt somit einen Kompromiß zwischen Dekontaminationswirkung und anfallender Abfallmenge dar.

An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, daß Oxalsäure schwer lösliche Niederschläge mit Eisen bildet, so daß ein Einsatz nicht zu empfehlen ist. Aus diesem Grund sollte nur Citrox N eingesetzt werden.

Die Abfallersparnis soll folgendes Beispiel zeigen:

Bei Verwendung von 18/3 AP und Citrox N fallen 28,7 g Festsubstanz pro 200 ml eingesetzter Lösung als Abfall an. Im beschriebenen Fall beträgt die Abfallmenge 13,9 g pro 200 ml, das heißt, daß nur etwa die Hälfte der Festsubstanz anfällt.

Durchgeführte Arbeiten

Aus den vorangegangenen Arbeiten ergab sich, daß keines der üblicherweise eingesetzten Dekontaminationsmittel wie zum Beispiel Oxalsäure, ammoniakalische Citronensäure und Citrat/Oxalsäure-Kombinationen allein geeignet ist, kontaminierte Werkstücke befriedigend zu dekontaminieren. Es zeigte sich vielmehr, daß die Wirkung dieser Mittel durch die Vorbehandlung mit alkalischer Permanganatlösung verstärkt wird.

Deswegen wurden, um die optimalen Bedingungen festzulegen, die entsprechenden Versuche mit Proben die im Autoklaven kontaminiert wurden, durchgeführt. Die Experimente gestalteten sich folgendermaßen: Nach Messung der Ausgangsaktivität wurden die Proben eine Stunde lang mit Permanganatlösung bis 80° C behandelt. Dann wurde die Restaktivität ermittelt. Danach schloß sich eine zweistündige Behandlung mit der eigentlichen Dekontaminationslösung bis 80° C an. Die Restaktivität wurde nach einstündiger Einwirkzeit und am Versuchsende ermittelt. Die Konzentrationen der Permanganatlösungen, die eingesetzten Dekontaminationsmittel sowie deren Konzentrationen sind in Tabelle 4411-5 bis 4411-7 verzeichnet.

Zur Klärung der Frage, ob sich durch ein kontinuierlich arbeitendes Verfahren die Dekontamination weiter optimieren läßt, wurde ein Kreislauf aufgebaut und erfolgreich erprobt.

Ausblick

Die Arbeiten zu diesem Thema sind am Jahresende 1977 abgeschlossen.

Es wird ein zusammenfassender Bericht erarbeitet.

Tabelle 4411-5

DEKONTAMINATIONSERGEBNISSE

Zusammensetzung AP ⁺	D _x ⁺⁺ nach 1 h AP-Behandlung			Dekontaminationslösung		Erzielte Restaktivität in % nach					
	Ce-144	Ru-106 ⁺⁺⁺	Co-60	Name	Zusammensetzung in g/100 ml H ₂ O	1 Std.			2 Std.		
						Ce-144	Ru-106	Co-60	Ce-144	Ru-106	Co-60
18 g NaOH + 3 g KMnO ₄ +100 ml H ₂ O	84,0		87,0	Ox	1,0 Oxalsäure· 2 H ₂ O	3,6		3,5	3,2		3,0
	80,2		87,2	CitroxN	3,3 Citronensäure, 3,0 Oxals., 1,4 NaOH	4,6		3,5	4,0		3,2
	87,8	48,9	93,3	Citrox	3,8 Oxals., 4,3 Citronens., 0,75 NH ₃	14,5	2,9	12,8	4,7	2,2	4,3
	85,8		90,6	CitroxN,v	0,8 Citronens., 0,75 Oxals., 0,35 NaOH	8,3		4,3	6,0		3,0
	90,0		92,2	Citrox,v	0,9 Citronens., 1,1 Oxals., 0,19 NH ₃	6,8		7,4	6,7		7,1
	79,3		83,8	Ox, v	0,25 Oxals., 2 H ₂ O	24,2		67,5	13,2		8,5
	84,1		86,7	ACE	8,5 Citronens., 1,5 NH ₃ , 0,4 EDTA	8,5		21,5	7,8		17,8
	91,3		95,2	AC	10,0 Dibasisches Amm.citr.	16,6		34,5	12,0		28,2
	90,0		85,6	ACE, v	2,1 Citronens., 0,4 NH ₃ , 0,1 EDTA	55,8		47,0	44,0		35,5
	94,6		96,7	AC, v	2,5 Dibasisches Ammoncitrat	45,0		62,1	37,1		55,4

+ AP = alkalische Permanganatlösung

++ D_x = Restaktivität in %

+++ gemessen wurde Rh

Tabelle 4411-6

DEKONTAMINATIONSERGEBNISSE

Zusammensetzung AP ⁺	D _x ⁺⁺ nach 1 h AP-Behandlung			Dekontaminationslösung		Erzielte Restaktivität in % nach					
	Ce-144	Ru-106 ⁺⁺⁺	Co-60	Name	Zusammensetzung in g/100 ml H ₂ O	Ce-144	1 Std. Ru-106	Co-60	Ce-144	2 Std. Ru-106	Co-60
9 g NaOH + 3 g KMnO ₄ + 100 ml H ₂ O	79,6		87,0	CitroxN	3,3 Citronens., 3,0 Oxals., 1,4 NaOH	5,2		3,9	4,3		3,5
	84,9		87,9	CitroxN,v	0,8 Citronens., 0,75 Oxals., 0,35 NaOH	5,9		7,8	5,0		6,6
	78,5		88,5	Ox	1,0 Oxals. · 2 H ₂ O	16,2		10,6	15,3		9,5
	88,6	46,0	91,1	Citrox	3,8 Oxals., 4,3 Ci- tronens., 0,75 NH ₃	18,1	3,2	13,8	17,4	2,9	12,9
	75,0		81,5	Ox,v	0,25 Oxalsäure	19,6		15,8	19,0		14,6
	85,6	49,8	92,2	Citrox,v	0,9 Oxals., 1,1 Ci- tronens., 0,19 NH ₃	47,1	7,5	27,3	30,0	5,0	18,8
	82,5		85,3	AC	10,0 Dibas. Amm. cit	10,2		34,5	7,5		28,6
	85,2	39,5	92,3	ACE	8,5 Citronens., 1,5 NH ₃ , 0,4 EDTA		38,7		24,3	17,0	34,2
	88,5	55,0	90,7	ACE,v	2,1 Citronens., 0,4 NH ₃ , 0,1 EDTA	51,8	44,4	60,0	44,0	23,2	43,0
	89,7		90,2	AC,v	2,5 Dibas. Ammon- citrat	34,0		51,0	29,0		48,0

+ AP = alkalische Permanganatlösung ++ D_x = Restaktivität in % +++ gemessen wurde Rh

Tabelle 4411-7

DEKONTAMINATIONSERGEBNISSE

Zusammensetzung AP ⁺	D _x ⁺⁺ nach 1 h AP-Behandlung			Dekontaminationslösung		Erzielte Restaktivität in % nach					
	Ce-144	Ru-106 ⁺⁺⁺	Co-60	Name	Zusammensetzung in g/100 ml H ₂ O	1 Std.			2 Std.		
						Ce-144	Ru-106	Co-60	Ce-144	Ru-106	Co-60
9 g NaOH + 2 g KMnO ₄ + 100 ml H ₂ O	84,8		90,5	Ox,v	1,0 Oxals. · 2 H ₂ O	9,6		5,4	9,3		4,5
	90,1		90,9	Ox	0,25 "	7,5		7,1	6,9		6,5
	82,0		86,5	CitroxN	3,3 Citronens., 3,0 Oxals., 1,4 NaOH	16,3		5,0	12,7		4,2
	87,2		95,9	CitroxN,v	0,8 Citronens., 0,75 Oxals., 0,35 NaOH	13,5		8,2	10,2		6,5
	92,1		89,0	ACE	8,5 Citronens., 1,5 NH ₃ , 0,4 EDTA	12,5		19,0	9,0		14,5
	90,0	53,1	91,7	Citrox	3,8 Oxals., 4,3 Citronens., 0,75 NH ₃	27,9	8,6	16,5	20,3	6,2	10,7
	94,6	52,1	96,6	Citrox,v	0,9 Oxals., 1,1 Citronens., 0,19 NH ₃	34,9	8,7	21,3	19,0	7,0	13,2
	86,5		90,3	ACE,v	2,1 Citronens., 0,4 NH ₃ , 0,1 EDTA	31,0		36,9	25,8		32,7
	92,1		94,3	AC,v	10,0 Dibas. Ammon- citrat	39,0		59,3	30,7		48,5
	92,4		96,0	AC	2,5 " "	34,1		55,4	33,4		49,3

+ AP = alkalische Permanganatlösung ++ D_x = Restaktivität in % +++ gemessen wurde Rh

4412 Wanderung langlebiger Transuranisotope (z. B. Pu-239, Am-241) im Boden und in geologischen Formationen

Beziehung der PuO₂-Mobilität zu bodenphysikalischen Eigenschaften

(A. T. Jakubick, ABRA)

Durchgeführte Arbeiten

Zur Bestimmung der Abhängigkeit der Mobilität des partikularen PuO₂ von den bodenphysikalischen Eigenschaften wurden drei ungestörte Entnahmestellen in der Nähe von Heidelberg ausgewählt. Bodenkundlich können die Standorte folgendermaßen charakterisiert werden:

	Geomorphologie	Pedologie	Mineralogie
I Golfplatz	sandige Niederterrasse bis Düne	Sand-(Para-) Braunerde	Quarz, Calcit
II Einsiedler	Bachaue	Vega (brauner Auenboden aus Auenlehm)	Quarz, Chlorit, Illit, Feldspat, Calcit
III Musterhof	alter Flußlauf	Pseudogley - Gley aus tonigem Auenlehm	Quarz, Chlorit, Illit, Mixed-layer, Tonminerale, Feldspat, Calcit

Die durchschnittliche Korngrößenzusammensetzung der Böden war:

%	Boden: I Golfplatz	II Einsiedler	III Musterhof
Korndurchmesser in mm			
< 2	94,5	99,8	99,1
0,63	75,0	99,3	98,2
0,2	16,0	98,6	96,8
0,063	4,0	91,5	94,9
0,002	-	21,2	24,3

Die Probenahme und Aufbereitung erfolgte ähnlich wie bereits im letzten Halbjahresbericht beschrieben. In 2 cm dicken Bodenschichten wurde die Pu-239 Konzentration (aus den atmosphärischen Waffentests der vergangenen Jahre) bestimmt. Mit Hilfe der bekannten Pu-239-Input Funktion und eines mathematischen Migrationsmodells konnte die Verweilzeit von PuO₂ durch Computersimulation berechnet werden.

Für die gleichen Bodenschichten wurden relevante bodenphysikalische Eigenschaften ermittelt und Korrelationen zu jeweiligen Verweilzeiten gesucht.

Erzielte Ergebnisse

Nachdem eine lineare, exponentielle und geometrische Regression zwischen den Meßwerten erprobt wurde, stellte sich heraus, daß zwischen PuO₂-Mobilität im Boden und den wichtigsten bodenphysikalischen Eigenschaften eine lineare Korrelation möglich ist.

Vorläufig können die folgenden Beziehungen aufgestellt werden:

1) Verweilzeit, τ in Jahren - spez. Oberfläche, s in m²/g

$$\tau = 0,214 s + 4,169$$

für den Bereich von ca. 0,5 - 20 m²/g

2) Verweilzeit, τ in Jahren - Ionenaustauschkapazität, T in mval/100 g

$$\tau = 0,137 T + 3,503$$

für den Bereich von ca. 5 - 30 mval/100 g

3) Verweilzeit, τ in Jahren - org. Kohlenstoff, C in %

$$\tau = 0,583 C + 4,009$$

für den Bereich von ca. 0,1 - 8 %

Die Korrelationskoeffizienten lagen in diesen Fällen zwischen 0,50-0,53. Trotzdem, daß solche Korrelationskoeffizienten für in situ Felduntersuchungen durchaus akzeptabel sind, für weitergehende Aussagen müssen die weiteren Untersuchungen abgewartet werden. Andere typische bodenphysikalische Eigenschaften, die auch untersucht wurden, wie zum Beispiel Porosität, Packungsdichte und Karbonatgehalt, brachten keine eindeutigen Ergebnisse.

Veröffentlichungen und Berichte zu Arbeiten im 2. Halbjahr 1977

11. Halbjahresbericht / 1. Halbjahr 1977 des Projekts Nukleare Sicherheit, KfK 2500, Sept. 1977

P. Ihle, S. Malang, K. Rust,
Reflood experiments with bundles of ballooned rods.
Symposium on Thermal and Hydraulic Aspects of Nuclear
Reactor Safety, Atlanta, Ga.,
Nov. 27 - Dec. 2, 1977

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.
Jaeger, T.A., Boley, B.A. (Hrsg.):
Transactions of the 4. Internat. Conference on Structural Mechanics
in Reactor Technology, San Francisco, Calif., Aug. 15 - 19, 1977
Vol. B. Luxembourg: Commission of European Communities 1977,
S. B. 5/2, 1-10

S. Malang, K. Rust,
Simulation of nuclear fuel rods with electrically heated rods
Symposium on Thermal and Hydraulic Aspects of Nuclear
Reactor Safety, Atlanta, Ga.,
Nov. 27 - Dec. 2, 1977

R. v. Ammon,
Die katalytische Reduktion von Sauerstoff und Stickoxiden mit
Wasserstoff im Abgas von WAA-Laborversuchen zum katalytischen
Verhalten,
KfK 2437, Okt. 1977

P. Ihle, S. Malang, K. Rust,
Thermohydraulic tests with bundles of ballooned rods simulating the
reflood-phase of a LOCA.
Topical Meeting on Thermal Reactor Safety, Sun Valley, Idaho,
July 31 - August 5, 1977

P. Hofmann, C. Politis,

Investigations of the influence of oxide fuel and fission products on the mechanical properties of Zry - 4 cladding tubes under LWR transient conditions.

Topical Meeting on Thermal Reactor Safety, Sun Valley, Idaho, July 31 - Aug. 5, 1977

H. Holleck, S. Nazare, G. Ondracek, A. Skokan,

LWR core melt down accident - a materials viewpoint.

Topical Meeting on Thermal Reactor Safety, Sun Valley, Idaho, July 31 - Aug. 5, 1977

U. Schumann,

Three-dimensional dynamical fluid-structure interactions during reactor-vessel blowdown.

Eurochem Colloquium No. 96, Numerical Analysis of Dynamic Interaction of Structures with Fluids, Swansea, Sept. 12-15, 1977

H. Alsmeyer et. al,

Ein Modell zur Beschreibung der Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton,

KFK 2395, Okt. 1977

W. Muhr, H. Wild,

Die Anwendung der Aerosolzentrifuge nach Stoeber zur Untersuchung der beim Kernschmelzen auftretenden Aerosole.

5. Jahreskongress der Gesellschaft für Aerosolforschung, Karlsruhe, 26. - 28. Okt. 1977

H. Albrecht, M.F. Osborne, H. Wild,

Experimental Determination of fission and activation product release during core meltdown.

Topical Meeting on Thermal Reactor Safety, Sun Valley, Idaho, July 31 - Aug. 5, 1977

K. Wiehr, He. Schmidt,

Out-of-pile-Versuche zum Aufblähvorgang von Zircaloy-Hüllen - Ergebnisse aus Vorversuchen mit verkürzten Brennstabsimulatoren

KfK 2345, Okt. 1977

F. Erbacher, H.J. Neitzel, M. Reimann, K. Wiehr,
Ballooning in Zircaloy fuel rod claddings in a loss-of-coolant
accident.

Topical Meeting on Thermal Reactor Safety, Sun Valley, Idaho,
July 31 - Aug. 5, 1977

H. Dilger, W. Hübschmann, D. Nagel, K. Nester, P. Thomas,
Die Parameter der atmosphärischen Ausbreitung in der Umgebung
des KFZK

KFK 2499, Okt. 1977

W. Köhler,
Ferngelenktes Manipulator-Fahrzeug MF3,
KERNTECHNIK 19 (1977) s. 541 - 548

W. Hübschmann, A. Bayer, F. Horsch, M. Schückler, S. Vogt,
Das Unfallfolgenmodell der deutschen Risikostudie,
GRS-Fachgespräch über Kernenergie und Risiko, München,
3. - 4. Nov. 1977

Marao, Yoshio,
An analytical study of the thermo-hydrodynamic behaviour of the
reflood-phase during a LOCA,
KFK 2545, Dez. 1977

H. Bunz, W. Schöck,
Kondensation von Wasserdampf an polydispersen Feststoffaerosolen
5. Jahreskongress der Gesellschaft für Aerosolforschung, Karlsruhe,
26. - 28. Okt. 1977

K. Baumung,
Short time decay of irradiated fuel.
2nd Symposium on Reactor Dosimetry: Dosimetry Methods for Fuels,
Cladding, and Structural Materials, Palo Alto, Calif.,
Okt. 3 - 7, 1977

J. Furrer, K. Jannakos, J.G. Wilhelm,
Aerosol- und Jodabscheidung in einer Wiederaufarbeitungsanlage;
Konzept der Auflöser-Abgasstrecke PASSAT,
Seminar über Radioaktive Ableitungen aus Wiederaufarbeitungsanlagen,
Karlsruhe, 22. - 25. Nov. 1977

D. Barschdorff, M. Neumann, S. Wiogo,
Auswertung von Infrarotabsorptionsmessungen bei Blowdown-Versuchen
am Druckabbausystem des Reaktors Marviken,
KFK 2534, Okt. 1977

Zusammenfassung der Vorträge zum PNS-Jahreskolloquium 1977,
1.12.1977, KFK 2570, 1977

G. Class,
Theoretische Untersuchung der Druckpulsentstehung bei der Dampfkondensation im Druckabbausystem von Siedewasserreaktoren. Rechenprogramm KONDAS
KFK 2487 (Okt. 1977)

K. Wagner, T. Vollmer,
Zusammenstellung von Stoffwerten für Wärmeleitrechnungen an LWR-Brennstäben und deren Simulatoren,
KFK-Ext. 15/77-2, Aug. 1977

S. Malang, K. Rust,
"Heat Transfer Analysis of Experiments Simulating a Loss-of-Coolant Accident (LOCA)", Conference on Heat and Fluid Flow in Water Reactor Safety, Manchester, Sept. 13 - 15, 1977

H. Bunz, W. Muhr, W. Schikarski,
Untersuchungen zum Verhalten von Rekondensationsaerosolen in geschlossenen Behältern,
5. Jahreskongress der Gesellschaft für Aerosolforschung,
Karlsruhe, 26. - 28. 10. 1977

W. Hübschmann, D. Papadopoulos,
Radiologische Belastung der Bevölkerung in der Umgebung der
Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe - die Kluft zwischen konservativer
und realistischer Abschätzung.
Seminar über Radioaktive Ableitungen aus Wiederaufarbeitungsanlagen,
Karlsruhe, 22. - 25. Nov. 1977

Interne Projektberichte (beschränkter Verteiler)

K. Wagner,

Auslegung des Plenumvolumens für den Nuklearstab beim
Projekt PNS 4237.1

Aug. 1977

R. Meyder, G. Class,

Vorschlag zur Behandlung des Brennstabverhaltens beim
Kühlmittelverluststörfall im Rahmen von Genehmigungsverfahren

Aug. 1977

J. Reimann, G. Arnold, A. Demsky, H. John, S. Mill,

Bestimmung der Strömungsform in horizontaler Luft, Wasser sowie
Dampf H₂O-Strömung mit einer lokalen Impedanzsonde,

Aug. 1977

H.G. Dillmann,

Störfallumluftfilter in KKW, Stand der Entwicklung

Aug. 1977

K. Wiehr, S. Erbacher, H.J. Neitzel, M. Reimann,

Out-of-pile-Versuche zum Aufblähvorgang von Zircaloy-Brennstabhüllen
in der Wiederauffüll- und Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles,

Aug. 1977

S. Dagbjartsson,

Ertüchtigung von SSYST zu stationären Rechnungen,

Aug. 1977

D. Perinic, et. al.,

Eingießversuche mit Graugußschmelzen in Betontiegel,

Aug. 1977

L. Sepold,
Bericht über ANS Topical Meeting
Thermal Reactor Safety
Sun Valley, Idaho 31.7. - 4.8.1977
Teil: Brennstabverhalten
Sept. 1977

S. Dagbjartsson,
ANS-Tagung über Sicherheit von thermischen Reaktoren,
Sun Valley, 31. Juli - 5. Aug. 1977
Sept. 1977

S. Dagbjartsson,
Arbeiten im Rahmen der Delegation zum USNRC Fuel Behavior Program
Sept. 1977

P. Ihle, S. Malang, K. Rust,
Thermohydraulic Tests with Bundles of Ballooned Rods,
Okt. 1977

P. Ihle, S. Malang, K. Rust,
Thermohydraulic Tests with Bundles of Ballooned Rods Simulating the
Reflood Phase of a LOCA
Okt. 1977

M. Schückler,
Untersuchungen zur Verknüpfung der Ortsdosen mit der Bevölkerungs-
verteilung im Fernbereich des Unfallfolgenmodells der Deutschen
Reaktor-Risikostudie,
Okt. 1977

G. Neffe,
Abschätzung des Verhaltens eines N_2 -Kr-Xe-Gemisches hinsichtlich
Verdampfungsgleichgewicht, Siedewassertemperatur, Gefrierpunkt und
Resublimation,
Okt. 1977

A. Bayer et. al.,

Untersuchung der radiologischen Folgen von Reaktorunfällen
Risikostudie zur Sicherheitsbeurteilung,
Okt. 1977

S. Dagbjartsson,

Bericht über USA-Delegation
Zircaloy Cladding Review Group Meeting, 7. - 8. Sept. 1977
im Battelle Columbus Laboratory, Ohio
Okt. 1977

H. Mösinger,

Gegenüberstellung der Drift Flux Approximation und Integration der
Differenzialgleichungen im 2-Phasen Code SOLA-DF,
Okt. 1977

U. Unger, et. al.,

Bericht über die im Auftrag des PNS geleisteten Arbeiten des IKE
Stuttgart für den Zeitraum Juli bis Sept. 1977,
Okt. 1977

R. Krieg,

Abschätzung des Bruchöffnungsverhaltens für einen Stutzen-Längsriß,
Nov. 1977

D. Perinic, et. al.,

Versuche mit Thermitmelzen in Betontiegeln,
Nov. 1977

S. Dorner, G. Schuhmacher,

Betrachtung zur Atmosphäre über der Kernschmelze eines LWR;
Anwendung auf Simulationsexperimente,
Nov. 1977

M. Bocek, et. al.,

Stand und Ergebnisse der theoretischen und experimentellen Forschungs-
vorhaben zum LWR-Brennstabverhalten bei Reaktorstörfällen -
Eine Zwischenbilanz -
Nov. 1977

H. Beutel, R. Krieg,

Konzept für die HDR-Laborversuche vom Blowdown-Typ,

Nov. 1977

K. Stölting,

Vorausberechnung des HDR-Blowdown-Versuchs 3 mit dem Code YAQUIR

für ein modifiziertes Maschengitter und die Auswertung der

Ergebnisse, Nov. 1977

S. Vogt,

Standortauswahl für die Berechnung der Unfallfolgen,

Nov. 1977

C.H. Leichsenring,

Versuchsbetrieb - Planung 1978 für die

Abgasreinigungsanlagen KRETA/ADAMO und PASSAT - Besprechung

am 5.12.1977

Dez. 1977

S. Dagbjartsson,

Fuel Behavior Code Development:

Where are we now? How far to go?

(5. WRSI-Meeting in Gaithersburg, 10. Nov. 1977)

Dez. 1977

L. Sepold,

Erfassung lokaler Dehnung verformter Hüllrohre; eine Methode des

ANL zur Auswertung der Querschliffbilder von Beulstellen

Dez. 1977