

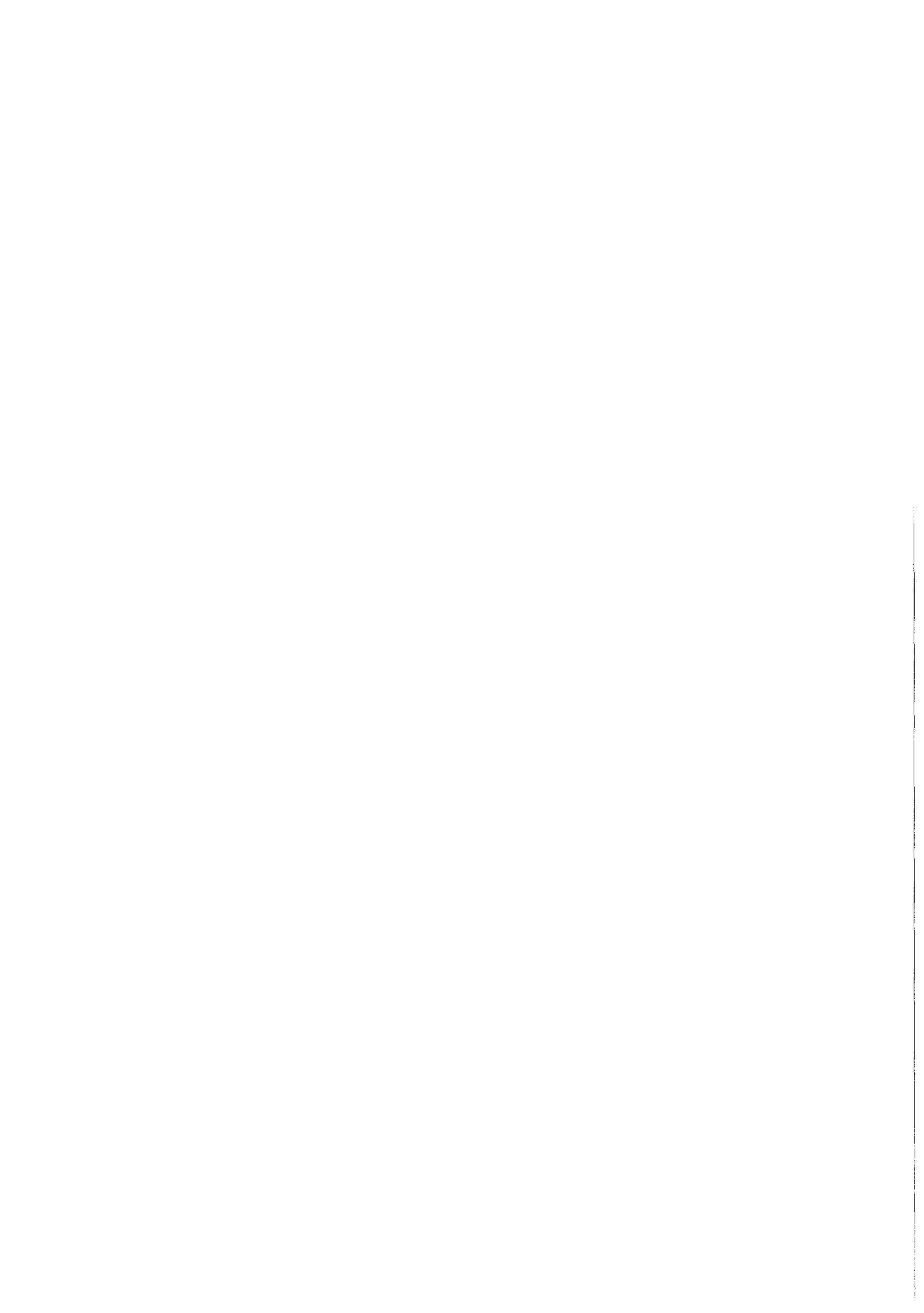
KfK 2770
Februar 1979

**Sammlung der Vorträge zum
Jahreskolloquium 1978 des
Projektes Nukleare Sicherheit**

Karlsruhe, am 29. November 1978

Projekt Nukleare Sicherheit

Kernforschungszentrum Karlsruhe



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

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

KfK 2770

Sammlung der Vorträge zum
Jahreskolloquium 1978 des
Projektes Nukleare Sicherheit

Karlsruhe, am 29. November 1978

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Fortschritte der Reaktorsicherheitsforschung und deren
Bedeutung für die sicherheitstechnische Beurteilung

Recent Advances of Reactor Safety Research and
Their Significance for Safety Assessment

M. Fischer, KfK - Projektleitung PNS

1 - 38

Verhalten unbestrahlter und bestrahlter DWR-Brennstäbe
bei Kühlungs- und Leistungstransienten

Performance of Unirradiated and Irradiated PWR Fuel
Rods Tested Under Power Cooling-Mismatch Conditions

P.E. McDonald, EG & G Idaho Inc.

39 - 64

Thermohydraulisch gesteuerte Blowdown-Versuche in der
Versuchsanlage COSIMA zum DWR-Brennstabverhalten:
Experimentelle und theoretische Ergebnisse

Thermohydraulically Controlled Blowdown Experiments in the
COSIMA Test Facility on PWR Fuel Rod Behavior: Experimental
and Theoretical Results

G. Class, KfK - Institut für Reaktorentwicklung

65 - 87

Ergebnisse von Inpile-Experimenten im Nuclear Safety
Research Reactor (NSRR) zu Reaktivitätsstörfällen

Results of Inpile Experiments in the NSRR on
Reactivity Initiated Accidents

S. Suguri and M. Ishikawa, Japan Atomic Energy Research
Institute (JAERI)

88 - 105

Methoden und Ergebnisse der Analysen von Kühlmittelverlust-
und Kernschmelzenunfällen in Leichtwasserreaktoren (Entwicklung
der MARCH- und TRAP-Codes)

Methods and Results of Analysis for LOCA und Core Meltdown
Accidents in Light-Water Reactors (MARCH und TRAP Code
Development)

R.S. Denning, Battelle Memorial Institute, Columbus

106 - 132

Spaltprodukt-Quellterme bei Kühlmittelverluststörfällen
und hypothetischen Kernschmelzenunfällen

Fission Product Source Terms During LOCA and Hypothetical
Meltdown Accidents

H. Albrecht, KfK - Institut für Radiochemie

133 - 163

A.P. Malinauskas, Oak Ridge National Laboratory

Aufbau freigesetzter Spaltprodukte in LWR-Sicherheitsbehältern (NAUA-Programm)

Reduction of Released Fission Products in LWR-Containments (NAUA-Program)

W. Schöck, KfK - Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik

164 - 182

Fortschritte bei der Verbesserung der Spaltproduktrückhaltung in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen

Recent Advances in Improved Fission Product Retention in Nuclear Power Plants and Reprocessing Plants

J.G. Wilhelm, KfK - Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik

183 - 205

Die radioökologische Reduktion akuter und langzeitiger Kontaminationen der Umwelt durch Jod-129

Radioecological Reduction of Acute and Longterm Contaminations of the Environment by J-129

H. Schüttelkopf, KfK - Abteilung Sicherheit

206 - 225

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT
JAHRESKOLLOQUIUM 1978

FORTSCHRITTE DER REAKTORSICHERHEITSFORSCHUNG
UND DEREN BEDEUTUNG FÜR DIE
SICHERHEITSTECHNISCHE BEURTEILUNG

M. FISCHER

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

JAHRESKOLLOQUIUM 1978
des
PROJEKTES NUKLEARE SICHERHEIT

Fortschritte der Reaktorsicherheitsforschung und deren
Bedeutung für die sicherheitstechnische Beurteilung

M. Fischer
Projekt Nukleare Sicherheit
Kernforschungszentrum Karlsruhe

I. Einleitung

Bevor ich zu meinem Thema im engeren Sinne komme, erlauben Sie mir einige allgemeinere Bemerkungen.

Alwin Weinberg, der ja auch mit dem Kernforschungszentrum Karlsruhe und der Universität Karlsruhe eng verbunden ist, hat vor kurzem eine ganz wesentliche Grundsatzfrage für all unser Tun insbesondere auf dem Gebiet der Reaktorsicherheitsforschung gestellt, ich zitiere¹⁾:

"Können wir ein System zur Nutzung der Kernenergie aufbauen, das akzeptabel wird für jene, die die Kernenergie fürchten und können wir auf diese Weise den Kern unserer heutigen Probleme beseitigen?"

Wenn dabei trotzdem - was zu erwarten ist - der harte Kern der Gegner der Kernenergie unversöhnlich bleibt, können wir dann zumindest für diejenigen, die wohl ernstzunehmende Zweifel haben, die Auflösung dieser Zweifel aber aufrichtig wünschen, eine nukleare Zukunft aufbauen, die für sie akzeptabel ist?

Es ist aussichtslos, so fährt Weinberg fort, jene überzeugen zu wollen, die in Wahrheit ihre Opposition gegen die Kern-

¹⁾A.W. Weinberg: The Human Elements in Reactor Safety;
Nuclear Safety, Vol. 19, No. 2, March-April
1978

energie auf die Vorstellung gründen, daß mehr Energie und damit mehr Wirtschaftswachstum unerwünscht ist, weil aus ihrer Sicht die damit verbundene Gesellschaftsstruktur unerwünscht ist. Dagegen ist eine rationale Debatte mit jenen möglich, die ihre Opposition gegen die Kernenergie aus Zweifeln an der nukleare Sicherheit und Sorgen wegen der Proliferation von spaltbarem Material betreiben." Ende des Zitats.

Weinberg hat damit die in der Tat auch nach unserer Erfahrung beim Widerstand gegen die Kernenergie dominierenden drei Fragenkomplexe angesprochen, nämlich: Wachstum, Proliferation und nukleare Sicherheit.

Was auf dem Gebiet der nuklearen Sicherheit für den Aufbau einer akzeptablen nuklearen Zukunft durch Forschung und Entwicklung getan wird und noch beigetragen werden kann, wird anhand einiger Beispiele im Rahmen dieses Kolloquiums vorgetragen. Die gesamten Reaktorsicherheitsforschungsprogramme der Bundesregierung und anderer Länder befassen sich seit Jahren intensiv und mit großen Aufwendungen mit allen relevanten Sicherheitsfragen der Kerntechnik.

Ich werde auf der Grundlage unserer Arbeiten einige wesentliche Fortschritte der Reaktorsicherheitsforschung und deren Bedeutung für die sicherheitstechnische Beurteilung diskutieren.

Mein Vortrag wird sich in 2 Teile gliedern:
Zunächst gebe ich einen Überblick über Fortschritte und wichtigste Ergebnisse des Projekts im Jahr 1978.

Anschließend werde ich einige Arbeitsgebiete des Projekts vertiefen, die im Zusammenhang mit den Themen dieses Kolloquiums

stehen.

II. Überblick über Fortschritte und wichtigste Ergebnisse in 1978

Das vergangene Jahr war in allen Teilen unseres Arbeitsprogramms sehr produktiv. Elf Institute und Abteilungen des Kernforschungszentrums haben diese Arbeiten mitgetragen und durchgeführt.

Die Hauptstoßrichtung der nuklearen Sicherheitsforschung ist und bleibt:

- A. Die verbesserte Quantifizierung der vorhandenen Sicherheitsreserven für die sicherheitstechnische Beurteilung.
- B. Die laufende Verbesserung der sicherheitstechnischen Auslegung der Anlagen zur Verhinderung von Störfällen und zur Eindämmung der Folgen hypothetischer Unfälle.

Mit dieser übergeordneten Zielsetzung wurden Fortschritte insbesondere auf den folgenden Gebieten erzielt:

1. Fortschritte beim detaillierten Verständnis von Störfall- und Unfallabläufen
 - a. Dynamische Beanspruchung von Reaktorkomponenten bei Kühlmittelverluststörfällen (KVS)
 - b. Brennelementverhalten bei KVS und Reaktortransienten
 - c. Hypothetische Kernschmelzenunfälle (KSU)
 - d. Spaltproduktfreisetzung bei KVS und KSU
 - e. Störfallablaufanalysen in WAA
2. Fortschritte bei der Verbesserung der Spaltproduktrückhaltung in LWR und WAA
 - a. Störfall- und Unfall-Abluftfilter in LWR
 - b. Abgasreinigung der WAA im NEZ

3. Fortschritte bei der realistischen Ermittlung von Unfallfolgen

- a. Radioökologie von J-129, Cs-137 und Transuranen
- b. Atmosphärische Ausbreitung im Nah- und Fernbereich
- c. Unfallfolgen in der deutschen Risikostudie

Zu 1.a. Dynamische Beanspruchung von Reaktorkomponenten beim KVS

- Weg-, Beschleunigungs-, Druck- und Differenzdruck-Messtechnik für HDR-Blowdown-Versuche qualifiziert
- Enthalpieschichtung im RDB des HDR für Blowdown-Versuche stabil und auf ± 3 K reproduzierbar einstellbar
- Entwickelte Rechenprogramme mit Fluid-Strukturkopplung (FLUX, STRUYA) zur Berechnung der HDR-Blowdown-Versuche mit RDB-Versuchseinbauten eingesetzt - Ergebnisse:
 - Amplituden und Frequenzen werden reduziert und Horizontalkräfte auf BE um mindestens Faktor 5 vermindert
 - Energiebilanz mit Berücksichtigung der Energieübertragung Fluid \rightarrow Struktur korrekt erfüllt
- Anlaufende Blowdown-Dynamik im Bruchstutzen im KFK 2-Phasen-Versuchsstand zur Code-Verifizierung simuliert.

Zu 1.b. Brennelementverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen

- Oxidationskinetik von Zry voll verstanden und durch physikalische Modelle beschrieben. Bisherige Baker-Just-Korrelation isotherm angewandt überschätzt Oxidation über 900 °C bis zu 50 %

- Zry-UO₂-Wechselwirkung:
Unter 850 °C starke Reduktion der Berstdehnung durch Jod-Spannungsrissskorrosion
- Keine wesentlichen Unterschiede bei Berst-Temperaturen und -Drücken (wahrscheinlich auch bei Berstdehnung) zwischen frischen und abgebrannten Brennstäben
- Gute Übereinstimmung zwischen inpile und out-of-pile-Experimenten
- Fragmentierung des Brennstoffs bei hohen Abbränden noch nicht verstanden
- In Brennstabbündel-Tests voller Länge und mit Flutung (REBEKA) liegen Berstdehnungen überwiegend unter 40 %
- Keine Versagenspropagation beobachtet (bisher)
- Azimutale und axiale Temperaturprofile verhindern im realen Fall axial ausgedehntes Ballooning
- Flutexperimente mit Teilblockaden im BE zeigen verschlechterte Kühlung vor der Blockade dagegen verbesserte Kühlung innerhalb und nach der Blockade

Zu 1.c. Fortschritte beim Verständnis hypothetischer Kernschmelzenunfälle

- Innenoxidation der Hüllrohre hat keinen nennenswerten Einfluß auf den Schmelzbeginn
- Slumping ist diskontinuierlich: Stop and Go-Ab-schmelzen wahrscheinlich

- Erstarrungscharakteristik von Schmelze mit Beton (karbonatisch, silikatisch) liegt vollständig vor
- WECHSL-Code beschreibt die ortsabhängige Betonerosion und die Gasfreisetzung in den SB und kann nun mit BETA verifiziert werden
- BETA-Versuchsanlage zur Untersuchung der Beton-Schmelz-Wechselwirkung incl. Gasfreisetzung wird gebaut

Zu 1.d. Spaltproduktfreisetzung bei KVS und KSU

- Ertüchtigung der Schmelzanlage SASCHA
jetzt: Schmelzmasse bis 3 kg
↙ geringerer Einfluß von Oberflächen- und Tiegelwandeffekten; Wechselwirkung Coriumschmelze/Beton;
- Fertigstellung der Fissium-Anlage
jetzt: Simulation beliebig abgebrannter Brennstoffpellets gekapselt in Zry-Rohren
- Erste Schmelzversuche mit Fissium in Luft zeigen:
 - Cs-Freisetzung bei 1200 °C < 1 %
bei 2000 °C ~ 20 %
 - weitere Ergebnisse liegen vor für I, Sb, Ba, Mo, Ag, Ce, Nd, Zr, Mn, Cr, Fe, Co
(unter realistischen Bedingungen gemessen)
- NAUA-Mod 3 liegt vor. Wasserdampfkondensation an realen Partikeln kann - experimentell gesichert - berücksichtigt werden.
- Wasserdampfkondensation verringert die luftgetragene Aktivität um mehr als 1 Größenordnung.

Zu 2.b. Abgasreinigung der WAA im NEZ

- Prototypische Versuchsanlage PASSAT für Naßaerosol-, Partikel- und Jod-Rückhaltung fertiggestellt und in Betrieb genommen.

Erste Versuchskampagne bestätigt grundsätzlich Konzeption dieser für AZUR und WAA im EZ vorgesehenen Abgasreinigungsschritte.

- 4 Versuchskampagnen mit den prototypischen Versuchsanlagen KRETA und ADAMO zur Kr-85-Abtrennung durchgeführt, mit folgenden Ergebnissen:
 - Von KFK gewählte und entwickelte Konzeption zur Kr-85-Abtrennung bewährt sich
 - Problem "Ausfrieren (Desublimieren) von Xenon" in 1. TTR-Kolonnen im Prinzip geklärt: Abhängig von Temperatur und apparativer Gestaltung am Gaseintritt, weitgehend unabhängig von Kr-Konzentration
 - Leichte Desorbierbarkeit des Kr von Mol-Sieben der CO₂- und H₂O-Vorreinigung bestätigt
- Kr-85-Lagerung in Druckgasflaschen: Erste Ergebnisse zur Edelstahlkorrosion durch Rb₂O liegen vor.
- Kr-85-Fixierung in Zeolithen: Thermisch wesentlich stabilere Zeolithe gefunden als bisher bekannt.
- Ozonzerstörung in der TTR durch Ag-Katalysator auch bei Kryotemperatur (- 120 °C) mit hoher Ausbeute möglich

Zu 3. Fortschritte bei der realistischen Ermittlung von Unfallfolgen

- Analytische Methoden für Nachweis von J-129 in Umgebung von WAA entwickelt: Nachweisgrenzen 10⁻³ pCi/l flüssiger Probe und 3.10⁻⁴ pCi/g fester Probe.

- Biologische Verfügbarkeit von J-129 nimmt mit $T_{1/2} = 0,3$ a in der Umgebung ab. Eine Langzeitgefährdung besteht daher nicht.
- Gemessene Milchkonzentrationen in Umgebung WAK um Faktor 30 unter den gemäß BMI-Vorschriften berechneten.
- Ausbreitungsparameter für Emissionshöhen 60 m und 100 m komplett für den Nahbereich (< 15 km). Übertragbarkeit auf andere Standorte wird durch Ergebnisse zusätzlicher Feldmessungen ermöglicht.
- Transponderentwicklung ermöglicht radarverfolgte Tetroonflüge bis 100 km.
- Unfallfolgerechnungen für die Phase A der deutschen DWR-Risikostudie stehen kurz vor dem Abschluß.

Ich komme nun zum 2. Teil meines Vortrages, in dem ich auf die folgenden Sicherheitsprobleme detaillierter eingehe:

Brennelement-Verhalten bei Störfällen (Kap. III)

- Erste Barriere gegen Spaltproduktfreisetzung in die Umgebung
- Rückwirkung verformter Brennelemente auf die Effektivität der Notkühlung

Spaltproduktfreisetzung aus dem Reaktorkern bei Kühlmittelverluststörfällen und Kernschmelzenunfällen (Kap. IV)

Spaltprodukt-Transport und -Rückhaltung im Primärsystem und Sicherheitsbehälter (Containment) (Kap. V)

III. Brennelementverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen

Das Forschungsprogramm zum Brennelementverhalten bei Störfällen befaßt sich mit der ersten Barriere gegen die Spaltprodukt-Freisetzung in die Umgebung, d.h. das Verhalten der Brennstoff-Pellets und der Hüllrohre einzelner Brennstäbe (z.B. der Heißstäbe) und im gesamten Reaktorkern während und nach Kühlmittelverluststörfällen und Reaktortransienten (z.B. ATWS).

Von besonderer Bedeutung in diesem Arbeitsprogramm ist die Wechselwirkung einzelner Brennstäbe und ganzer Brennelemente mit der Thermohydraulik der Notkühlung hinsichtlich

- a) der Spaltproduktfreisetzung in den Primärkreis durch das eventuelle Versagen eines Teils der Hüllrohre und
- b) der Rückwirkung aufgeblähter oder geborstener Hüllrohre auf die Wirksamkeit der Notkühlung.

Die folgenden bis heute erzielten Ergebnisse haben Bedeutung für die sicherheitstechnische Beurteilung (im Zusammenhang mit den Notkühlkriterien):

1. Zircaloy-Oxidation durch Dampf

Die Oxidationskinetik der Zircaloy-Hüllrohre wird heute aufgrund umfangreicher Arbeiten in Karlsruhe, Oak Ridge und JAERI gut verstanden und kann durch entsprechende physikalische Modelle realistisch (best estimate basis) beschrieben werden.

Die Oxidationsraten erreichen unter isothermen Bedingungen oberhalb 1000 °C nur 75 % derjenigen, die mit der isothermen Baker-Just-Korrelation berechnet werden, die bekanntlich im Genehmigungsverfahren angewandt wird, Abb. 1.

Auch unterhalb 1000 °C liegen die tatsächlichen Werte deutlich unter den Baker-Just-Werten. Vergleicht man experimentell ermittelte Oxidationsraten bei Temperaturtransienten eines Kühlmittelverluststörfalls mit der isothermen Baker-Just-Korrelation, ergeben sich Reduktionen um bis zu 50 %.

Die sicherheitstechnische Bedeutung der wesentlich geringeren Oxidation bei Störfällen liegt in erster Linie in einer entsprechend niedrigeren H₂-Produktion. Von zweitrangigem Einfluß ist die niedrigere Wärmeproduktion verursacht durch die Metall-Wasserdampf-Reaktion, da die Nachzerfallswärme in allen relevanten Störfallsituationen dominierend für die Aufheizung des Reaktorkerns ist.

2. Zircaloy-UO₂-Wechselwirkung (chemisch)

Die Oxidationskinetik von Zircaloy in Kontakt mit UO₂ - d.h. an der Hüllrohrinnenseite - verläuft so rasch wie in Dampf; dies ist wichtig für Reaktortransienten ohne Schnellabschaltung.

Unterhalb von 850 °C nimmt die Duktilität von Zircaloy-Hüllrohren bei Anwesenheit von Spaltjod deutlich ab aufgrund von Spannungsrißkorrosion, Abb. 2. Die Berstdehnungen von Hüllrohren mit Jod sind daher deutlich kleiner als bei den Referenzversuchen ohne Jod, Abb. 3.

Die sicherheitstechnische Bedeutung liegt darin, daß durch die Jod-Spannungsrißkorrosion ein zusätzlicher Mechanismus vorliegt, der die maximalen Dehnungen der Zircaloy-Hüllrohre bei Kühlmittelverluststörfällen auf Werte begrenzt, die für die Flutung des Reaktors unkritisch sind, auch wenn höhere Temperaturen als 800 bis 900 °C erreicht werden.

3. Brennstab- und Brennelementverhalten in inpile- und out-of-pile-Tests

Die Ergebnisse der inpile-Experimente im FR2 mit frischen und hochabgebrannten Testbrennstäben zeigen im Vergleich zu ähnlich gefahrenen out-of-pile-Experimenten mit indirekt beheizten Brennstabsimulatoren keine ins Gewicht fallende Unterschiede hinsichtlich Bersttemperatur und Berstdruck - und aller Voraussicht nach auch nicht bei der Berstdehnung, Abb. 4.

Die Übereinstimmung zwischen den inpile im FR2 gewonnenen Ergebnissen und den großen out-of-pile-Bündelexperimenten REBEKA hier in Karlsruhe und dem Multi Rod Burst Test Programm der USNRC im Oak Ridge National Laboratory ist ermutigend, Abb. 5, aber noch nicht voll belastbar. Die Berstdehnungen bei den inpile-Experimenten bis zu hohen Abbränden sind noch nicht zuverlässig ermittelt.

Ferner wirft die beobachtete Brennstofffragmentation noch Fragen auf, die für die Interpretation der Ergebnisse wichtig sind.

Wie sich bei einem Kühlmittelverluststörfall die Thermo-hydraulik der einsetzenden Flutung auf die Deformation der Brennelemente auswirkt ist Aufgabe unseres REBEKA-Versuchsprogramms. Hier kommt man wegen der Schwierigkeiten bei der analytischen Beschreibung der Zweiphasen-Thermohydraulik beim Fluten nicht um Versuche mit Brennelementen voller Länge herum.

Von Einzelstabexperimenten wußten wir bereits, daß das Dehnungsverhalten der Hüllrohre bis hin zur Berstdehnung primär von immer vorhandenen Temperaturdifferenzen am Umfang der Brennstäbe abhängt, Abb. 6. Je größer die Temperaturdifferenz am Brennstabumfang, desto niedriger die Hüllrohrdehnung.

Dieses Faktum wurde von den beiden ersten REBEKA-Bündelversuchen mit 25 Brennstabsimulatoren voller Länge, wovon die 9 inneren blähfähig waren, d.h. inneren Überdruck hatten, bestätigt.

Durch die Bündelversuche haben wir aber zusätzlich gelernt, daß sich während des Flutprozesses in axialer Richtung zwischen den Abstandshalterebenen ein thermodynamisches Ungleichgewicht im Zweiphasengemisch aufbaut, das durch die erhöhte Turbulenz aufgrund der Abstandshalter immer wieder teilweise abgebaut wird.

Dies hat zur Folge, daß wir im Bereich der Abstandshalter und insbesondere hinter den Abstandshaltern einen wesentlich erhöhten Wärmeübergang erhalten und damit auch in axialer Richtung eine sehr ungleichförmige Temperaturverteilung. Dieser, durch die Zweiphasen-Thermohydraulik des Flutens selbst ausgelöste Effekt verhindert im Reaktor das mancherorts unter unrealistischen Versuchsbedingungen beobachtete und prophezeite axial ausgedehnte Ballooning, Abb. 7.

Auch in den bereits erwähnten inpile-Experimenten haben wir axial ausgedehntes Aufblähen nicht beobachtet, Abb. 8.

Facit für die sicherheitstechnische Beurteilung:

- a) Das Deformationsverhalten der Hüllrohre im Reaktorkern wird in erster Linie durch die Temperaturverteilung in Umfangsrichtung und in axialer Richtung bestimmt.
- b) Je größer diese Temperaturunterschiede am Umfang desto geringer die Umfangsdehnung.

- c) Die axialen Temperaturunterschiede unterbinden ein axial ausgedehntes Hüllaufblähen.
- d) Die beim Fluten auftretende Zweiphasen-Kühlung vor der Quenchfront verstärkt die immer vorhandenen Temperaturdifferenzen in den Hüllrohren und limitiert dadurch die Dehnungen und damit Kühlkanalblockaden im Reaktorkern.
- e) Die große Mehrzahl der unter realistischen Kühlungsbedingungen zum Bersten gebrachten Prüflinge zeigten Berstdehnungen unter 40 % in der α -Phase.
- f) Bei den REBEKA-Experimenten in Karlsruhe und den Multi Rod Burst Tests im ORNL wurden bisher keine Mechanismen für eine Schadenspropagation von Stab zu Stab beobachtet.

4. Einfluß von Kühlkanalblockaden auf den Flutprozeß

In unseren Blockadeexperimenten FEBA konnten ganz ähnliche Effekte mit durch Platten bzw. Hülsen simulierten Blockaden beobachtet werden wie oben beschrieben bei REBEKA, Abb. 9 bis 12. Es zeigt sich, daß die Kühlung vor der Blockade aufgrund der Strömungsumverteilung vor der Blockade wesentlich stärker reduziert wird als unmittelbar nach der Blockade, wegen der durch die Blockade selbst verursachten Erhöhung der Turbulenz.

VI. Spaltproduktfreisetzung aus dem Reaktorkern bei Kühlmittelverluststörfällen und hypothetischen Kernschmelzenunfällen

Vor vier Jahren hat sich das Projekt Nukleare Sicherheit der KfK mit dem Oak Ridge National Laboratory zusammengeschlossen, um die für die Beurteilung von Auslegungsstörfällen wie für hypothetische Kernschmelzenunfällen entscheidend wichtigen Fragen der Spaltproduktfreisetzung aus dem Reaktorkern auf eine realistische Grundlage zu stellen.

Diese Zusammenarbeit wurde mit dem Ziel einer Arbeitsteilung und einer gleichzeitigen gegenseitigen Absicherung durch enge Kooperation der führenden Experten konzipiert.

Bei der Spaltproduktfreisetzung werden sowohl bei den Auslegungsstörfällen im Rahmen der Genehmigungsverfahren wie bei den hypothetischen Kernschmelzenunfällen im Rahmen der amerikanischen und deutschen Risikostudien besonders konservative Annahmen für die Ermittlung der Belastung der Umgebung zugrundegelegt.

Zwischen KfK und ORNL besteht die folgende Arbeitsteilung:

ORNL untersucht die Spaltproduktfreisetzung bei
Kühlmittelverluststörfällen

KfK untersucht die Spaltproduktfreisetzung bei
Kernschmelzenunfällen

1. Spaltproduktfreisetzung aus LWR-Brennelementen beim Kühlmittelverluststörfall

Abb. 13 zeigt Oak Ridge-Ergebnisse für Cs und Jod freigesetzt in Dampfatosphäre aus Brennstäben mit niedrigem und hohem Abbrand. Dargestellt ist die gemessene Freisetzung im Vergleich zur gerechneten auf der Grundlage von sogenannten "best estimate"-Modellen. Der Vergleich gerechneter und gemessener Cs- und I-Freisetzungsdaten für sehr verschiedene Freisetzungsbedingungen fällt in ein Fehlerband, das um den Idealwert um den Faktor ± 3 streut.

Diese "best estimate"-Rechenmodelle wurden in konkreten Störfallanalysen für Kühlmittelverluststörfälle in amerikanischen Druckwasserreaktoren angewandt und mit den Annahmen in der Rasmussen-Studie (WASH-1400) verglichen, Abb. 14. Danach liegen die realistischen Gesamt-Freisetzungsdaten für Cs um den Faktor 200 und für Jod um den Faktor 60 niedriger als in der Rasmussen-Studie angenommen.

Gegenüber unseren im Genehmigungsverfahren zugrundelegenden Annahmen in der BRD liegen die ORNL-Ergebnisse für Cs ebenfalls um den Faktor 200 und für Jod sogar um den Faktor 180 niedriger.

2. Spaltproduktfreisetzung bei Kernschmelzenunfällen

Abb. 15 zeigt qualitativ die bei einem hypothetischen Kernschmelzenunfall freigesetzten Elemente, den Freisetzungsphasen und den einzelnen Unfallablaufphasen zugeordnet.

In Abb. 16 ist das Spaltproduktinventar anhand der Flüchtigkeit der Elemente und Oxide in 3 Gruppen klassifiziert: leicht-, mittel- und schwerflüchtig.

Unser gegenwärtiger Kenntnisstand für Kernschmelzenunfälle im Rahmen von Risikostudien läßt sich summarisch zusammenfassen in einer 100 %igen Freisetzung der leichtflüchtigen Gruppe, 15 % der mittelflüchtigen und 1 % der schwerflüchtigen Gruppe.

In der SASCHA-Versuchsanlage werden die wichtigsten Freisetzungsdaten beim Kernschmelzenunfall mit Hilfe von sogenanntem Fissium-Brennstoff auf realistischer Grundlage ermittelt.

Die für die Fissium-Herstellung erforderlichen Anlagen zeigt dieses Photo. Der Brennstoff wird pulverförmig incl. der Tracer gemischt, zu Pellets verpresst und in Zry-Hüllrohre eingeschweißt.

Für die Spätschäden nach einem solchen hypothetischen Kernschmelzenunfall hat das Cs-137 zentrale Bedeutung. In Abb. 17 ist u.a. die Freisetzung von Cs in SASCHA-Experimenten bis zum Abschmelzen dargestellt; die Temperaturtransiente betrug $2\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{sec}$. Man sieht, daß bis zum Beginn der Abschmelzphase bei ca. $1900\text{ }^{\circ}\text{C}$ erst etwa 11 % des Cs freigesetzt wurde.

Wie gut die unter z.T. sehr verschiedenen Versuchsrandbedingungen gewonnenen Freisetzungsdaten für Cs in Oak Ridge für Kühlmittelverluststörfälle und Karlsruhe für Kernschmelzenunfälle zusammenpassen ist bemerkenswert.

V. Spaltprodukt-Transport und -Rückhaltung im Primärsystem und Sicherheitsbehälter

Das PNS arbeitet auf diesem wichtigen Gebiet mit Battelle Columbus in Ohio zusammen. Dies zeigt sich auch in dem eingeladenen Vortrag von Dr. Richard Denning.

Abb. 18 zeigt die komplementäre Zusammenarbeit zwischen Battelle Columbus und KfK. Ich hoffe, daß wir gemeinsam mit anderen Forschungsstellen in der BRD, ein solches Programmsystem entwickeln können, um dann auf der Grundlage unserer SASCHA-, NAUA- und BETA-Experimente eine experimentell verifizierte Berechnungsmethode für den gesamten Ablauf von hypothetischen Kernschmelzenunfällen in LWR zur Verfügung haben und zwar ohne Anhäufung unrealistisch konservativer Annahmen.

VI. Schlußbemerkung

Ich komme zum Schluß.

Eine Frage beschäftigt uns in letzter Zeit in besonderem Maße: Aufgrund welcher Kriterien lassen sich alle die Probleme, die wir im Bereich der nuklearen Sicherheitsforschung bearbeiten als gelöst abhaken. Abhaken in dem Sinne, daß wir von den eingangs genannten beiden Hauptzielen, nämlich

1. die umfassende Quantifizierung der tatsächlich vorhandenen Sicherheitsreserven und der Risiken in der Kerntechnik und
2. die laufende Verbesserung der sicherheitstechnischen Auslegung der Anlagen zur Störfallverhinderung und zur Unfallfolgen-Eindämmung

zumindest das erste Ziel, die Auslotung der vorhandenen Sicherheitsreserven, erreicht haben.

Zum Erreichen dieses ersten Zieles gehört jedoch unbedingt und zuallererst, daß die Ergebnisse der Reaktorsicherheitsforschung in die Kriterien, Leitlinien und kerntechnische Regeln einfließen, die die Grundlage bei der sicherheitstechnischen Beurteilung bilden. Die ungemein breit und tief angelegten Sicherheitsforschungsprogramme müssen eine neue Grundlage abgeben können, von der aus die sicherheitstechnische Beurteilung im Genehmigungsverfahren erfolgt.

Um dieses Ziel zu erreichen, heißt es eisern festhalten an dem eingeschlagenen Weg, nämlich:

- einerseits die konsequente Verfolgung der experimentellen Untersuchung von Einzeleffekten und von Systemeffekten, in einer genau durchdachten Größen-Stufung der Experimente;

- andererseits die Entwicklung von Modelltheorien und Rechencodes, soweit wie möglich auf der Basis von "first principles", und die schrittweise Verifizierung der Modelltheorien anhand der einzelnen Experimentierstufen.

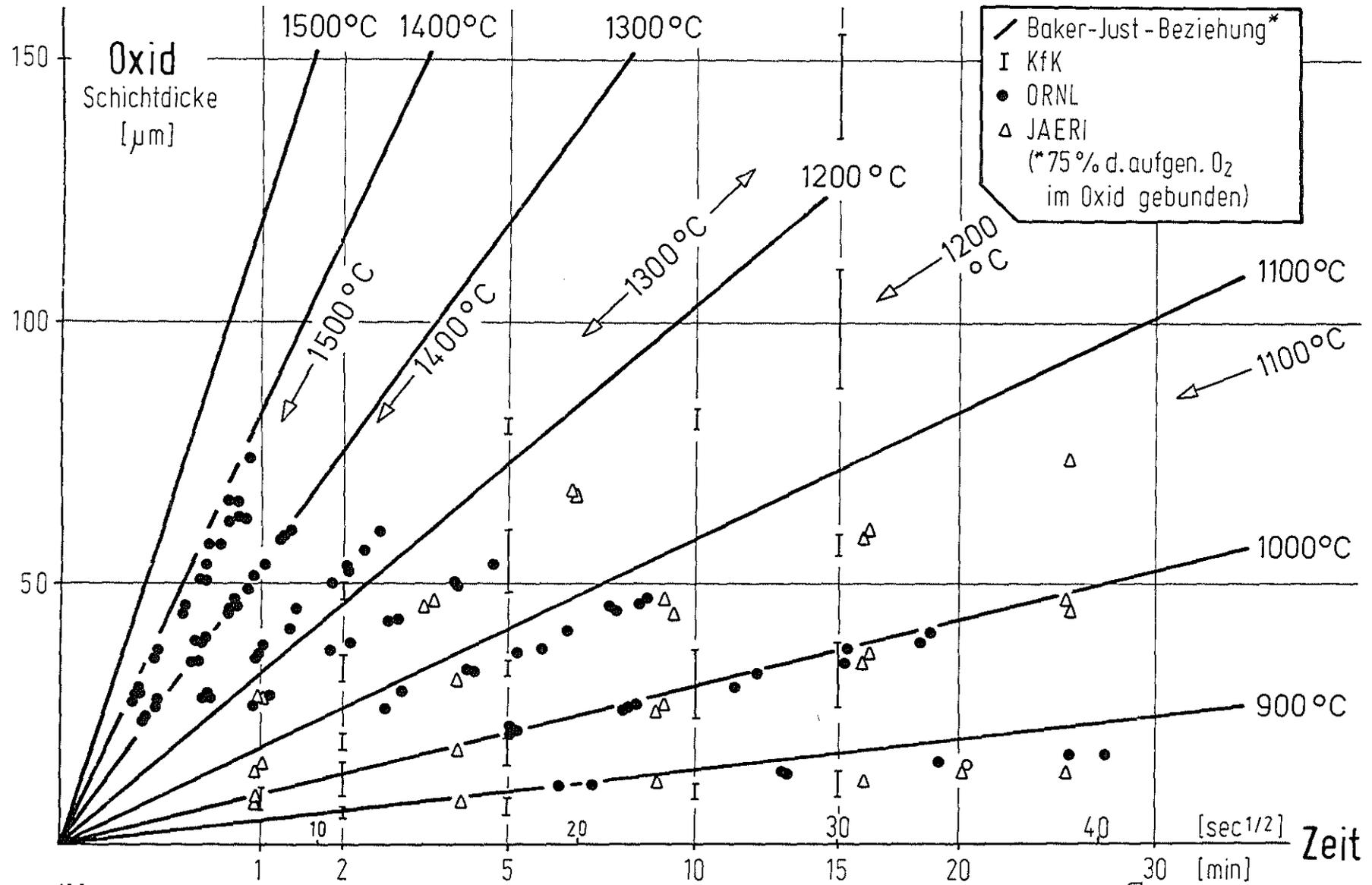
Lassen Sie mich auf den eingangs zitierten Alwin Weinberg antworten mit Friedrich Schiller. Schiller hat in seinem Gedicht "Spruch des Konfuzius" gesagt:

"Nur die Fülle führt zur Klarheit und im Abgrund wohnt die Wahrheit."

Die Fülle ist hier nicht nur die Fülle der Kenntnisse und Erfahrungen, sondern auch die Fülle der Begriffe und der verschiedenen Arten, über unsere Probleme bei der nuklearen Sicherheit zu reden. Nur dadurch, daß wir die komplexen Zusammenhänge der Kerntechnik und deren Sicherheitsprobleme immer wieder von allen Seiten beleuchten und alle echten Probleme und alle Scheinprobleme als solche ansprechen, kann die Veränderung in der Struktur des Denkens bewirkt werden, die für ein Verständnis und Mittragen der Kerntechnik durch die Öffentlichkeit Voraussetzung ist.

So wahr wie der erste Teil dieses Spruches ist auch der zweite: "Und im Abgrund wohnt die Wahrheit".

Unsere Arbeiten zu den hypothetischen Unfällen werden, nach allem was wir heute bereits wissen, letztendlich zeigen, daß die vielen à priori aufgeworfenen pessimistischen Vermutungen sich in Wirklichkeit längst nicht so dramatisch und folgenreicher darstellen. Aber dazu müssen wir eben auch diesen hypothetischen Dingen auf den Grund gehen. Nur dort wohnt die Wahrheit.



Isotherme Oxidation von Zircaloy 4 in Dampf - Vergleich internationaler Werte

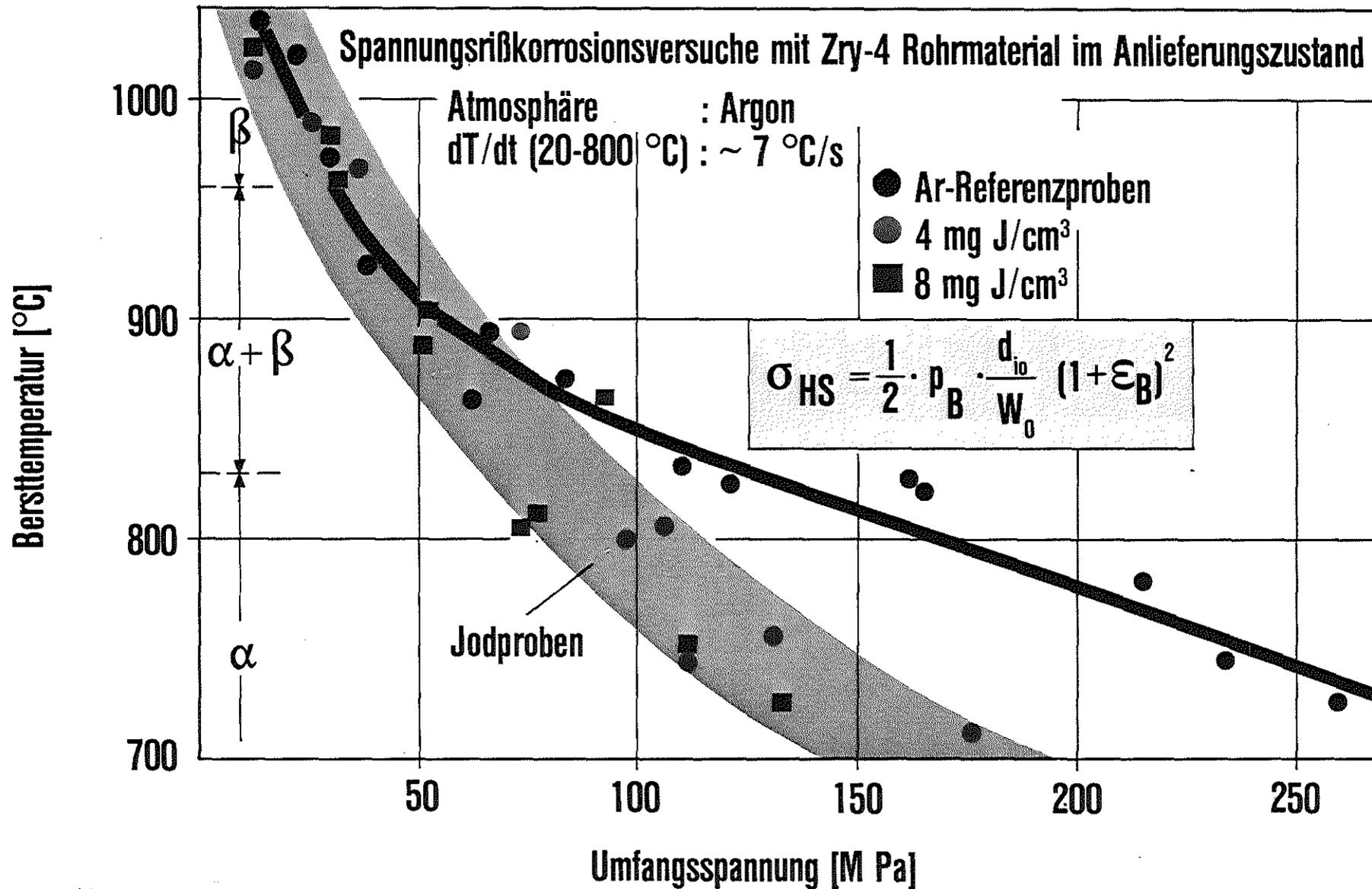


Abb. 2



Wirksame Umfangs-Berstspannung von Zircaloy-Rohrmaterial bei verschiedenen Bersttemperaturen

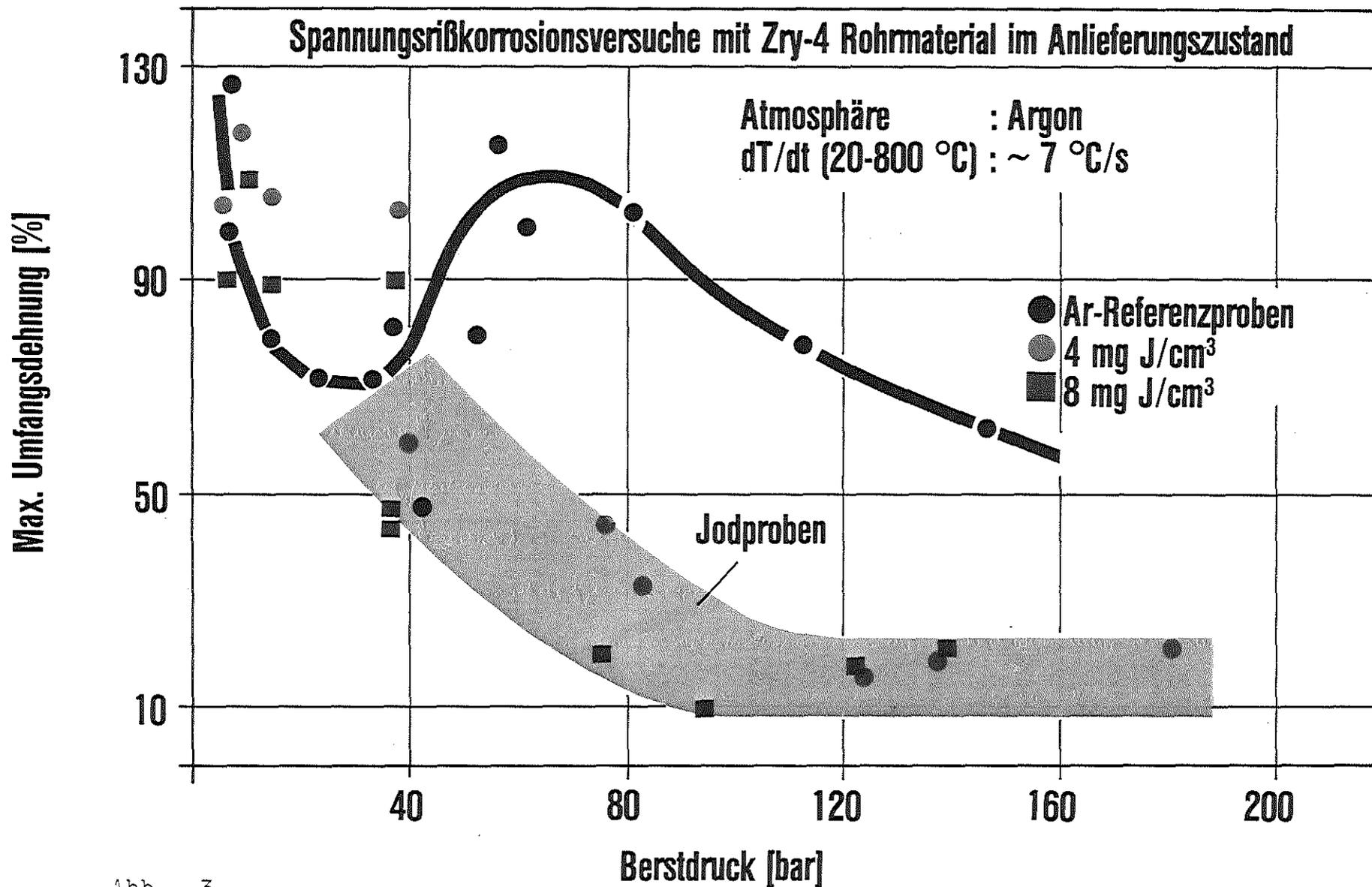


Abb. 3

Umfangsberstdehnung gegen Berstdruck

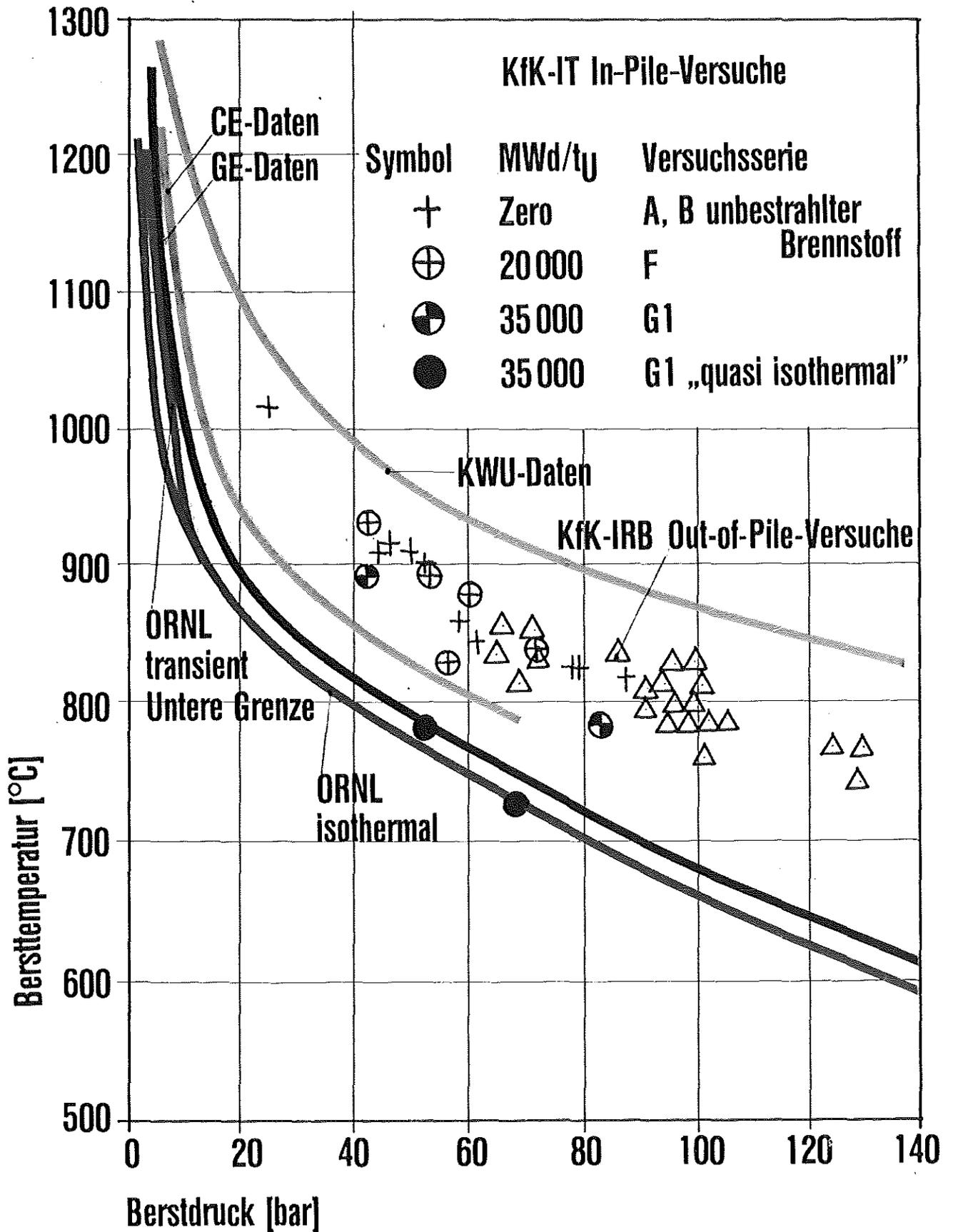


Abb. 4



Bersttemperatur gegen Berstdruck

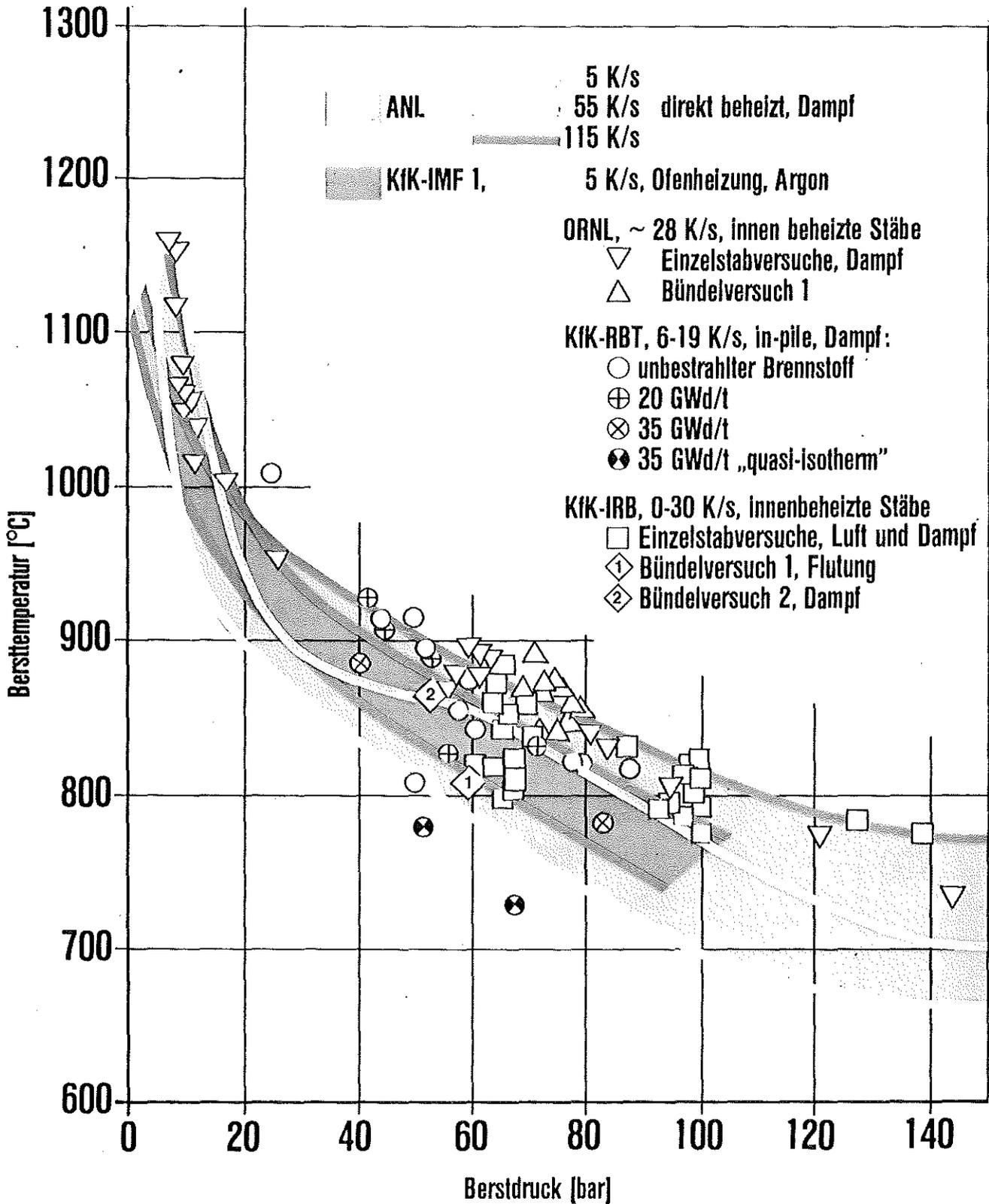


Abb. 5



Bersttemperatur gegen Berstdruck

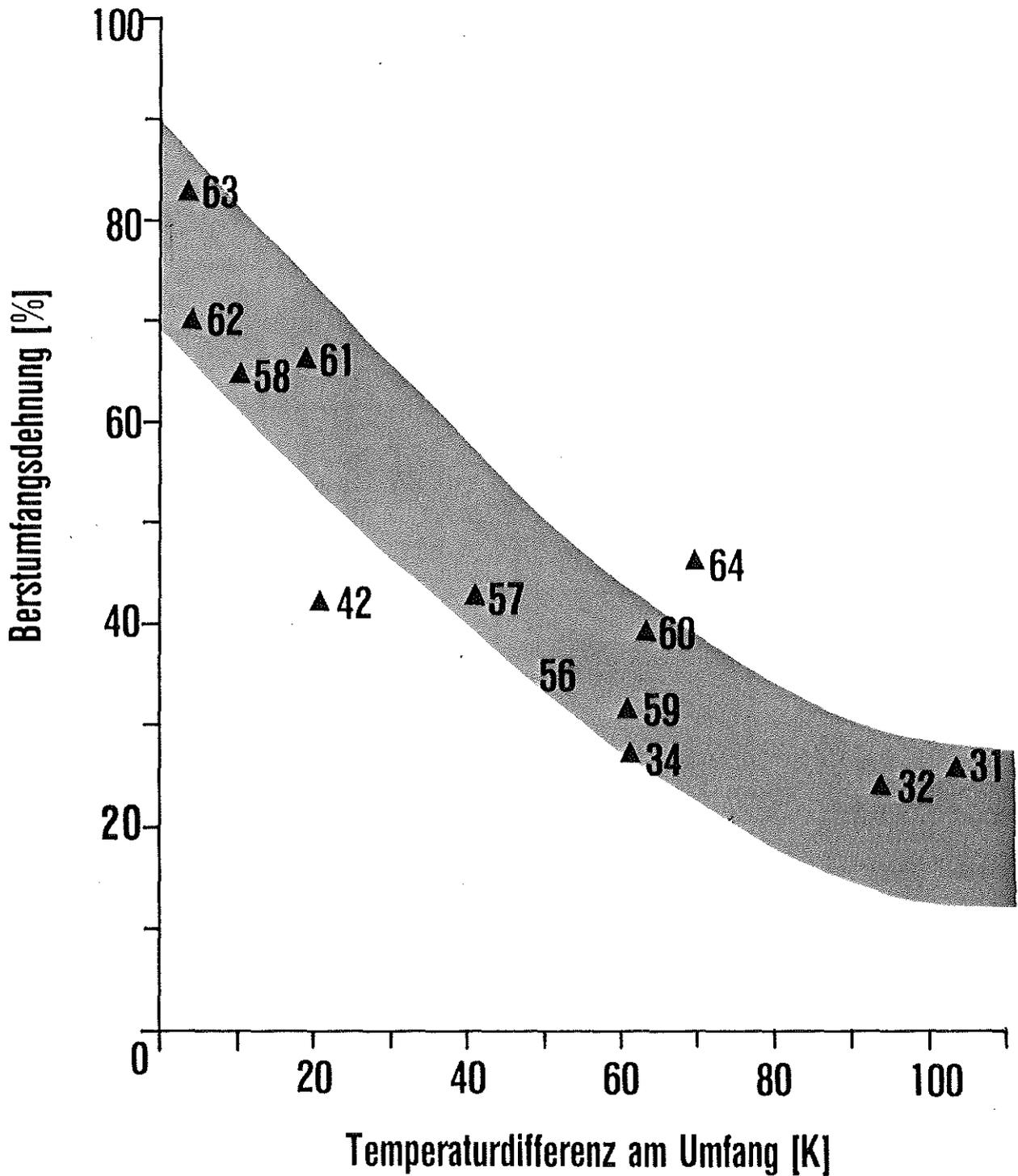


Abb. 6



Berstumfangsdehnung über Umfangstemp.differenz (aus REBEKA-Einzelstabexperimenten)

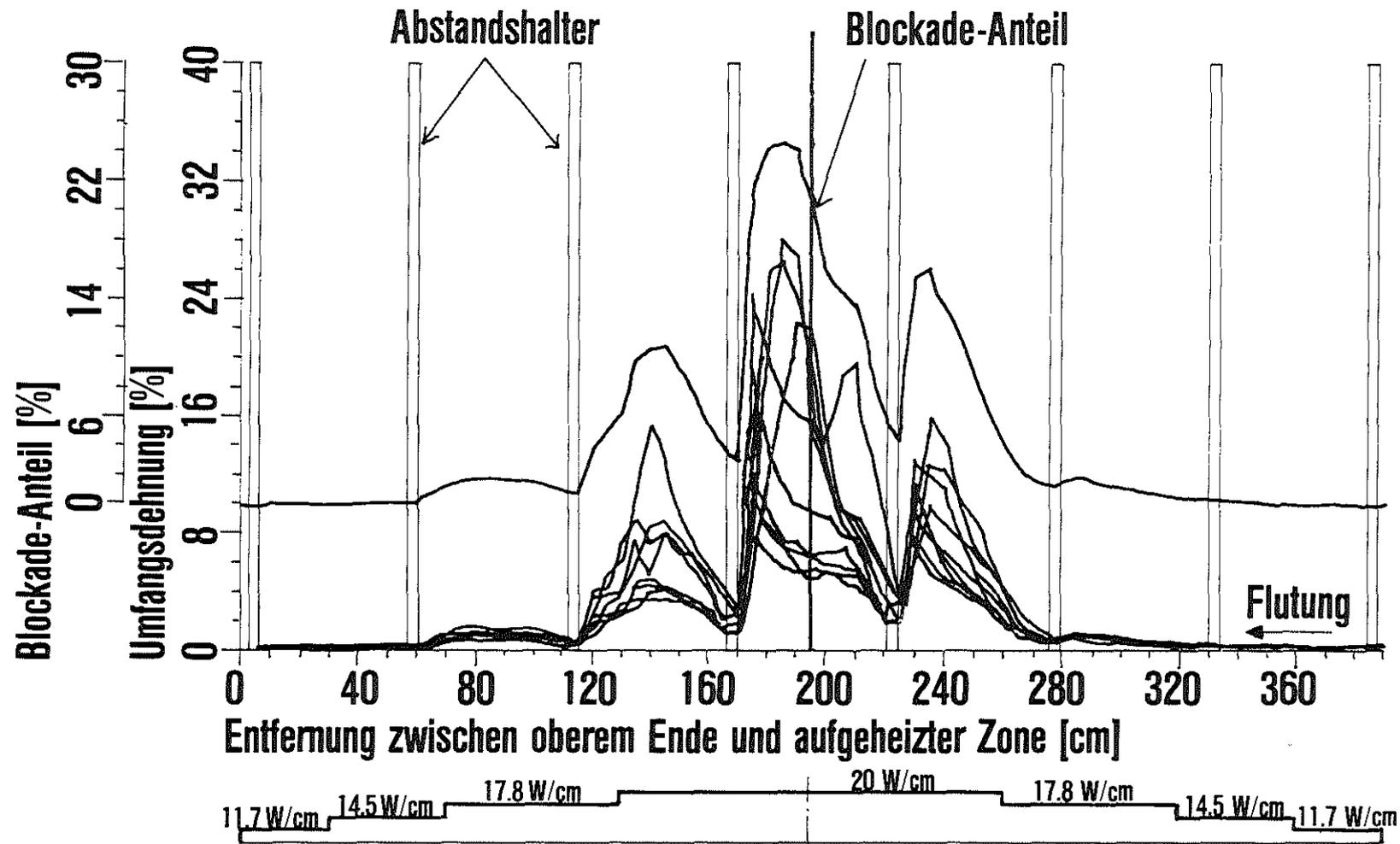


Abb. 7



Erster Bündelversuch Umfangsdehnung der 9 Zircaloy Hüllen und Kühlkanalblockade

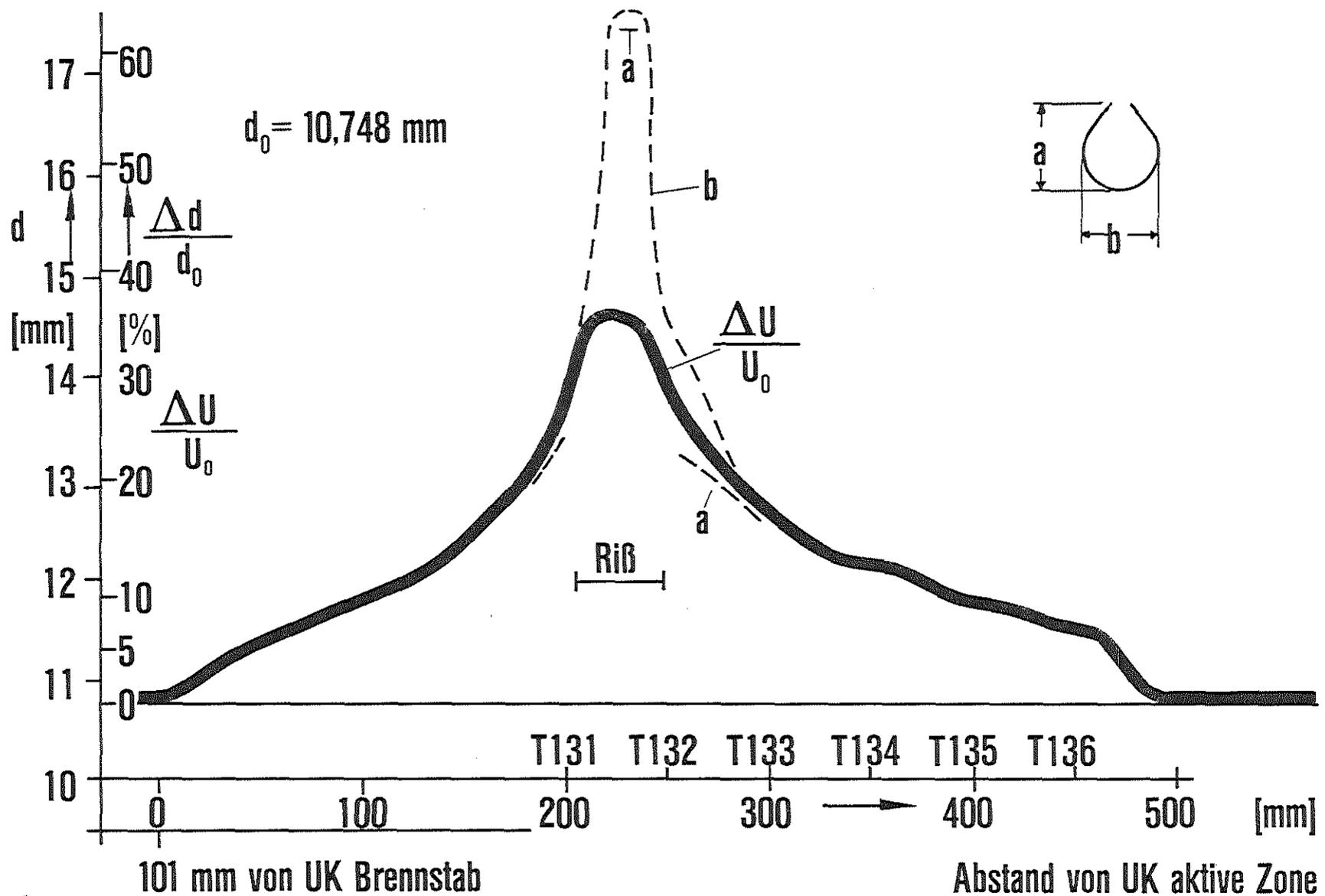


Abb. 8



In-pile-Versuch A2.1

Stab Nr.: 16

Meßwerte des Dehnungsprofils

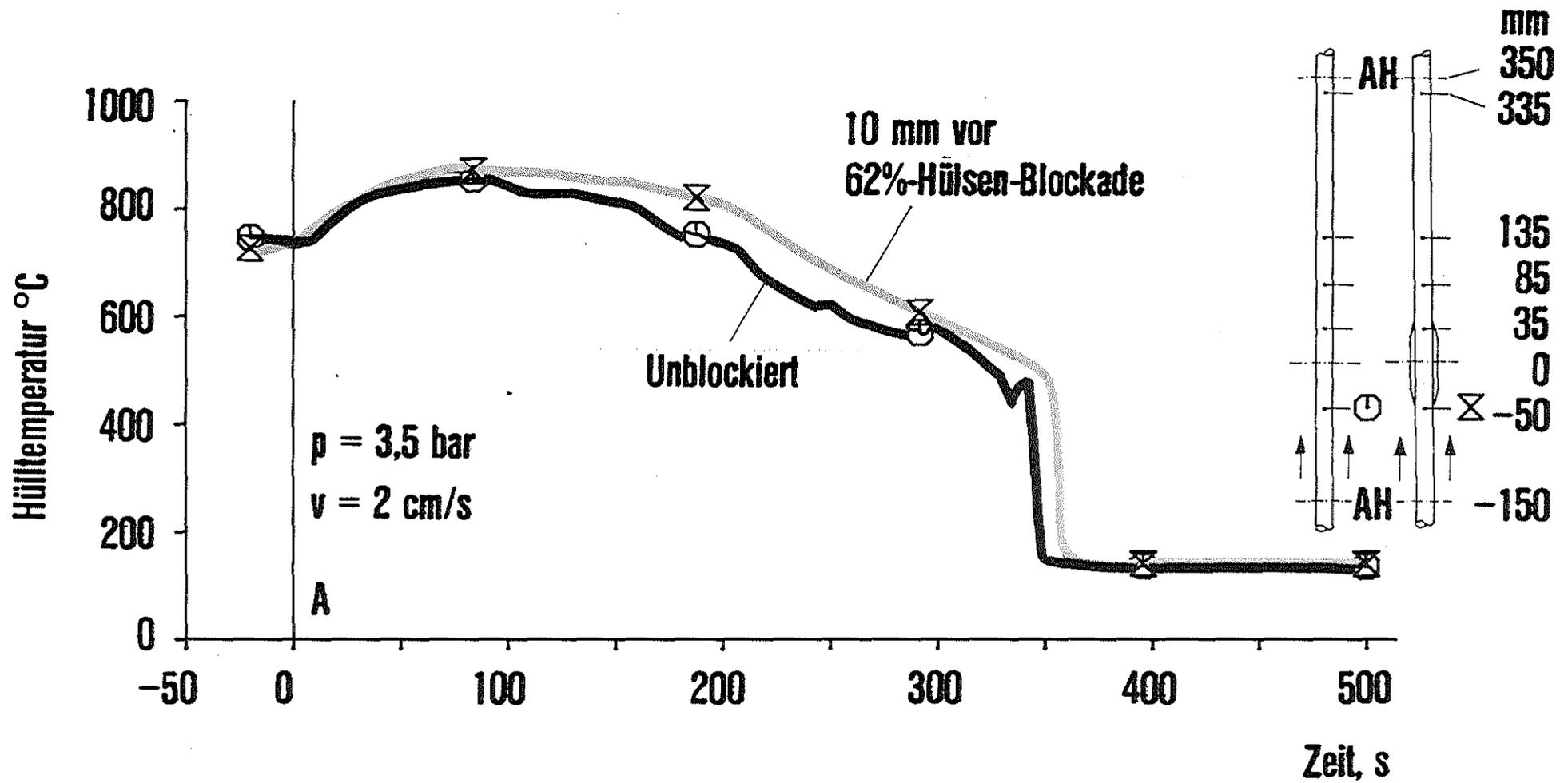


Abb. 9



Transiente Hülltemperatur ohne/mit Blockade

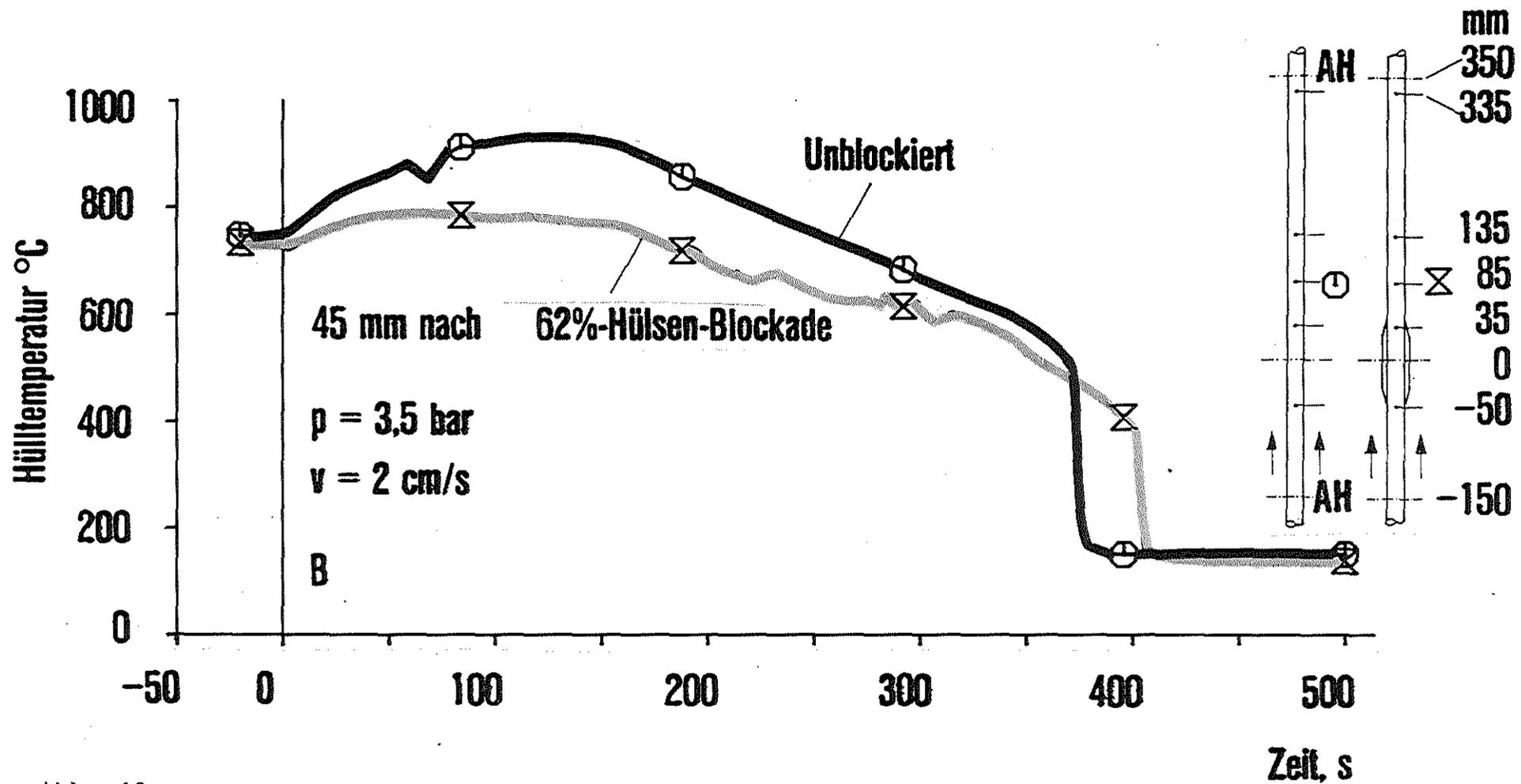


Abb. 10



Transiente Hültemperatur ohne/mit Blockade

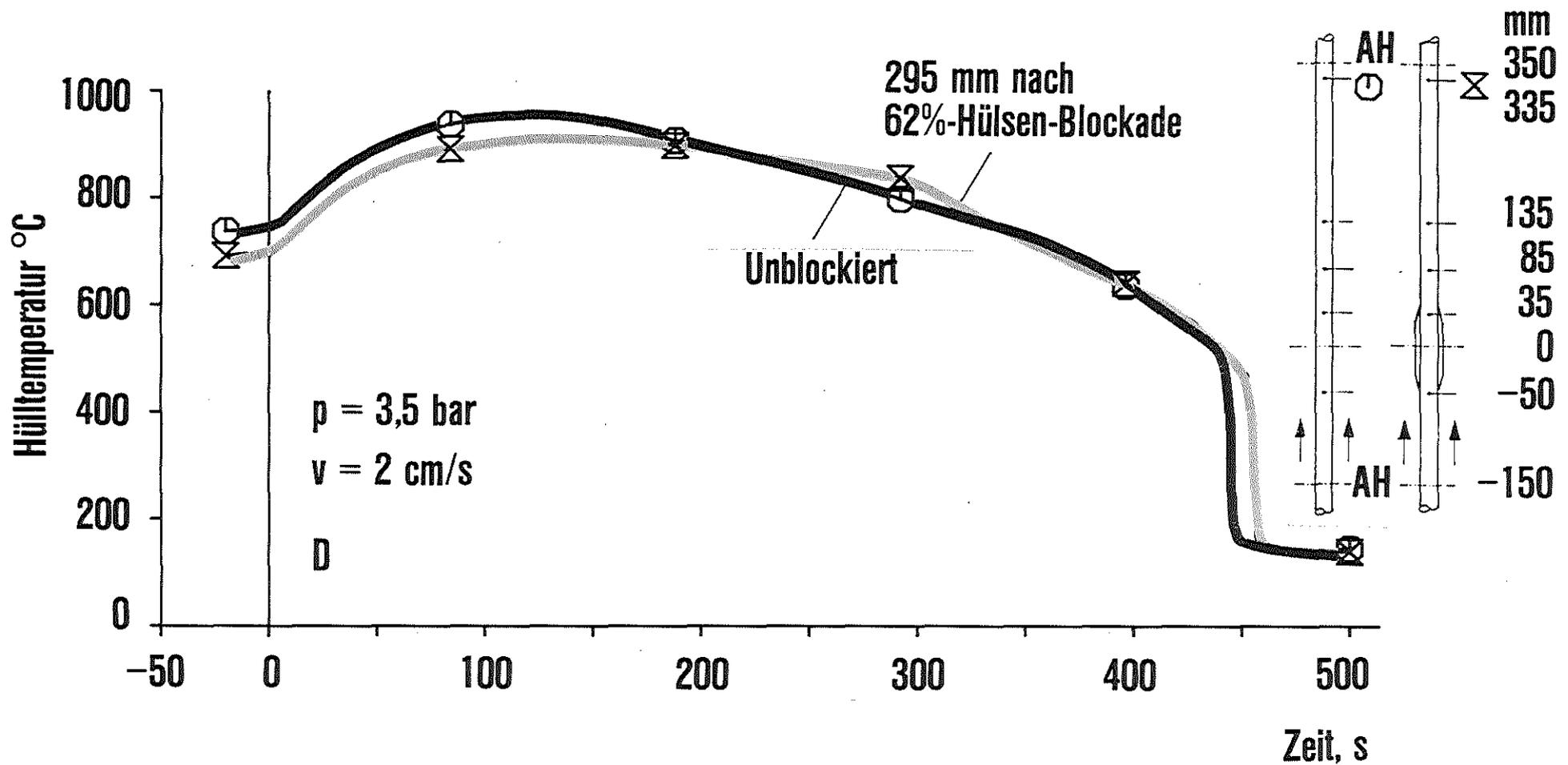


Abb. 11



Transiente Hültemperatur ohne/mit Blockade

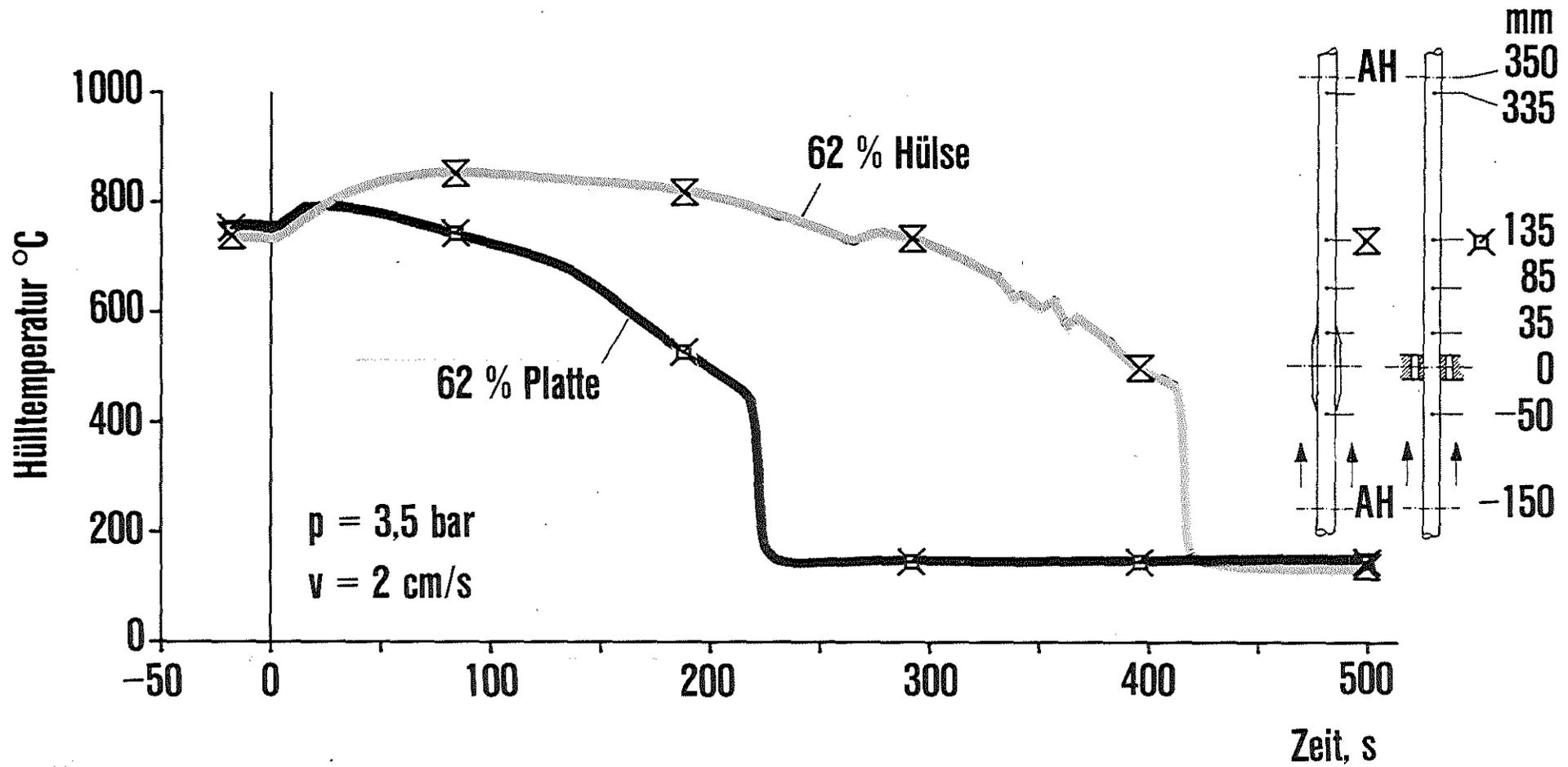


Abb. 12



Transiente Hültemperatur bei Platten-/Hülsenblockade

Iodine	Cesium	Type of experiment
○	●	Implant, predrilled
▽	▼	Implant, ruptured
△	▲	CsI Implant, ruptured
◇	◆	Low burnup, predrilled
□	■	High burnup, predrilled
▢	▣	High burnup, ruptured

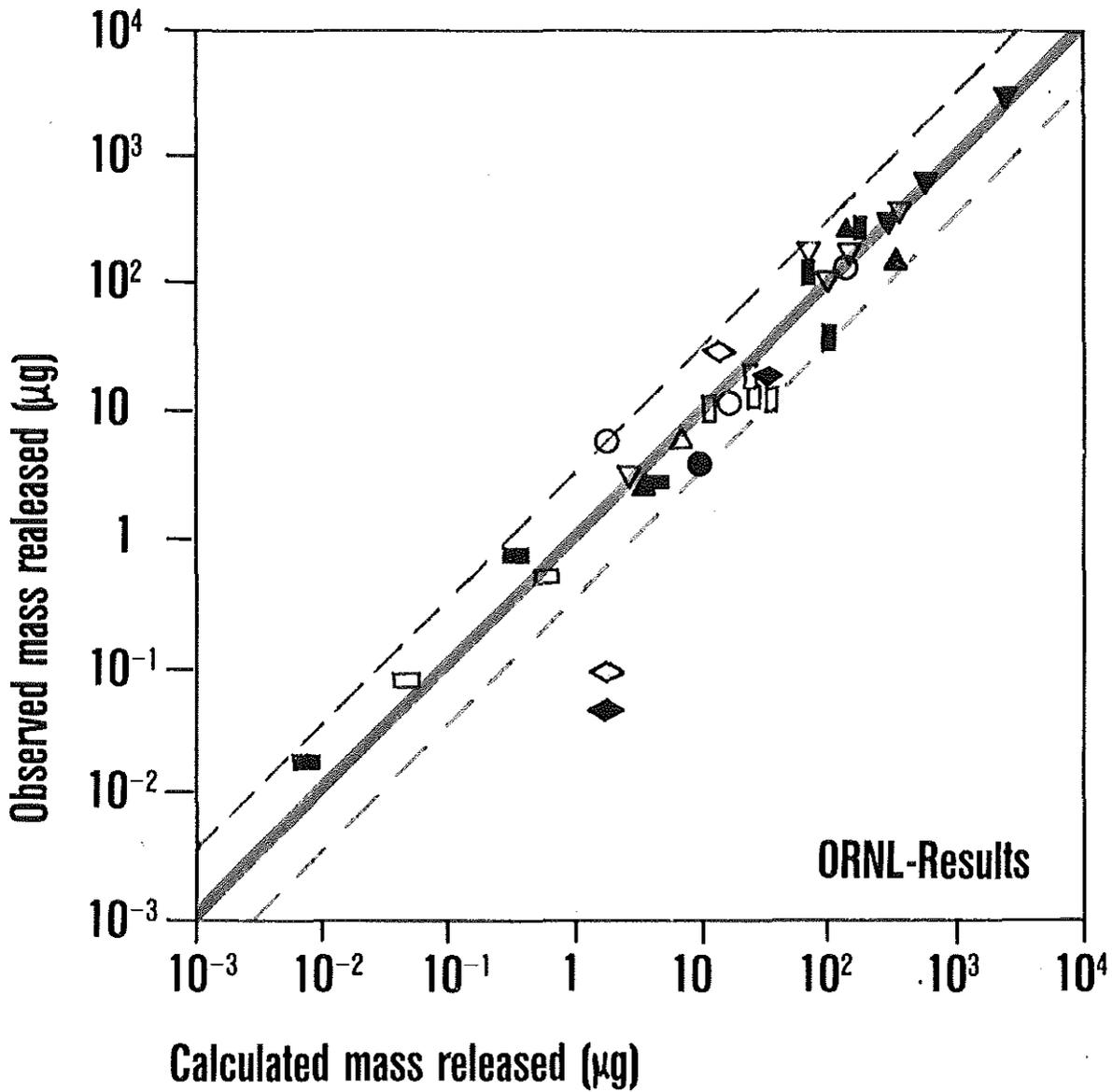


Abb. 13



Model calculation vs experiments for Cesium and Iodine release from failed LWR fuel into steam

Element	Gap inventory ^a (% of total inventory)		Gap escape fraction (% of gap inventory)		Total release (% of total inventory)	
	WASH-1400	Model	WASH-1400	Model	WASH-1400	Model
Xe and Kr	8	1.27	100	100 ^b	8	1.27 ^b
Cs	15	2.79	33	0.89	5	0.025
I	10	2.79	33	1.91	3.3	0.053

^a Calculated for stable and long-half-life isotopes. The gap inventory and total release of ¹³³Xe and ¹³¹I would be 2 to 3 times lower.

^b An additional amount of fission gas, approximately 1.5% of the total inventory, would be released during heatup.

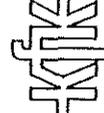
Abb. 14



Comparison of WASH-1400 and model calculations (ORNL-results)

Event	Release-phase	Relevant elements
Failure of the ECCS	Gap-release	Kr, Xe, I, Cs
Onset of melting, boil-off		
Melt propagation in the core region	Meltdown-release	Kr, Xe, I, Cs, Te, Sr, Ba, Ce, U, Pu, Cr, Mn, Fe, Co, Sn,
Melt at the bottom of the RPV	Melt-release	
Primary vessel meltthrough	Pour-out-release	Mo, Tc, Ru, Rh, Sn, Sb, Si
Melt/concrete interaction	Vaporization-release	

Abb. 15



Course of a core meltdown accident and sequence of the release phases

Leichtflüchtig

(Siedepunkt < 1300 °C)

Kr, Xe, Br, I, Rb, Cs, Se, Te

Mittelflüchtig

(Siedepunkt < 3000 °C)

Sr, Mo, Tc, Ru, Rh, Sb, Ba / Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Sn

Schwerflüchtig

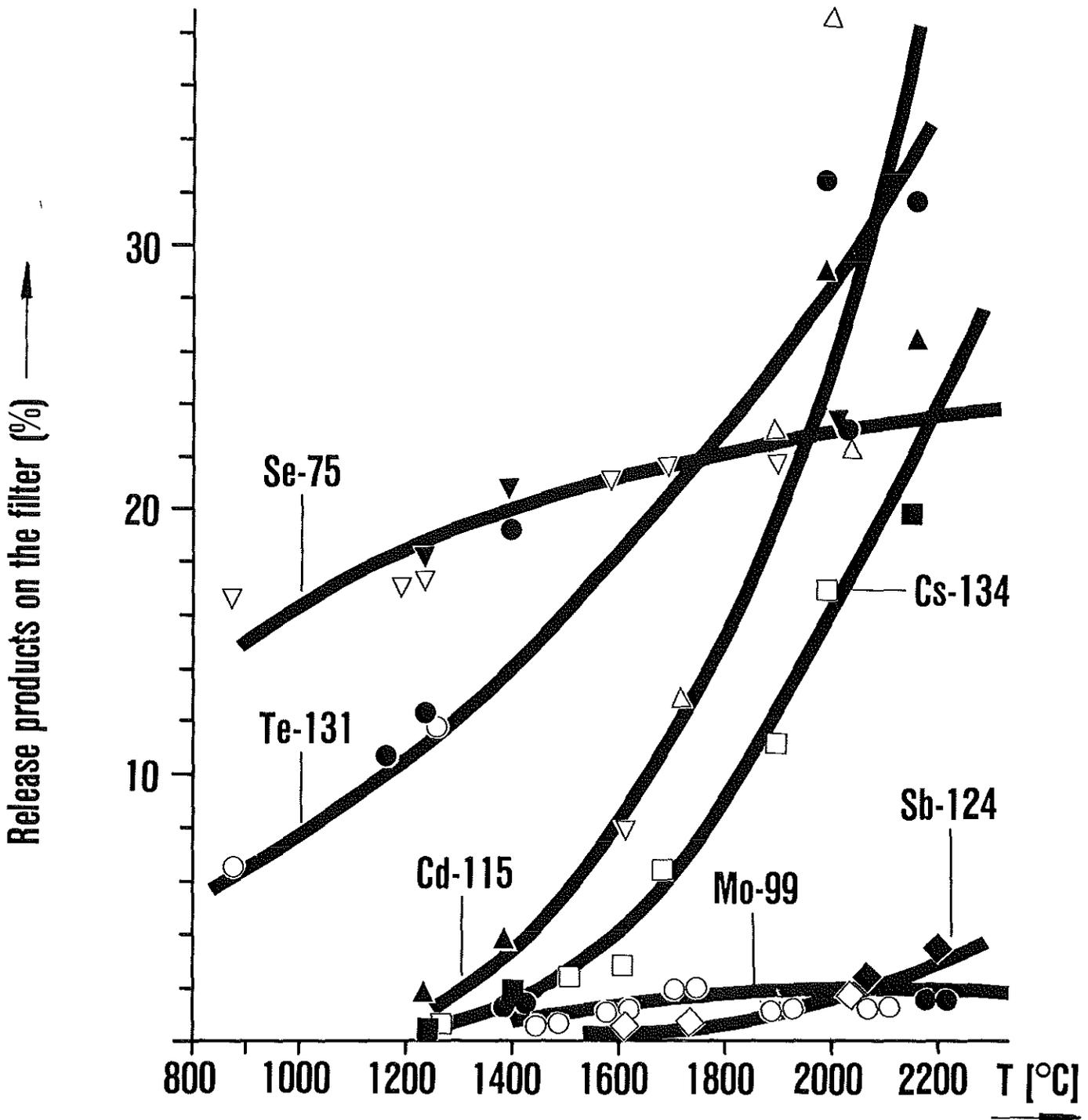
(Siedepunkt > 3000 °C)

Y, Zr, Nb, Seltene Erden, U, Np, Pu, Am, Cm

Abb. 16



Klassifizierung des Spaltprodukt-Inventars anhand der Flüchtigkeit der Elemente und Oxide



Release of fission products as function of temperature (air, 1 bar, flow rate 5 l/min, 30 g corium-E, fission pellets; open symbols from on-line measurement, filled symbols from off-line measurements)



Abb. 17

Release of Fission Products vs Temperature

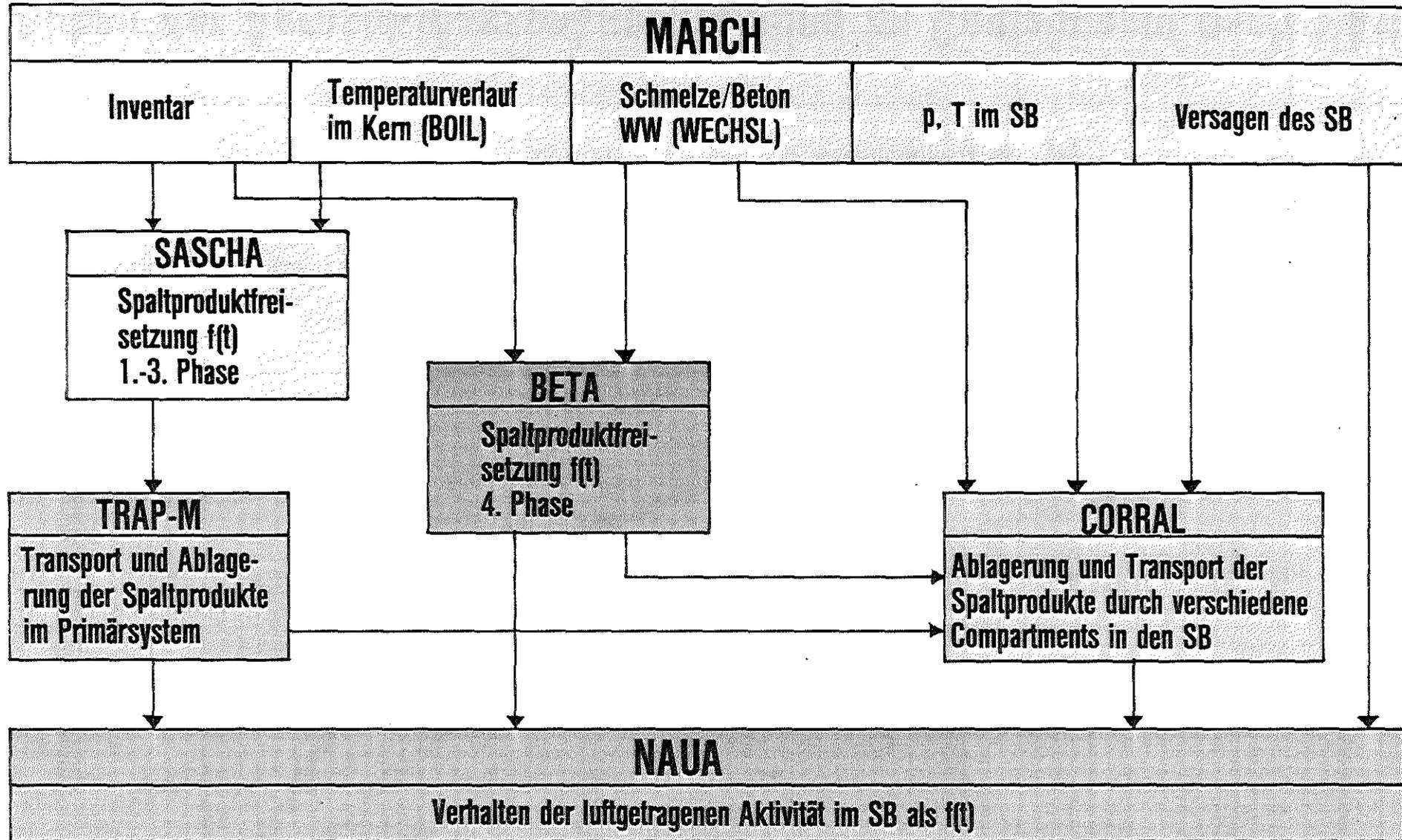


Abb. 18



Luftgetragene Aktivität im Containment beim Kernschmelzenunfall

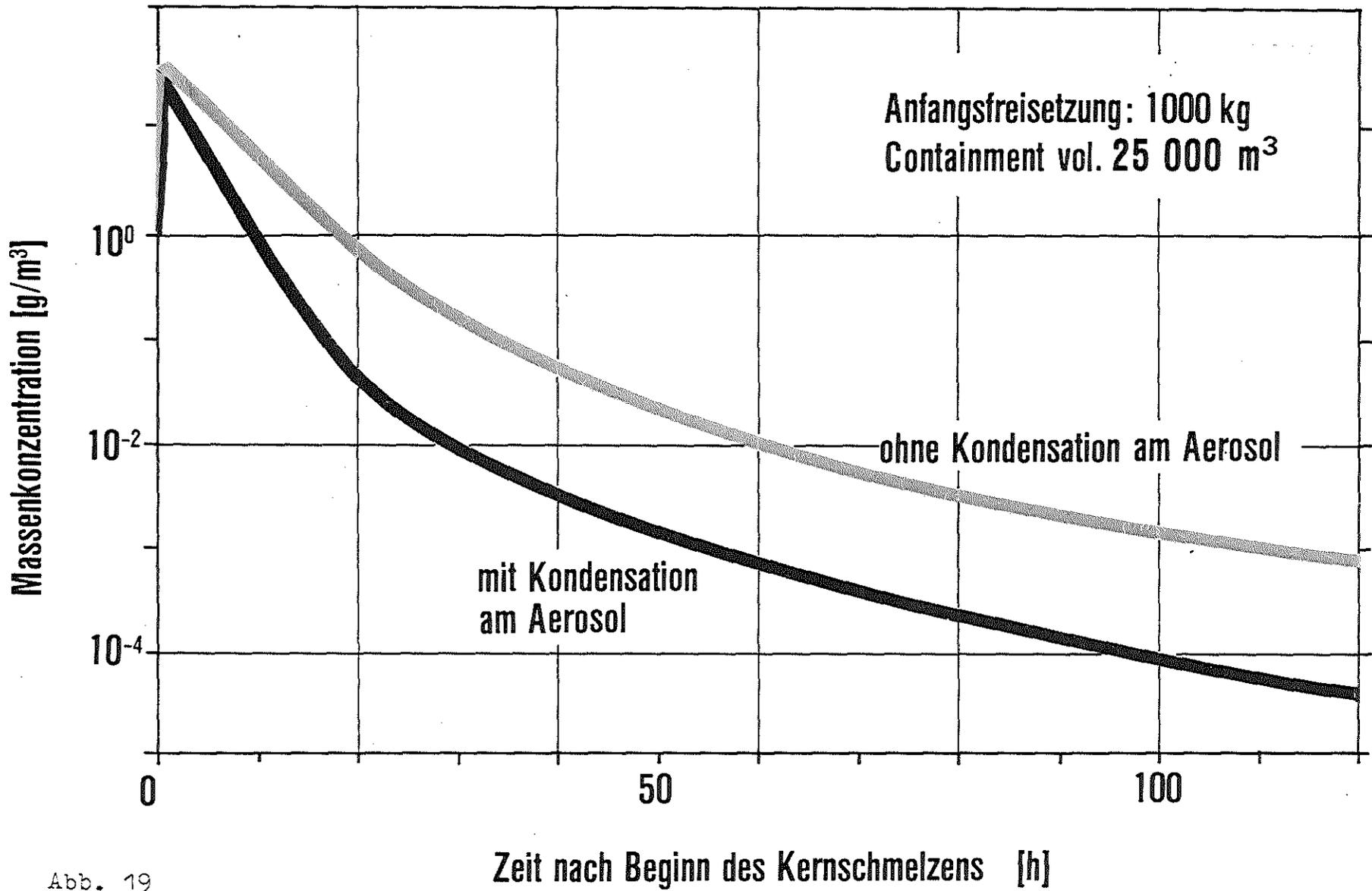


Abb. 19

Abbau der Aerosol-Massenkonzentration im Containment nach NAUA

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT
JAHRESKOLLOQUIUM 1978

PERFORMANCE OF UNIRRADIATED AND IRRADIATED PWR FUEL
RODS TESTED UNDER POWER COOLING-MISMATCH CONDITIONS

P. E. MCDONALD
ET AL.

EG & G IDAHO INC.

Accident Analysis

Edited by P. M. Haas

Response of Unirradiated and Irradiated PWR Fuel Rods Tested Under Power-Cooling-Mismatch Conditions

By Philip E. MacDonald,* William J. Quapp,† Arthur S. Mehner,‡ Zoel R. Martinson,§ and Richard K. McCardell¶

Abstract: *This report summarizes the results from the single-rod power-cooling-mismatch (PCM) and irradiation effects (IE) tests conducted to date in the Power Burst Facility (PBF) at the U. S. Department of Energy's Idaho National Engineering Laboratory. This work was performed for the U. S. Nuclear Regulatory Commission under contract to the Department of Energy. These tests are part of the Nuclear Regulatory*

Commission's Fuel Behavior Program, which is designed to provide data for the development and verification of analytical fuel behavior models that are used to predict fuel response to abnormal or postulated accident conditions in commercial light-water reactors (LWRs). The mechanical, chemical, and thermal response of both previously unirradiated and previously irradiated LWR-type fuel rods tested under power-

*P. E. MacDonald is the manager of the Thermal Fuels Behavior Division in the Water Reactor Research Directorate of EG&G Idaho, Inc. From 1966 until 1970, he was a fuel-rod behavior analyst with Westinghouse Electric Corporation. From 1970 to 1973, he was supervisor of Fuel Rod Design for Nuclear Fuel Services. Since joining the Idaho National Engineering Laboratory in 1973 as supervisor of the Fuel Behavior Requirements Section, he has served as manager of the Program Development and Evaluation Branch and manager of the Experiment Specifications and Analysis Branch. He received the B.S. degree in science engineering and the B.A. degree in psychology from the University of Michigan.

†W. J. Quapp is manager of the Program Development and Evaluation Branch of the EG&G Idaho, Inc., Thermal Fuels Behavior Program. He has been with EG&G (and its predecessor Aerojet Nuclear Company) for about 5 years. Previously, he worked on fuel behavior research at the Halden Project in Norway for 2 years while with Nuclear Fuel Services. Still earlier, he worked in several phases of nuclear fuel design for the General Electric Company. He holds the M.S. degree in mechanical engineering from San Jose State University.

‡Arthur S. Mehner joined EG&G Idaho, Inc., at the Idaho National Engineering Laboratory in 1975. He has been involved in fuel testing, fuel design, and fuel and cladding development studies within the nuclear industries for the past 10 years. He currently is a supervisor in the Thermal Fuels Behavior Program and is involved in fuel behavior tests being conducted in the Power Burst Facility. He holds the B.S.

degree in engineering science from Cleveland State University and the M.S. degree in materials science from Northwestern University. He is currently working on an M.B.A. degree at Idaho State University.

§Zoel Martinson is a project engineer in the Fuel Thermal Behavior Program of EG&G Idaho, Inc. He has been involved in thermal fuel behavior testing and analysis at the Idaho National Engineering Laboratory since 1962 except from 1973 to 1975, when he was with Babcock & Wilcox Company as a thermal-hydraulic analyst. He holds the B.S. and M.S. degrees in physics from Colorado State University.

¶R. K. McCardell is a supervisor in the Thermal Fuels Behavior Program at EG&G Idaho, Inc. He is presently responsible for the loss-of-coolant and reactivity-initiated accident tests being conducted in the Power Burst Facility (PBF). He has been involved in reactor safety analytical and experimental efforts at the Idaho National Engineering Laboratory since 1962. From 1962 through 1968 he worked on the SPERT-ID core destructive tests, the SPERT-III experiments on Doppler shutdown following power excursions in a small PWR, and the capsule driver core design and experiments on fuel-rod behavior. From 1968 to 1973 he was involved in fuel-rod behavior model development and initial specification of the PBF tests. From 1973 until 1977 he was a project engineer responsible for the power-cooling-mismatch tests conducted in the PBF. He holds the B.S. and M.S. degrees in physics from Idaho State University.

ACCIDENT ANALYSIS

cooling-mismatch conditions is discussed. A brief description of the test designs is presented. The results of the PCM thermal-hydraulic studies are summarized. Primary emphasis is placed on the behavior of the fuel and cladding during and after stable film boiling.

A series of power-cooling-mismatch experiments is being conducted at the U. S. Department of Energy's Idaho National Engineering Laboratory (INEL) on unirradiated and irradiated fuel rods to evaluate the behavior of light-water-reactor (LWR) fuel rods under postulated accident conditions. The test program is being carried out in the Power Burst Facility (PBF) by EG&G Idaho, Inc., under contract to the Department of Energy as part of the U. S. Nuclear Regulatory Commission's Reactor Safety Research Program.¹

Two series of tests, designated the power-cooling-mismatch (PCM) and irradiation effects (IE) test series, have been conducted. The purpose of both test series was to obtain experimental data for the development and verification of analytical models that are used to predict the fuel and core behavior during periods of power and cooling imbalance in commercial LWRs.

Because of the large number of possible LWR power-cooling-mismatch events that can be postulated, it was not feasible to study each situation separately. Therefore the PCM test series was designed as a parametric evaluation of fuel behavior, with cladding temperature, fuel-rod power, and time in stable film boiling being the variables. The five categories of possible post-DNB (departure from nucleate boiling) fuel-rod behavior of interest are listed in Table 1. The physical processes that determine the particular category of post-DNB fuel-rod behavior expected during a PCM are zirconium-phase change and the

degree of zirconium-water or zirconium-fuel reaction, both of which primarily influence cladding ductility. The principal variables that control these processes are the cladding temperature and the time in film boiling. In Table 1 the potential modes of fuel-rod failure are also identified for each post-DNB fuel behavior category. Fuel-rod internal pressure, fuel-rod power, and cladding temperature are the most important variables influencing the failure mode.

The IE tests were designed to investigate the effects of prior irradiation history and rod design variables on the film-boiling behavior of typical LWR fuel. The specific effects investigated include cladding irradiation damage; rod internal gas composition and pressure; closure of fuel-to-cladding gap due to cladding creep, fuel swelling, and relocation of cracked pellet fragments; fuel density; and the presence of corrosive fission products.

This report summarizes the key results to date from the PCM and IE test series conducted to date, with specific emphasis on the mechanical, chemical, and thermal behavior of fuel rods during film-boiling operation. A more extensive description of the test design, individual test objectives, and results of the PCM and IE tests are provided in Refs. 2 to 17. Four additional PCM tests are planned, three of which will be with nine-rod clusters. On the basis of the results of the IE test series, a few additional tests are also being considered to further study the effects of fission-product behavior.

EXPERIMENT DESIGN AND CONDUCT

Pressurized-water-reactor-type Zircaloy-clad, 97-cm-long, UO₂ fuel rods enriched to between 9.5 and

Table 1 Categories of Post-DNB Fuel-Rod Behavior During PCM Transients

Category	Stabilized cladding temperature range, °K	Stabilized Zircaloy cladding material phase	Zirconium-water reaction	Cladding ductility	Potential fuel-rod failure modes
1	<800	Low-temperature α	None	Normal	
2	800-1105	High-temperature α	None	High	Large deformations*
3	1105-1245†	α + β transition	Minimal	Low	Small deformations*
4	1245-1650	Low-temperature β	Severe	High-low‡	Embrittlement of cladding by oxidation and oxygen absorption
5	>1650	High-temperature β	Severe	Low	Cladding and possibly fuel melting

*Outward deformation of cladding is possible in an LWR only after sufficient accumulation of gaseous fission products has increased the internal rod pressure to values above the system pressure.

†This temperature range is intended to bound the cladding ductility minimum that occurs during the α + β-phase transition.

‡The cladding ductility is initially high in beta zirconium but will decrease rapidly as the Zircaloy is embrittled by oxidation and oxygen absorption.

ACCIDENT ANALYSIS

20 wt.% with ^{235}U were used in the experiments. The rods were tested singly or four at a time in the PBF in-pile tube with each rod contained in its own coolant flow shroud. Each shroud contained a turbine flowmeter, inlet and outlet thermocouples, and a differential thermocouple for thermal-hydraulic measurement of the fuel-rod power. The test hardware contained axially distributed, cobalt self-powered neutron detectors and flux wires for determination of the axial flux distribution. In the four-rod tests, each rod was subjected to nominally the same power history and coolant environment. Coolant inlet temperatures and system pressures were typical of a pressurized-water-reactor (PWR) environment. A test fuel rod with its associated hardware and instrumentation is shown schematically in Fig. 1.

To date, seven PCM and six IE tests have been performed with 21 previously unirradiated test rods, 9 previously irradiated fuel rods,* and 7 test rods built with irradiated cladding and fresh fuel. The test rods have been operated under stable film-boiling conditions for periods varying from 30 sec to 11 min at local linear power levels ranging from 45 to 80 kW/m. The tests were conducted with a preconditioning period of 20 to 30 hr consisting of several power cycles and some steady-state operation. The DNB was initiated either by a power increase at a constant mass flow rate or by a mass flow rate decrease at constant power. Both the power increases and mass flow rate decreases were usually performed in small steps so as to carefully approach the critical heat flux without a significant overshoot. The PCM test rods were generally exposed to a number of DNB occurrences (cycles) before being exposed to stable film-boiling conditions. The PCM test results are summarized in Table 2, and the IE test results are summarized in Table 3.

Figure 2 presents an example of typical cladding surface and fuel centerline temperatures, fuel-rod axial expansion, and rod internal pressure during film boiling. The onset of film boiling causes an immediate decrease in the surface heat flux, after which the rod begins to heat up over the next 20 to 30 sec to much higher temperatures. The cladding surface temperatures in the region of film boiling increase to values ranging from 900 to 1850°K. The fuel centerline temperatures increase comparably, and strong, positive axial elongation of the cladding is observed. Generally

*Irradiated rods were from the Saxton Reactor and were provided to the U. S. Department of Energy by the Westinghouse Electric Corporation.

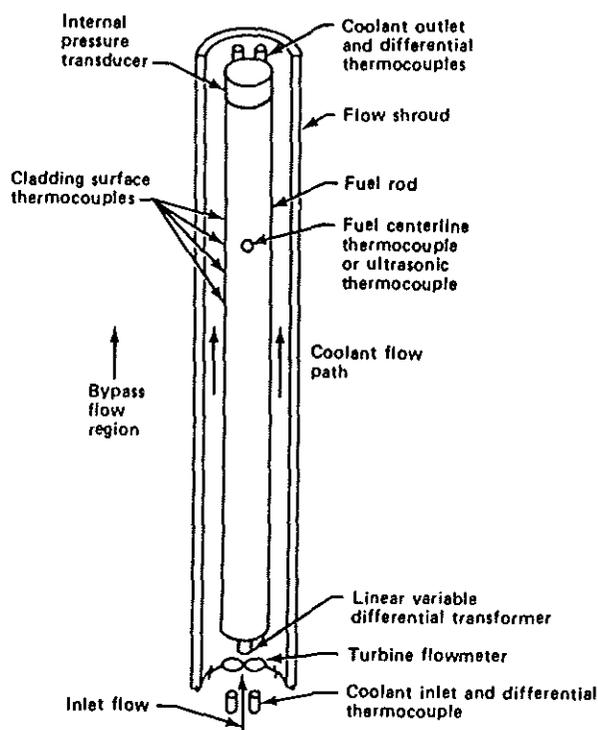


Fig. 1 PCM and IE test configuration.

the rod internal pressure increases only a modest amount. The maximum cladding temperature, maximum fuel centerline temperature, cladding elongation, and increase in internal pressure of each rod are listed in Tables 2 and 3.

THERMAL-HYDRAULIC BEHAVIOR

Inherent to the understanding of fuel-rod behavior under film-boiling conditions is an understanding of the thermal-hydraulic conditions that produce film boiling. To that end, PCM tests have been performed to investigate (1) the influence of coolant flow reduction rate and the applicability of steady-state heat-transfer correlations to transient fuel-rod behavior predictions, (2) the effect of power increase vs. coolant flow reduction to attain film boiling, (3) the axial propagation of film boiling on a rod, and (4) the effectiveness of terminating film boiling by increasing the flow rate.

For an evaluation of the experimental results, FRAP-T^{18,19} (Fuel Rod Analysis Program-Transient) calculations were made for each test using the as-measured fuel-rod power, inlet coolant flow, inlet enthalpy, pressure, and temperature histories for input, along with fuel-rod and hardware characterization data.

Table 2 Summary of PCM Test Results

Test designation	Test rod designation ^a	Pre-pressure, MPa	Rod flow shroud I.D., mm	Preconditioning time, hr	Number of DNB cycles	Fuel-rod peak power during final DNB cycle, kW/m	Coolant mass flux for DNB, kg/(sec)(m ²)	Total time in film boiling, sec	Maximum cladding temperature, °K (elevation of thermocouple, m)	Maximum cladding temperature, °K (elevation of metallurgical examination, m)	Maximum fuel centerline temperature, °K (elevation of thermocouple, m)	Increase in rod internal pressure after DNB, MPa	Cladding axial elongation after DNB, mm	Zircaloy crystal phase at hot-spot	Maximum thickness of ZrO ₂ α layer, μm	Region of indicated film boiling, m
8-1 RS	4	3.79	17.9	2	4	80	1383	660 ^c	1105 (0.635)	1683 (0.597)	2564 (0.737)	0.69	2.29	β	200	0.48-0.76
CHF	5	3.79	19.2	1.5	7	63	1397	60	1061 (0.533)	1372 (0.584)	2422 (0.679)	0.26	2.92	β	30	0.48-0.79
scoping																
8-1 RF	6	3.82	19.4	17	6	61	407	30	992 (0.737)	1311 (0.787)	1889 (0.737)	0.21	d	α + β	6	0.66-0.86
PCM-2A	7	2.49	16.3	35	9	58	827	210	861 (0.789)	1430 (0.67)	1894 (0.787)	0.24	1.04	β	92	0.66-0.86
PCM-2	8	2.58	16.3	14	8	50	775	105	1315 (0.635)	1470 (0.53)	2253 (0.686)	0.38	2.90	β	78	0.41-0.84
	9	2.58	16.3	14	8	53	920	52	917 (0.787)	980 (0.74)	1900 (0.533)	0.20	d	α	3	0.66-0.84
	10	2.58	16.3	14	8	51	980	50	875 (0.787)	950 (0.74)	2082 (0.686)	0.15	d	α	2	0.74-0.82
	14A	3.88	16.3	14	8	50	905	50 ^e	f	1340 (0.66)	f	f	1.70	β	15-20	0.56-0.84
PCM-3	11	2.59	16.3	22	5	49	855	60	887 (0.686)	1190 (0.68)	d	0.20	0.15	α	3-3.5	g
	13	2.59	16.3	22	5	51	820	0	649 (0.686)	h	d	d	0	α	h	h
	15A	3.79	16.3	22	5	53	779	60	f	1330	f	f	3.81	β	44	0.43-0.76
	21A	2.59	16.3	22	5	49	1000	60 ^e	1103 (0.584)	1490 (0.554-0.578) (0.48-0.53)	f	f	0.40	β	56	0.43-0.76
PCM-4	14	2.59	16.3	15	4	71	1862	115	930 (0.584)	1395 (0.664)	d	0.24	1.00	β	46	0.61-0.84
	15	2.59	16.3	15	4	67	2027	160	1100 (0.686)	1520 (0.625)	d	0.40	1.55	β	106	0.56-0.82
	16	2.59	16.3	15	4	68	1848	130	1005 (0.584)	1495 (0.641)	d	0.38	1.55	β	82	0.52-0.81
	17A	3.79	16.3	15	4	70	2044	120 ^e	f	>1245 (0.629-0.768)	f	f	1.24	β	82	0.61-0.84

^aUnirradiated PWR-type rod.^bTemperature in degrees Kelvin at a given axial elevation in meters above bottom of fuel stack.^cRod broke after test during cooldown.^dInstrumentation not functioning properly.^eLinear variable differential transformer indication only.^fFuel rod not instrumented for this measurement.^gFuel rod not collapsed.^hMetallurgical examination not planned.

Table 3 Summary of IE Test Results

Test designation	Test rod designation	Test rod type ^a	Pre-pressurization, MPa	Rod flow shroud I.D., mm	Pre-conditioning time, hr	Number of DNB cycles	Fuel-rod peak power during final DNB cycle, kW/m	Coolant mass flux for DNB, kg/(sec)(m ²)	Total time in film boiling, sec	Maximum cladding temperature, ^b °K (elevation of thermocouple, m)	Maximum cladding temperature, ^b °K (elevation of metallurgical examination, m)	Maximum fuel centerline temperature, ^b °K (elevation of thermocouple, m)	Increase in rod internal pressure after DNB, MPa	Cladding axial elongation after DNB, mm	Zircaloy crystal phase at hot-spot	Maximum thickness of ZrO ₂ α layer, μm	Region of indicated film boiling, m
IE-ST-1	IE-001	SL-U	2.59	19.3	19	1	67	2090	288 ^c	1310 (0.50)	1620 (0.60)	d	d	2.0	β	230	0.48-0.80
IE-ST-2	IE-002	SL-I	2.67	19.3	34	e	55	e	e	f	g	f	e	e	e	e	e
	IE-004	M	2.72	19.3	34	e	61	e	e	f	g	e	e	e	e	e	e
	IE-005	SW-I	2.66	19.3	34	1	61	1280	60	f	1330 (0.81)	2750 (0.74)	0.60	d	β	28	0.56-0.93
	IE-006	SL-U	0.1	19.3	34	1	61	1414	90 ^h	1100 (0.61)	f	f	f	d	g	g	g
IE-1	IE-007	SL-I	1.91	16.3	33	1	68	2520	70 ^c	f	1850 (0.55)	f	0.6	2.8	β	300	0.45-0.69
	IE-008	SL-I	1.72	16.3	33	1	63	1690	60	f	1445 (0.62)	f	d	1.6	β	45	0.54-0.69
	IE-009	SL-I	1.21	16.3	33	1	64	1840	50	f	1440 (0.55)	f	0.8	0.9	β	40	0.54-0.68
	IE-010	SL-I	2.49	16.3	33	1	64	2030	60	f	1609 (0.56)	f	0.6	3.1	β	70	0.51-0.69
IE-2	IE-011	M	2.5	16.3	34	1	65	2550	90	i	1450 (0.61)	1870 (0.74)	0.07	1.83	β	32	0.55-0.68
	IE-012	M	2.5	16.3	34	1	65	2650	90	i	1375 (0.59)	d	0.32	0.08	β	21	0.54-0.68
	IE-013	SL-U	2.7	16.3	34	1	62	2750	90	1080 (0.62)	1445 (0.61)	d	0.18	e	β	28	0.52-0.68
	IE-014	SL-U	2.7	16.3	34	1	61	2750	90	1020 (0.62)	1375 (0.61)	d	1.17	0.28	β	15	0.51-0.68
IE-3	IE-015	SL-I	2.48	16.3	31	1	71	2110	70 ^c	f	1685 (0.60)	f	1.24	d	β	90	0.48-0.70
	IE-016	SL-I	2.48	16.3	31	1	65	2160	70	f	1810 (0.55)	f	2.06	3.75	β	110	0.47-0.72
	IE-017	SL-I	2.48	16.3	31	1	71	2290	70	d	1530 (0.65)	f	0.64	5.57	β	77	0.51-0.71
	IE-018	SL-I	2.48	16.3	31	1	62	2100	70	d	1580 (0.51)	f	0.88	2.81	β	50	0.47-0.68
IE-5	IE-019	SW-I	8.3	16.3	29	1	62	1275	70 ^h	d	1600 (0.53)	d	j	5.39	β	48	0.45-0.86
	IE-020	SW-I	2.5	16.3	29	1	68	1315	70	d	1700 (0.58)	2330 (0.74)	0.33	5.09	β	80	0.48-0.65
	IE-021	M	2.5	16.3	29	1	63	1210	70	d	g	d	0.42	5.14	g	g	0.47-0.70
	IE-022	SL-U	2.6	16.3	29	1	69	1800	80 ^c	d	g	d	0.42	5.04	g	g	0.45-0.71

^aSL-U = Saxton load follow rod — unirradiated.

SL-I = Saxton load follow rod — irradiated.

SW-I = Saxton water tubes irradiated with fresh fuel.

M = MAPI irradiated cladding with fresh fuel.

^bTemperature in degrees Kelvin at a given axial elevation in meters above bottom of fuel stack.

^cRod broke after test during cooldown.

^dInstrumentation not functioning properly.

^eRod did not go into film-boiling operation.

^fFuel rod not instrumented for this measurement.

^gMetallurgical examination not planned.

^hRod broke during posttest handling in hot cell.

ⁱNo indication of change.

^jRod failed by ballooning during film boiling.

ACCIDENT ANALYSIS

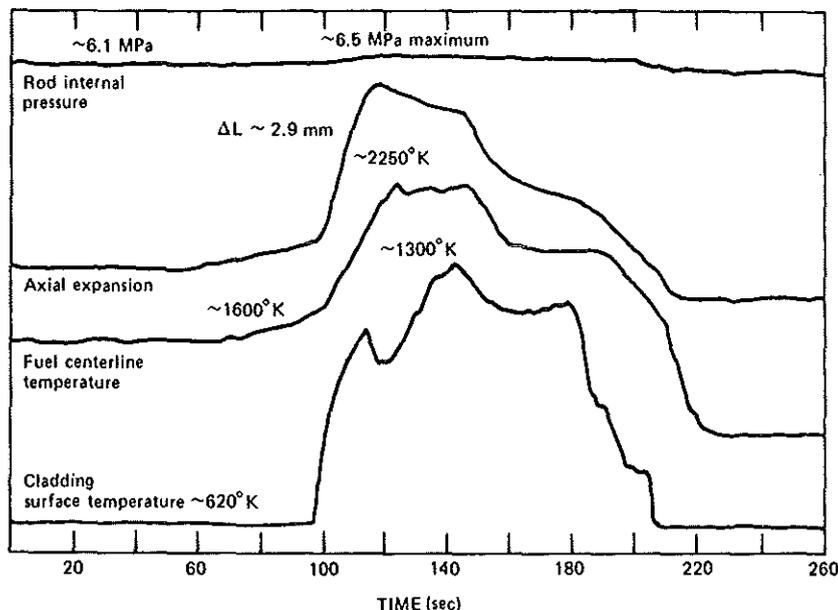


Fig. 2 Typical cladding and fuel temperature, axial expansion, and rod internal pressure response of an LWR fuel rod during a PCM test.

The FRAP-T code has several options available for calculating the onset of DNB and vapor film propagation in a large array of fuel rods subjected to normal LWR coolant flow rates. However, a suitable single-rod, low-mass-flux DNB correlation is not available. Therefore, both the Babcock & Wilcox Company B&W-2 (Ref. 20) and the Westinghouse Electric Corporation W-3 (Ref. 21) bundle correlations were used to calculate the onset of DNB in the single-rod, low-flow PCM and IE tests. The McDonough, Milich, and King transition boiling correlation²² was used for all calculations. Three film-boiling correlations have been used for posttest calculations: (1) Groeneveld 5.7 (Ref. 23), which is derived from heated-annuli film-boiling data; (2) Groeneveld 5.9 (Ref. 23), which is derived from heated-tube and heated-annuli data; and (3) Tong-Young.²⁴

Onset of DNB

For an accurate estimate of the cladding surface temperatures during film boiling, the conditions for the onset of DNB must be known. A summary of the experimental and calculated coolant mass flux at the onset of DNB for the PCM four-rod, flow-reduction-type tests is given in Fig. 3. The calculations using either of the DNB correlations are in generally good agreement with the data. However, both correlations

underpredicted the coolant mass flux at DNB for test PCM-4, which was conducted at higher rod powers (70 kW/m). Although the DNB correlations were developed for cluster geometries and for coolant mass fluxes greater than 1300 kg/(sec)(m²), the LWR-design DNB correlations adequately calculated the onset of DNB conditions for the PCM annular geometry tests with coolant mass fluxes at DNB ranging from 460 to 2000 kg/(sec)(m²). The presence of instrumentation on the fuel-rod cladding surface was determined to have had no effect on the onset of film boiling by comparing the behavior of rods having no instrumentation with rods having instrumentation.

Vapor Film Propagation

A comparison of the experimental and calculated propagation of the film-boiling region for one of the four test rods in test PCM-2 is shown in Fig. 4. The W-3 DNB correlation calculated DNB to occur initially at about 0.79 m above the bottom of the fuel stack and then to spread from 0.69 to 0.84 m along the rod as the coolant mass flux was further reduced. The temperature data indicated that DNB occurred initially near the top of the rod and then spread to lower elevations as the flow was reduced. On the basis of posttest examination of the fuel rod, the collapse region of the rod (that is, the region of stable film

ACCIDENT ANALYSIS

boiling) extended from 0.41 to 0.84 m, in agreement with the cladding surface thermocouple indications.

The calculated-vs.-measured axial location and extent of DNB do not always agree. The difference

between the calculated and measured propagation and extent of the vapor film surrounding rod 14A in test PCM-2 shown in Fig. 4 is typical of what has generally been observed. Much of the discrepancy between the measured and calculated location and extent of DNB is due to experimental variation (possibly caused by rod bowing or some phenomena that have not been characterized). In fact, when four nominally identical fuel rods have been tested simultaneously and at nearly identical powers and coolant mass fluxes, considerable variation in the axial location and extent of film boiling has been measured.

If film boiling actually occurs during a test in regions below the calculated regions (as illustrated in Fig. 4), high cladding temperatures will be observed in regions where normal (low) temperatures are predicted, and the peak measured values will be above the peak calculated values because of the higher local rod power at elevations closer to the axial flux peak (lower elevations). Similarly, if film boiling is not observed at the axial elevations where it is calculated, higher than actual peak cladding temperatures will be calculated.

Cladding Temperatures

Stabilized film-boiling cladding temperatures were calculated using FRAP-T^{18,19} and the three film-boiling correlations mentioned previously (Groeneveld 5.7, Groeneveld 5.9, and Tong-Young). Comparisons of the measured and calculated cladding surface temperatures of all the PCM test rods indicated that the calculations performed using the Groeneveld 5.9 cor-

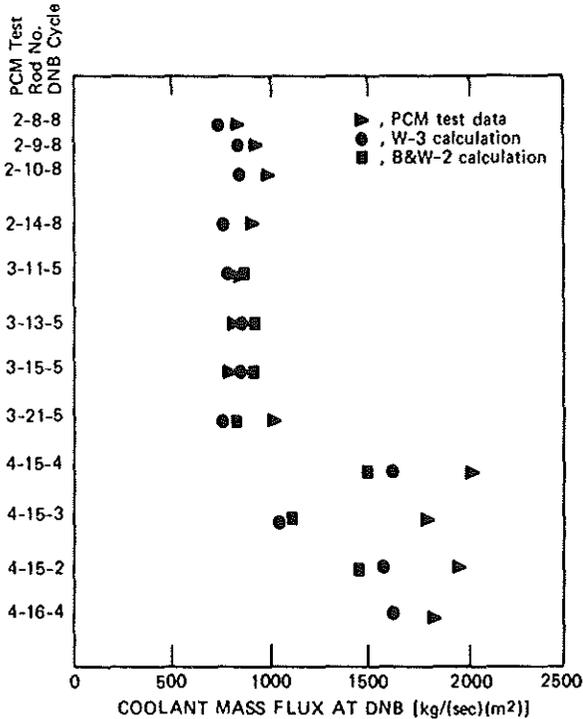


Fig. 3 Experimental and calculated coolant mass flux at onset of DNB.

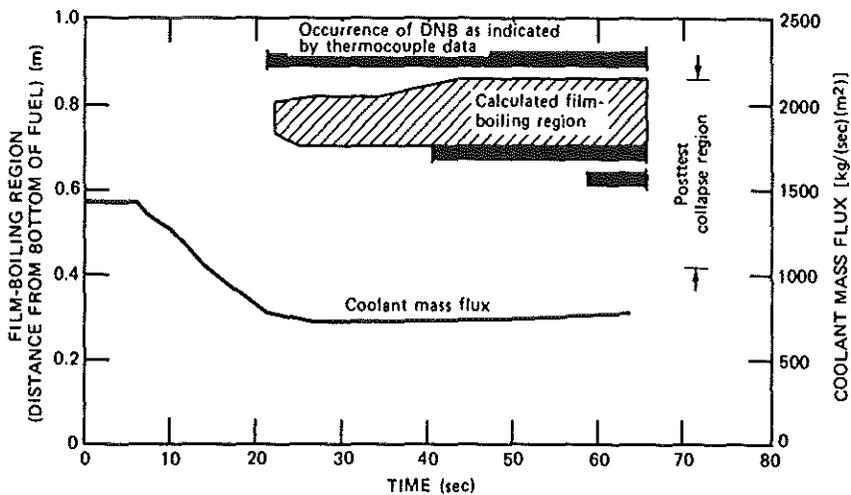


Fig. 4 Comparison of experimental and calculated propagation of film-boiling region around rod 14A during test PCM-2, using the Westinghouse W-3 DNB correlation.

ACCIDENT ANALYSIS

relation were generally closer to the measured data. The Groeneveld 5.9 correlation was derived from heated-tube and heated-annuli data and therefore might be expected to best correlate with the measured data.

In Fig. 5, a summary comparison of the PCM cladding temperature test data and the corresponding FRAP-T calculations using the W-3 DNB correlation and the Groeneveld 5.9 film-boiling correlation is presented. The data used in Fig. 5 come from only those axial elevations at which film boiling was both observed and calculated. In general, the calculations agree well with the observed data or overestimate the observed maximum cladding temperatures. However, in three cases the measured temperatures exceeded the calculated values by up to 9%. A tendency for more scatter and generally poor calculations is observed at the lower temperatures below the alpha to alpha-plus-beta transformation temperature.

Much of the scatter shown in Fig. 5 may be due to rod bowing or other phenomena which are not accounted for in the various film-boiling heat-transfer correlations. These effects may have caused the variations of up to 500°K observed in the maximum cladding temperatures of fuel rods operating in film boiling at nominally the same conditions. In test PCM-2, a four-rod test, one of the rods attained a maximum cladding temperature of 1470°K, whereas the maximum cladding temperatures of the other three rods were 1345, 980, and 950°K, respectively. The values for test PCM-2 are indicated by small arrows on Fig. 5. The peak value was accurately calculated, but

the other values were overestimated. Also, variations of up to 300°K have been observed in the cladding temperature around the circumference of some rods.⁸ The presence of external cladding thermocouples, acting as cooling fins, and fuel-rod bowing are believed to be responsible for these azimuthal temperature variations. Azimuthal temperature generally varies much less for rods not instrumented with cladding surface thermocouples.

Table 4 compares the desired and achieved cladding temperature regimes during the PCM tests. Since the heat-transfer boundary conditions are difficult to experimentally control in a reactor, especially when moderate (alpha-phase) temperatures are desired, the desired cladding temperatures have not always been achieved.

Cladding temperatures calculated using the Groeneveld 5.9 film-boiling heat-transfer correlation are compared with the experimental data from test PCM-2A, rod 7, and test PCM-2, rod 10, in Figs. 6 and 7, respectively. The axial location and extent of film boiling are calculated quite well for rod 7 during test PCM-2A (Fig. 6), and the calculated cladding temperatures are in good agreement with the experimental results. The extent and axial location of film boiling were not calculated well for rod 10 during test PCM-2 (Fig. 7).

Effect of Flow Reduction Rate

Tests were conducted to determine whether the onset of film boiling, which is predicted on the basis of

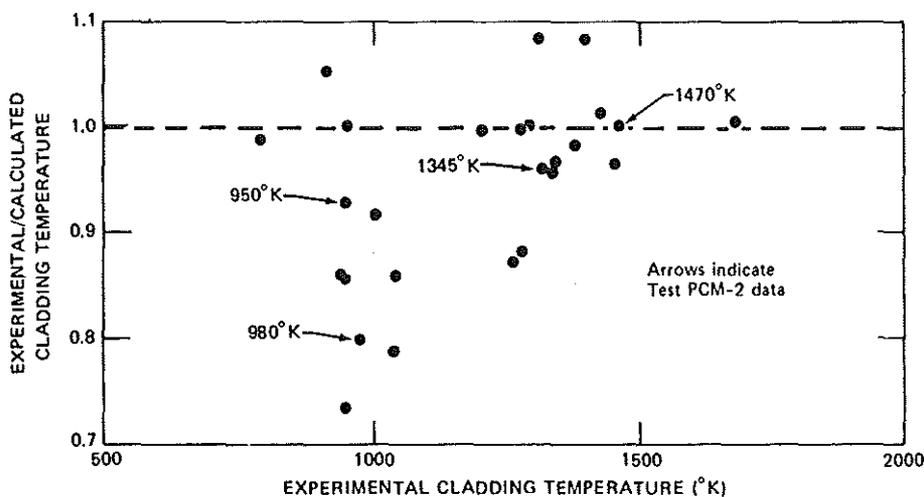


Fig. 5 Comparison of PCM experimental and calculated film-boiling cladding temperatures using the Groeneveld 5.9 film-boiling correlation and the Westinghouse W-3 DNB correlation.

ACCIDENT ANALYSIS

Table 4 Comparison of Desired and Achieved PCM Cladding Temperatures

Test no.	Rod no.	Desired zirconium phase*	Zirconium phase achieved
8-1 RS	4	Low β	High β
CHF scoping	5		Low β
8-1 RF	6	Low β	$\alpha + \beta$
PCM-2A	7	High α	Low β
PCM-2	8	High α	Low β
	9	High α	High α
	10	High α	High α
	14A	High α	Low β
PCM-3	11	$\alpha + \beta$	High α
	13	$\alpha + \beta$	High α
	15A	$\alpha + \beta$	Low β
	21A	$\alpha + \beta$	Low β
PCM-4	14	$\alpha + \beta$ †	Low β
	15	$\alpha + \beta$ †	Low β
	16	$\alpha + \beta$ †	Low β
	17A	$\alpha + \beta$ †	Low β

*The zirconium-phase categories are defined in Table 1.

†This test was originally intended to be a low beta-phase test. The objectives were changed when the PCM-2 and PCM-3 test results became available.

DNB correlations developed from steady-state data, would be influenced by the flow reduction rate. The onset of film boiling was found to be independent of the flow reduction rate for flow reductions of about 0.08% and 3%/sec (flow reduction rates typical of those postulated to occur in commercial PWRs due to a loss of power to the main coolant pumps).

Effect of Method of Attaining Film Boiling

During one test,² film boiling was induced by two methods—a power increase and a coolant flow reduction—to determine whether or not the conditions necessary to produce the onset of film boiling were independent of the method of approach. No significant differences in the coolant flow rate and rod power level at the onset of film boiling were found as a result of the method of approach.

Termination of Film Boiling

Film-boiling operation can usually be predictably terminated by either increasing the coolant flow rate or decreasing the fuel-rod power. Fuel rods operated in film boiling with cladding surface temperatures as high as 1850°K were immediately quenched when the fuel-rod power was decreased to zero. However,

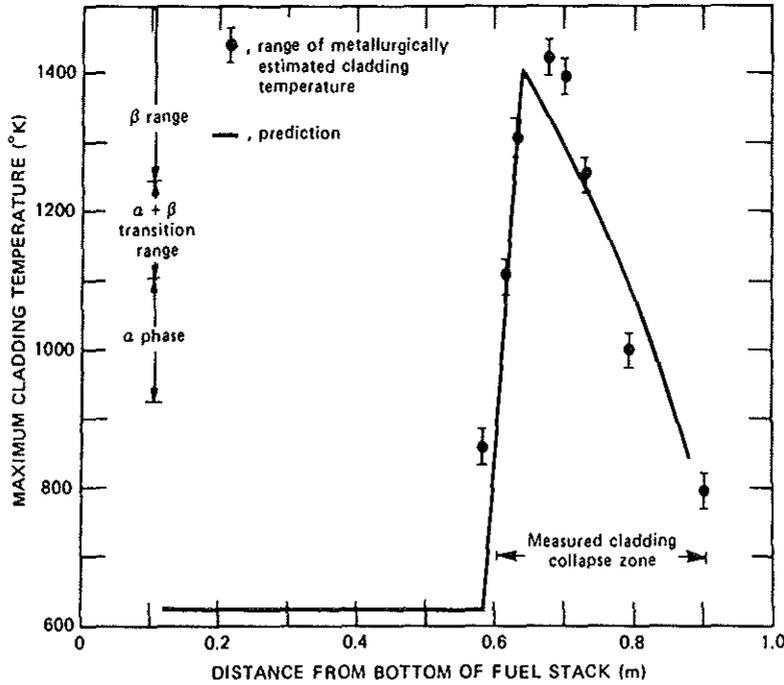


Fig. 6 Comparison of experimental and calculated cladding temperature profile for test PCM-2A, rod 7, using the Groeneveld 5.9 heat-transfer correlation and the Westinghouse W-3 DNB correlation.

ACCIDENT ANALYSIS

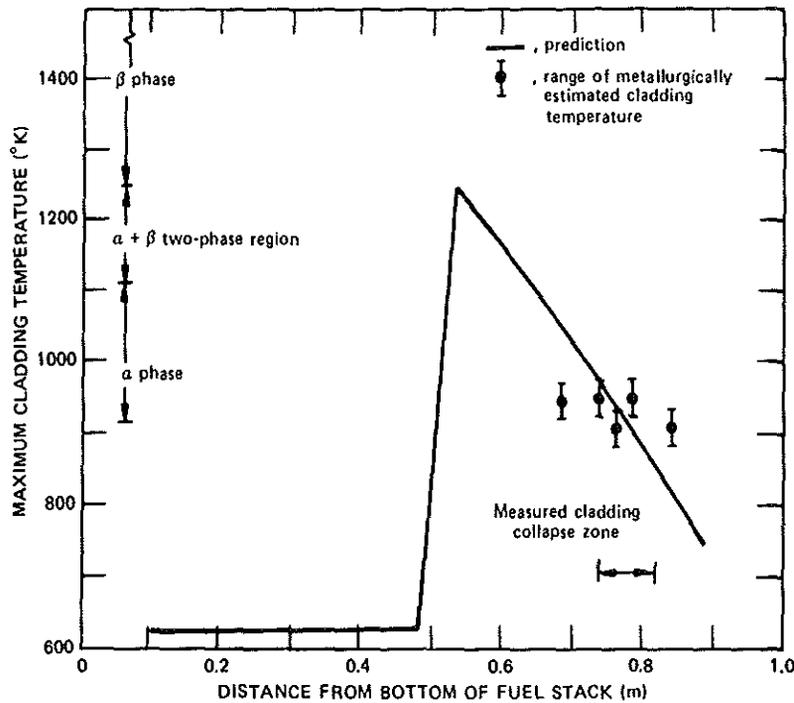


Fig. 7 Comparison of experimental and calculated cladding temperature profile for test PCM-2, rod 10, using the Groeneveld 5.9 heat-transfer correlation and the Westinghouse W-3 DNB correlation.

anomalous thermal-hydraulic behavior was observed on one rod in the four-rod PCM-2 test. Data from this one rod (rod 8) indicated that increasing the coolant mass flux does not always eliminate film boiling immediately. After DNB occurred on all four test rods in test PCM-2 as the coolant flow was reduced rapidly, the cladding surface temperatures were allowed to reach equilibrium film-boiling values. Most of the rods remained in film boiling for about 1 min (however, rod 8 remained in film boiling for only about 20 sec), and then the coolant mass flux was increased to the pre-DNB value of 1458 kg/(sec)(m²). As indicated by cladding temperature and cladding elongation measurements, the cladding surface temperature of three of the rods rapidly decreased (at approximately 120 sec) to that of nucleate boiling. However, as shown in Fig. 8, the cladding temperature of the fourth rod (rod 8) decreased as the flow was increased but then gradually increased to 1310°K. The fuel-rod peak power was then decreased to 40 kW/m, which decreased the cladding temperature to 910°K. However, only after the fuel-rod power was further decreased to 30 kW/m and the coolant mass flux increased to 1600 kg/(sec)(m²) did the cladding surface temperature return to that of nucleate boiling.

CLADDING BEHAVIOR

Film-boiling operation produces high cladding temperatures within the film-boiling zone. At elevated cladding temperatures the system pressure causes collapse of the cladding onto the fuel column, into pellet interfaces, and into pellet chips on the pellet surfaces. Because of the intimate contact between the fuel and the cladding at high temperatures, a cladding-fuel reaction occurs at the cladding inner surface. The elevated cladding temperature also results in a cladding-water reaction at the cladding outer surface. Both reactions contribute to cladding embrittlement. Observations of cladding behavior are presented in more detail in the following sections.

Appearance of the Cladding in the Film-Boiling Zone

The typical appearance of the film-boiling zone of a fuel rod tested in film-boiling operation is shown in Fig. 9. The boundary of film boiling is marked by a sharp color change in the cladding oxide from black (typical of normal reactor operation) below and above the film-boiling zone to a light color (relatively thick white or light-gray oxide) in the film-boiling zone.

ACCIDENT ANALYSIS

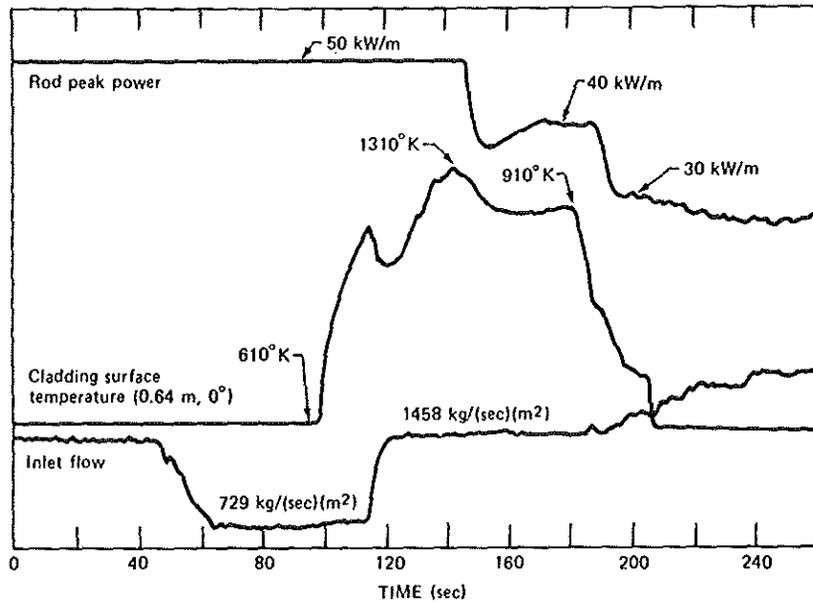


Fig. 8 Rewet behavior of rod 8 during test PCM-2.

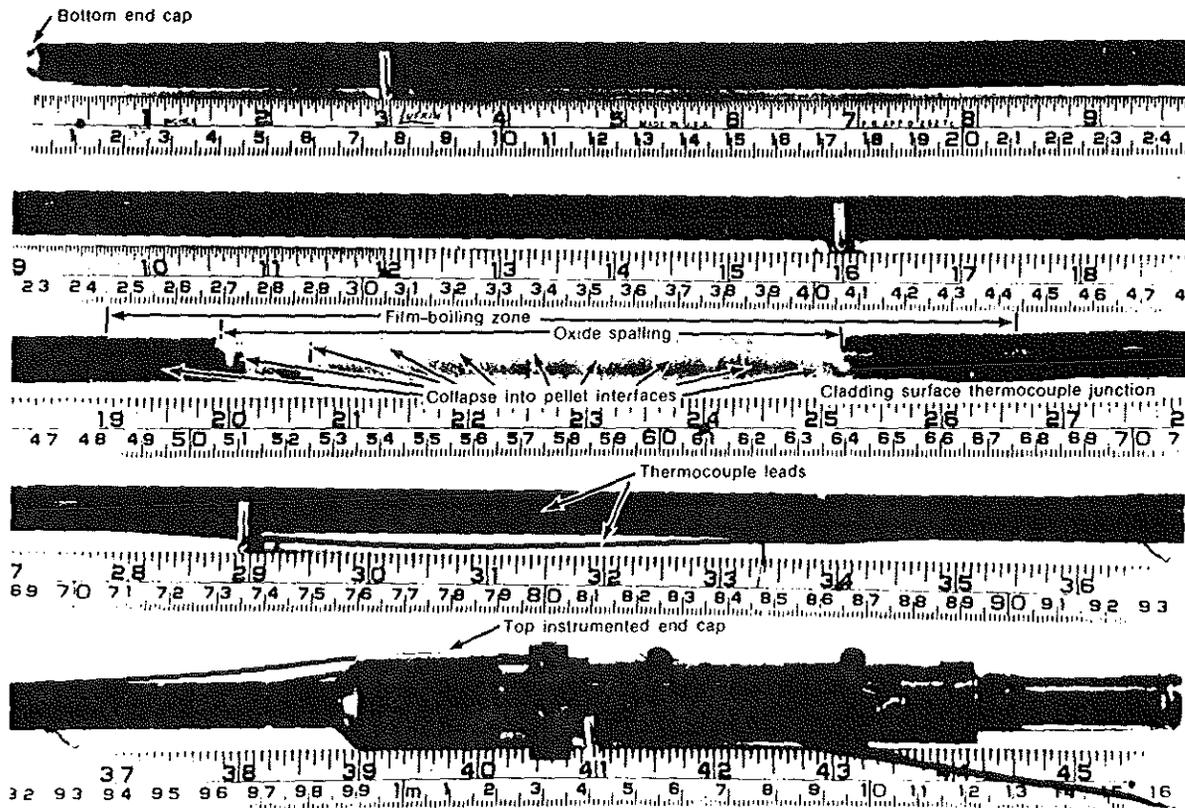


Fig. 9 Film-boiling zone on rod IE-020, test IE-5, showing sharp surface color change at lower film-boiling boundary, cladding collapse into pellet interfaces, and oxide spalling within the film-boiling zone.

ACCIDENT ANALYSIS

Oxide spalling frequently occurs in the film-boiling zone and reveals the shiny metallic surface of the Zircaloy. Destructive examination of the microstructure of the various PCM and IE test rods has indicated that a temperature difference as great as 570°K can exist over a distance of about 2.5 mm at the lower film-boiling boundary. At this boundary the microstructure varies from stress-relieved Zircaloy ($T < 920^\circ\text{K}$) to prior beta-phase Zircaloy ($T > 1245^\circ\text{K}$). The upper film-boiling boundary is generally more diffuse.

Cladding Deformation

Within the film-boiling zone, the cladding collapses onto the fuel stack because of loss of strength at the elevated temperatures and the differential pressure (typically 7 MPa) across the cladding. The cladding flows into irregularities in the fuel stack, such as the gaps between pellets and the depressions in pellet surfaces resulting from chipping, as shown in Fig. 10. The cladding collapse into pellet interfaces (termed "waisting") is also visible in Fig. 9. The onset of collapse has been found to coincide with the recrystallization of the stress-relieved Zircaloy.³ The recrystallization temperature for an exposure time of approximately 60 sec (approximate time for the duration of film boiling in most of the IE and PCM tests) is 920°K. In general, the reduction in diameter due to collapse within the film-boiling zone is fairly uniform around the circumference, as shown in Fig. 11. Cladding having prior irradiation (up to 14×10^{20} neutrons/cm²) behaved similar to unirradiated cladding and thus led to the conclusion that irradiation damage is annealed out during the temperature transient.

Cladding—Fuel Reaction

The collapse of the cladding in the film-boiling zone produces intimate contact between the fuel and the cladding, and a chemical reaction occurs between the two materials. In this reaction, UO₂ is reduced and oxygen diffuses into the cladding to produce a layer of oxygen-stabilized alpha Zircaloy. This layer is brittle and degrades the ductility of the cladding. In addition to the alpha-Zircaloy layer, a duplex reaction layer between the fuel and cladding was also frequently observed. The typical microstructural appearance of the fuel-cladding chemical interaction is shown in Fig. 12. The dark-color layer adjacent to the oxygen-

stabilized alpha Zircaloy has been identified by electron microprobe to be rich in uranium, whereas the inner layer adjacent to the fuel was rich in zirconium. These observations were consistent with results from out-of-pile studies on the Zircaloy-UO₂ reaction.^{2,5,26} At high cladding temperatures (1850°K), the cladding-fuel reaction layers were nearly as thick as reaction layers at the outside surface due to the cladding-water reaction.

The oxygen-stabilized alpha-Zircaloy layer was found on the inside surface of the cladding, which, during film boiling, reaches temperatures exceeding 1245°K (prior beta microstructure exhibited). The need for physical contact between the fuel and cladding to produce the chemical interaction is demonstrated in Fig. 13, which shows that interaction layers are absent in the cladding over the gap between fuel pellets. Although the oxygen-stabilized alpha-Zircaloy layer was always observed when cladding temperatures exceeded 1245°K, the duplex interaction layer was not always observed. In fact, the duplex layer has been observed only on the rods containing previously unirradiated fuel and not on any of the tested rods containing previously irradiated fuel. According to the oxygen-uranium phase diagram,²⁷ the fuel composition adjacent to the cladding must fall below an oxygen concentration of about UO_{1.97} at 1770°K before the uranium-rich interaction layer can form. The formation of the duplex interaction layer could therefore be expected to be influenced to some degree by the stoichiometry of the fuel. Irradiation increases the effective oxygen-to-uranium ratio in the fuel and may thus tend to suppress the formation of the uranium-rich reaction layer during relatively short periods of film boiling.

Cladding—Water Reaction

The reaction of Zircaloy with steam at the cladding outer surface produces a double layer of zirconium oxide (ZrO₂). In addition, a layer of oxygen-stabilized alpha Zircaloy is formed by the dissolution of oxygen in the Zircaloy from the ZrO₂. These layers on the cladding outer surface are shown in Fig. 14. The layers are brittle and degrade the ductility of the cladding. Owing to oxygen embrittlement by both the cladding-steam and cladding-fuel reactions, five rods have failed within a few minutes following termination of film-boiling operation, and one rod fractured during handling in the postirradiation examination. The typical appearance of a fuel rod that failed following termination of film boiling is shown in Fig. 15.

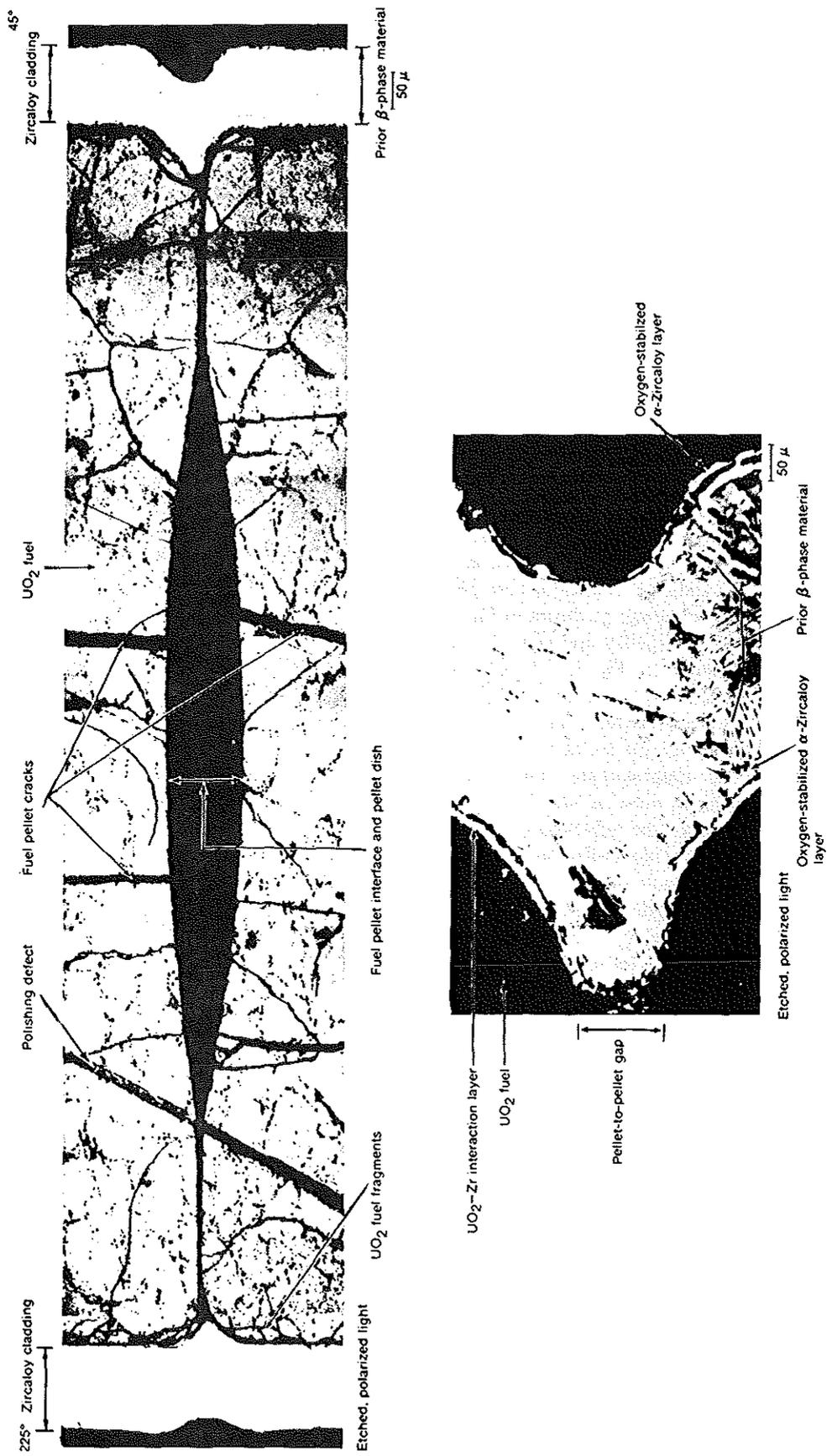


Fig. 10 Example of cladding flow into a pellet-to-pellet gap in rod 7, test PCM-2A.

ACCIDENT ANALYSIS

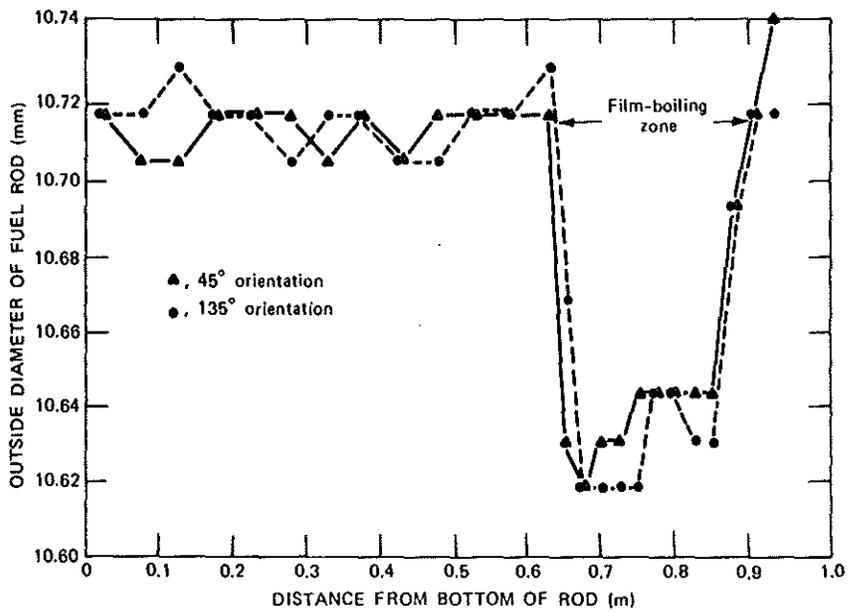


Fig. 11 Cladding outside diameter of rod IE-020, test IE-5, showing reduction in diameter within film-boiling zone of an irradiated fuel rod.

FUEL BEHAVIOR

As discussed previously, at the onset of film boiling, cladding and fuel temperatures within the film-boiling zone quickly rise. For high-powered rods with local powers within the film-boiling zone (approximately 50 kW/m), fuel melting frequently occurs in the film-boiling zone at the center of the pellets. This high-temperature operation and the subsequent quench that terminates film-boiling operation result in changes in the fuel that can affect fuel-rod behavior. Some of these changes and the behavior of molten fuel during film-boiling operation are discussed in the following sections.

Fuel Restructuring

Fuel restructuring has always occurred in the fuel pellets within the film-boiling zone. The nature of restructuring in unirradiated fuel operated in film boiling at high powers is shown in Fig. 16. Fuel melting occurred at the center of the fuel pellet with the formation of a central void and the characteristic ring of high-density large-grain fuel surrounding the molten fuel just prior to termination of the test. Outside the ring of large-grain fuel, equiaxed grain growth occurred with grain size decreasing toward the pellet exterior. Cracking occurred along the grain boundaries of the

fuel that exhibited equiaxed grain growth. A zone of fuel at the periphery of the fuel pellet appeared unaffected by the film-boiling operation. Between the unaffected-fuel zone and the equiaxed-grain-growth region, the fuel was powdery in nature and fell out, or was removed, during specimen preparation. This fine-grained powdery fuel also appeared to be cracked along the grain boundaries. In this shattered condition the fuel is expected to have limited structural integrity. In a rod that failed following film-boiling operation, small amounts of these micron-sized fuel particles from the powdery-fuel and equiaxed-fuel zones appeared to have been washed through the cladding fracture by the coolant flow.⁸

Fuel restructuring occurs rapidly in unirradiated fuel. Equiaxed grain growth, central void formation, and columnar grain growth by lenticular void migration up the temperature gradient have been observed in fuel rods¹⁰ operated in film boiling for about 75 sec. The occurrence and extent of the powdery-fuel zone appeared to depend on the fuel temperature, that is, the higher the temperature, the greater the extent of the powdery-fuel zones.⁸ Grain-boundary cracking in both the equiaxed-fuel and powdery-fuel zones in unirradiated fuel is postulated to occur as a result of the thermal shock upon rewetting of the rod from film-boiling operation.

ACCIDENT ANALYSIS

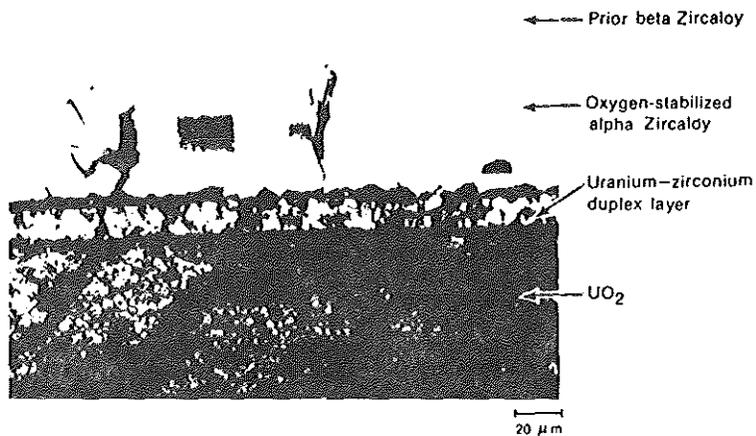


Fig. 12 Reaction layers at fuel-cladding interface of rod 8, test PCM-2, showing oxygen-stabilized alpha Zircaloy and duplex interaction layers.

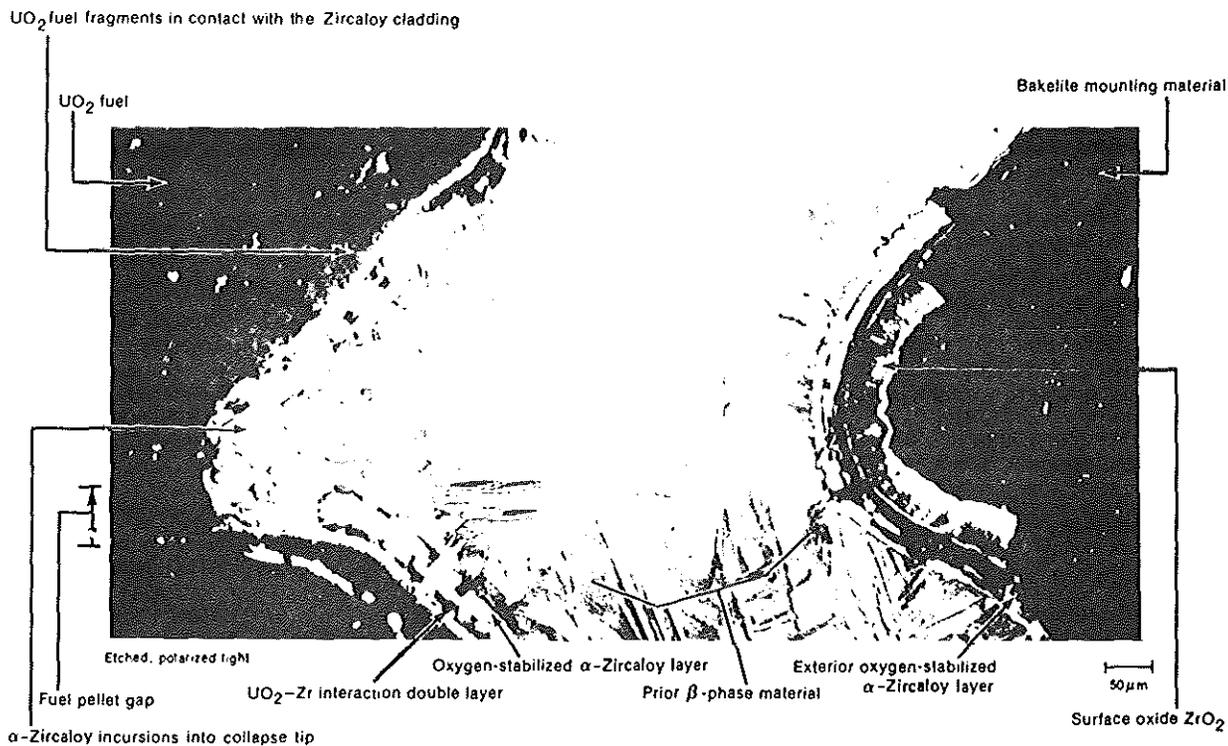


Fig. 13 Cladding collapse between fuel pellet interfaces from rod 7, test PCM-2A, showing absence of oxygen-stabilized alpha Zircaloy and duplex reaction layers at the pellet-to-pellet interface.

ACCIDENT ANALYSIS

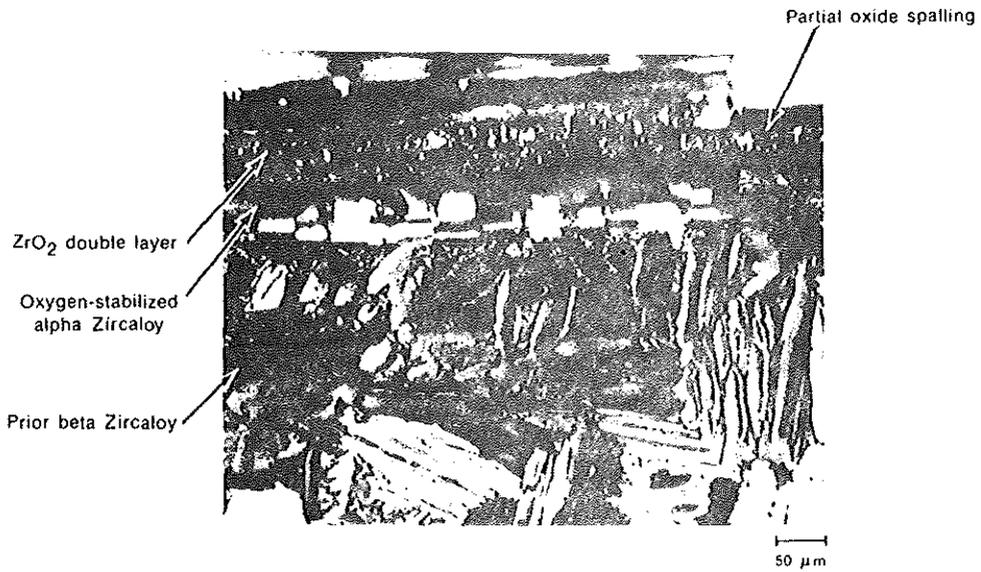


Fig. 14 High-temperature Zircaloy-water reaction at external surface of rod IE-016, test IE-3, showing zirconium oxide and oxygen-stabilized alpha-Zircaloy reaction layers.

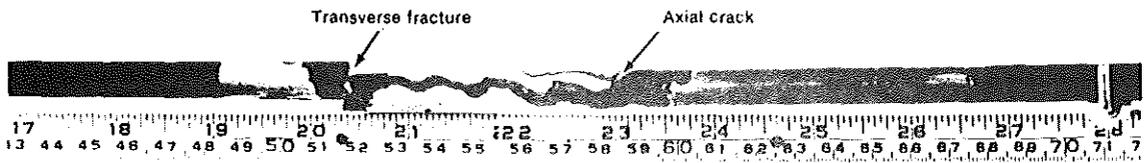


Fig. 15 Fuel-rod failure due to oxygen embrittlement, rod IE-007, test IE-1.

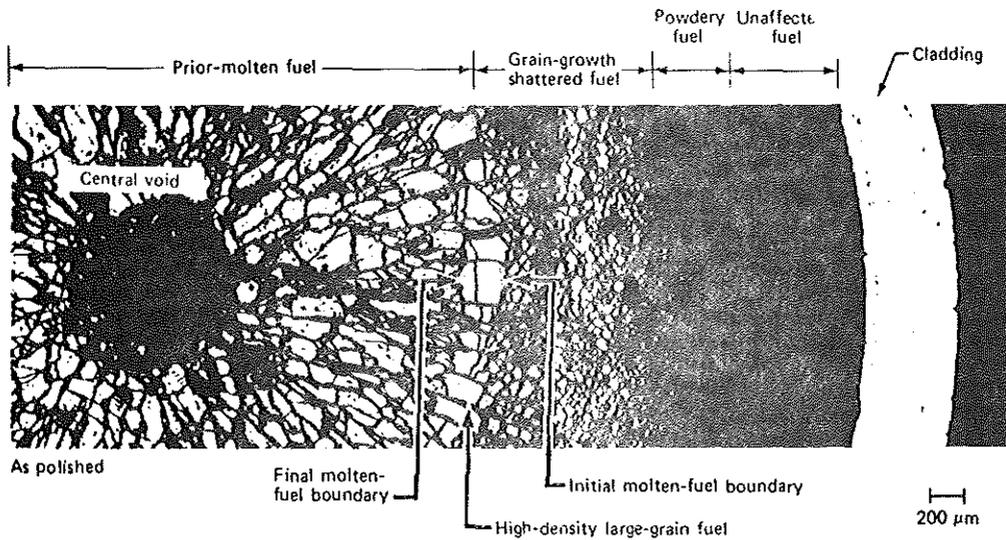


Fig. 16 Transverse section showing typical fuel microstructure across a fuel pellet from the film-boiling zone of an unirradiated fuel rod, rod IE-001, IE scoping test I.

ACCIDENT ANALYSIS

In previously irradiated fuel, fuel restructuring in the film-boiling zone is somewhat different than that observed in unirradiated fuel. The typical appearance of fuel microstructures in the film-boiling zone of a previously irradiated fuel rod is shown in Fig. 17. Fuel melting together with the formation of the ring of high-density large-grain fuel had occurred at the center of the pellet. In the region of equiaxed grain growth (formed during prior irradiation), the grain size appeared to have been unaffected by film-boiling operation except in the region adjacent to the prior-molten-fuel boundary. The density and size of fission-gas bubbles at the equiaxed grain boundaries probably increased as a result of film-boiling operation. The fission-gas bubbles apparently restricted grain growth during film-boiling operation except where fuel temperatures were very high, just adjacent to the molten-fuel boundary. At the prior-molten-fuel boundary, some grain growth occurred, and fission-gas bubbles were observed within the grain matrixes. The density of fission-gas bubbles in the prior-molten fuel was significantly less than that observed in the equiaxed-grain-growth region, indicating that a significant portion of the fission gases in the molten zone was released. Grain-boundary cracking occurred in the fuel outside the equiaxed-grain-growth region and resulted in this fuel becoming powdery in nature.

Fuel restructuring in the film-boiling zone of an irradiated fuel rod that exhibits a large powdery-fuel zone is shown in Fig. 18. The molten-fuel zone is clearly distinguishable at the center of the pellet. Outside the molten zone the fuel exhibited the powdery structure, except for a region of unaffected fuel at the pellet periphery and a small amount of equiaxed grain growth at the prior-molten-fuel boundary and along the edges of a radial fuel crack. The powdery fuel was fine grained, indicating that no significant grain growth had occurred during previous operation or as a result of film-boiling operation. The powdery fuel was cracked along the grain boundaries, which were apparently weakened by the presence of fission-gas bubbles, as shown in Fig. 19. Fission-gas bubbles were observed on some of the grain facets, whereas other grain facets were smooth. Where gas bubbles were observed along the grain facets, the grain cracking probably occurred during cooldown or during metallographic specimen preparation. Where no bubbles were observed on the grain facets, gas release is postulated to have occurred during film boiling, with the gas bubble depressions annealing out during the high-temperature operation.²⁸ There probably was additional gas release during shutdown because of

grain-boundary cracking that occurred during cooldown.

Molten-Fuel Behavior

Extensive fuel melting, up to about 80% of the pellet radius, has been observed in the film-boiling zones of rods operated at very high powers (approximately 50 kW/m local power in the film-boiling zone). Fuel slumping often occurs and results in relatively large central voids in the fuel column. In general, even with extensive fuel melting, the molten fuel remained at the center of the fuel pellet with no significant adverse effects on fuel-rod behavior. However, in unique instances the molten fuel has not been contained at the center of the fuel pellet. Evidence of extrusion of molten fuel into pellet-to-pellet interfaces has been observed in unirradiated fuel rods.⁸ In an irradiated fuel rod where gaps occurred between fuel pellets and fuel chips within the film-boiling zone, molten fuel appeared to have been extruded into the gaps, as shown in Fig. 20 (Ref. 12). The gaps probably were formed during handling prior to testing. Enlarged views of the molten fuel-cladding interaction zone are shown in Fig. 21. In all cases observed the molten fuel apparently solidified rapidly, and there was no significant interaction between the molten fuel and the cladding. However, a small reaction layer due to oxygen diffusion from the fuel to the cladding (as discussed earlier) was observed.

Several mechanisms have been postulated that could explain the relocation of molten fuel into pellet interfaces and cracks. These mechanisms include (1) fuel slumping; (2) pressure due to volume increase upon fuel melting; (3) pressure due to cladding collapse, resulting in system pressure being transmitted to the fuel pellets; and (4) pressure due to the agglomeration of fission gases. Fuel slumping has been observed; however, in the region of obvious fuel slumping, no flow of molten fuel into pellet cracks or interfaces has been observed. Extrusion by hydrostatic pressure due to fuel expansion upon melting (10 vol.% increase) may be an important fuel relocation mechanism in both unirradiated and irradiated fuel rods and may have been the main operating mechanism for molten-fuel extrusion into pellet interfaces. Cladding collapse and the inability of the hot outer ring of nonmolten fuel to support the system pressure may also contribute to an extrusion mechanism in both unirradiated and irradiated fuel rods.

However, recent results from postirradiation examination of rod IE-016 from test IE-3 suggest that

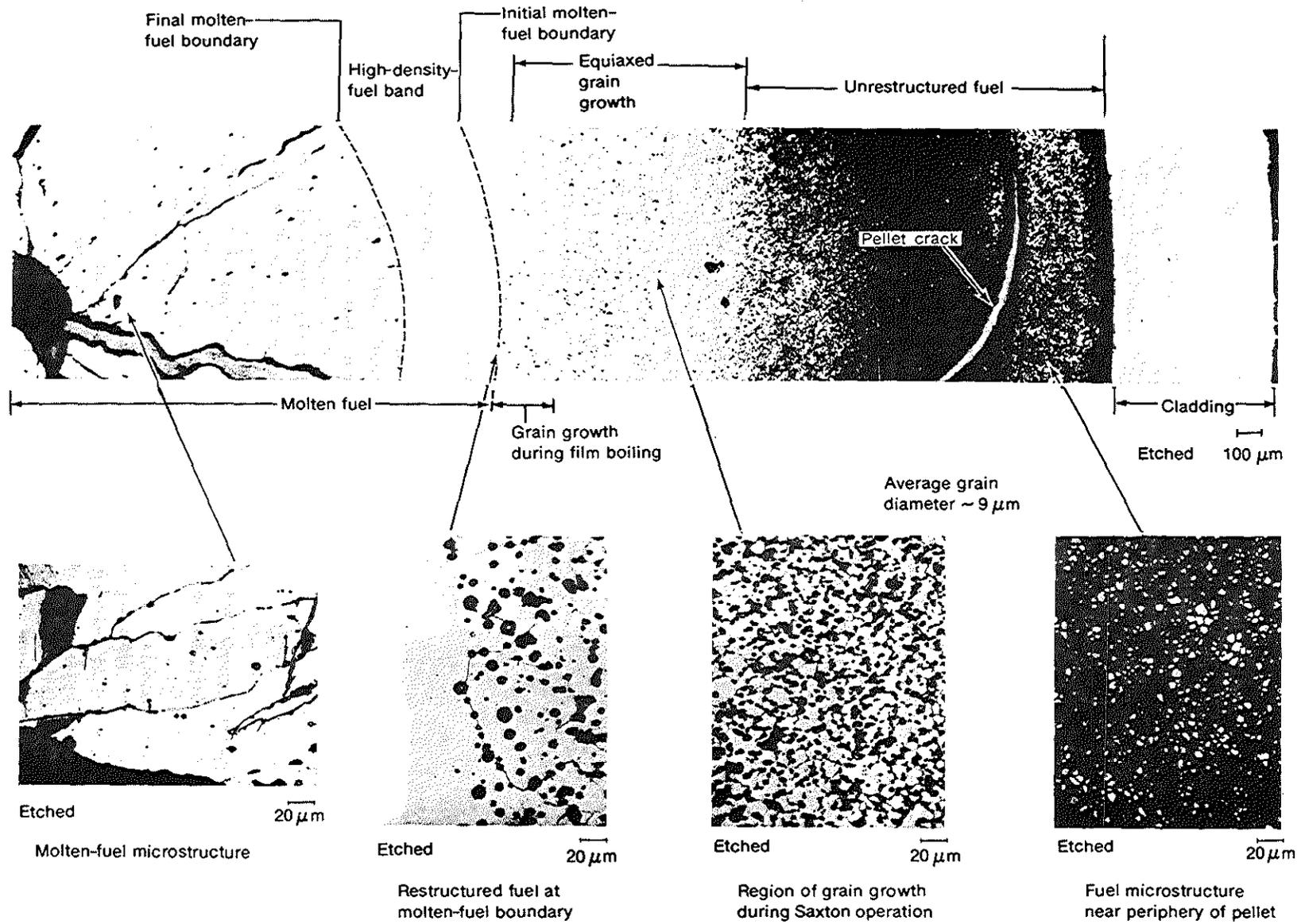


Fig. 17 Transverse section showing typical fuel microstructure across a fuel pellet from the film-boiling zone of an irradiated fuel rod, rod IE-009, test IE-1.

ACCIDENT ANALYSIS

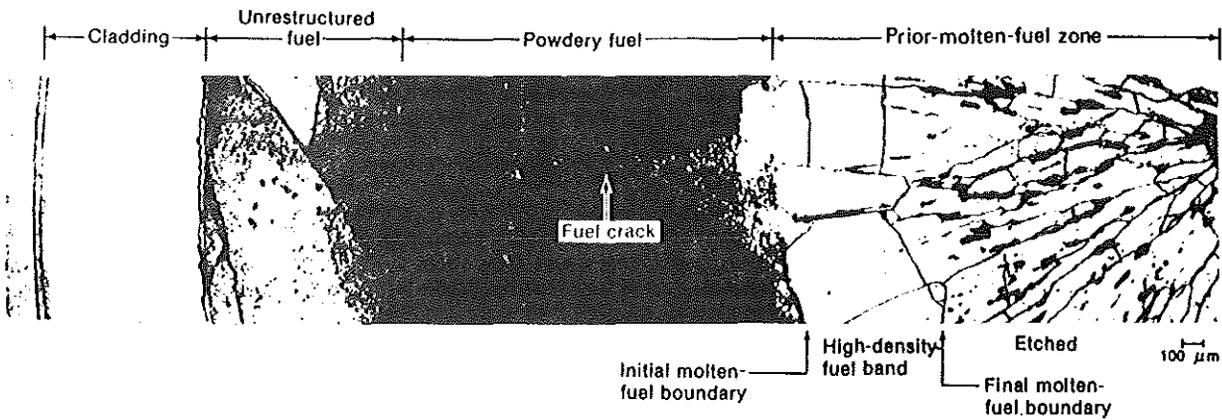


Fig. 18 Transverse section showing large fraction of powdery fuel from the film-boiling zone of a previously irradiated fuel rod, rod IE-007, test IE-1.

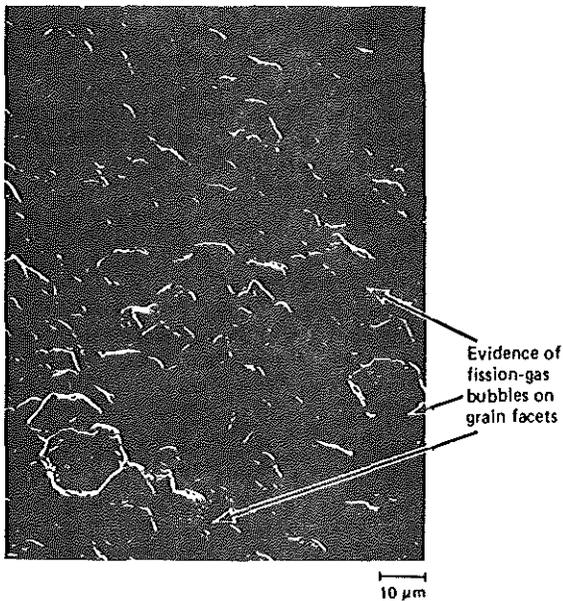


Fig. 19 Scanning electron micrograph of powdery fuel from film-boiling zone of previously irradiated fuel rod, rod IE-007, test IE-1.

a variation of the mechanism reported by Stuart and Thomas,²⁹ may be important in explaining apparent molten-fuel extrusion in irradiated fuel rods. Rod IE-016 was irradiated in the Saxton Reactor to an average burnup of about 8550 MWd/ton prior to film-boiling testing. Substantial fuel cracking and relocation had occurred in the upper region of the film-boiling zone, probably during handling prior to PBF testing. A large extent of fuel melting, as shown in Fig. 22, occurred in this region. The fuel melting was

principally a result of a large decrease in gap conductance because the relocated fuel created large gaps between the remaining fuel and the cladding. Molten fuel was extruded through the pellet cracks into areas of missing fuel near the cladding surface. Cladding temperatures were relatively low ($\sim 920^\circ\text{K}$), and no significant cladding collapse occurred. It is hypothesized that a gas bubble formed in the molten region at the center of the pellet from the fill gas and the released fission gases. With little constraint from the surrounding fractured fuel, the molten fuel was extruded by the gas pressure through the cracks toward the cladding. The molten fuel quickly cooled, and no significant molten fuel-cladding interaction occurred.

Fuel Swelling

Cladding diameter increases have been observed in the film-boiling zone of both previously unirradiated and previously irradiated fuel rods. For the previously unirradiated fuel rods that were fabricated with atypically small diametral gaps (0.10 mm), fuel-rod swelling has been attributed to fuel-cladding interaction strains induced by differential thermal expansion and to strains caused by the volume increase upon fuel melting. In previously irradiated fuel rods, the diameter increased about 4% in the film-boiling zone, as shown in Fig. 23. Only about one-half of this diameter increase can be attributed to pellet-cladding interaction strains due to differential expansion and swelling caused by fuel melting.

In Fig. 24 the fuel microstructures from the equiaxed-grain-growth region of two previously irradiated fuels are compared. Both rods have similar burnups, but one rod [Fig. 24(b)] was tested in film

ACCIDENT ANALYSIS

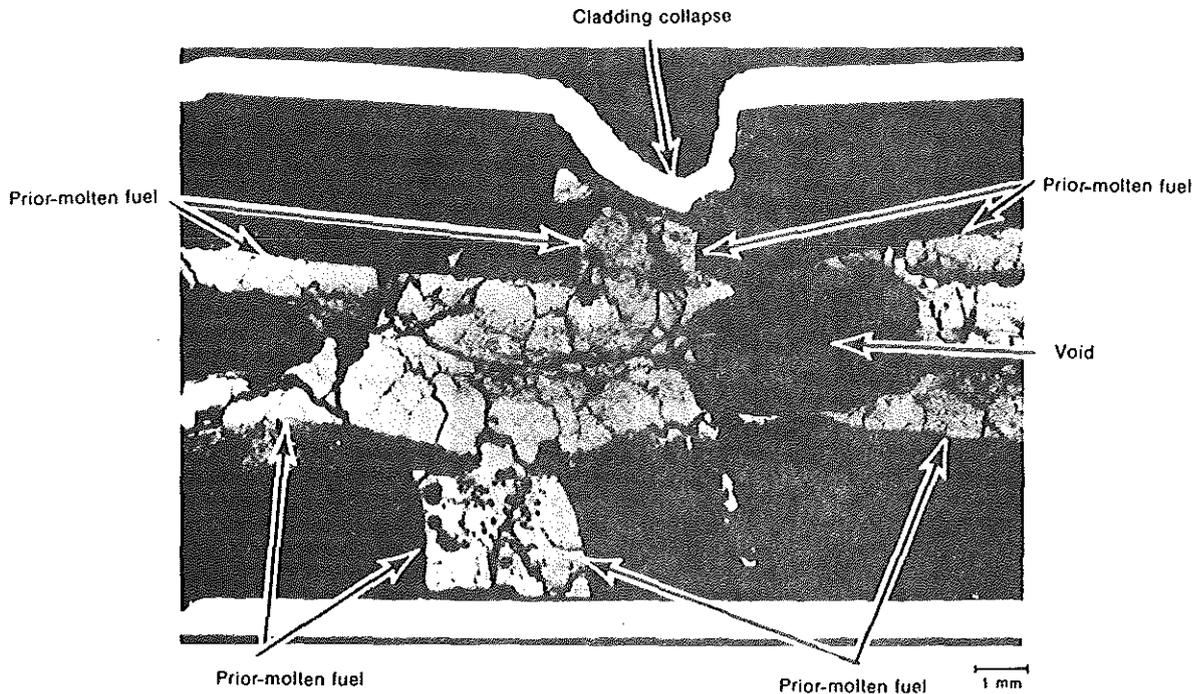


Fig. 20 Longitudinal section showing molten-fuel extrusion in film-boiling zone of a previously irradiated fuel rod, rod IE-009, test IE-1.

boiling in the PBF. The obvious difference in the microstructure of the two samples is that the density of fission-gas bubbles at the grain boundaries is much greater in the fuel that was tested in film boiling. Apparently fission-gas bubbles have diffused to the grain boundaries during film-boiling operation. The additional gas bubble volume at the grain boundaries probably contributed to the swelling of the fuel rod. Also, evidence suggests that fission gases present in the fuel prior to melting were trapped in the molten fuel and that the fission-gas bubbles expanded due to changes in surface tension and agglomeration, thereby pressurizing the molten-fuel core. The molten fuel appears to act as an effective containment for the gases, sealing cracks and preventing the escape of the gases to the rod plenum. As bubbles continue to agglomerate, significant hydrostatic pressures may build up and cause molten-fuel extrusion and fuel-rod swelling.

ROD FAILURE BEHAVIOR

The duration of the film-boiling transients was generally about 1 to 1.5 min. Two exceptions were two single-rod tests in which the time in film boiling was

4.8 and 11 min (for the latter test the time was accumulated intermittently). Of the 37 fuel rods tested, only one (rod IE-019 from test IE-5) failed during film-boiling operation. This rod had the unique design characteristic of being initially pressurized to a value high enough (8.3 MPa) that the internal pressure during film boiling exceeded the system pressure. This rod failed 10 sec after the onset of the film-boiling transient by ballooning and rupture of the cladding at the heat-affected zone near an attached thermocouple. The maximum cladding diameter increase of about 26% was sufficiently small and thus no significant flow blockage, as determined from the channel flow rate, was detected. One other rod failed prior to film boiling, probably due to internal hydriding associated with a fabrication defect.

Six fuel rods failed because of brittle fracture of the highly oxidized Zircaloy cladding in the film-boiling zone (the reactions that contributed oxygen to the cladding are discussed in the section entitled Cladding Behavior). Five of these fuel-rod failures occurred within a few minutes (1 to 3 min) after the test was terminated, when the cladding temperatures were essentially at ambient coolant temperature. The sixth failure occurred during posttest handling. Except for rod IE-019, no other rod failures have occurred

ACCIDENT ANALYSIS

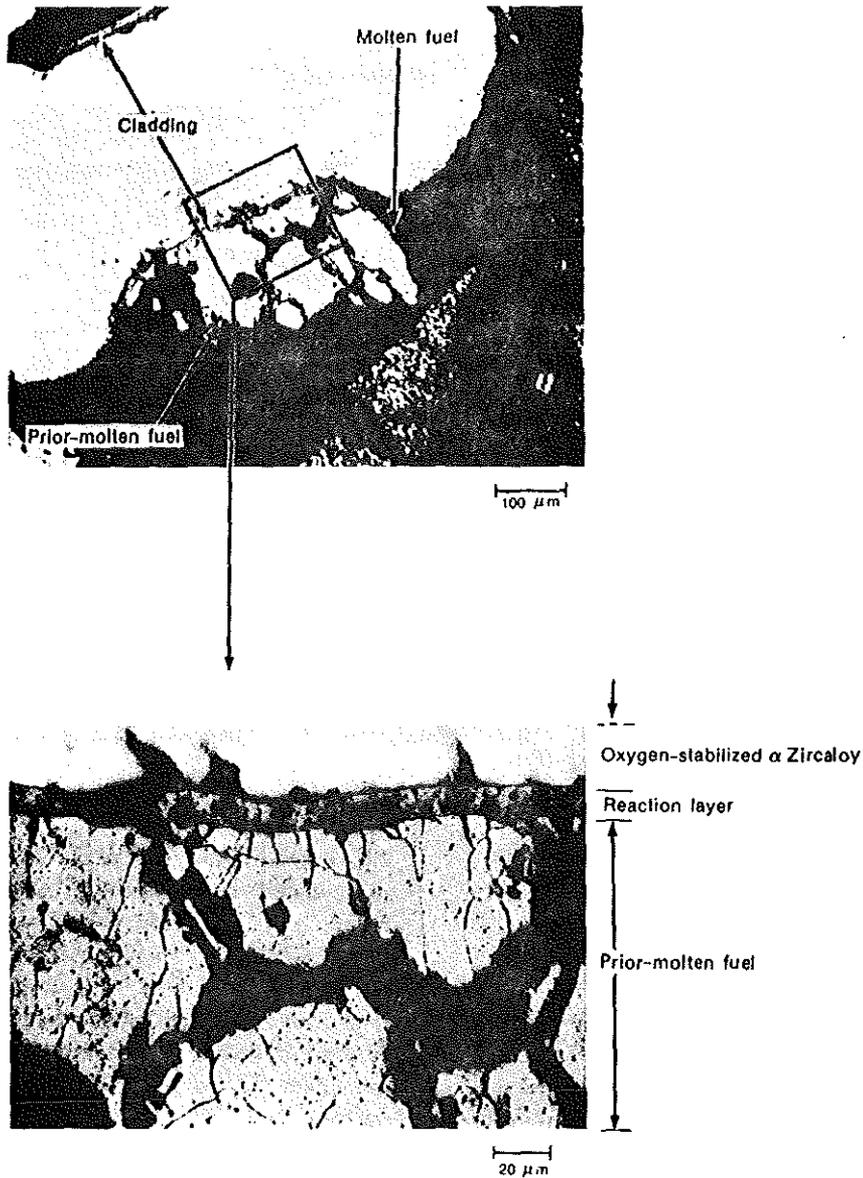


Fig. 21 Molten fuel-cladding interaction in rod IE-009, test IE-1.

during film boiling, even though the cladding of some rods was highly embrittled by oxygen penetration.

Maximum effective cladding temperature* calculated from the zirconium oxide and oxygen-

*The "maximum effective cladding temperature" is a temperature calculated from the combined oxygen-stabilized alpha and zirconium oxide layer thicknesses assuming a constant temperature for the period of time during which the cladding surface thermocouples indicated that the rod was in stable film boiling.

stabilized alpha-Zircaloy layers and measured film-boiling durations have been compared³⁰ with criteria³¹ for room-temperature embrittlement of Zircaloy tubing. These criteria were based on oxygen uptake during high-temperature isothermal exposure to steam.³² Table 5 shows that all the fuel-rod failures analyzed to date exceeded the critical oxidation time for the calculated maximum effective temperature in film boiling. The rods found to be intact were predicted not to fail by the critical oxidation criteria.

ACCIDENT ANALYSIS

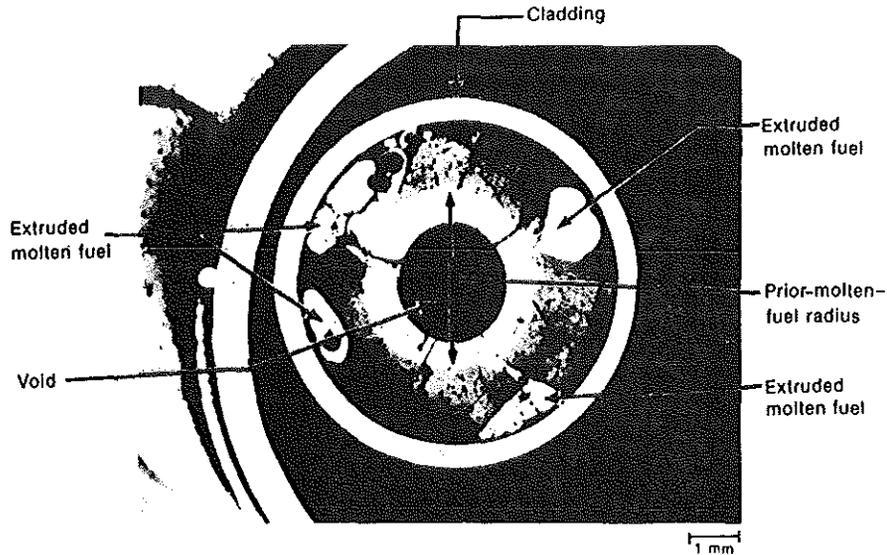


Fig. 22 Molten-fuel extrusion above the film-boiling zone of an irradiated fuel rod, rod IE-016, test IE-3.

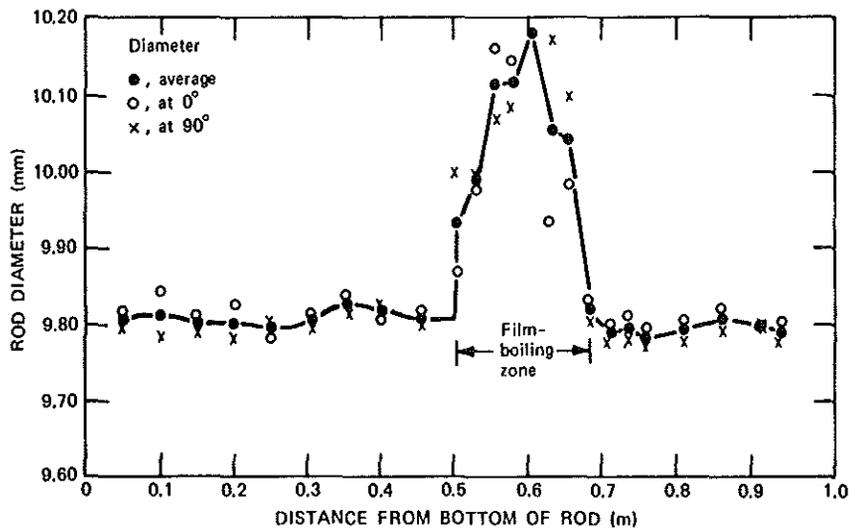


Fig. 23 Posttest diametral measurements showing diameter increase in the film-boiling zone of a previously irradiated fuel rod, rod IE-010, test IE-1.

CONCLUSIONS

Film-boiling experiments have been successfully conducted on unirradiated and irradiated Zircaloy-clad UO_2 fuel rods. The results of these experiments have provided both qualitative and quantitative thermal-hydraulic and fuel-rod behavior data that can be used for the evaluation of fuel-rod behavior codes.

The maximum cladding temperature attained during film boiling depends primarily on the magnitude

of the test rod power and the coolant inlet enthalpy, pressure, and mass flux. The coolant conditions required for the onset of film boiling appeared to be repeatable and predictable using either the B&W-2 or the W-3 DNB correlation. However, the axial location and extent of film boiling was rather unpredictable and varied (experimentally) among nominally identical rods in the four-rod PCM tests.

In assessing the capability of various film-boiling correlations for calculating cladding temperatures, the

ACCIDENT ANALYSIS

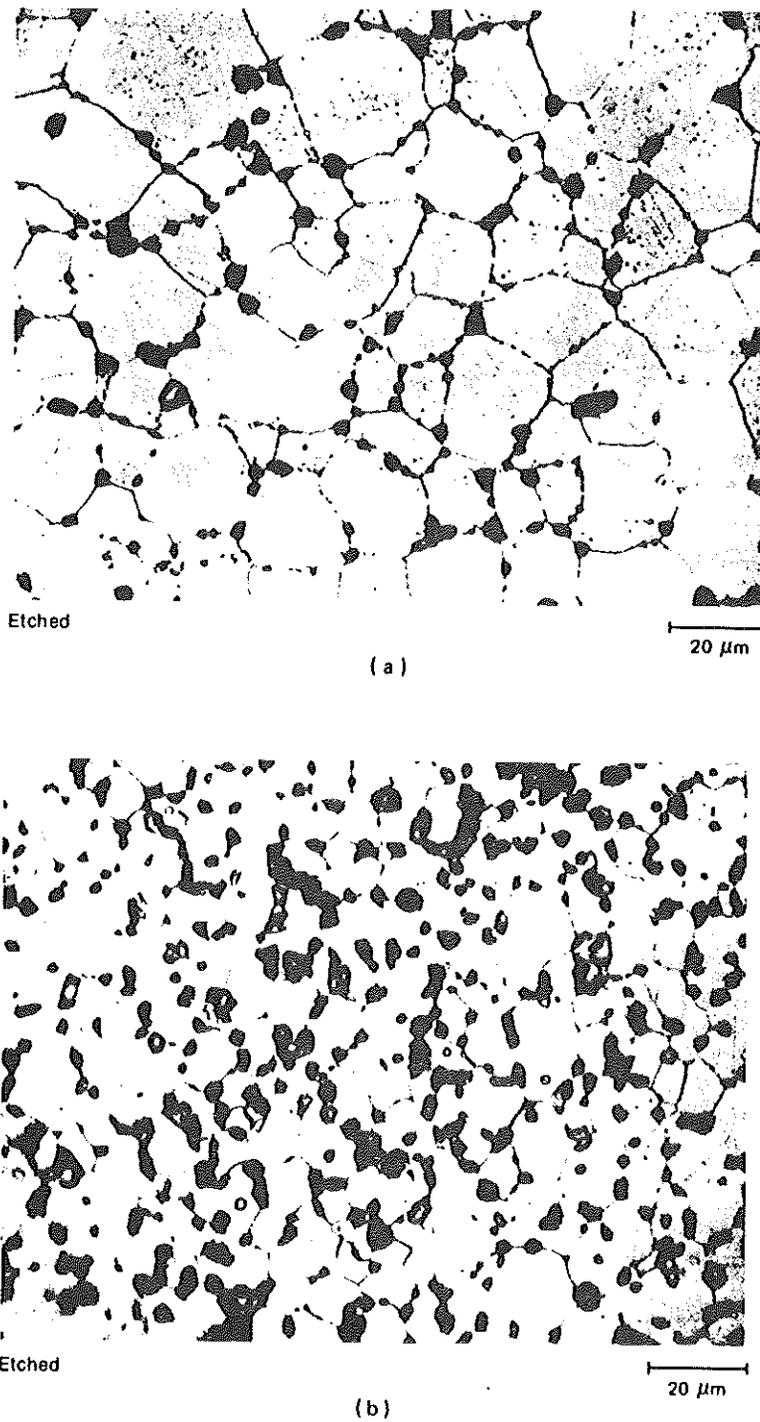


Fig. 24 Comparison of fuel microstructures from equiaxed-grain-growth of two irradiated fuel rods, one of which (rod IE-009, test IE-1) was tested in film boiling. (a) Rod was irradiated in the Saxton Reactor to 17,000 MWd/ton. (b) Rod was irradiated in the Saxton Reactor to 16,000 MWd/ton and then tested in the PBF.

ACCIDENT ANALYSIS

Table 5 Comparison of Maximum Cladding Exposure Conditions with the Critical Oxidation Time for Embrittlement

Test no. and Rod no.	Maximum cladding temperature, °K	Time in film boiling, sec	Critical oxidation time, sec*
PCM 8-1 RS/4	1640	660	35
IE-ST-1, IE-001	1620	228	55
IE-1, IE-007	1850	70	<5
IE-3, IE-015	1685	75	24
IE-3, IE-016	1810	70	<5
IE-5, IE-022	†	82	

*Criteria were based on oxygen uptake during high-temperature isothermal exposure to steam.^{2,9}

†Metallographic temperature analysis was not planned.

Groeneveld 5.9 film-boiling correlation was found to be satisfactory for these single-rod annular geometry tests. The presence of external cladding thermocouples, acting as cooling fins, and fuel-rod bowing are believed to be responsible for azimuthal cladding temperature variations of up to 300°K. Temperature variations of 500°K were also observed from one rod to another for nominally identical test conditions. The cause for such anomalous behavior is not known but is thought to be related to rod bowing.

The onset of film boiling was independent of the flow reduction rates tested (0.08 and 3%/sec). No significant differences in coolant flow rate and fuel-rod power levels at the onset of film boiling were found when film boiling was induced by either a flow reduction or a power increase. Generally film boiling could be predictably terminated by either increasing coolant flow or decreasing rod power. Fuel rods operating in film boiling with cladding surface temperatures as high as 1850°K were immediately quenched when rod power was decreased to zero. In one instance, anomalous thermal-hydraulic behavior was observed, and film-boiling operation persisted on one rod at flow rates well above and at rod powers well below predicted and previously observed values.

The fuel-rod damage associated with film boiling varies from relatively slight to very severe, depending primarily on the rod power, coolant conditions, and duration of film boiling. The cladding damage primarily results from high-temperature embrittling reactions occurring at the external surface from the metal-water reaction and at the internal surface from a reaction between the cladding and the UO₂ fuel. For rods with an internal pressure below the system

pressure, the cladding collapses onto the fuel stack in the film-boiling zone when the cladding temperature reaches about 920°K. The cladding collapse provides the intimate contact between the fuel and the cladding which is required for the reaction to proceed between the interior of the cladding and the UO₂ fuel. At high cladding temperatures (1770°K), the internal reaction is nearly as extensive as is the external metal-water reaction.

Fuel melting extending to as much as 80% of the pellet radius has been observed in the film-boiling zones of fuel rods operated above 50 kW/m (local power in film-boiling zone). Generally the molten fuel was contained at the center of the fuel pellets. In isolated circumstances, molten fuel has been extruded from the center of the pellet to the cladding. The molten fuel apparently solidified rapidly, and no significant molten fuel-cladding interaction was observed.

For fuel rods with low initial pressure (about 2.6 to 3.8 MPa), rod failure has not occurred during film-boiling operation. Rod failure due to brittle cracking of highly oxidized cladding has occurred after shutdown or during postirradiation handling. The brittle failures were predicted by criteria for the room-temperature oxygen embrittlement of Zircaloy based on isothermal steam exposure. No disruptive events were associated with the failures that occurred just following the termination of film boiling. One highly prepressurized fuel rod ballooned during film-boiling operation and failed soon after film boiling had been initiated.

From preliminary evaluation of results for irradiated fuel rods, no evidence has been observed that suggests a more severe failure mode for the previously irradiated fuel than for previously unirradiated fuel exposed to similar film-boiling operations. Evidence for a fission-gas-induced swelling mechanism has been observed in irradiated fuel but that mechanism did not appear to significantly affect the rod behavior. Some fission gases have been released as a result of film-boiling operation, however, for these tests the pressure increase in the plenum region due to fission-gas release was small compared with the total rod internal pressure during film-boiling operation. Fission gases also appeared to have been trapped in the molten-fuel region and not released from the molten-fuel core to the rod plenum during film-boiling operation. These trapped gases apparently pressurized the molten-fuel core and caused a limited amount of fuel-rod swelling and some relocation of molten fuel. Again, these fission-gas effects produced no significant adverse behavior in the rods tested.

ACCIDENT ANALYSIS

REFERENCES

1. Nuclear Regulatory Commission, *Reactor Safety Research Program: A Description of Current and Planned Reactor Safety Research Sponsored by the Nuclear Regulatory Commission's Division of Reactor Safety Research*, NRC Report NUREG-75/058, NTIS, 1975.
2. G. W. Cawood et al., *Power-Cooling-Mismatch Test Series, Test PCM-2A Test Results Report*, NRC/ERDA Report ANCR-NUREG-1347, Idaho National Engineering Laboratory, NTIS, 1976.
3. S. L. Seiffert and G. R. Smolik, *Postirradiation Examination Results for the Power-Cooling-Mismatch Test-2A*, NRC/ERDA Report TREE-NUREG-1029, EG&G Idaho, Inc., NTIS, 1977.
4. Z. R. Martinson and R. K. McCardell, *Power-Cooling-Mismatch Test Series, Test PCM-2 Test Results Report*, NRC/ERDA Report TREE-NUREG-1038, EG&G Idaho, Inc., NTIS, 1977.
5. S. L. Seiffert, *Power-Cooling-Mismatch Test Series, Test PCM-2 Post-Irradiation Examination*, NRC/ERDA Report TREE-NUREG-1069, EG&G Idaho, Inc. NTIS, 1977.
6. S. L. Seiffert, *Power-Cooling-Mismatch Test Series, Test PCM-3 Postirradiation Examination*, NRC/DOE Report TREE-NUREG-1187, EG&G Idaho, Inc., NTIS, 1977.
7. W. J. Quapp, C. M. Allison, and L. C. Farrar, *Irradiation Effects Test Series, Scoping Test 1, Test Results Report*, NRC/ERDA Report TREE-NUREG-1066, EG&G Idaho, Inc., NTIS, 1977.
8. A. S. Mehner et al., *Postirradiation Examination Results for the Irradiation Effects Scoping Test 1*, NRC/ERDA Report ANCR-NUREG-1336, Aerojet Nuclear Company, NTIS, 1976.
9. W. J. Quapp et al., *Irradiation Effects Test Series Scoping Test 2, Test Results Report*, NRC/ERDA Report TREE-NUREG-1044, EG&G Idaho, Inc., NTIS, 1977.
10. A. S. Mehner, *Postirradiation Examination Results for the Irradiation Effects Scoping Test 2*, NRC/ERDA Report TREE-NUREG-1022, EG&G Idaho, Inc., NTIS, 1977.
11. W. J. Quapp et al., *Irradiation Effects Test Series: Test IE-1 Test Results Report*, NRC/ERDA Report TREE-NUREG-1046, EG&G Idaho, Inc., NTIS, 1977.
12. A. S. Mehner and R. S. Semken, *Postirradiation Examination Results for the Irradiation Effects Test IE-1*, Report TREE-NUREG-1199, February 1978.
13. C. M. Allison et al., *Irradiation Effects Test Series: Test IE-2, Test Results Report*, NRC/ERDA Report TREE-NUREG-1074, EG&G Idaho, Inc., NTIS, 1977.
14. S. A. Ploger, D. K. Kerwin, and D. W. Croucher, *Post-irradiation Examination Results for the Irradiation Effects Test 2*, Report TREE-NUREG-1195, 1978.
15. L. C. Farrar et al., *Irradiation Effects Test Series, Test IE-3, Test Results Report*, NRC/ERDA Report TREE-NUREG-1106, Idaho National Engineering Laboratory, NTIS, 1977.
16. S. A. Ploger and T. F. Cook, *Postirradiation Examination Results for the Irradiation Effects Test IE-3*, Report TREE-NUREG-1200, March 1978.
17. D. W. Croucher et al., *Irradiation Effects Test Series, Test IE-5, Test Results Report*, Report TREE-NUREG-1130, January 1978.
18. J. A. Dearien et al., *FRAP-T2: A Computer Code for the Transient Analysis of Oxide Fuel Rods*, NRC/ERDA Report TREE-NUREG-1040, EG&G Idaho, Inc., NTIS, 1977.
19. P. E. MacDonald and L. B. Thompson (Eds.), *MATPRO-Version 09, A Handbook of Materials Properties for Use in the Analysis of Light Water Reactor Fuel Rod Behavior*, NRC/ERDA Report TREE-NUREG-1005, EG&G Idaho, Inc., NTIS, 1976.
20. J. S. Gellerstedt et al., *Correlation of Critical Heat Flux in a Bundle Cooled by Pressurized Water*, in *Two-Phase Flow and Heat Transfer in Rod Bundles*, a symposium presented at the Winter Annual Meeting of the American Society of Mechanical Engineers, Los Angeles, Calif., Nov. 18, 1969, pp. 63-71, American Society of Mechanical Engineers, New York, 1969.
21. L. S. Tong, *Boiling Crisis and Critical Heat Flux*, USAEC Report TID-25887, Westinghouse Electric Corp., NTIS, 1972.
22. J. G. McDonough, W. Milich, and E. C. King, *Partial Film Boiling with Water at 2000 psig in a Round Vertical Tube*, Report NP-6976, MSA Research Corp., Oct. 8, 1958.
23. D. C. Groeneveld, *An Investigation of Heat Transfer in the Liquid Deficient Regime*, Canadian Report AECL-3281(Rev.), Atomic Energy of Canada Ltd., 1969.
24. L. S. Tong and J. D. Young, *A Phenomenological Transition and Film Boiling Heat Transfer Correlation*, in *Heat Transfer, 1974*, Proceedings of the Fifth International Heat Transfer Conference, Sept. 3-7, 1974, Tokyo, Vol. 4, pp. 120-124, Japan Society of Mechanical Engineers, 1974; also available from Hemisphere Publishing Corporation.
25. M. W. Mallett et al., *The Zirconium-Uranium Dioxide Reaction*, USAEC Report BMI-1210, Battelle Memorial Institute, NTIS, 1957.
26. P. Hofmann and C. Politis, *Investigations of the Influence of Oxide Fuel on the Mechanical Properties of Zircaloy Cladding Tubes Under LWR Accident Conditions*, in *Proceedings of the American Nuclear Society Topical Meeting on Thermal Reactor Safety, Sun Valley, Idaho, July 31-Aug. 4, 1977*, American Nuclear Society, La Grange Park, Ill., 1978.
27. D. R. Olander, *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements*, ERDA Report TID-26711-P1, Fig. 11.1, p. 146, University of California, Berkeley, NTIS, 1976.
28. J. Rest, Argonne National Laboratory, personal communication, June 1977.
29. R. G. Stuart and G. R. Thomas, *Effects of Fission Gas on Transient Overpower Fuel Rod Failure*, *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 13: 654-656 (November 1970).
30. R. R. Hobbins et al., *Zircaloy-Cladding Behavior During Irradiation Tests Under Power-Cooling-Mismatch Conditions*, in *Zirconium in the Nuclear Industry*, American Society for Testing and Materials, Special Technical Publication No. 633, 1977.
31. R. E. Pawel, *Oxygen Diffusion in Beta Zircaloy During Steam Oxidation*, *J. Nucl. Mater.*, 50: 247-258 (1974).
32. D. O. Hobson and P. L. Rittenhouse, *Embrittlement of Zircaloy-Clad Fuel Rods by Steam During LOCA Transients*, USAEC Report ORNL-4758, Oak Ridge National Laboratory, NTIS, 1972.

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT
JAHRESKOLLOQUIUM 1978

THERMOHYDRAULISCH GESTEUERTE BLOWDOWN-VERSUCHE IN DER
VERSUCHSANLAGE COSIMA ZUM DWR-BRENNSTABVERHALTEN:
EXPERIMENTELLE UND THEORETISCHE ERGEBNISSE

G. CLASS

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
INSTITUT FÜR REAKTORENTWICKLUNG

JAHRESKOLLOQUIUM 1978
des
PROJEKTES NUKLEARE SICHERHEIT

Thermohydraulisch gesteuerte Blowdown-Versuche in
der Versuchsanlage COSIMA zum DWR-Brennstabverhal-
ten: Experimentelle und theoretische Ergebnisse

G. Class
K. Hain
R. Meyder

1. Zielsetzung

Beim Kühlmittelverluststörfall (KVS) wird eine plötzlich auftretende Leckage der drucktragenden Umschließung des Primärkreis-kühlmittels angenommen, während der Sicherheitsbehälter intakt bleibt. Die Notkühleinrichtungen sollen dafür sorgen, daß entsprechend den aufgestellten Sicherheitskriterien der Einschluß der radioaktiven Spaltprodukte in den Brennstabhüllen weitgehend erhalten bleibt. Maßgebend für den Umfang der entstehenden Brennstabschäden sind neben der Lage und Größe der Primärkreisleckage hauptsächlich die Bedingungen der stationären Betriebsphase, die dem KVS vorangeht, sowie die Veränderungen des Brennstabzustandes in der Phase der Druckentlastung des Primärkreises (Blowdown), und schließlich der Einfluß der einsetzenden Notkühlung.

Beim KVS sind Brennstabschäden nur dann zu erwarten, wenn der Reaktorkern vorübergehend ungekühlt, d.h. nicht mehr vom Wasser bedeckt ist. Mit dem in dieser Phase möglichen Stabverhalten beschäftigen sich wichtige Vorhaben in und außerhalb der BRD; über das PNS-Vorhaben REBEKA wurde auf dem letzten Jahreskolloquium an dieser Stelle berichtet. Hierbei hängt das Stabverhalten, also das Auftreten von Ausbeulungen und Bersten, überwiegend von den erreichten Temperaturen ab, welche die gesamte Vorgesichte der Brennstäbe widerspiegeln. Bei diesen out-of-pile-Versuchen kann die Vorgeschichte, zu der der Blowdown-Vorgang

zählt, nicht nachgebildet werden, sondern sie muß mit Hilfe von Modellrechnungen für die Reaktorbedingungen berücksichtigt werden. Deswegen kommt der Beschreibung der Blowdown-Phase mittels Rechenprogrammen eine vergleichbare Bedeutung zu, wie der Beschreibung des Berstvorganges in Wechselwirkung mit der Wiederausflutung des Reaktorkernes.

Beschränkt man sich im Experiment allein auf die Thermohydraulik der Blowdown-Phase, dann können einfache Brennstabsimulatoren Verwendung finden, die sich zu voll instrumentierten Brennstab-bündeln mit voller Core-Höhe assemblieren lassen. Solche Untersuchungen werden, allerdings nicht mit einer reaktornahen Nachbildung der Strömungsverhältnisse im Kernbereich (Stagnation und Umkehrung der Zweiphasenströmung), an vielen Forschungsstellen der Welt durchgeführt. Eine gesteuerte (und damit gezielte) Einstellung der thermohydraulischen Verhältnisse im Kernbereich bei gleichzeitiger Nachbildung des thermischen und mechanischen (plastische Verformbarkeit) Verhaltens der Brennstabhülle ist dagegen ein recht schwieriges Unterfangen; z.Zt. laufen außer in der PNS-Versuchsanlage COSIMA ähnliche Untersuchungen, jedoch ungesteuert, nur in-pile in der Power Burst Facility (PBF) in Idaho, USA.

Die Zielsetzung der Versuche in COSIMA wurde aus dem Zusammenhang zwischen der Hüllrohrdeformation, der Wärmeabgabe an das Kühlmittel und dessen von der Wärmeaufnahme abhängiger Kühlfähigkeit abgeleitet. Zur Unterstützung der Entwicklung und der Verifikation von Rechenprogrammen soll dieses sich beim Blowdown zeitabhängig einstellende Wechselspiel zum Ablauf gebracht werden. Die experimentellen Ergebnisse aus COSIMA betreffen also in gleicher Weise die Thermohydraulik des Blowdown-Vorganges, wie auch das Brennstabverhalten unter den rasch wechselnden Beanspruchungen in dieser Phase.

Die Durchführung als out-of-pile-Versuche bot sich an, weil die Kosten im Vergleich zu in-pile-Versuchen viel niedriger liegen, so daß Aussicht bestand, die Versuchssteuerung bis zur Einsatzreife über eine iterative Folge von Versuchen zu entwickeln, und weil die Möglichkeiten der Versuchsinstrumentierung im Vergleich zu in-pile-Versuchen wesentlich günstiger sind. Dafür wurde das Problem der Neuentwicklung eines eigenen elektrisch beheizten Brennstabsimulators für hot-spot-Stableistungen in Kauf genommen.

2. Versuchsanlage COSIMA

In Abb. 1 ist ein Schema der Versuchsanlage COSIMA (= controlled single rod blowdown simulation experiment Karlsruhe) dargestellt [1]. Bei den Versuchen besteht zunächst die Aufgabe, die stationären Bedingungen des Reaktorbetriebes nachzubilden, von denen aus der Blowdown gestartet wird. Daher besteht die Anlage in ähnlicher Weise wie ein Druckwasserreaktor aus einem Wasserkreislauf mit Druckhalter, der den Systemdruck bestimmt. In einem elektrisch beheizten Heißwasserkessel befindet sich aufgeheiztes Wasser, welches mittels der Umwälzpumpe bis zum Erreichen stationärer Temperaturbedingungen im Kreislauf umgepumpt wird.

Etwa 30 s vor der Blowdown-Auslösung werden die Wandheizstäbe und der zentral angeordnete Versuchsbrennstab eingeschaltet. Durch die Wärmezufuhr zum Kreislaufwasser bildet sich innerhalb der Teststrecke ein von unten nach oben ansteigendes Temperaturprofil aus. Kurz bevor das in den Heißwasserkessel zurückfließende heißere Wasser dessen unteres Ende erreicht, muß die Blowdown-Auslösung erfolgen, damit die gewollte Temperaturschichtung in der Teststrecke erhalten bleibt.

Der Betriebsdruck des Kreislaufes beträgt etwa 160 bar, die Betriebstemperatur ist zum Zeitpunkt der Blowdown-Auslösung im oberen Kühlmittelpodium etwa 320 °C. Die Anlage erstreckt sich über eine Höhe von 18 m (Abb. 2). Der COSIMA-Leitstand und der Teststreckenbereich sind als Hauptbereiche des Versuchsstandes einander benachbart. Zur Technikumshalle hin ist der gesamte Hochdruckteil der Anlage mit Schutzwänden abgesichert.

Die Teststrecke (vgl. Abb. 1) hat eine beheizte Länge von nur 1,5 m, weil an den elektrisch beheizten Brennstabsimulator im Zentrum der Teststrecke besondere Anforderungen gestellt werden, die eine verkürzte Ausführung erforderlich machen. Zum einen soll der Brennstab eine "blähfähige" Zircaloy-Hülle erhalten und mit Innendruck beaufschlagt sein, und zum anderen soll der Brennstoff hinsichtlich der im Reaktorstab gespeicherten Wärme, der Brennstoffgeometrie und schließlich auch der auf die Stablänge bezogenen Heizleistung nachgebildet werden. Diese Bedingungen werden mit dem in Abb. 3 gezeigten Stabkonzept erfüllt. Die maximal mögliche Heizleistung beträgt im hoch beheizten mittleren Abschnitt

des Brennstabsimulators von 0,5 m Länge knapp 0,75 kW pro cm.

Die Blowdown-Auslösung und -Steuerung erfordert eine Anzahl von Maßnahmen, die schnell und zeitlich präzise zu erfolgen haben, so daß eine Computersteuerung notwendig wurde. Hierzu wird das CALAS-System des KfK-Rechenzentrums mitverwendet. Die Blowdown-Auslösung wird durch das rasche Schließen der Schnellschlußventile begonnen, wodurch die Teststrecke vom Kreislauf getrennt wird. Mit einer geringen Verzögerung werden sodann die Schnellöffnungsventile der beiden Ausblase-Leitungen geöffnet, so daß der in der Teststrecke unter Druck stehende und weiterhin beheizte Wasserinhalt in den Kondensationsbehälter ausströmt. Dieses Ausströmen wird mittels der beiden in den Ausblaseleitungen befindlichen Schnellsteuerventile in vorherbestimmter Weise gezielt beeinflußt. Gleichzeitig wird auch die Beheizung der Wandheizstäbe und des Brennstabsimulators zurückgesteuert.

Der Blowdown-Vorgang ist beendet, wenn der Druck in der Teststrecke auf den Gegendruck des Reaktorsicherheitsbehälters abgesunken ist. In COSIMA ist es möglich, nach dem Schließen der Auslaßventile entweder die Teststrecke einfach auskühlen zu lassen, oder aber durch Öffnen einer Verbindung zum Heißwasserkessel die Teststrecke mit heißem Wasser rasch zu fluten. Dieser Fall ist dann von Interesse, wenn der gegen Ende des Blowdown erreichte Zustand des Simulators "eingefroren" werden muß, falls bei vorhandenem Innendruck die Hüllrohrtemperatur noch hoch ist.

Um der gestellten Experiment-Aufgabe gerecht zu werden, war die Entwicklung oder Abänderung einiger Einrichtungen notwendig, wobei zum Teil auch neue Wege gefunden werden mußten. Hierbei sind folgende Einrichtungen erwähnenswert:

- die schnelle Komponentensteuerung und Meßdatenerfassung,
- das Konzept des gesteuerten Blowdown-Ablaufes,
- der blähfähige Brennstabsimulator für hot-spot-Bedingungen,
- die Zweiphasen-Massenstrom-Meßtechnik (true mass flow meter) [2_7],
- die berührungslose Temperaturmessung für das Simulator-Hüllrohr.

In den Abb. 4 und 5 sind das "true mass flow meter" und das Pyrometer zur Messung der Hüllrohrtemperaturen gezeigt.

3. Versuchsprogramm und Auswertung

Gegenüber dem ursprünglichen Versuchsprogramm hat sich im Laufe des bisherigen Versuchsbetriebes und der damit zusammenhängenden Auswertungsarbeiten eine Ausweitung ergeben [3]. Da sich die Thermohydraulik in COSIMA tatsächlich wie erwartet auch hinsichtlich der Strömungsumkehr beim kaltseitigen Bruch einstellt, wurde die Untersuchung der Thermohydraulik in COSIMA verstärkt, weil es bisher noch zu wenig Experimente mit erfolgreicher Durchführung in dieser Richtung gibt.

Trotz dieser Ausweitung des Versuchsprogrammes bleibt die integrale Zielsetzung der Cosima-Versuche ungeändert, nämlich die Untersuchung des Hüllrohrverhaltens für DWR-Blowdown-Verhältnisse für heiß- und kaltseitige Primärleitungsbrüche der Größen 2F und 1F. Nach Beendigung der DWR-Versuche etwa Ende 1979 ist ein Übergang auf andere transiente LWR-Störfallverläufe ins Auge gefaßt.

Die Auswertung der COSIMA-Versuchsläufe erfolgt im wesentlichen in fünf Stufen:

- Direkt am Versuchsstand werden, neben der Anzeige der Betriebsinstrumentierung, mit Hilfe eines Bildschirmgerätes die wichtigsten Versuchsdaten in Form von Graphiken oder Tabellen ausgegeben. Dies erlaubt eine erste Beurteilung des Experimentablaufes, wobei sich bei Versuchen ohne Simulatorwechsel innerhalb einer Frist von ungefähr einer Stunde eine Wiederholungsmöglichkeit des Versuches ergibt.
- Die auf Band aufgezeichneten Daten werden abgerufen, in Realwerte umgewandelt und geplottet. Nach der Umwandlung erfolgt noch eine Auswertung hinsichtlich der Wärmeübergangszahlen und eine Überprüfung der Konsistenz der gemessenen Daten. Dies gilt insbesondere für die Anzeige des TMFM, die gegen die Anzeige der Dichtemeßeinrichtung geprüft wird (Abb. 6).
- Im nächsten Schritt erfolgt bei den Versuchen ohne Stabinnen- druck eine Nachrechnung mit Hilfe des Rechenprogrammes RELAP 4. Hier zeigt es sich, inwieweit das jeweilige Experiment thermohydraulisch interpretierbar ist.

- Bei Versuchen zur Hüllrohrdeformation (je nach Innendruck und Temperatur erfolgt ein Aufweiten oder Zusammendrücken bis zum "Brennstoff") wird der Simulationsbrennstab der Nachuntersuchung und der Dokumentation der Ergebnisse zugeführt. Dabei werden die Stäbe nach einer äußeren Untersuchung und Vermessung zerlegt und im Inneren untersucht.
- Schließlich erfolgt in einem letzten Schritt für die Versuche mit Hüllrohrdeformation für ausgewählte charakteristische Fälle eine Nachrechnung mit dem von KfK und TU-Stuttgart gemeinsam entwickelten Rechenprogramm SSYST [4], das speziell der Beschreibung des transienten Verhaltens von LWR-Brennstäben dient.

Mit Hilfe der COSIMA-Versuche soll SSYST für die Blowdown-Verhältnisse verifiziert werden. Bis heute sind die Arbeiten auf allen genannten Auswertungsstufen voll im Gange.

4. Bisherige Versuchsergebnisse und Auswertung mit RELAP 4

Für die COSIMA-Blowdown-Versuche sind zwei Typen von Brennstabsimulatoren vorhanden, nämlich

- ein indirekt elektrisch beheizter Stab ohne erhöhten Gasinnendruck und mit nicht blähfähiger Hülle, in die 6 Thermoelemente eingelassen sind, die der Messung von Wärmeübergangszahlen dienen (daher ist der Stab Wärmeübergangsstab = WUS genannt), sowie
- ein ebenfalls indirekt elektrisch beheizter Stab mit Gasinnendruck und blähfähiger Hülle, die zur Vermeidung von Störungen des Blähvorganges nicht instrumentiert ist (dies ist der Simulator für die realen Brennstäbe = SIM genannt).

Der Typ WUS hat etwas andere transiente Eigenschaften als ein realer Brennstab, zudem benötigt er zu seinem Schutz Grenzwertabschaltungen der Heizleistung beim Erreichen kritischer Temperaturen. Mit WUS sollen ähnliche Transienten wie mit SIM gefahren werden. Bei der thermohydraulischen Nachrechnung mit RELAP 4 wird durch Vergleich mit den aus der Messung abgeleiteten Wärmeübergangszahlen an der Staboberfläche eine Überprüfung der in RELAP verwendeten Wärmeübergangsbeziehungen möglich. WUS wurde jedoch

erst kürzlich verfügbar, so daß an der Auswertung der ersten durchgeführten Versuche noch gearbeitet wird.

Der Brennstabsimulator vom Typ SIM liegt in zwei Versionen vor (vgl. Abb. 3), nämlich entweder mit Ringpellets aus Al_2O_3 oder auch mit solchen aus ThO_2 bestückt. Diese Materialien unterscheiden sich vor allem in der Wärmeleitfähigkeit, wodurch sich in der stationären Betriebsphase über das Temperaturprofil eine unterschiedliche Wärmespeicherung im Stab ergibt. Hierbei läßt der ThO_2 -SIM gegenüber dem Al_2O_3 -SIM eine merklich verbesserte Nachbildung der transienten thermischen Eigenschaften der Reaktor-brennstäbe erwarten. Allerdings wurde auch der ThO_2 -SIM erst vor kurzem verfügbar; erste Versuche verliefen zufriedenstellend, so daß ein Teil der zukünftigen Experimente mit diesem Typ durchgeführt werden wird.

Auf den Stabtyp SIM mit Al_2O_3 -Ringpellets stützt sich schon seit etwas mehr als einem Jahr das ganze bisherige Versuchsprogramm von COSIMA ab. Bei kleinem Gasinnendruck (also beim Vermeiden des Hüllenaufblähens) ist dieser Stab jeweils bis zu achtmal verwendbar, darum werden wesentliche Teile des Versuchsprogramms mit diesem Stabtyp abgewickelt.

Wegen der notwendigen Inbetriebnahme- und Entwicklungsarbeiten zerfallen die in COSIMA bisher durchgeführten Versuche in folgende Versuchsgruppen:

- Inbetriebnahme des Kreislaufes und der Teststrecke,
- Inbetriebnahme des Al_2O_3 -SIM-Stabes,
- Weiterentwicklung der TMFM und der Pyrometer,
- Inbetriebnahme des WUS, sowie des ThO_2 -SIM-Stabes,
- Iteration von Steuerprogrammen mit SIM und WUS,
- Hauptversuche mit Al_2O_3 - und ThO_2 -SIM mit Hüllerverformung,
- Hauptversuche mit WUS mit Messung von Wärmeübergangszahlen.

Bisher wurden über 60 Blowdown-Versuche mit COSIMA gefahren, die alle Versuchsgruppen betreffen. Etwa 15%, also 9 Versuche waren Hauptversuche im engeren Sinn. Es ist zu erwarten, daß dieser Anteil in Zukunft wesentlich höher ausfällt, weil die verschiedenen genannten Neuentwicklungen nunmehr erprobt vorliegen.

Von diesen Hauptversuchen dienten fünf der Simulation eines kaltseitigen 2F-Bruches mit dem Al_2O_3 -SIM. Die Stabinnendrucke betragen bei 2 Versuchen 30 bar und bei 3 Versuchen 120 bar. Die Ergebnisse erweisen sich als gut reproduzierbar. Bei den 30 bar-Versuchen sind die Stabverformungen klein, es tritt ein Kollabieren der Hülle bis zu den Ringpellets ein. Deswegen können diese Versuche direkt mit RELAP 4 nachgerechnet werden, obwohl dort kein Verformungsmodell für die Hülle enthalten ist. Die Nachrechnung stützt sich ganz wesentlich auf die Messung der Massenströme in den Ausblaseleitungen und der γ -Dichte in den Kühlmittelpfaden ab.

In Abb. 7 ist der gemessene Druckverlauf in der Teststrecke zusammen mit dem Ergebnis einer RELAP 4-Nachrechnung gezeigt. Wie in Abb. 8, in der ein Beispiel für den Verlauf gemessener und nachgerechneter Hüllrohrtemperaturen gegeben ist, ist hier die Übereinstimmung zwischen Messung und Rechnung ganz ausgezeichnet.

Trotzdem kann es sich mit diesen Nachrechnungen nur um vorläufige Ergebnisse handeln. Eine Verallgemeinerung der Aussagen ist erst dann möglich, wenn die Gemeinsamkeiten der in einzelnen Versuchsnachrechnungen erkannten Code-Schwachstellen anhand unterschiedlicher SIM- und WUS-Versuchsläufe zusammengestellt sind. Es läßt sich aber heute bereits feststellen, daß die wesentlichen Eingriffe in den vorliegenden Code stets bei den Korrelationen zur Berechnung von kritischen Heizflächenbelastungen (bzw. dryout) und von Wärmeübergängen (Filmsieden) vorzunehmen sind. Hier bestehen noch Wissenslücken, die sich bei den Brennstäben mit hohem Stabinnendruck und hoher Stabileistung (hot spot) bemerkbar machen.

5. Weiterführende Arbeiten mit SSYST

Bei der Beschreibung des Deformationsverhaltens der Hüllrohre ist der Wärmeübergang aus dem Brennstoff über den Gasspalt zur Hülle ebenso wichtig, wie der Wärmeübergang an das Kühlmittel, der bei kleinen Massenströmen starke Einflüsse der Aufheizung des Kühlmittels zeigt. Aus diesen Gründen muß einerseits neben der Verformung der Hülle auch das Deformationsverhalten (Wärmeausdehnung, Rißbildung usw.) des Brennstoffs (bzw. der Ringpellets) beschrieben werden, und andererseits ist eine gekoppelte

Berechnung der Hüllrohrdeformation und der Thermohydraulik notwendig. Dieser letzte Schritt einer gekoppelten Berechnung ist mit dem SSYST-Modul ZETHYD möglich; Nachrechnungen für COSIMA-Versuche können in naher Zukunft begonnen werden.

Bisher konzentrieren sich die auf COSIMA bezogenen Arbeiten mit SSYST im wesentlichen auf eine Verbesserung der Beschreibung des Verhaltens der Ringpellets, die als keramisches Material auch in mechanischer Hinsicht dem Reaktorbrennstoff vielfach ähnlich sind, sowie auf eine Überprüfung der Gültigkeit des NORA-Materialgesetzes [5] für die Beschreibung des Deformationsverhaltens der Hülle bei den schnellen Blowdown-Transienten. Auf diese beiden Punkte soll im folgenden eingegangen werden:

Von den Reaktorbrennstäben her ist bekannt, daß dort die Brennstoffpellets innerhalb der Hülle mit Rissen durchzogen sind, also keinen mechanisch zusammenhängenden Körper bilden. Bei aufgeschnittenen SIM-Stäben mit Al_2O_3 -Ringpellets wurden ebenfalls zersprungene Pellets gefunden, allerdings waren diese Stäbe mehreren Blowdowns ausgesetzt. Um zu überprüfen, ob dieser Vorgang erst während des Blowdown oder bereits in der Aufheizphase zur Wirkung kommt, wurde ein SIM-Stab einem einmaligen Aufheizvorgang in COSIMA unterworfen und ohne Blowdown-Transiente wieder ausgebaut und zerschnitten. Es zeigte sich, daß die Ringpellets bereits hierbei mehrfach zerspringen, so daß sie ähnlich wie der Reaktorbrennstoff in der Störfalltransiente keine zusammenhängenden Körper mehr darstellen. Dieses Verhalten hat merkliche Konsequenzen auf die Bestimmung des Wärmetransportverhaltens im Stab (Wärmedehnungen und Spaltweiten).

Das Zerspringen der Pellets im Stab hat auch Konsequenzen auf das Hüllrohrverhalten beim Kollabieren der Hülle, wenn bei ausreichend hohen Hüllentemperaturen ein äußerer Überdruck herrscht. Dieser Fall trat bei den erwähnten SIM-Versuchen mit 30 bar Innendruck ein. Wie in Abb. 9 zu erkennen ist, erreicht das Hüllrohr beim Aufpressen auf die Pellets bei jedem Pellet einen etwas anderen mittleren Durchmesser und eine etwas andere Ovalität. Dies drückt sich auch darin aus, daß beim Entlangstreichen mit dem Finger über das deformierte Hüllrohr quasi die einzelnen Pellets zu fühlen sind. Die Ursache dieses Effektes liegt darin, daß sich die zerbrochenen Pellets nicht wieder ganz genau auf ihren ursprüng-

lichen Durchmesser zusammenschieben lassen und daß bei diesem Vorgang die ursprünglich kreisrunde Form der Pellets nur unvollkommen erreicht wird.

Eine Dehnungsnachrechnung des 30 bar-Versuches mit SSYST unter Verwendung des NORA-Materialmodells und der thermohydraulischen Randbedingungen aus den RELAP 4-Rechnungen ohne Dehnung führt ebenfalls zu Temperaturverläufen der Hülle, die in guter Übereinstimmung mit der Messung stehen. Zum Ende der Transienten hin lassen sich allerdings Temperaturabweichungen im Bereich bis 50 K kaum vermeiden. Die verbleibenden Unsicherheiten liegen damit in derselben Größenordnung, wie die Auswirkungen der Unsicherheiten in den Stoffwerten (z.B. Wärmeleitfähigkeit der Pellets) auf die Hüllentemperaturen. Um die Unsicherheiten bei den Stoffdaten weiter zu verringern, soll daher versucht werden, vor allem Meßwerte für die radiale Leitfähigkeit der Al_2O_3 -Ringpellets im interessanten Temperaturbereich zu bekommen. Es ist allerdings noch offen, ob die benötigten Meßwerte mit ausreichend kleinen Fehlerbreiten irgendwo gewonnen werden können.

Da die angestrebte gekoppelte Berechnung der Deformation und der Thermohydraulik noch nicht möglich war, wurden gemessene Temperaturverläufe zur Überprüfung des NORA-Materialmodells verwendet. In Abb. 10 sind die erreichten Enddehnungen zusammen mit den Einflüssen aus Temperaturfehlern ($\pm 5\%$ °C) und den Streubreiten des NORA-Modells eingetragen. Zu erkennen ist vor allem die Dominanz des Temperaturfehlers, was bei dem vorliegenden exponentiellen Stoffgesetz nicht überrascht. Unter Berücksichtigung dieser starken Abhängigkeit von der Temperatur und einem Meßfehler für die pyrometrische Messung der Hüllrohrtemperaturen in Höhe von $\pm 3\%$ (°C) sind die Enddehnungen zwischen Rechnung und Messung in Abb. 10 in guter Übereinstimmung. Wesentlich ist auch, daß für den Versuch 46 mit 730 W/cm Stabileistung das NORA-Modell eine große Annäherung an das Bersten anzeigt. Tatsächlich ist im CO-SIMA-Experiment unter vergleichbaren Bedingungen und einer Stabileistung von 680 W/cm die Hülle eines ThO_2 -SIM etwa 7,5 s nach der Blowdown-Auslösung gebersten. Diese Stabelastungen sind im Vergleich zu Reaktorbedingungen extrem. Da der Versuch erst jüngst stattfand, konnte er noch nicht weitergehend ausgewertet werden;

dennoch deutet der Befund darauf hin, daß die Aussagen des NORA-Modells auch für Blowdown-Transienten belastbar sind.

6. Schlußfolgerungen

Das Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase eines KVS ist für Brennstäbe mit hohem Innendruck und hoher Stableistung wegen den Auswirkungen der sich einstellenden kleinen Hüllrohrdeformationen auf das Hüllrohrversagen von Bedeutung. Die Betriebsergebnisse mit der COSIMA-Anlage machen deutlich, daß auf der Basis der durchgeführten Neuentwicklungen von Meßtechnik und Brennstabsimulatoren reaktorrelevante Blowdown-Abläufe gesteuert und reproduzierbar zu fahren sind. Die sich einstellenden mechanischen und thermohydraulischen Zustände in der Teststrecke sind einer Nachrechnung zugänglich; dies erlaubt einerseits die Durchführung von Verbesserungen an den Rechenmodellen und liefert andererseits eine Bestätigung für den hohen Entwicklungsstand der verfügbaren Rechenprogramme.

Damit zeichnet sich ab, daß mit den Ergebnissen aus COSIMA und der zugeordneten theoretischen Arbeit auf dem Gebiet des experimentell schwierigen Blowdown-Prozesses zur Verifizierung der Störfallrechenmodelle wesentlich beigetragen wird. Die für die nächsten ca. 1 1/2 Jahre vorgesehene Arbeit wird dazu dienen, die mehr vorläufigen Ergebnisse weiter abzusichern und den Bereich ihrer Anwendung auszudehnen.

Anerkennung

Für die stets gute Zusammenarbeit und den aktiven Einsatz bei der Lösung der zahlreichen Probleme möchten wir insbesondere unseren Mitarbeitern, sowie Frau Dipl.-Ing. S. Stefanova (z.Zt. als Gastwissenschaftler im KfK), herzlich danken.

Schrifttum

- [⁻1_] Hain, K.:
Blowdown-Versuchsanlage COSIMA, Anlagenbeschreibung,
1978, unveröffentlicht
- [⁻2_] Class, G. und Cramer, M.:
True Mass Flow Meter - ein Meßgerät zur Messung
instationärer Zweiphasenmassenströme. DATF-KTG Reaktor-
tagung, Nürnberg, 8.-11. April 1975, Vortrag Nr. 347
- [⁻3_] Class, G. und Hain, K.:
COSIMA - Gesteuerte Blowdown-Versuche zum LWR-
Brennstabverhalten.
KfK-Nachrichten Jg. 10, H. 2 (1978), S. 39-48
- [⁻4_] Gulden, W. et al.:
Dokumentation SSYST-1
Ein Programmsystem zur Beschreibung des LWR-Brenn-
stabverhaltens bei Kühlmittelverluststörfällen.
KfK 2496, August 1977
- [⁻5_] Raff, S.:
Development of a Zry-Deformation Model to Describe
the Zry-4 Cladding Tube During Accidents
ENS/ANS International Topical Meeting on Nuclear
Power Reactor Safety
Brussels, Belgium, October 16-19, 1978
Paper Log.No. 26 (to be published)

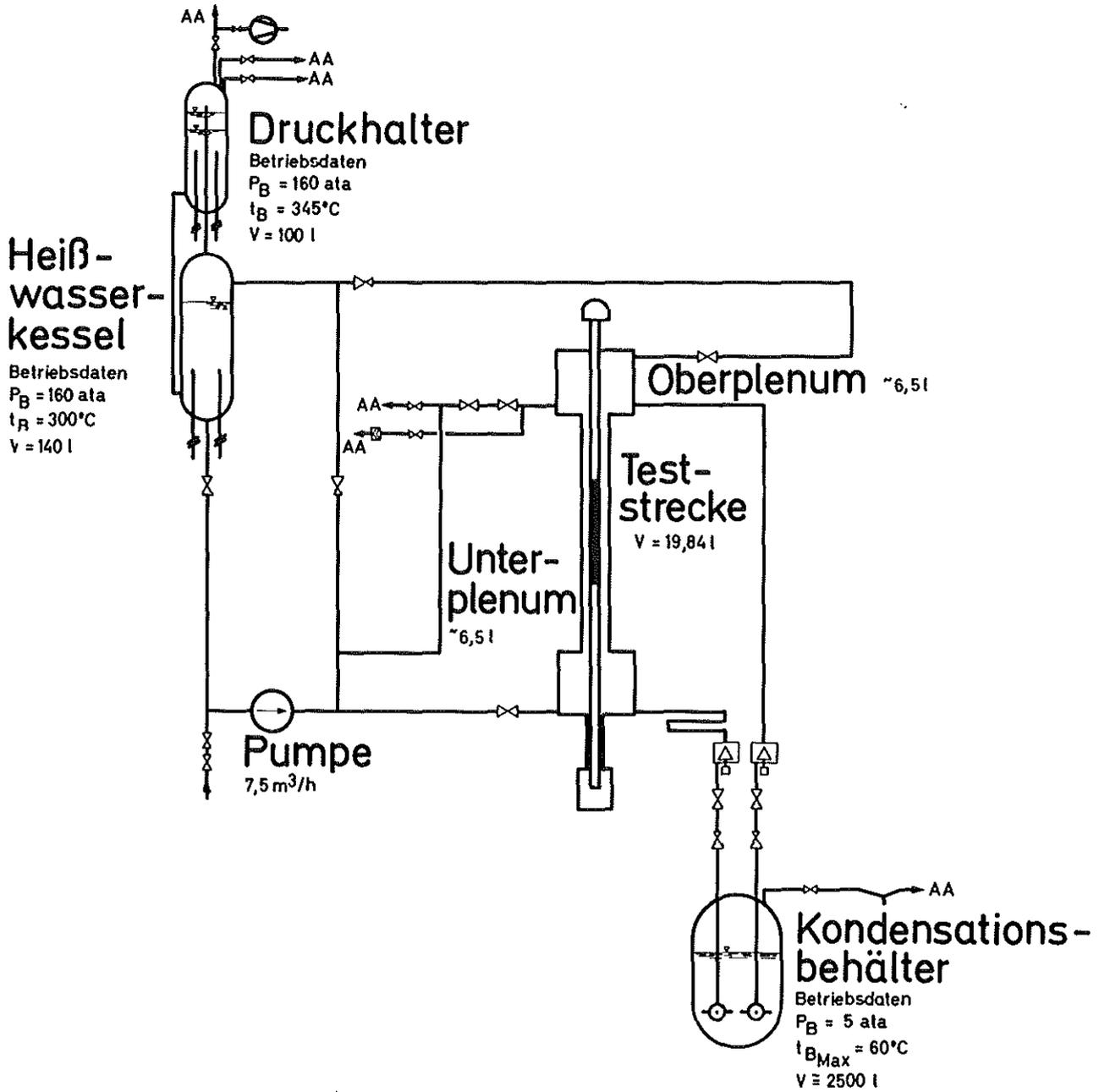


Abb. 1: Schema der COSIMA-Anlage

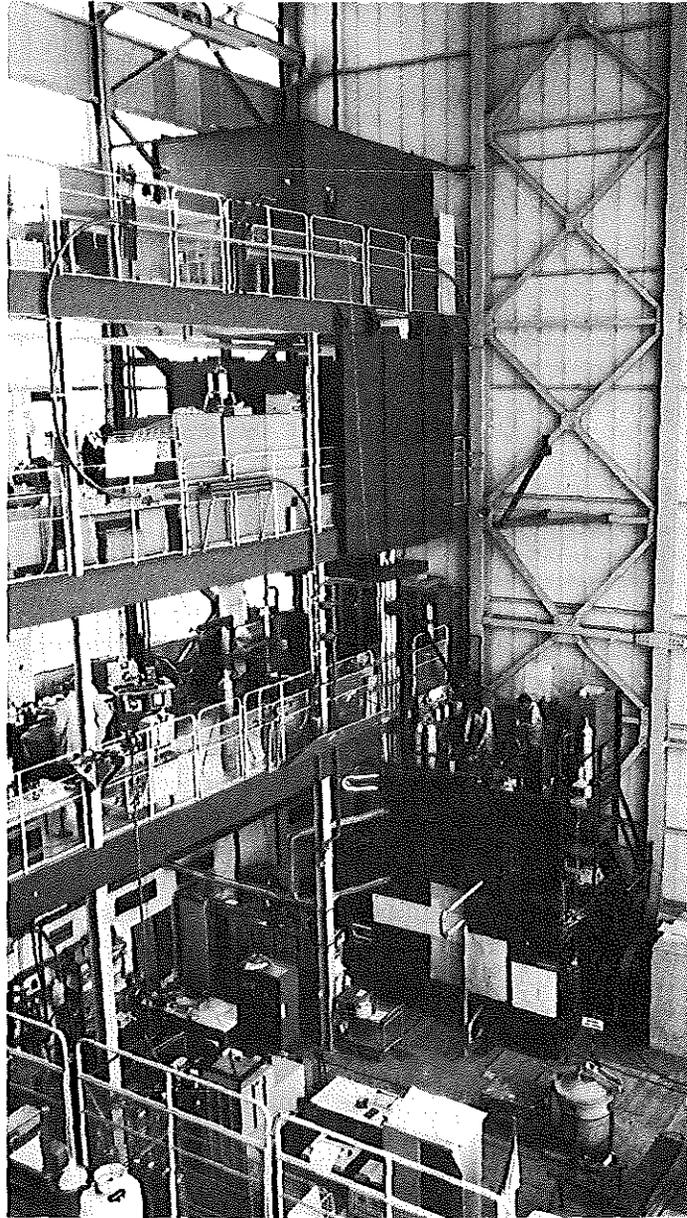


Abb. 2: COSIMA - Gesamtansicht

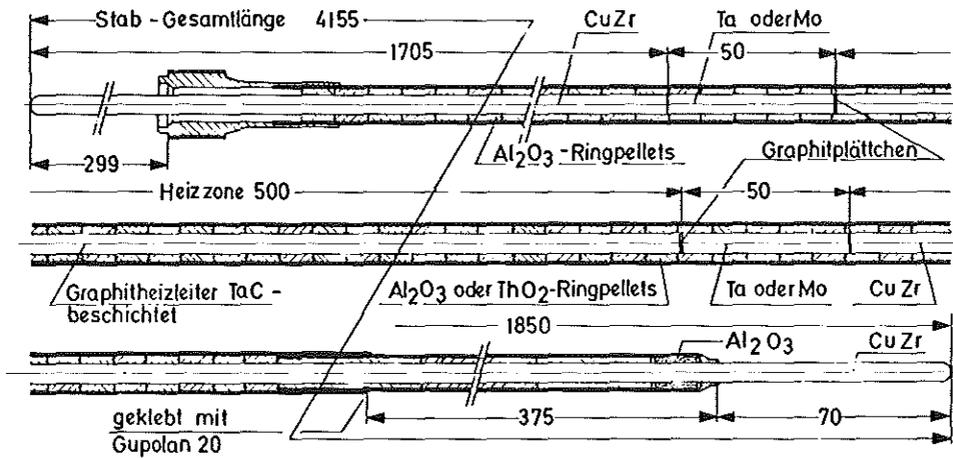
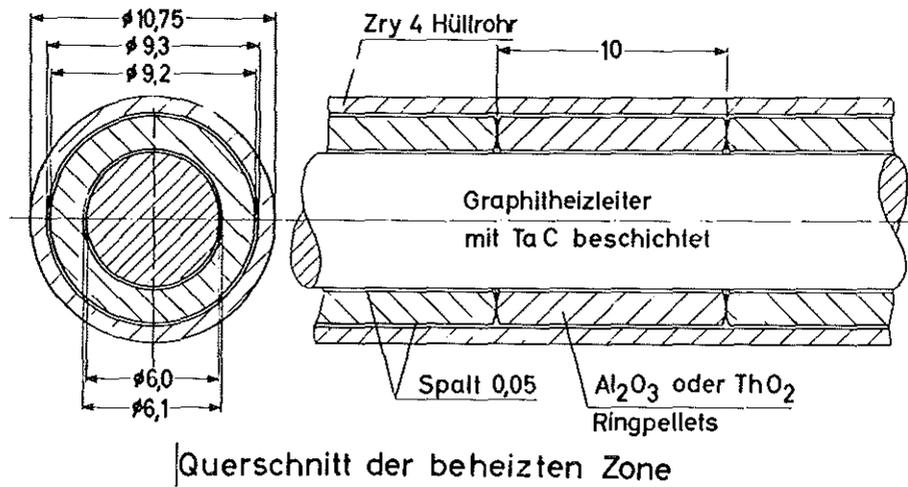


Abb. 3: COSIMA - Simulationsbrennstab SIM

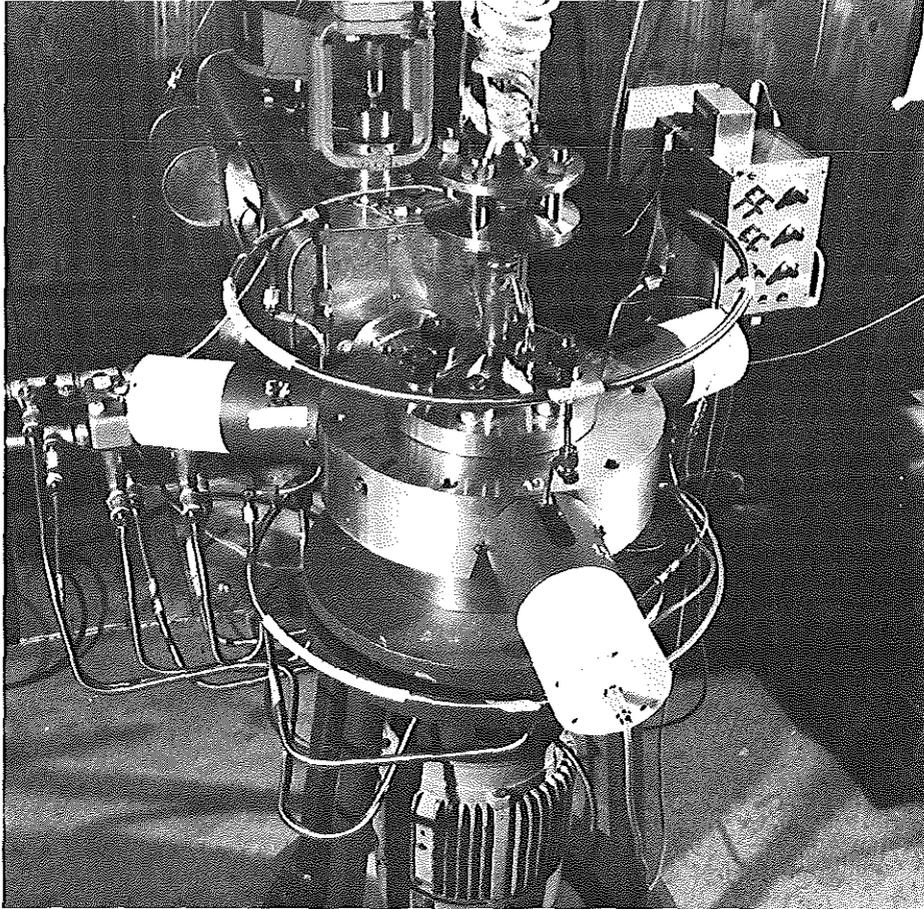
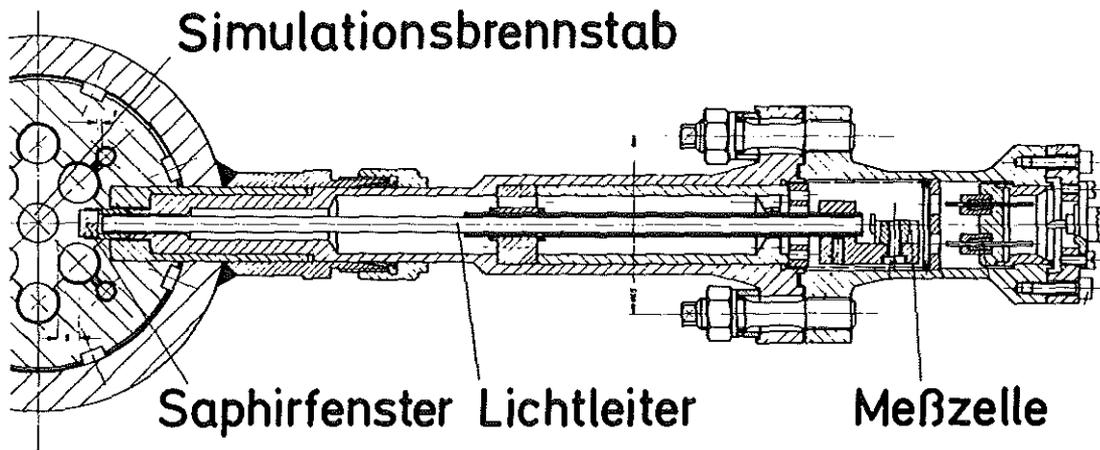
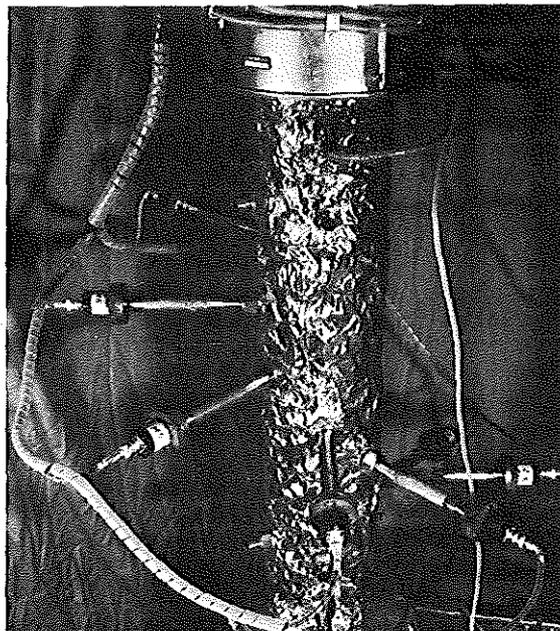


Abb. 4: True Mass Flow Meter



a) Schnitt durch die Teststrecke mit Pyrometer



b) Anordnung der Pyrometer an der Teststrecke

KfK

Abb. 5: Pyrometer zur berührungslosen Messung der Hüllrohrtemperatur

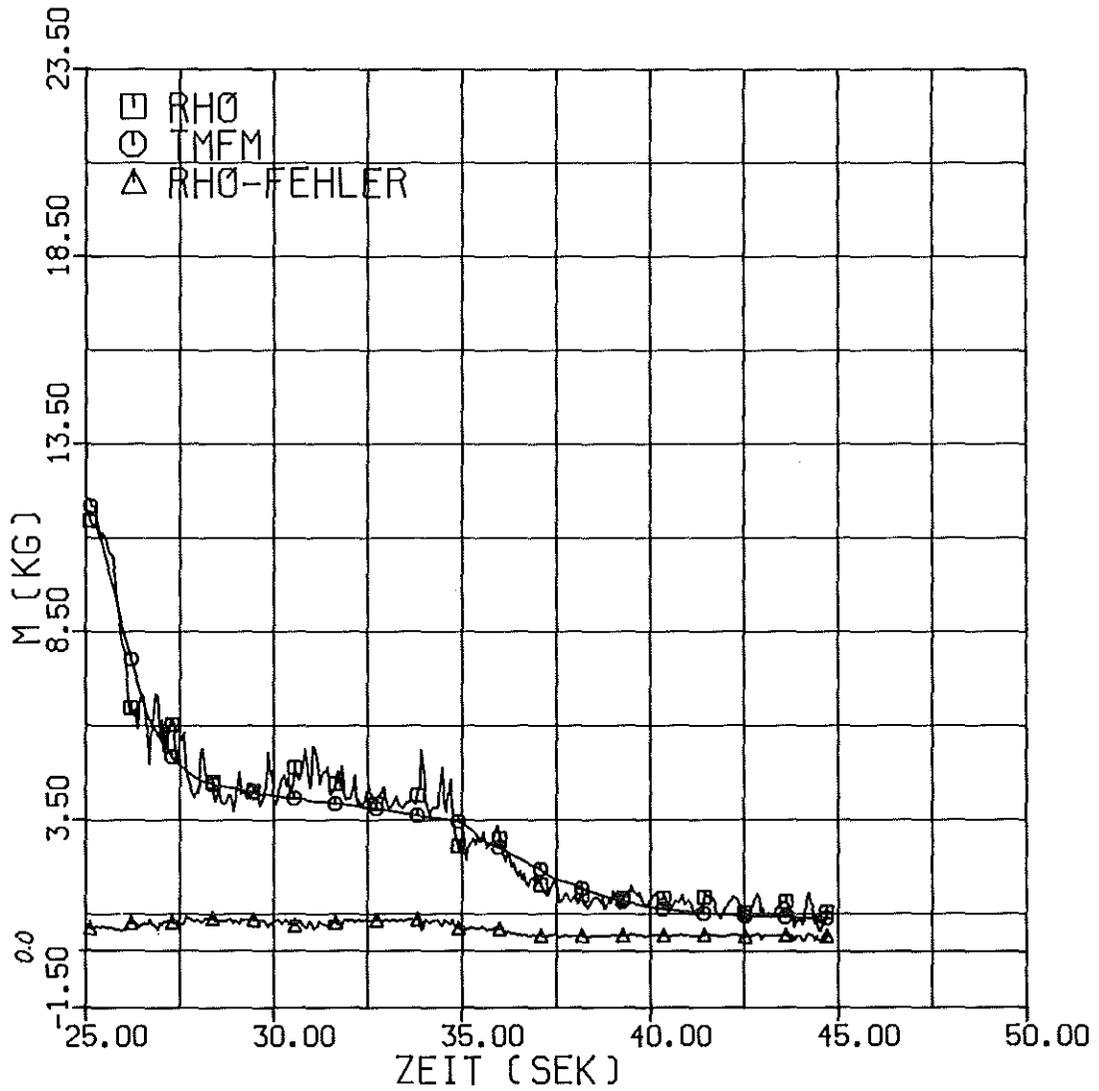


Abb.6: Gesamtwassermasse in der Teststrecke beim Blowdown COSIMA-Versuch Nr. 44

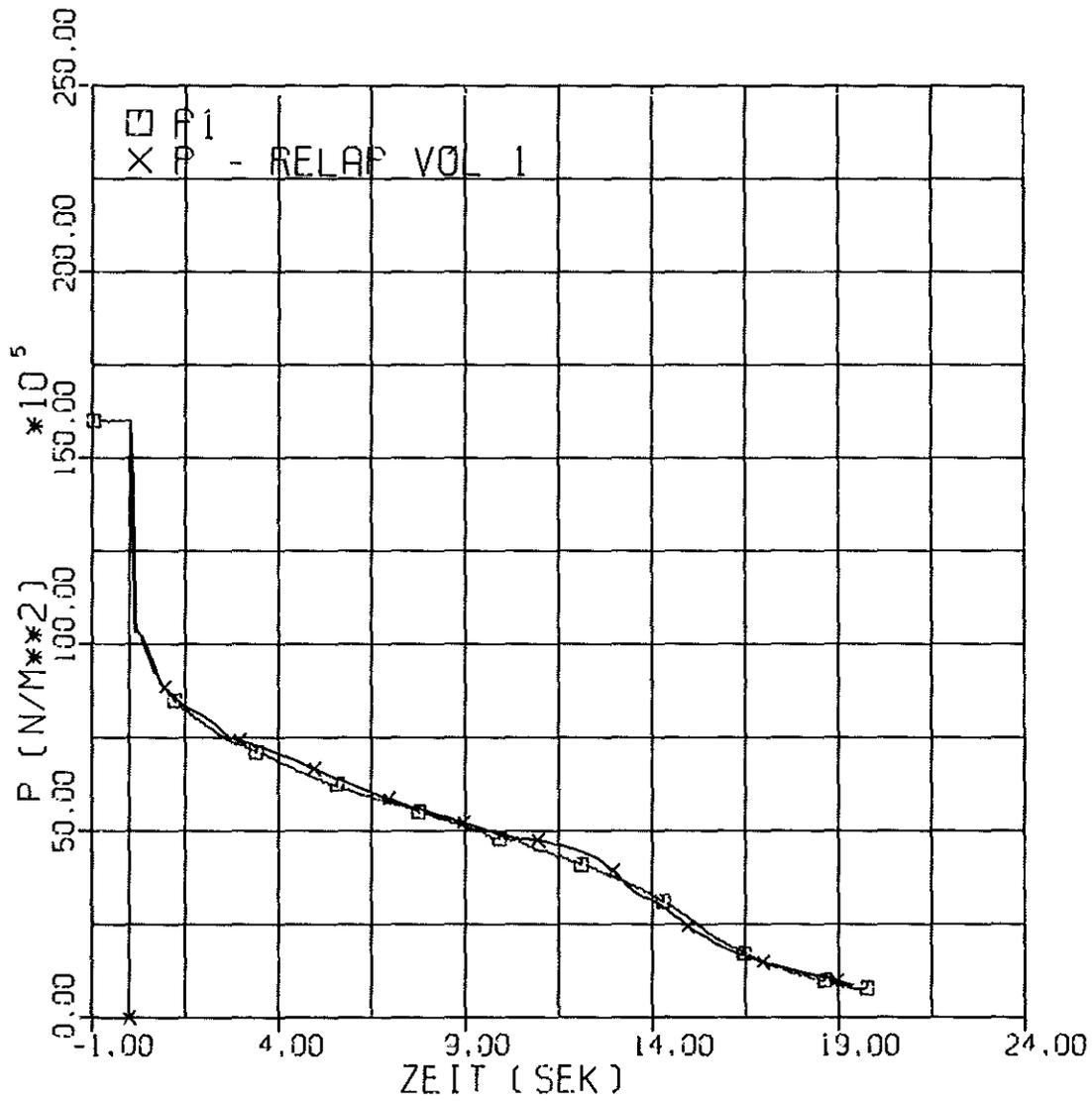


Abb. 7: Druckverlauf im unteren
Kühlmittelpenum
COSIMA - Versuch Nr. 44

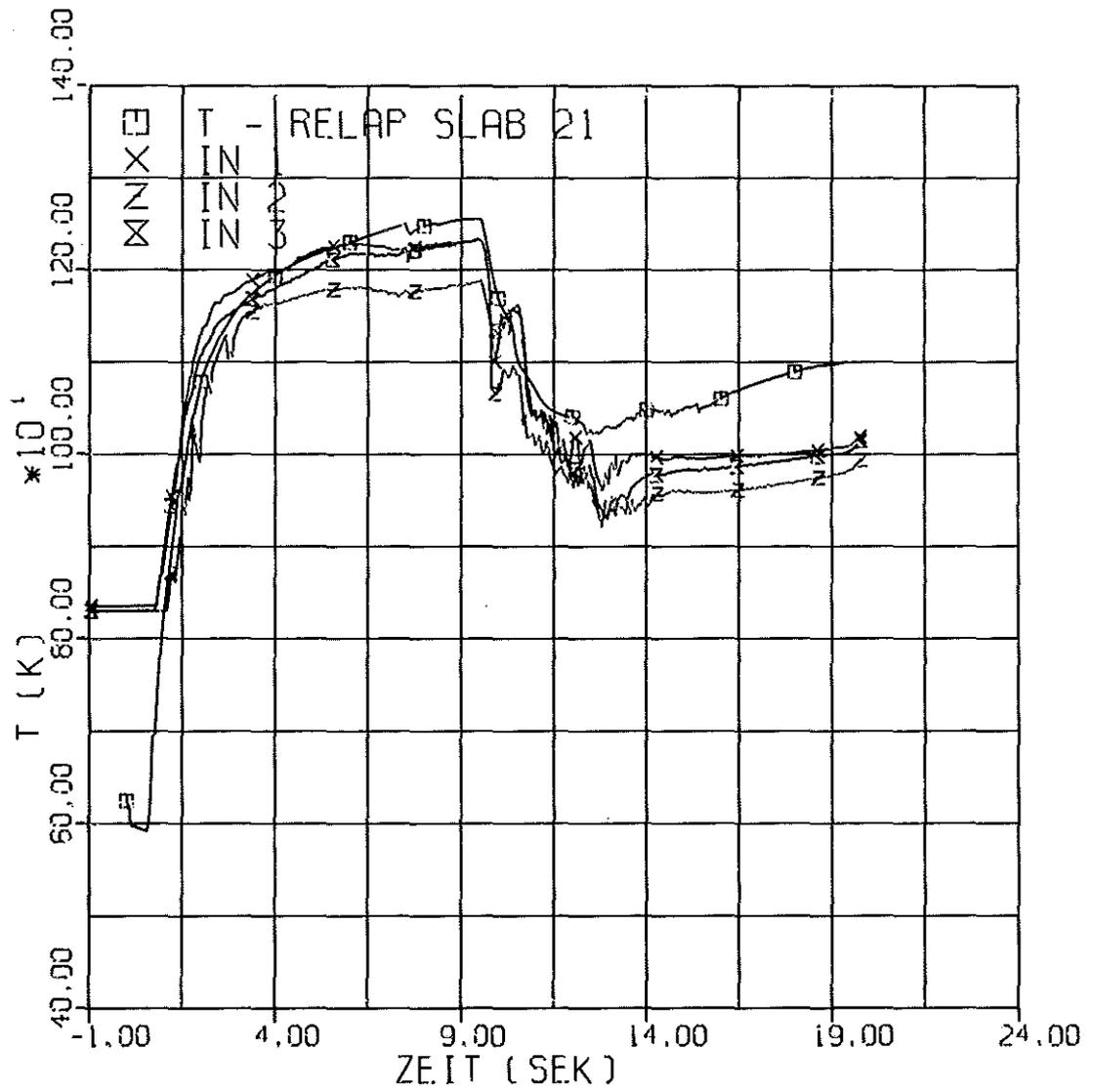
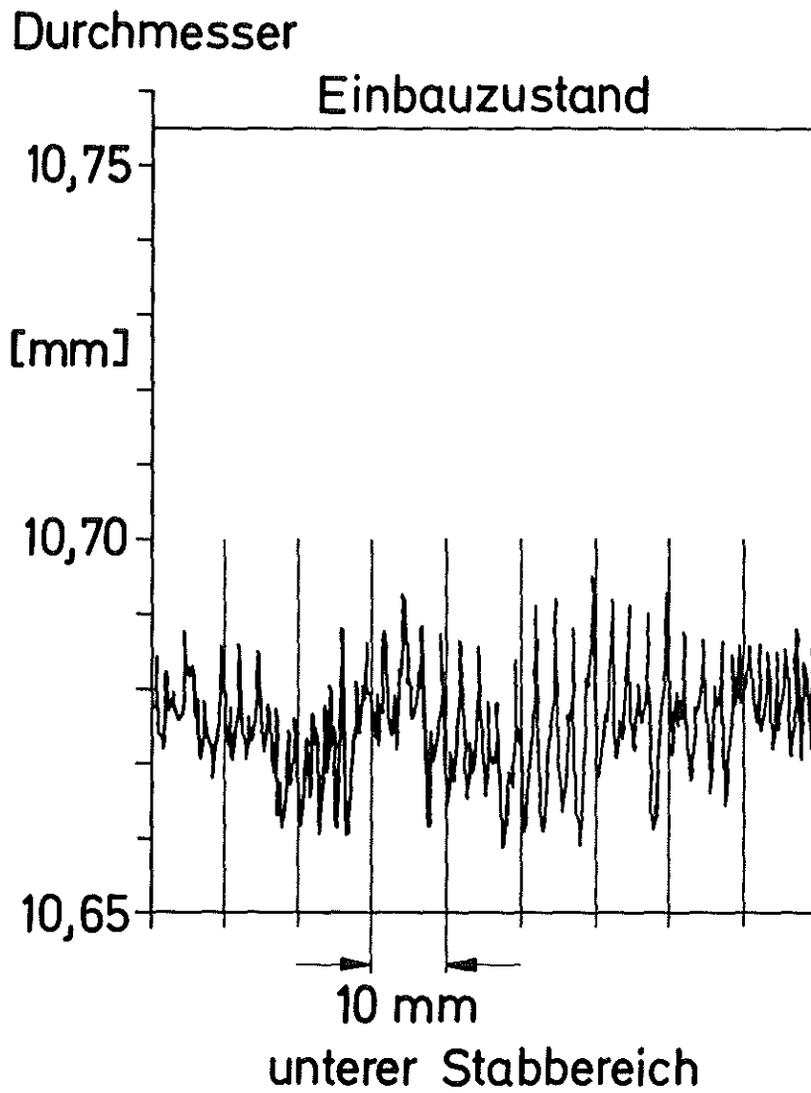


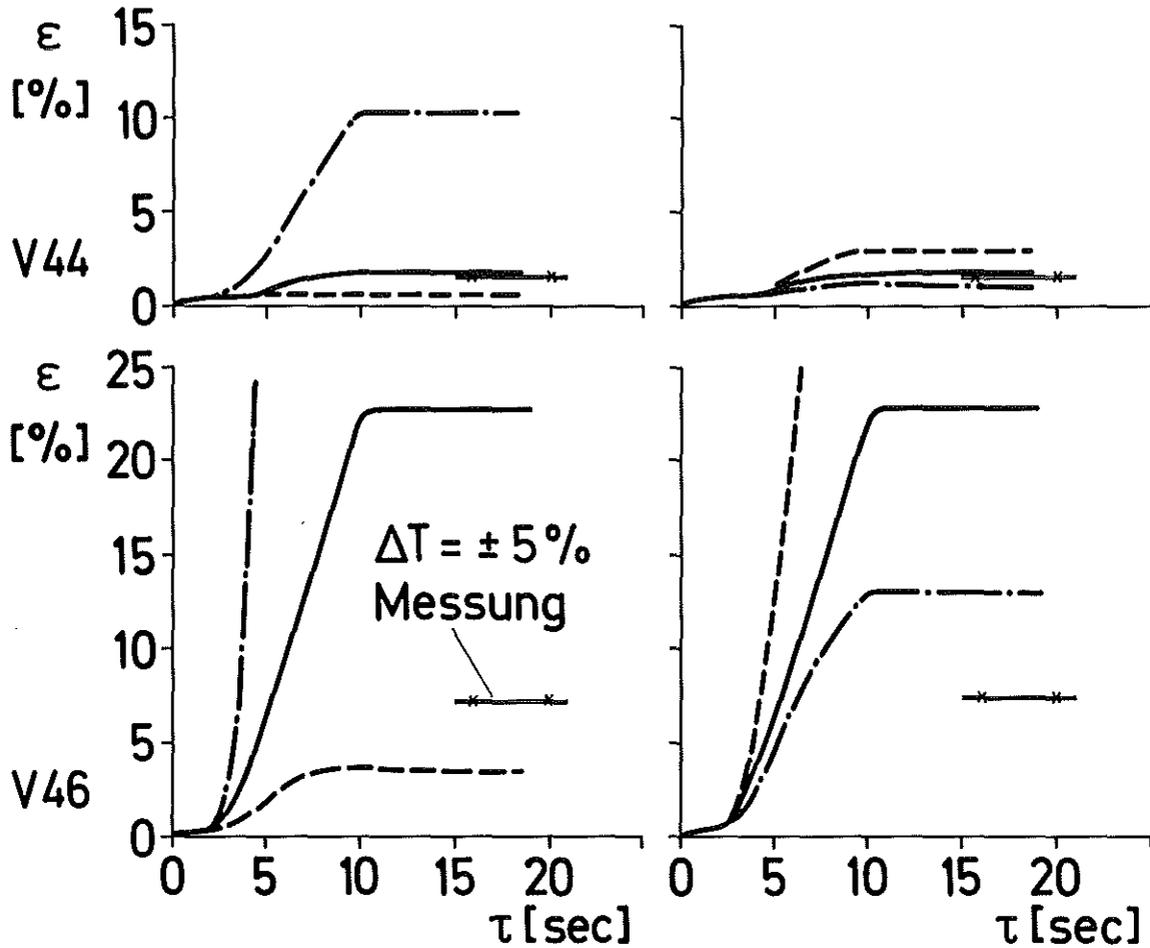
Abb.8: Hüllrohrtemperaturen im unteren Stabbereich
COSIMA- Versuch Nr. 44



KfK

Abb.9: Wendelschrieb des
Hüllrohrdurchmessers
COSIMA-Versuch Nr. 44

SSYST mit gemessener Hüllrohrtemperatur NORA - Materialmodell



Temperatur-Variation

NORA - Streuband



Abb. 10: Umfangsdehnung des Hüllrohres
COSIMA - Versuche Nr. 44 und 46

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT
JAHRESKOLLOQUIUM 1978

RESULTS OF INPILE EXPERIMENTS IN THE NSRR ON
REACTIVITY INITIATED ACCIDENTS

S. SUGURI AND M. ISHIKAWA

JAPAN ATOMIC ENERGY RESEARCH INSTITUTE (JAERI)
TOKAI RESEARCH ESTABLISHMENT

JAHRESKOLLOQUIUM 1978
des
PROJKTES NUKLEARE SICHERHEIT

Results of In-pile Experiments in the NSRR
on Reactivity Initiated Accidents

S. Suguri, M. Ishikawa, S. Saito
Japan Atomic Energy Research Institute

1. Introduction

An in-pile test on light water reactor fuel behavior under reactivity initiated accident (RIA) conditions has been progressing in the Nuclear Safety Research Reactor (NSRR), at Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute. A total of 265 tests have been performed in the NSRR since Oct. 1975. This report presents brief summaries of the facilities, test objectives and results of the NSRR experiments.

2. Test Facilities

The NSRR is a modified TRIGA-Annular Core Pulse Reactor (Fig. 1) having a large central experimental cavity (22 cm I.D.), where test fuel elements, one to several rods, contained in a capsule or a loop are installed and exposed to a high pulse power¹⁾. The maximum pulse power generates prompt energy of 105 MW.s in the core with minimum reactor period of 1.13 msec²⁾. (Fig. 2) The pulse power is achieved with quick withdrawal of three transient rods, which reactivity worth is 3.43 % $\Delta k/k$ at maximum allowed pulsing operation. Figure 3 shows adiabatic energy deposition in a test fuel rod contained in a standard water capsule as a function of inserted reactivity.

3. Test Objectives

Past U.S. reactor tests for a RIA, such as BORAX, SPERT, etc., demonstrated that reactors were destroyed by mechanical energy resulted from fuel failure. The mechanical energy is believed to be generated due to rapid steam formation in the core by the interaction between hot fuel and water. The mechanical energy generation in a core is the special accident feature of a RIA. Therefore, the objectives of safety study for a RIA are focussed on when and how the mechanical energy is generated, and how it works in the core and to the pressure boundary, as well as determining the threshold energy for fuel failure and revealing fuel failure mechanism.

In order to attain these research objectives, the NSRR test program is planned to perform more than 500 tests on LWR fuel rods varying fuel design, cooling conditions and so on as shown in Table 1. Up to date, 265 tests have been completed, although they are limited to the tests under the conditions of atmospheric pressure capsule. (Fig. 4)

4. Test Results^{3), 4), 5), 6)}

4.1 Standard fuel tests

The objectives of the standard fuel tests are to have precise failure threshold and to investigate failure mechanism of a standard fuel rod (an un-pressurized PWR fuel rod, Fig. 5) in accordance with energy deposition in a fuel rod. (Fig. 6) Two types of failure mechanism are found. The incipient failure occurs at the energy deposition of 260 cal/gr·UO₂ due to brittle fracture of cladding accompanied with cladding melting. In this failure, a fuel rod is broken generally at pellet to pellet boundary into several pieces during (or possibly after) quenching, but has never experienced failure during film boiling period. No UO₂ pellet is expelled into water and no mechanical energy is released in this failure.

The second type of failure occurs at the energy deposition of approximately over 380 cal/gr·UO₂ due to UO₂ melting (partially evaporating). UO₂ pellet is expelled into water and some amount of mechanical energy is released. The energy conversion is less than 1 %.

So far as the present measuring devices and test configurations are used, the ratio seems to increase with increment of energy deposition.

An important conclusion is obtained through the standard fuel tests that fuel failures do not always accompany the release of mechanical energy, which is the most concerned problem in a RIA. In a current light water power reactor, it is calculated that energy deposition in a hypothetical RIA is 230 cal/gr·UO₂. Thus, it is hardly credible that a serious consequence occurs in a RIA of a light water reactor, which accompany core destruction as experienced in the SL-1 accident.

4.2 Fuel design variation tests

(1) Fuel enrichment

When fuel enrichment increases, failure threshold decreases, because higher enriched fuel has more skewed flux profile in a fuel rod, which reflects higher fuel surface temperature during transient at the same average energy deposition. (Fig. 7)

(2) Gap width

Gap width has significant influences on the onset of DNB, but not on failure threshold. The DNB is believed to occur when thermally expanded fuel pellet contacts with cladding, therefore, larger gapped fuel has higher threshold to the onset of DNB. On the other hand, an incipient fuel failure accompanies the melting of cladding inner surface which does not depend so much on the gap width.

(3) Gap gas pressure

When a fuel rod is pressurized to more than 6 kg/cm²·g, fuel failure is caused by the burst of the cladding (Fig. 8). The failure threshold decreases as increasing the initial internal pressure, and for the fuel rods pressurized to 12 and 30 kg/cm²·g, they are approximately 200 and 160 cal/gr·UO₂, respectively. For the fuel rods pressurized to 30 and 50 kg/cm²·g, cladding deformation is 20 ~ 30 %. Whereas, for the fuel

rods pressurized to $8 \sim 20 \text{ kg/cm}^2 \cdot \text{g}$, cladding surface temperature at failure reaches β -phase region and cladding deformation exceeds 50 %. However, no UO_2 pellet is expelled into water and no mechanical energy is generated in this type of failure.

(4) Pellet shape

Pellet shapes (dished, chamfered and flat) do not cause any influence on fuel failure threshold and failure mechanism.

(5) Cladding material

A stainless steel clad fuel rod shows different failure mode compared with that of a Zry clad fuel rod. (Fig.9) The failure mode is complete melting of the cladding. Failure threshold is about $240 \text{ cal/gr} \cdot \text{UO}_2$. On the other hand, cladding thickness affects failure threshold. When the thickness in Zry cladding is altered from 0.62 mm to 0.40 mm, failure threshold decreases from $260 \text{ cal/gr} \cdot \text{UO}_2$ to $210 \text{ cal/gr} \cdot \text{UO}_2$.

4.3 Cooling Condition Variation Tests

(1) Coolant temperature and velocity

Coolant temperature increase reduces subcooling rate which extends film boiling duration significantly. Thus, failure threshold decreases a little bit. For example, a test in the coolant temperature of $20 \text{ }^\circ\text{C}$ at $180 \text{ cal/gr} \cdot \text{UO}_2$ has film boiling duration of 8 sec which is compared to 35 sec in the test of the coolant temperature of $90 \text{ }^\circ\text{C}$ at the same energy deposition. Failure thresholds are $260 \text{ cal/gr} \cdot \text{UO}_2$ at $20 \text{ }^\circ\text{C}$ and $220 \text{ cal/gr} \cdot \text{UO}_2$ at $90 \text{ }^\circ\text{C}$, respectively.

On the other hand, coolant flow decreases film boiling duration. (Fig. 10)

(2) Flow shroud

Flow shroud restricts amount of cooling water directly available to cool a fuel rod and rises cooling water temperature in the transient. As test results, fuel failure threshold decreases as decreasing of equivalent diameter of flow shroud. (Fig. 11)

(3) Rod cluster

Neutron spectrum in the NSRR test capsule is rather soft and large flux gradient exists on the peripheral fuel rods in a bundle. Therefore, a bundle test is limited to bundle with five fuel rods in the NSRR. The transient behavior in a center fuel rod is similar to that for a fuel rod within a flow shroud.

4.4 Defective fuel tests

(1) Waterlogged fuel

The waterlogged fuel rods generally fail at the energy deposition of about $110 \text{ cal/gr} \cdot \text{UO}_2$, when internal pressure goes up to $1200 \text{ kg} \cdot \text{f/cm}^2$, but cladding temperature rise is limited to less than $300 \text{ }^\circ\text{C}$. In case of such a failure most of fuel pellets are released into water becoming into very fine particles as shown in Fig. 12, and this results in generation of mechanical energy. Furthermore, it is found that the failure threshold is generally insensitive to the water content in a rod.

(2) Fretting corroded fuel

The corrosion in a fuel rod was artificially produced by a vibration apparatus to simulate fretting corrosion in a real power reactor under the conditions of high temperature and high pressure. The rods were then irradiated in the NSRR. The results of the tests showed that the threshold energy for fuel failure of the slightly corroded fuel did not differ from that of the non-corroded, but for the highly corroded fuel rod, the threshold energy was $20 \sim 25$ cal/gr \cdot UO₂ lower than that of the standard fuel rod.

5. Future Plan

The tests with high temperature-pressure capsules and loops which simulate reactor hot stand-by conditions are planned. The fabrication of a high temperature-pressure capsule has been completed, and the first test with that will be performed at the beginning of 1979, while the fabrication of a loop is in progress. More than 200 experiments are still scheduled until 1983 as the first phase of the test program in the NSRR.

References

- 1) M. Ishikawa, et al.,; Proc. US/Japan Seminar on Fast Pulse Reactor (1976).
- 2) S. Saito, et al.; J. Nucl. Sci. and Tech. 14, No.3, (1977).
- 3) Progress Report on the NSRR Experiments (1) to (5), JAERI-M 6635, 6790, 7051, 7304 and 7554 (in Japanese).
- 4) A. Morishima, M. Ishikawa and S. Suguri,; Proc. International Conference on Nuclear Power and Its Fuel Cycle, (1977)
- 5) M. Ishikawa,; First Progress Report on the Nuclear Safety Research Reactor(NSRR) Experiments, 4th LWR Safety Information Meeting, Washington, (1976)
- 6) M. Ishikawa, et al.,; NSRR Experiments on LWR Fuel Behavior under Reactivity Initiated Accident Condition, Topical Meeting on Thermal Reactor Safety, Sun Valley, (1977)

Table 1 Test Series and Major Results on Light Water Reactor Fuel Behavior in NSRR Experiments

by June, 1978

Test Parameter	No. of Tests	Major Results
Standard Fuel Tests		Threshold energy depositions of fresh fuel rods are
Scoping	48	140 cal/g·UO ₂ for cladding deformation
Fuel centerline temp., etc.	10	260 cal/g·UO ₂ for fuel failure
		380 cal/g·UO ₂ for fuel fragmentation.
Fuel Design Variation Tests		
Enrichment	17	Change of gap width has no significant effects on failure threshold and mechanism, while, failure threshold lowers with the increase of enrichment or of initial internal pressure of a fuel rod. Stainless steel clad fuel rods show a different failure mode from that of zircaloy clad ones.
Gap width	13	
Gap pressure	34	
Pellet shape	5	
Cladding material	13	
Others	15	
Cooling Condition Variation Tests		
Coolant temperature	12	The failure threshold decreases with higher initial water temperature or smaller flow area.
Flow shroud	21	
Rod cluster	8	
Defective fuel Tests		
Waterlogged	50	Waterlogged fuel rods fail at the energy deposition of about 110 cal/g·UO ₂ and generate mechanical energy. Local decrease of cladding thickness by fretting corrosion have little influence on failure threshold.
Fretting corrosion	12	
Miscellaneous	7	
Total	265	

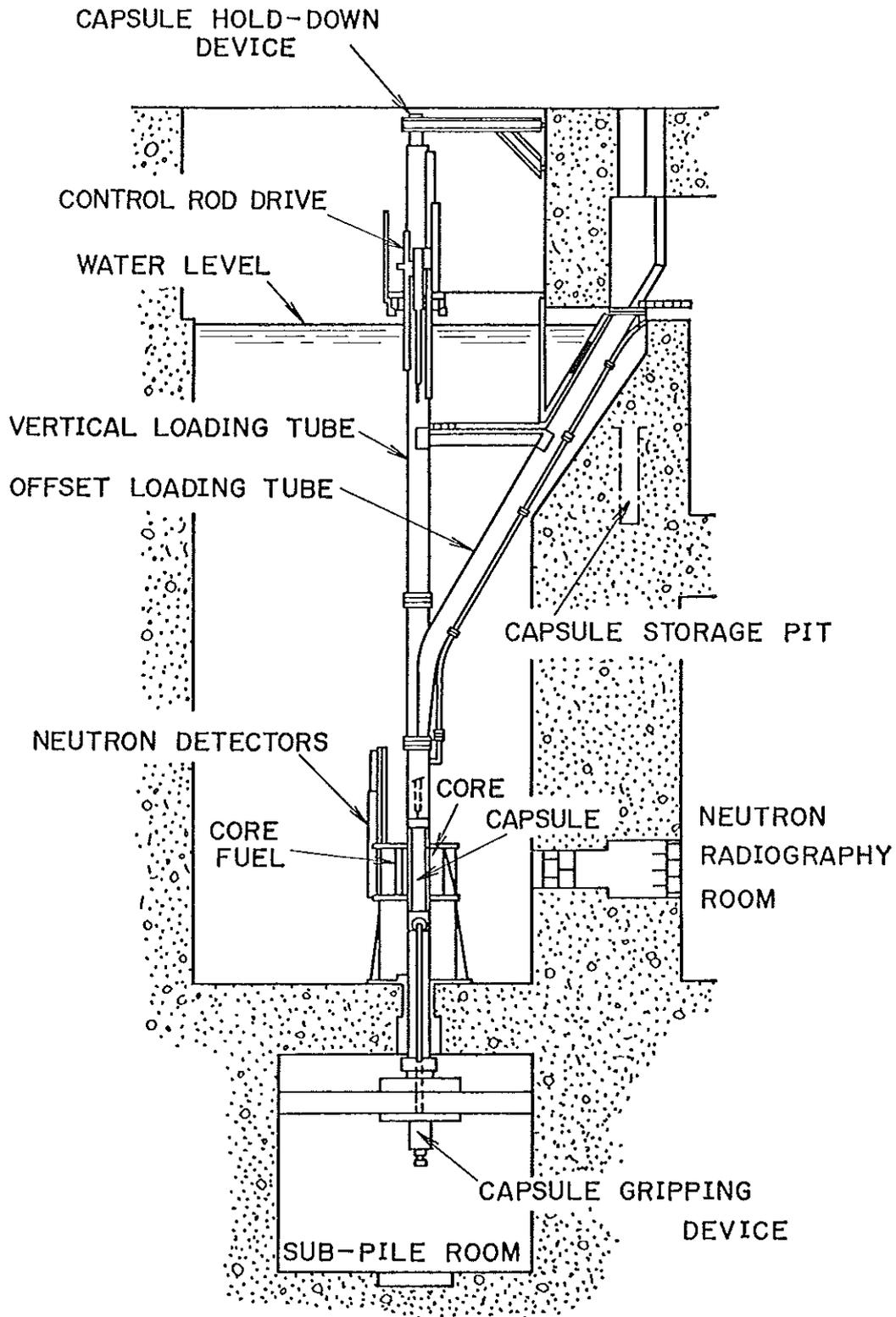


Fig.1 Vertical cross-section of the NSRR reactor

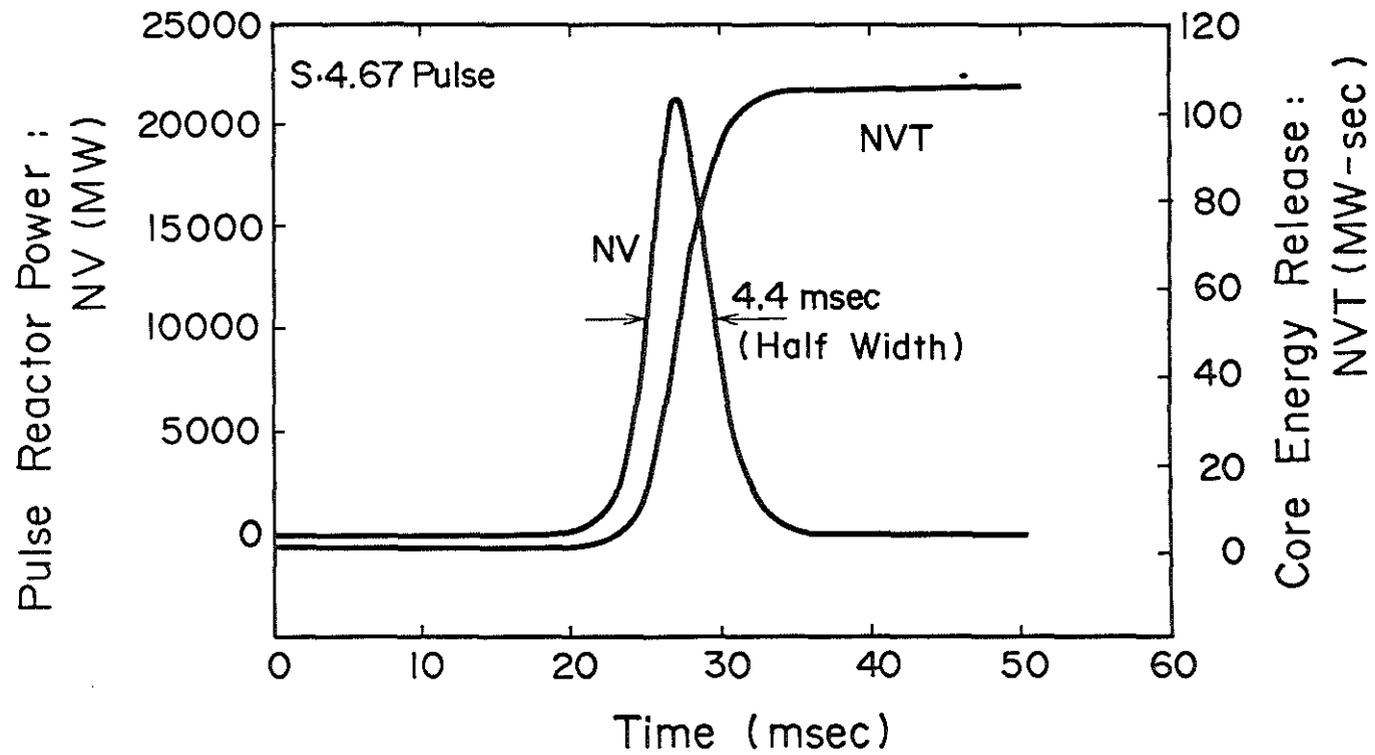


Fig.2 Histories of Reactor Power and Core Energy Release in Case of Maximum Reactivity Insertion

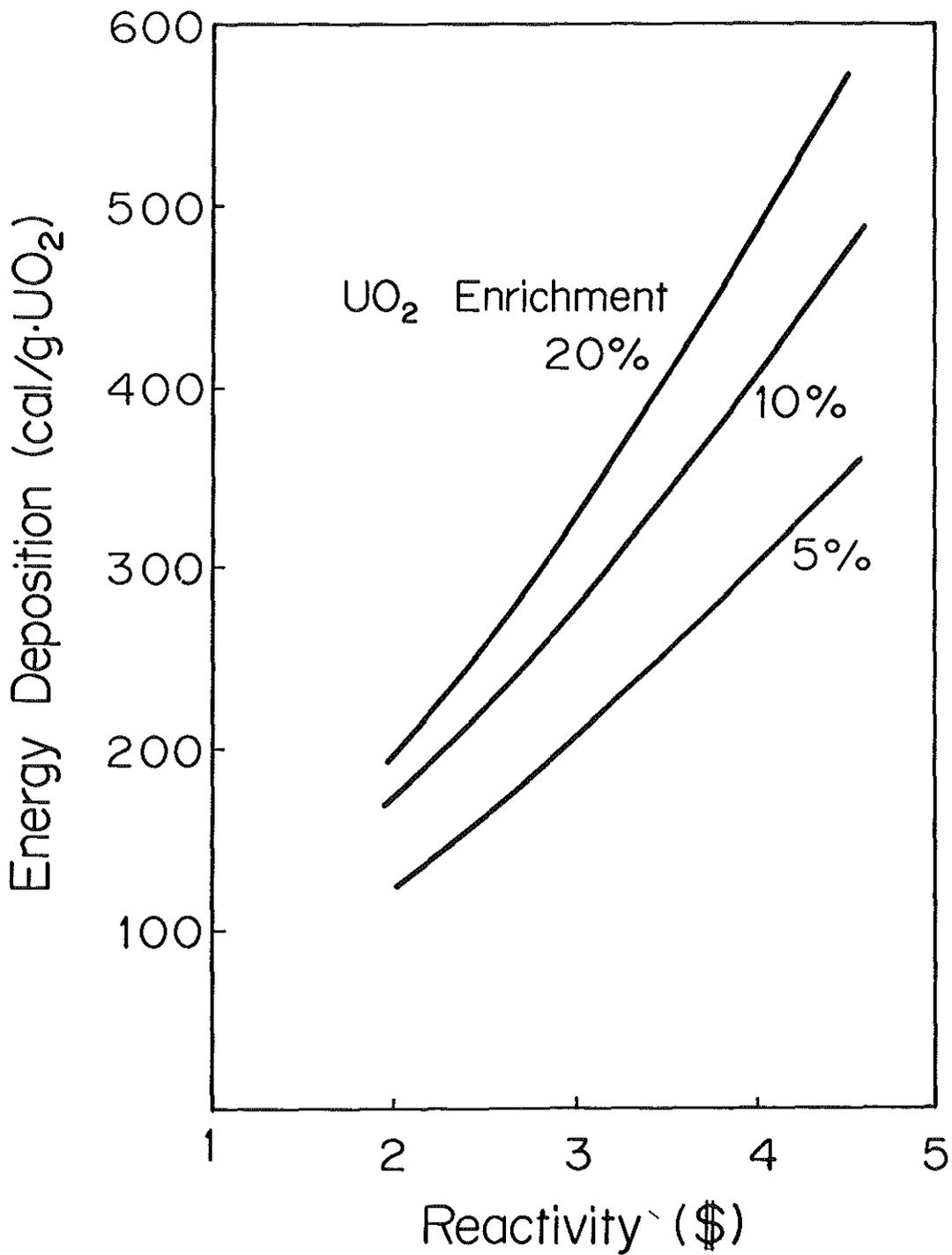


Fig. 3 Energy deposition in a LWR size test fuel rod contained in a capsule with water

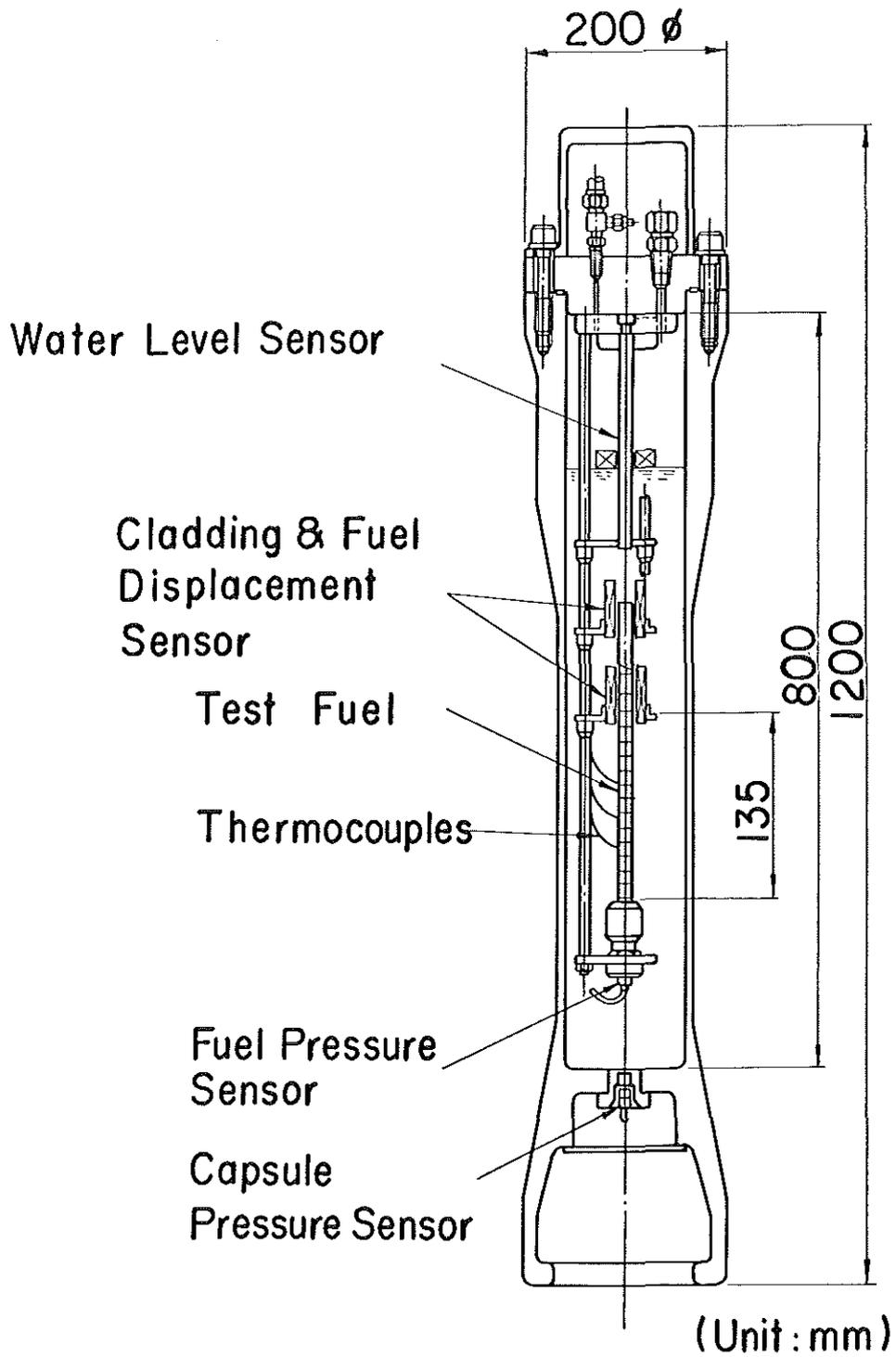


Fig.4 Standard Water Capsule

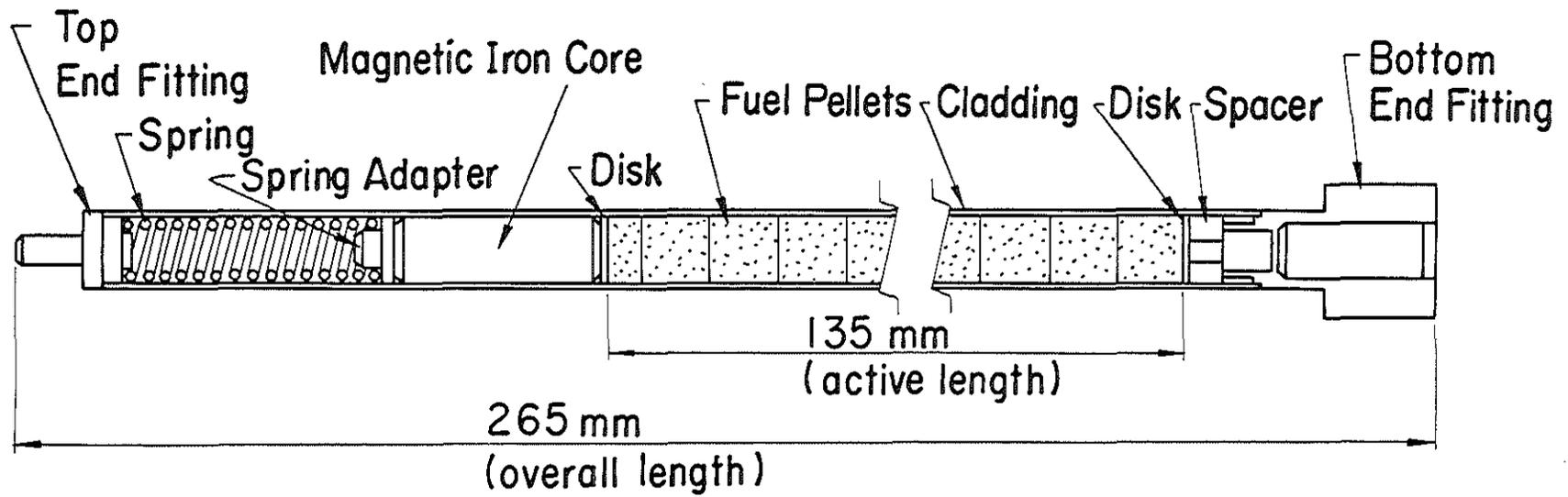


Fig.5 Standard Test Fuel Rod

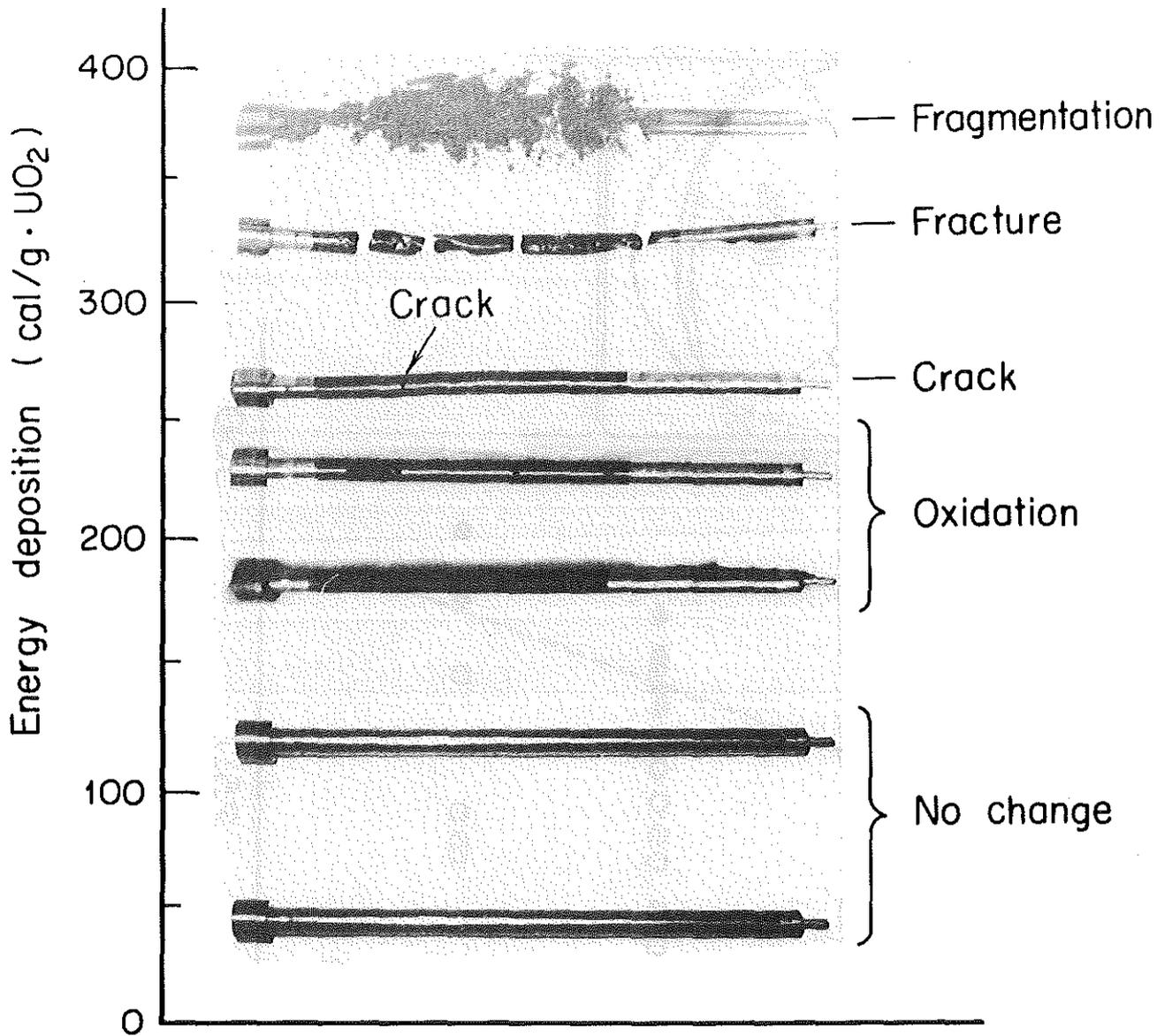


Fig. 6 Appearance of post-test fuel rods
related with energy deposition

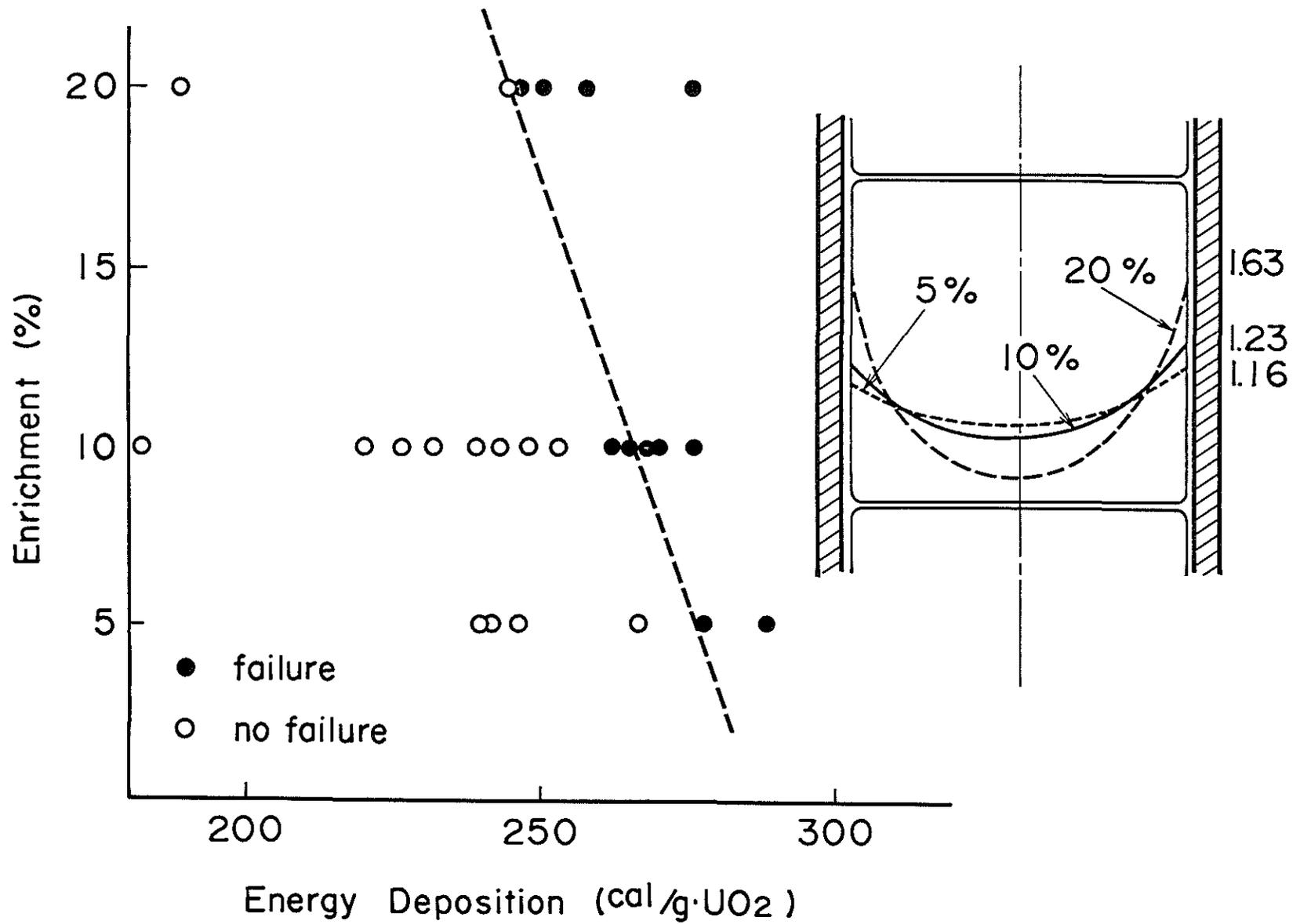
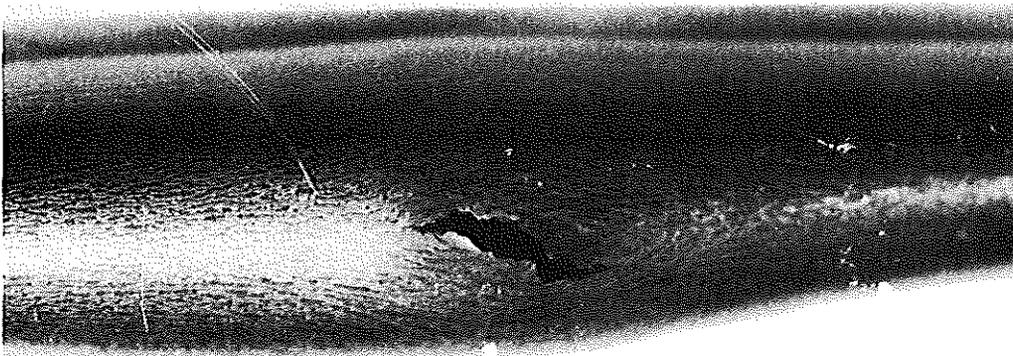


Fig.7 Threshold Energy Deposition for Fuel Failure as a Function of Enrichment



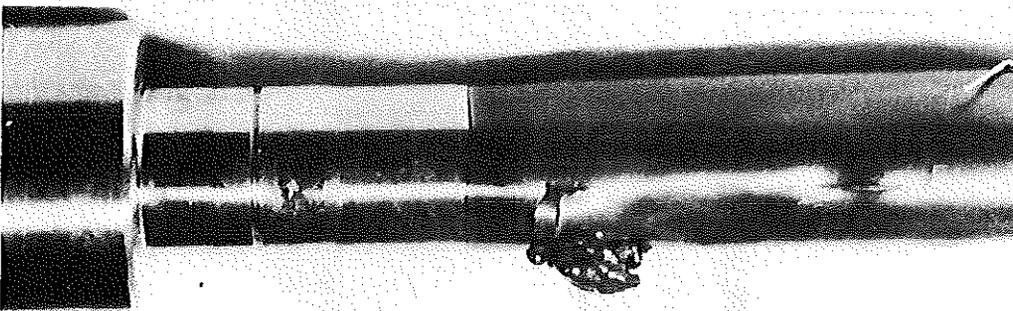
231-1

$30 \text{ kg/cm}^2 \cdot \text{g}$, $240 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$



231-5

$12 \text{ kg/cm}^2 \cdot \text{g}$, $240 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$



231-7

$6 \text{ kg/cm}^2 \cdot \text{g}$, $278 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$



231-15

$-1 \text{ kg/cm}^2 \cdot \text{g}$, $259 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$

Fig. 8

Magnified pictures of post-test fuel rods.

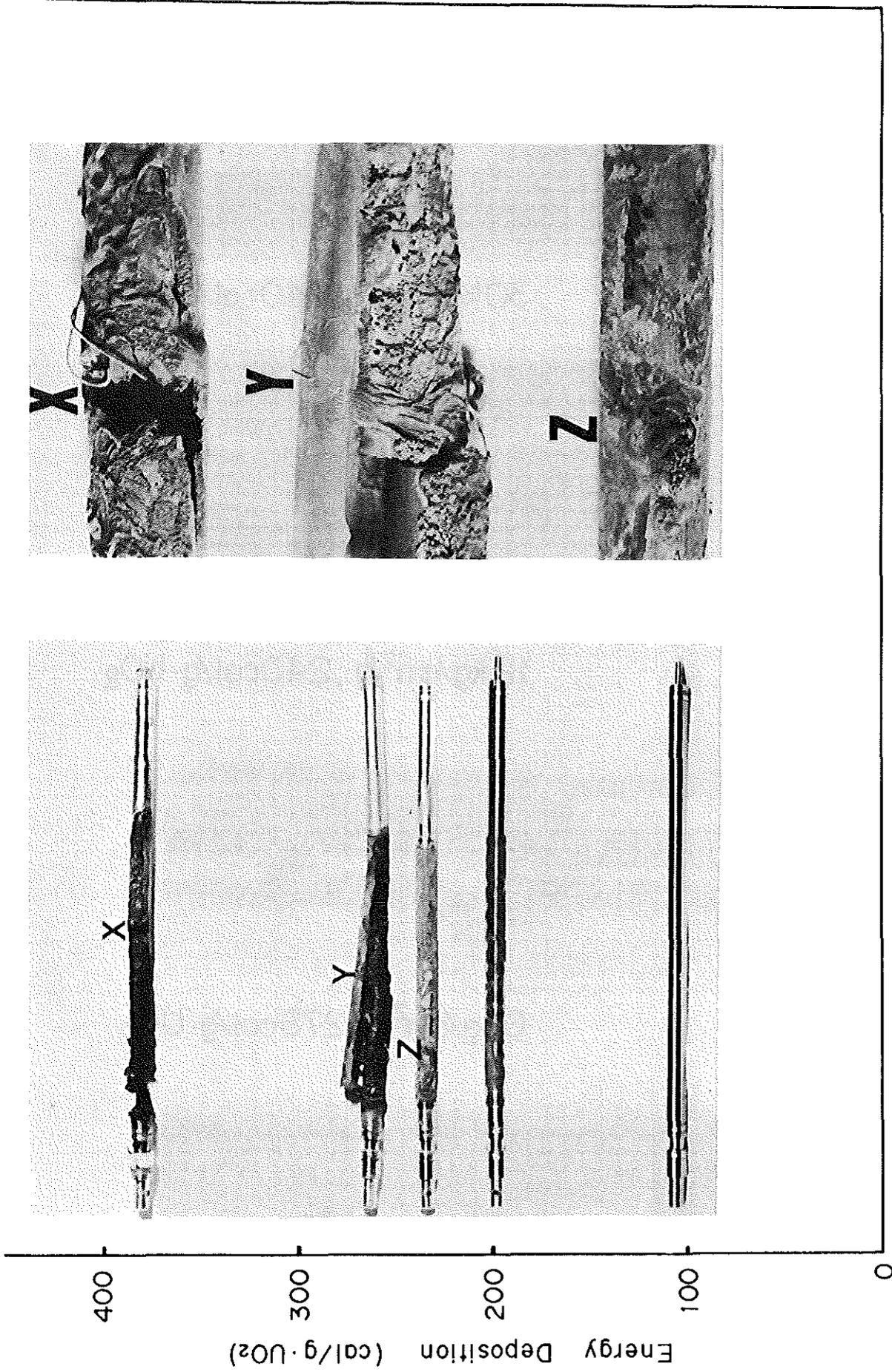


Fig.9 Post-test appearance of the fuel rods in stainless steel clad fuel rod tests.

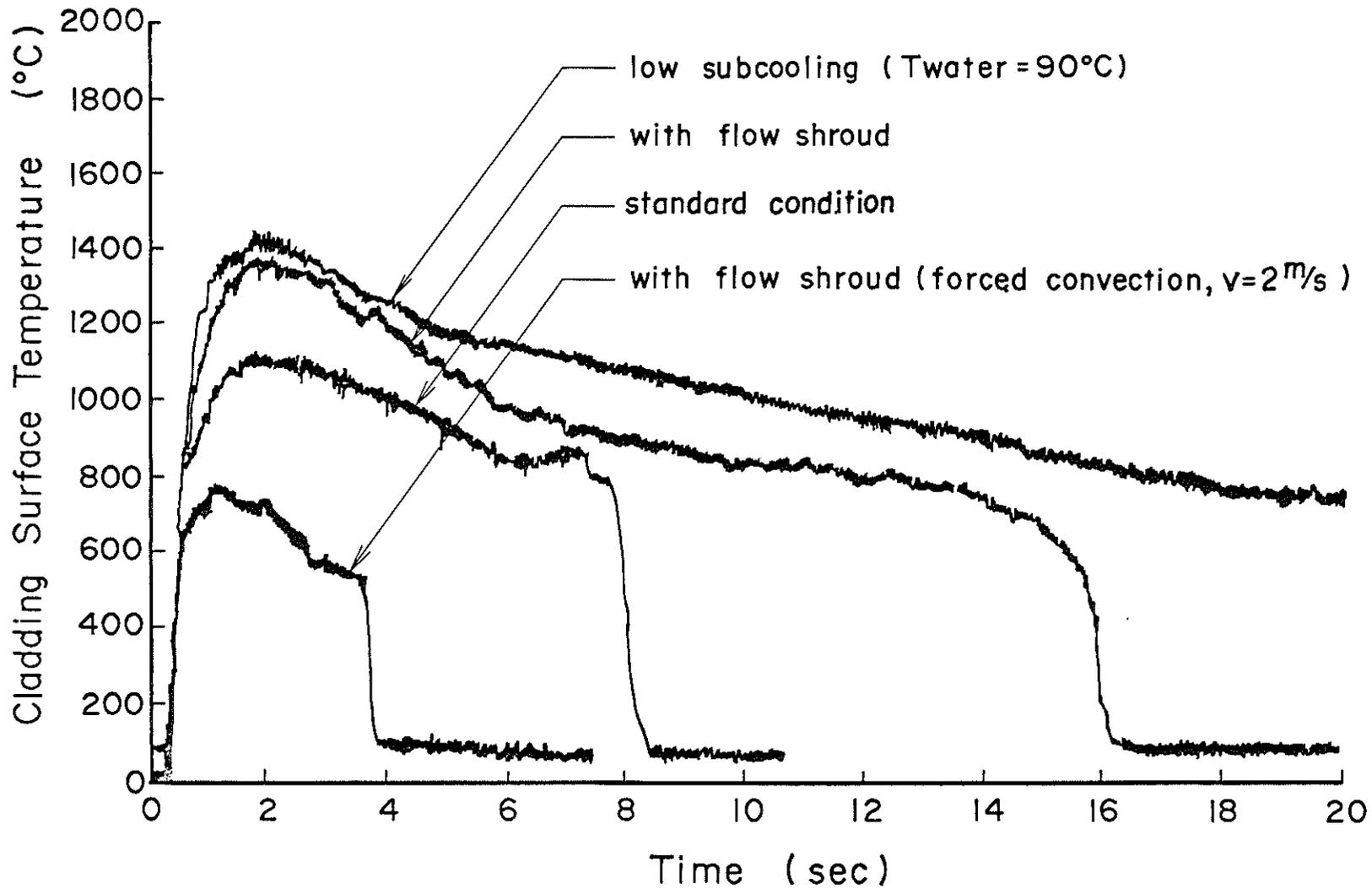


Fig.10 Comparison of Temperature Histories of the Fuel Rods Varying Cooling Conditions at the Same Energy Deposition of $180\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$

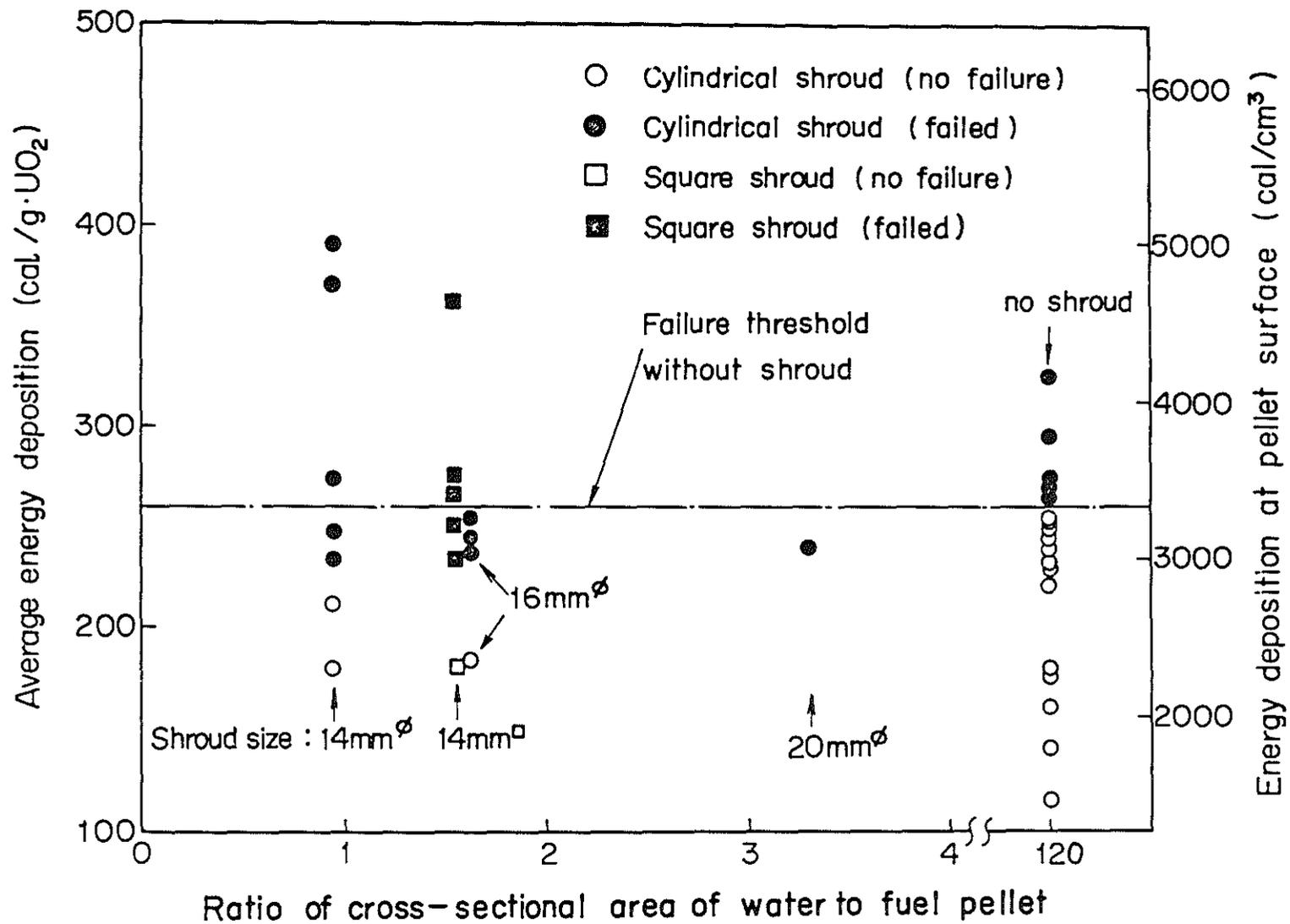


Fig.11 Results of flow shroud tests

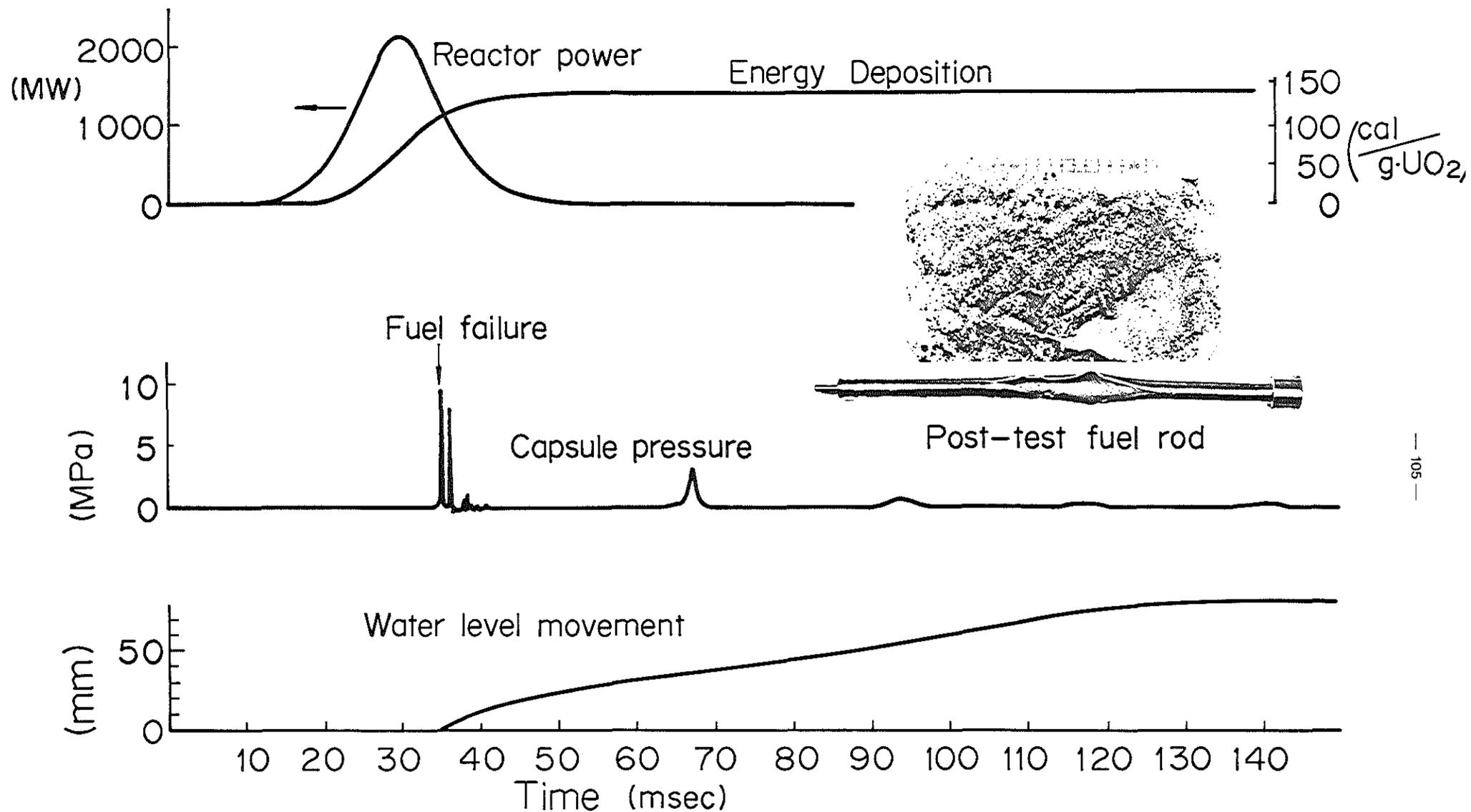


Fig. 12 Transient data and post-test fuel rod appearance in the waterlogged fuel test

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT
JAHRESKOLLOQUIUM 1978

METHODS AND RESULTS OF ANALYSIS FOR LOCA AND
CORE MELTDOWN ACCIDENTS IN LIGHT-WATER REACTORS
(MARCH AND TRAP CODE DEVELOPMENT)

R. S. DENNING
ET AL.

BATTELLE MEMORIAL INSTITUTE, COLUMBUS

JAHRESKOLLQUIUM 1978
des
PROJEKTES NUKLEARE SICHERHEIT

METHODS OF ANALYSIS FOR CORE MELTDOWN ACCIDENTS
IN LIGHT WATER REACTORS

by

R.S. Denning, P. Baybutt, P. Cybulskis, J.A. Gieseke,
H. Jordan and R.O. Wooton

Battelle Columbus Laboratories

SUMMARY

This paper describes the status of two research programs at the Battelle, Columbus Laboratories, in which improved methods of analyzing the behavior of hypothetical fuel melting accidents in light water reactors are being developed. In one program the MARCH/CORRAL code package has been written to perform an integrated analysis of thermal-hydraulic response and radionuclide transport within containment in meltdown accidents. In the other program, the TRAP code is under development for the analysis of radionuclide transport and deposition in the reactor primary system.

The current version of CORRAL, which analyzes radionuclide transport in containment, has been generalized to permit analysis of a variety of plant designs. However, the modelling approach is essentially the same as in the versions of the code which were used in the Reactor Safety Study. The development of the MARCH code, on the other hand, has required a significant model development effort and represents a major improvement over the methods used in the Reactor Safety Study to analyze the thermal-hydraulics of meltdown accidents. MARCH follows each of the stages of meltdown including:

- 1) the response of the system to the initiating event
- 2) melting of fuel within the reactor vessel
- 3) attack of the pressure vessel by molten fuel
- 4) boil-off of water from the floor of the reactor cavity
- 5) and penetration of the concrete base-mat.

Throughout the sequence, the pressure-temperature history within containment is calculated and coupled back to the other thermal-hydraulic models. The MARCH/CORRAL codes are being used to analyze four different light water reactor designs as well as to reanalyze dominant accident sequences for the two designs investigated in the Reactor Safety Study. In this paper results of an uncertainty analysis for the MARCH/CORRAL codes are presented. The principle sources of uncertainty in the quantities of radionuclides released from containment, for the accident sequence studied, resulted from uncertainties in containment deposition and fission product source terms. Uncertainties in the magnitude of containment leak rate after failure, meltdown model, and the fuel-water interaction model in the reactor cavity were also found to be important.

The initial efforts for the TRAP code were directed at the analysis of loss-of-coolant accidents. Results of a sensitivity study for a double-ended pipe break in a pressurized water reactor indicated that less than 1% of iodine released from the fuel would deposit on system surfaces. Approximately half of the iodine would be retained in solution in the emergency core cooling water, however. Over the past year TRAP has been extended to the analysis of meltdown accidents. The following deposition processes are currently modeled in TRAP:

- 1) Vapor adsorption and desorption
- 2) Vapor condensation and evaporation
- 3) Supermicron particle deposition from turbulent flow
- 4) Submicron particle deposition from turbulent flow
- 5) Particle deposition from laminar flow
- 6) Particle deposition due to thermophoresis

Bounding analyses indicate that under some predicted meltdown conditions the amount of deposition in the primary system can be significant.

**METHODS OF ANALYSIS FOR CORE
MELTDOWN ACCIDENTS IN
LIGHT WATER REACTORS**

by

**R. S. Denning, P. Baybutt, P. Cybulskis, J. A. Gieseke,
H. Jordan, and R. O. Wooton**



Battelle
Columbus Laboratories

SUBJECT PROGRAMS

Analysis of Hypothetical Accidents Resulting in Core Meltdown

Sponsored by Probabilistic Analysis Staff, USNRC

MARCH/CORRAL Code Package

Fission Product Transport Analysis

**Sponsored by Fuel Behavior Branch, Division of
Reactor Safety Research, USNRC**

TRAP Computer Code

OUTLINE

Discussion of Core Meltdown Phenomena

Description of Models Under Development

Results and Sensitivity Analyses

Plans for Further Research

DISCUSSION OF CORE MELTDOWN PHENOMENA

Why do we study core meltdown phenomena in U.S.?

Meltdown analyses are not required for plant licensing

Reactor Safety Study indicated meltdown accidents are principal source of risk to public

Purpose of research is to improve ability to perform risk analyses

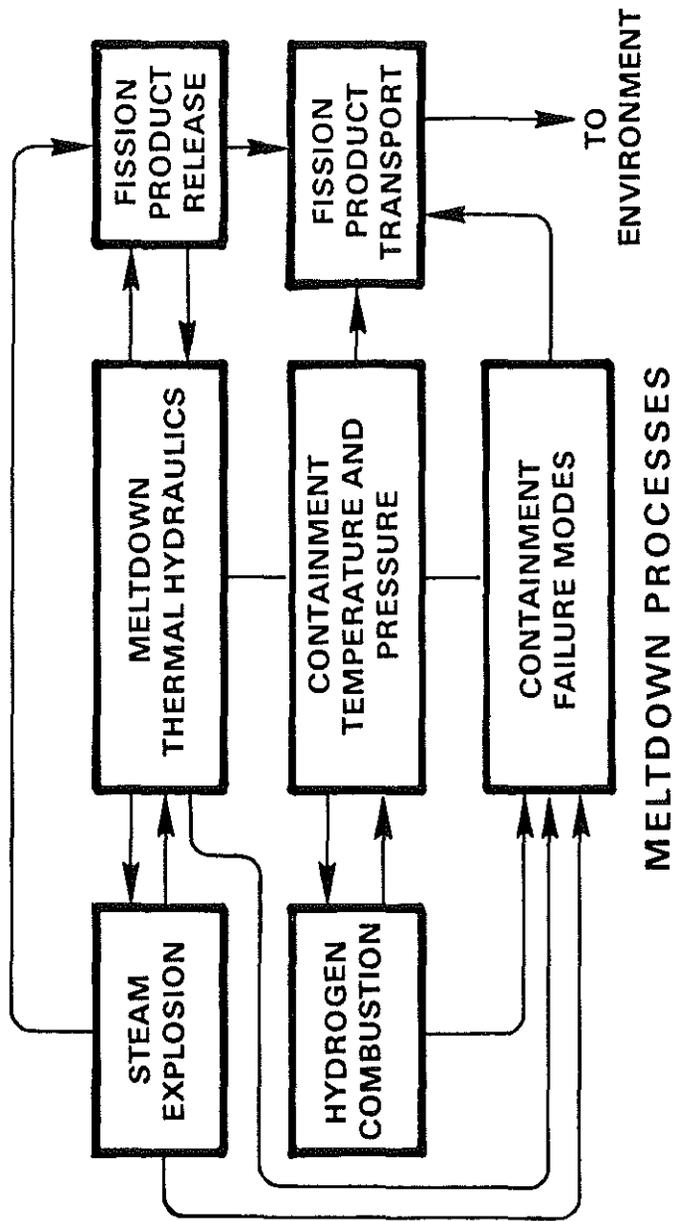
Objectives of risk analyses

Quantitative assessment of reactor safety — support national policy decisions

Assist generic licensing decisions

Establish research priorities — resolution of unresolved safety issues, development of improved safety systems

Physical processes involved in meltdown accidents



DESCRIPTION OF MODELS UNDER DEVELOPMENT

MARCH/CORRAL Code Package

MARCH – Thermal-hydraulic behavior of meltdown accident

Response to initiating event

Fuel melting within core region

Pressure vessel attack by molten fuel

Boil-off of water in reactor cavity

Concrete penetration by molten fuel

Containment pressure-temperature history

CORRAL – Radionuclide transport and deposition in containment

Time-dependent release of radionuclides to the environment

MARCH/CORRAL Code Package (Continued)

Objectives of development

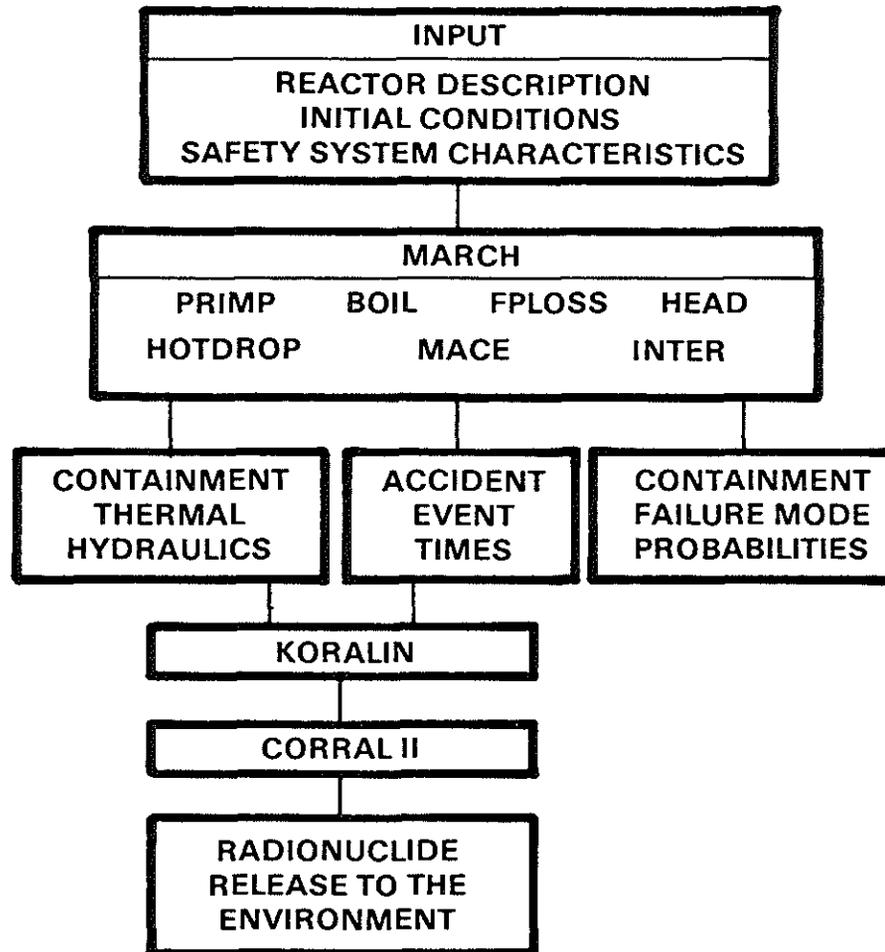
Generalize models to cover a broader range of LWR designs

Extend capability to analyze transients and small break accidents

Provide a consistent and integrated treatment of all stages of
meltdown

Incorporate relevant new experimental data into models

Flow diagram for MARCH/CORRAL analyses



Flow Diagram for MARCH/CORRAL Analyses

TRAP Code

TRAP – radionuclide transport and deposition in LWR primary system

Objectives of development

Predict primary system deposition in loss-of-coolant accident

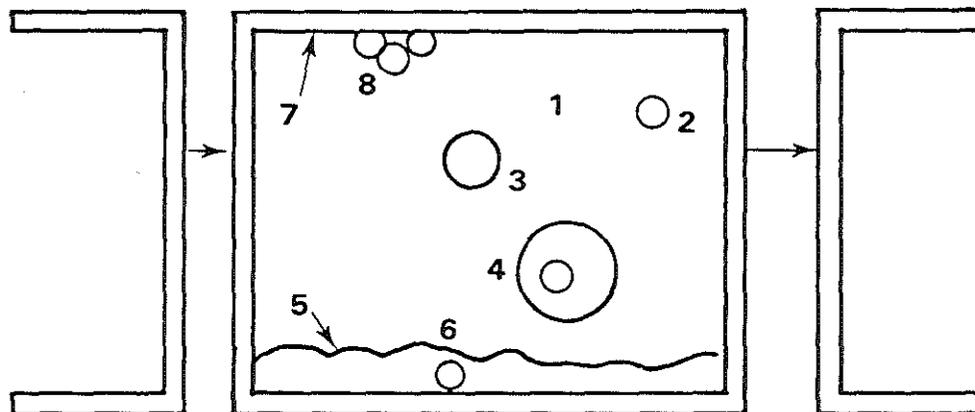
Predict primary system deposition in core-meltdown accident

Modeling approach

Control volumes

Fission product states

FISSION PRODUCT STATES



- | | |
|-------------------------------------|----------------------------------|
| 1. Vapor in steam | 5. Vapor dissolved in bulk water |
| 2. Particle in steam | 6. Particle in bulk water |
| 3. Vapor dissolved in water droplet | 7. Vapor sorbed on surface |
| 4. Particle in water droplet | 8. Particle deposited on surface |

TRAP Code (Continued)

Vector equation for population of fission product states

$$\frac{dM}{dt} = S + A M$$

Solution technique

$$\begin{aligned} M = M_0 &+ (A M_0 + S)t \\ &+ \frac{z}{2} (A M_0 + S)t \\ &+ \frac{z}{3} \left[\frac{z}{2} (A M_0 + S)t \right] \\ &+ \dots \end{aligned}$$

where $z = At$

TRAP Code (Continued)

Deposition processes

Vapor adsorption and desorption

Vapor condensation and evaporation

Supermicron particle deposition from turbulent flow

Submicron particle deposition from turbulent flow

Particle deposition from laminar flow

Particle deposition due to thermophoresis

Agglomeration

Log-normal distribution

RESULTS AND SENSITIVITY ANALYSES

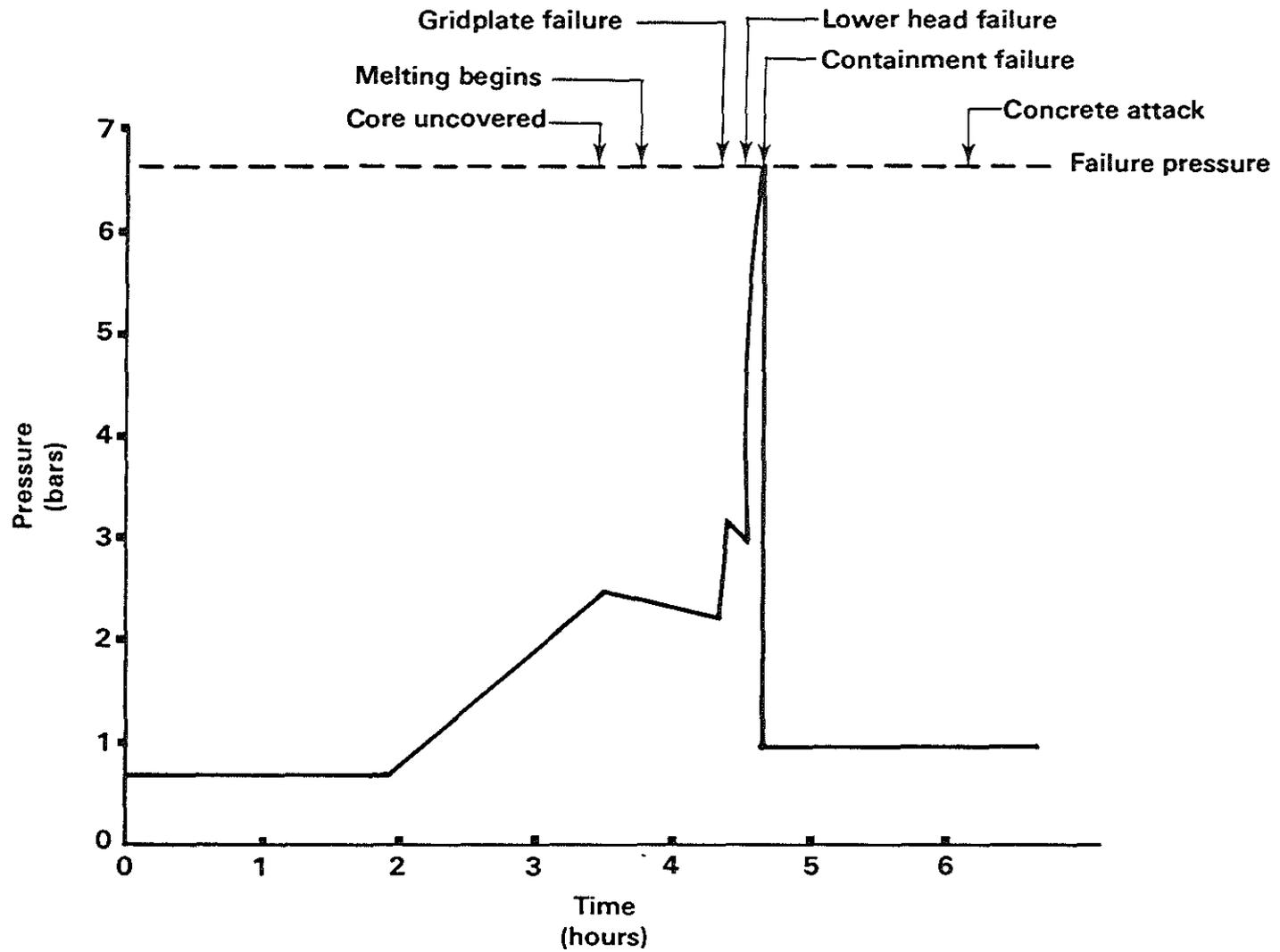
MARCH/CORRAL Results

Reanalysis of Reactor Safety Study dominant accident sequences

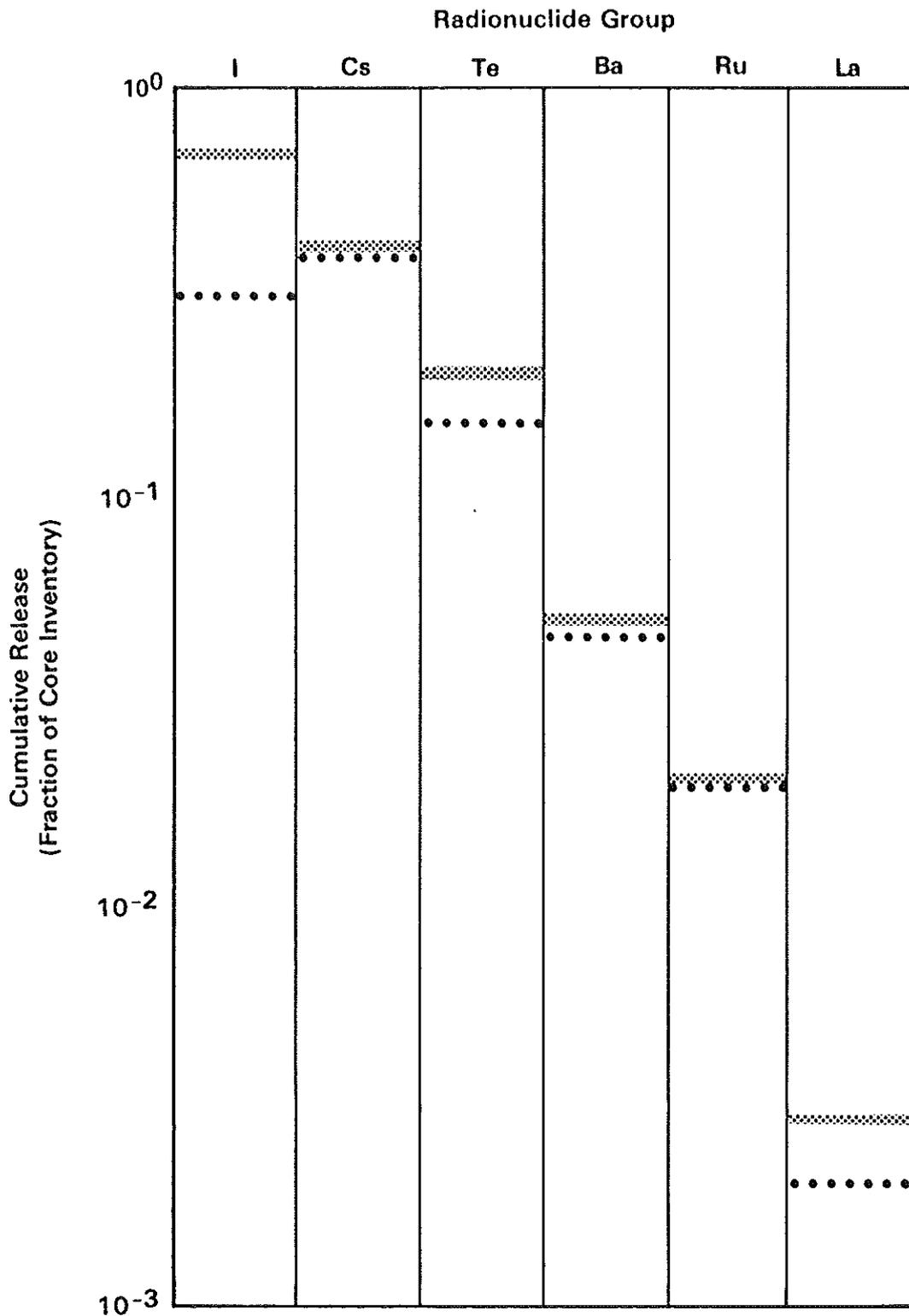
Example PWR sequence TMLB' δ

Pressure transient

Comparison of radionuclide release with Reactor Safety Study



Pressure History for TMLB' δ



Cumulative Release to the Environment for Sequence TMLB'δ

..... MARCH/CORRAL Reanalysis
Reactor Safety Study

MARCH/CORRAL Results (Continued)

Uncertainty analysis

Variables and models in 8-parameter design

Fission product deposition in containment

Meltdown fission product source term

Vaporization fission product source term

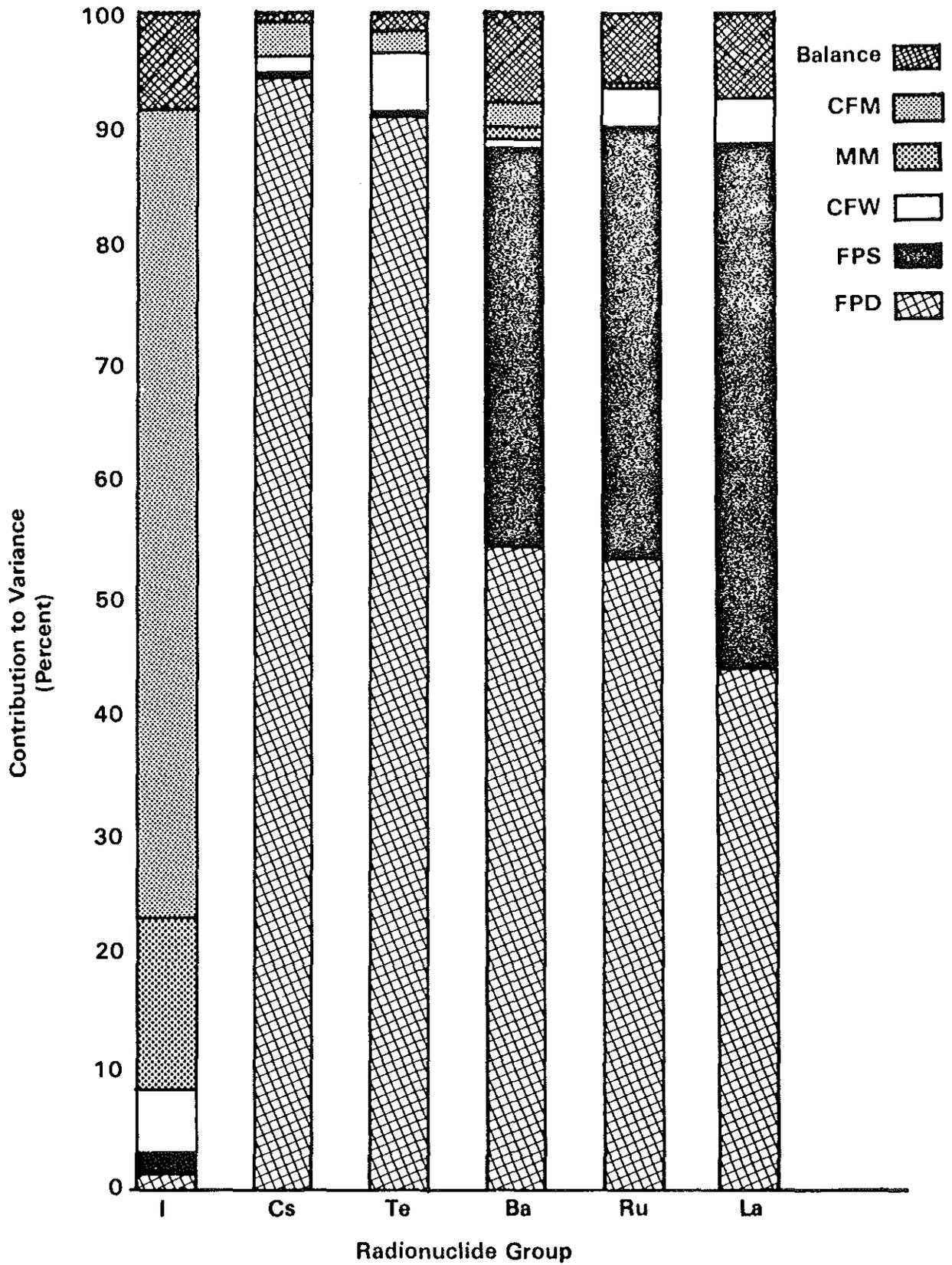
Heat transfer coefficient between concrete and oxidic melt

Fuel melting point

Model for core fragmentation in water

Core meltdown model

Containment leak rate following failure



Contribution to Total Variance of Principal Factors

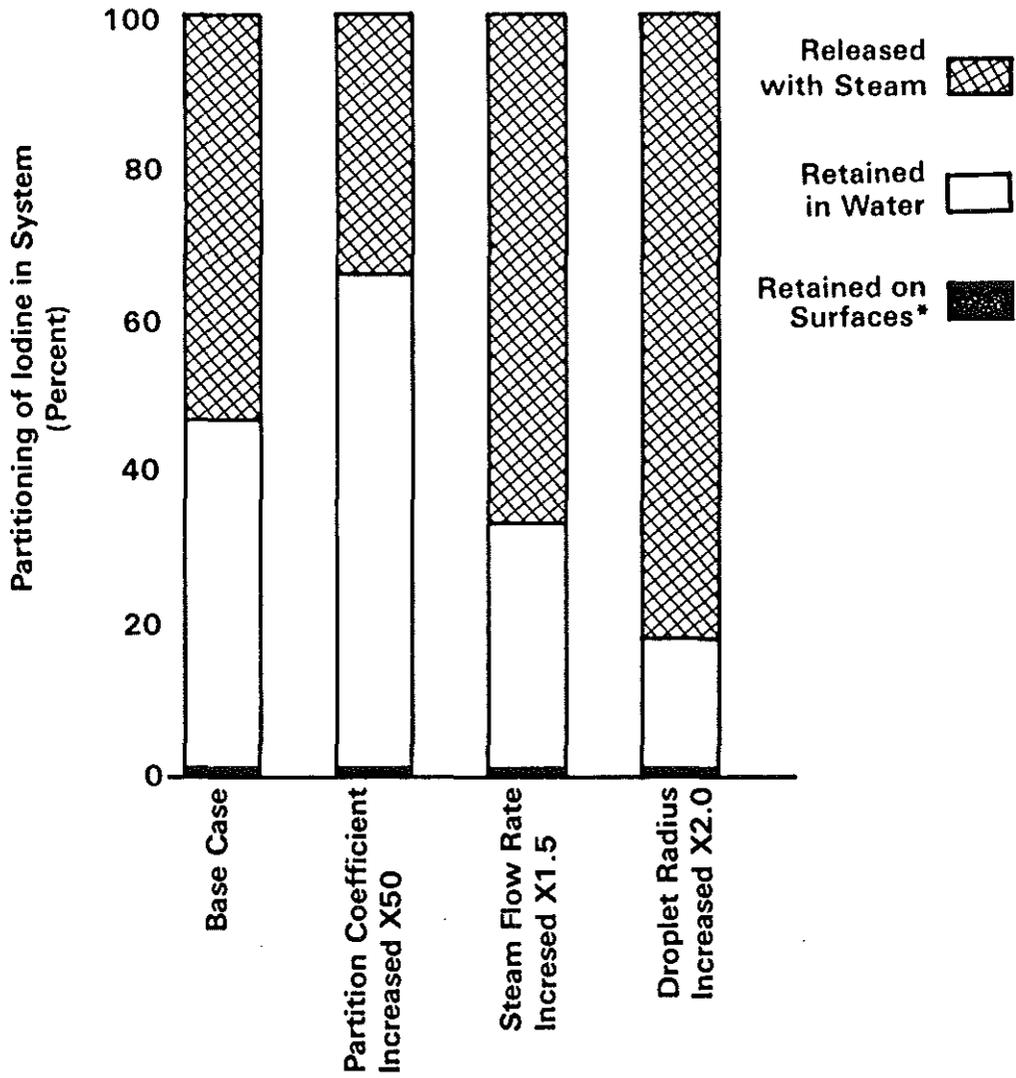
TRAP Results

TRAP-MELT uncertainty analysis in progress

Sensitivity study for terminated loss-of-coolant accident

Sources — I, Cs

**Variables — steam flow rate, partition coefficient, droplet
size of atomized emergency core coolant water**



TRAP Sensitivity Analysis for Terminated LOCA

*Less Than 1% For All Cases

TRAP Results (Continued)

Bounding analysis for TRAP-MELT deposition

**Functional requirements document for Fission Product
Transport Test Facility**

**MARCH analyses for thermal-hydraulic behavior of
different meltdown sequences**

**Obtained maximum predicted deposition for extreme
thermal-hydraulic conditions in each component of
BWR and PWR**

**ANALYSIS OF MAXIMUM PARTICLE DEPOSITION IN THE
COMPONENTS OF PWR PRIMARY SYSTEMS**

	<u>Maximum Deposition</u>	<u>Mechanism</u>
Upper Plenum	0.39	Thermophoresis
Lower Plenum	0.02	Thermophoresis
Steam Generator	0.18	Turbulent Diffusion and Inertia
Downcomer	0.99	Turbulent Inertia
Relief Tank, Pressurizer	0.03	Turbulent Inertia

**ANALYSIS OF MAXIMUM PARTICLE DEPOSITION IN THE
COMPONENTS OF BWR PRIMARY SYSTEMS**

	<u>Maximum Deposition</u>	<u>Mechanism</u>
Steam Separators	0.60	Thermophoresis
Steam Dryers	0.99	Thermophoresis
Recirculating Lines	0.22	Turbulent Inertia
Outer Annulus	0.08	Thermophoresis
Upper Vessel Head	0.03	Thermophoresis

PLANS FOR FURTHER RESEARCH

MARCH/CORRAL Planned Program

Program not yet authorized by NRC

MARCH documentation, testing and verification	4/79 – 9/80
Preliminary release to public	12/79
CORRAL revision, testing and verification	10/79 – 9/81
Redefinition of fission product source term	10/79 – 9/81

TRAP Program for Current Fiscal Year 10/78 – 9/79

Completion of uncertainty analyses

Benchscale experiments on submicron particle deposition
from non-laminar flow

Benchscale experiments on vapor sorption at temperatures
to 1500 C

Examination of TRAP/CORRAL interface

Examination of TRAP extension to analysis of containment
deposition

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT
JAHRESKOLLOQUIUM 1978

SPALTPRODUKT-QUELLTERME BEI
KÜHLMITTELVERLUSTSTÖRFÄLLEN UND
HYPOTHETISCHEN KERNSCHMELZENUNFÄLLEN

H. ALBRECHT¹⁾

A.P. MALINAUSKAS²⁾

¹⁾ KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE / INSTITUT FÜR RADIOCHEMIE

²⁾ OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY / CHEMICAL TECHNOLOGY DIVISION

JAHRESKOLLOQUIUM 1978
des
PROJKTES NUKLEARE SICHERHEIT

Spaltprodukt-Quellterme bei Kühlmittelverlust-
Störfällen und hypothetischen Kernschmelzen-Unfällen

H. Albrecht, KfK, Institut für Radiochemie
A.P. Malinauskas, ORNL, Chemical Technology Division

1. Einleitung

Die Abschätzung der möglichen Folgen von Kühlmittelverlust-Störfällen und von hypothetischen Kernschmelzen-Unfällen stellt ein zentrales Problem der Reaktorsicherheitsforschung dar. Der Ablauf beider Störfälle ist in seinen wesentlichen Phasen in Abb. 1 dargestellt. Ein Hauptmerkmal dabei ist, daß die Temperatur des Reaktorkerns auf höhere Werte ansteigt als im Normalbetrieb und daß radioaktive Spaltprodukte aus dem Brennstoff entweichen können.

Bei einem Kühlmittelverlust-Störfall wird die Temperatur durch die redundant vorhandenen Notkühlssysteme auf einen Höchstwert von 1200 °C begrenzt, so daß dadurch die Spaltproduktfreisetzung auf wenige Elemente und niedrige Prozent-Anteile beschränkt bleibt.

Für einen Kernschmelzenunfall, bei dem als Hypothese ein gravierendes Versagen der Notkühlssysteme vorausgesetzt wird, gilt eine solche Einschränkung nicht. Die Temperatur steigt auf Werte von über 2000 °C an, und die Freisetzung kann bis zu einer Größenordnung von 30 % des radioaktiven Inventars betragen.

Es erscheint jedoch wichtig, darauf hinzuweisen, daß dieser freigesetzte Anteil zunächst nur ins Primärsystem bzw. in das Reaktor-Containment gelangt. Aufgrund der dort ablaufenden Aerosol-Prozesse wird ein großer Teil der gasgetragenen Aktivität sehr schnell durch Anlagerung an Oberflächen oder durch Sedimentation ausgeschieden. Eine Freisetzung in die Umgebung, die nur aufgrund eines zusätzlichen Versagens des Containments möglich ist, kann daher - je nach Zeitpunkt des Eintrittes - um mehrere Größenordnungen niedriger liegen. Eine wichtige Rolle spielt dabei die Frage des Aerosolverhaltens, die in dem nachfolgenden Referat von W. Schöck behandelt wird. Hier soll deshalb nur von dem primären Quellterm die Rede sein, d.h. von der Freisetzung aus dem Brennstoff und aus einer Kernschmelze.

Bereits vor einigen Jahren wurde zwischen dem Projekt Nukleare Sicherheit (PNS) und der amerikanischen Nuclear Regulatory Commission (NRC) ein gemeinsames Forschungsprogramm vereinbart, das die Untersuchung der Spaltprodukt-Freisetzung unter verschiedenen LWR-Unfallbedingungen zum Ziel hatte.

Insgesamt 3 Forschungsstellen waren bzw. sind in diese Zusammenarbeit involviert:

- Beim Argonne National Laboratory (ANL) wird die Freisetzung der Spalt-Edelgase untersucht;
- in Oak Ridge (ORNL) geht es um die Bestimmung der Freisetzung aus abgebrannten Brennstäben, die entweder infolge eines Transport-Unfalls oder eines erfolgreich beendeten Kühlmittelverlust-Störfalles beschädigt wurden;
- beim PNS wird die Freisetzung unter Kernschmelzbedingungen ermittelt.

Im nachfolgenden Bericht werden die Ergebnisse des ORNL-Programms für die Freisetzung in eine Wasserdampf-Atmosphäre bei Brennstoff-Temperaturen von 500 - 1200 °C beschrieben; an-

schließlich werden die beim PNS durchgeführten Versuche dargestellt, bei denen bisher vor allem die Freisetzung unter Luft im Temperaturbereich 1200 - 2700 °C gemessen wurde.

2. Das ORNL-Programm

Das ORNL-Programm umfaßt 6 Serien verschiedenartiger Experimente. Die erste dieser Serien, die sog. Control Test Series (1), diente dem Zweck, eine geeignete Versuchstechnik zu entwickeln und verschiedene Analyseverfahren für den Nachweis ausgewählter chemischer Verbindungen von I und Cs zu erproben.

Die 2. Versuchsserie, die sog. Implant Tests (2), wurden mit unbestrahlten UO_2 -Pellets durchgeführt, auf deren Oberfläche ein Belag von CsOH, CsI und TeO_2 aufgebracht war und die sich in geschlossenen, ca. 30 cm langen Zircaloy-Hüllrohren befanden.

Die 3. und 4. Versuchsserie waren Freisetzungsversuche mit Brennstab-Prüflingen, die im einen Fall einen niedrigen Abbrand von 1000 MWd/t (3) und im anderen Fall einen hohen Abbrand von 30 000 MWd/t aufwiesen (4 - 10).

Während die ersten 4 Versuchsserien inzwischen abgeschlossen sind, wurde mit der 5. Serie, den High Temperature Tests, erst kürzlich begonnen; sie stellt eine Erweiterung der High Burnup Fuel Tests dar, bei der die maximale Brennstoff-Temperatur auf den Bereich 1200 - 1600 °C ausgedehnt wird.

In der letzten Serie sollen SWR-Brennstäbe anstelle von DWR-Stäben (wie in Serie 1 - 5) eingesetzt werden, u.z. im Temperaturbereich 700 - 1200 °C.

2.1 Versuchseinrichtung

Bei allen Versuchen des ORNL-Programms wird die in Abb. 2 dargestellte Versuchsanordnung benutzt. Der Brennstab-Prüfling

(in der Regel ca. 30 cm lang) ist auf der Achse eines Quarzrohres montiert, das von einem zylinderförmigen Widerstandsheizgerät bzw. von einer langen Induktionsspule umgeben wird. Das Hüllrohr des Prüflings wird entweder während des Versuchs durch eine Erhöhung des inneren Gasdruckes bei einer bestimmten Temperatur zum Bersten gebracht, oder es wird bereits vor dem Versuch in der Mitte mit einem 1,59 mm großen Loch versehen.

Die freigesetzten Produkte, die sich nicht gleich an den Wänden des Quarzrohres niederschlagen, werden durch ein Trägergas (80 % Wasserdampf + 20 % Ar, oder Luft) zunächst in ein thermochromatografisches Rohr geleitet, das mit einer Goldfolie ausgelegt ist. Darauf kondensieren alle gasförmigen Produkte mit einem Siedepunkt unter 150 °C. Partikelförmiges Material wird auf den nachfolgenden Borsilikat-Glasfaserfiltern abgeschieden. Zur Sammlung von gasförmigen Iodverbindungen wie HI, CH₃I und I₂ folgen dann einige imprägnierte Kohlefilter und ein silberbeschichteter Zeolith-Adsorber. Die Spalteredelgase werden in 2 Kühlfallen abgeschieden, nachdem der Dampfstrom vorher durch einen Kondensator und einen Abscheider für die Restfeuchte geführt wurde.

2.2 Versuche der Implant-Test-Serie

Bei den Implant-Versuchen wurden unbestrahlte UO₂-Pellets an ihrer Oberfläche mit einem Belag von chemischen Verbindungen der leichtflüchtigen Elemente I, Cs und Te versehen. Dieser Belag bestand aus CsOH, CsI und TeO₂ mit den radioaktiven Tracern I-130, Cs-134/137, und Te-123^m.

Eine detaillierte Beschreibung der Experimente und der Ergebnisse findet man in (2). Folgende Punkte seien hier jedoch hervorgehoben:

- a) Aus der beobachteten Freisetzung beim Hüllrohrbersten ließ sich ein Partialdruck für eine Cs-Verbindung berechnen, der mindestens um 2 Größenordnungen niedriger lag als von CsOH. Dieser Befund und das Ergebnis zusätzlicher Untersuchungen in einer Knudsen-Zelle lassen darauf schließen, daß Cs mit der Matrix des Brennstoffs ein Uranat (Cs_2UO_4) bildet.
- b) Auch die Te-Freisetzung erwies sich als wesentlich geringer, als es dem Dampfdruck des eingesetzten TeO_2 entspricht. Es zeigte sich, daß das Te durch Reaktion mit der Zircaloy-Hülle ein bis mindestens 1300°C stabiles Zirkonat bildet, das durch Röntgenbeugungsuntersuchungen als Te_3ZrO_5 identifiziert wurde.
- c) Iod wurde in Luft fast ausschließlich in elementarer Form (I_2) freigesetzt, in Wasserdampf dagegen vorwiegend als CsI ; die Freisetzung unter Wasserdampf erwies sich dabei um etwa 10-fach geringer als in Luft.

2.3 Freisetzungsversuche mit schwach abgebranntem Brennstoff

Bei dieser Versuchsserie wurden zwei Brennstäbe eingesetzt, die 9 Jahre zuvor im General Electric Test Reaktor 20 Tage lang bestrahlt worden waren. Die Serie bestand aus 2 Versuchen mit Wasserdampf-Atmosphäre und Maximaltemperaturen von 700 bzw. 900°C . In beiden Fällen waren die Brennstabhüllen der Prüflinge vorher mit einem Loch von $1,59$ mm Durchmesser versehen worden (s.o.). Die Versuchsergebnisse sind in Tab. 1 unter der Bezeichnung LBU-1, LBU-2 wiedergegeben. Eine ausführliche Beschreibung findet sich in (3).

2.4 Freisetzungsversuche mit hoch abgebranntem Brennstoff

Die Brennstab-Prüflinge dieser Versuchsserie wurden aus zwei Original-Brennstäben des H.B. Robinson-Reaktors (DWR) gefertigt, die von Oktober 1971 bis Mai 1974 bestrahlt wurden und danach

einen mittleren Abbrand von 30 000 MWd/t aufwiesen. Die Ergebnisse von 8 Experimenten dieser Serie sind ebenfalls in Tab. 1 enthalten (Bezeichnung HBU-). Außerdem ist in Abb. 3 die prozentuale Freisetzung von Cs und I über der Temperatur aufgetragen. Um aus den Versuchen mit unterschiedlichen Randbedingungen vergleichbare Ergebnisse zu erhalten, wurde die für die einzelnen Temperaturstufen gemessene Freisetzung auf eine Zeitdauer von 10 min umgerechnet. Die beiden Kurven gelten für Versuche, bei denen die Zircaloy-Hülle schon bei Versuchsbeginn eine Öffnung aufwies, entweder in Form eines gebohrten Loches oder in Form eines Berstrisses, den der Stab bei einem vorhergehenden Versuch mit sehr kurzer Haltezeit erhalten hatte, vgl. HBU-11/7. Der Kurvenverlauf entspricht der sog. Diffusionsfreisetzung, die neben einer starken Temperatur-Abhängigkeit natürlich auch eine Zeitabhängigkeit aufweist.

Die nicht verbundenen Meßpunkte im oberen Teil der Abbildung zeigen, daß die Freisetzung wesentlich höher liegt, wenn die Stäbe bei 900 °C mit einem Druck von ca. 20 bar zum Bersten gebracht werden. In einigen Fällen wurde nach dem Bersten bei 900 °C die Temperatur sofort auf höhere Werte gesteigert (1100/1200 °C), dort über 8 - 10 min konstant gehalten und dann die Gesamtfreisetzung gemessen. Aus der Abbildung wird deutlich, daß im Temperaturbereich von 1200 °C der Freisetzunganteil beim Bersten nicht mehr so stark dominiert wie bei 900 °C und daß bei höheren Temperaturen die Freisetzung dann zunehmend durch die Diffusion bestimmt wird.

Weitere Einzelheiten zu den Experimenten und den Ergebnissen sind den ORNL-Vierteljahresberichten zu entnehmen (4-10).

2.5 ORNL-Freisetzungsmodell für Cäsium und Iod (11)

Die bisher vorliegenden Ergebnisse lassen erkennen, daß die Freisetzung von Cs und I aus den Brennstäben durch zwei Mechanismen zustande kommt, nämlich durch das Bersten der Hüllen und durch die Diffusion im Stabinneren zur Berstöffnung. Der eine Beitrag zur Gesamtfreisetzung wird im folgenden Berst-Anteil genannt. Er wird vor allem vom Füllgas und von den Spaltgasen gebildet, die sich in den zusammenhängenden Hohlräumen des Brennstabes ansammeln. Die Freisetzung dieses Anteils verläuft diskontinuierlich und dauert vielleicht maximal eine Minute.

Der dem anderen Mechanismus entsprechende Beitrag zur Freisetzung wird Diffusions-Anteil genannt. Er verläuft kontinuierlich, ist zeitabhängig, aber bei niedrigen Temperaturen relativ unbedeutend gegenüber dem Berst-Anteil, wie bereits oben gezeigt wurde.

Wenn man annimmt, daß beide Mechanismen unabhängig voneinander sind, ergibt sich die Gesamtfreisetzung aus der Summe der beiden Einzelanteile. Mathematisch ausgedrückt heißt das:

Die Gesamtmasse einer bestimmten Spaltprodukt-Spezies, die während und nach dem Hüllrohrbersten freigesetzt wird, ist

$$M = M_B + M_D.$$

Dabei ist M_B die Masse der Spezies, die beim Hüllrohr-Bersten entweicht und M_D die entsprechende Masse, die anschließend durch Diffusion freigesetzt wird.

Für Cäsium läßt sich der Berst-Anteil durch folgende im Bereich von 700 - 900 °C gültige Relation beschreiben (11)

$$M_B = \frac{V_B \cdot G^{0.8}}{7.74} \cdot \exp \left(6.06 - \frac{7420}{T} \right) \quad [^{-\mu\text{g}_-}]$$

- mit V_B = Volumen des freigesetzten Gases in cm^3 bei 0°C und Systemdruck
 G = Cs-Inventar im Gap zwischen Pellet und Hülle in $\mu\text{g Cs pro cm}^2$ Hüllrohrfläche
 T = Temperatur an der Berststelle in K.

Der entsprechende Ausdruck für den Berst-Anteil von Iod - wiederum gültig für $700 - 900^\circ\text{C}$ - ist

$$M_B = \frac{V_B \cdot G^{0.8}}{1.15} \exp \left(1.09 - \frac{3770}{T} \right) \quad [\mu\text{g}]$$

Der Diffusions-Anteil M_D läßt sich beschreiben durch (11):

$$M_D = M_0 \cdot \left[1 - \exp \left(- \frac{R_0 \cdot t}{M_0} \right) \right]$$

- mit M_0 = berechnete Gesamtmasse der betrachteten Spezies in μg , die sich zu Beginn der Diffusion im Gap befindet
 t = Diffusionszeit in Std. bei konstanter Temperatur
 R_0 = Anfangswert der Diffusionsfreisetzung in $\mu\text{g/Std.}$

Um diesen Anfangswert der Diffusionsfreisetzung für Cs zu ermitteln, wurde folgende Beziehung abgeleitet (11):

$$R_0 = \left(\frac{W}{200} \right) \cdot \left(\frac{G^{0.8}}{7.74} \right) \cdot \left(\frac{0.101}{P} \right) \cdot \exp \left(19.96 - \frac{19810}{T} \right)$$

- mit W = radiale Breite des Gaps in μm
 P = Systemdruck im MPa.

Die entsprechende Beziehung für Iod ist

$$R_0 = \left(\frac{W}{200} \right) \cdot \left(\frac{G^{0.8}}{1.15} \right) \cdot \left(\frac{0.101}{P} \right) \cdot \exp \left(15.30 - \frac{14800}{T} \right)$$

Alle diese halbempirischen Formeln wurden unter Verwendung der Ergebnisse aus den verschiedenen Versuchsserien gewonnen. Wie gut die Anpassung des Modells an die experimentellen Daten gelungen ist, zeigt die Abb. 4. Wenn man bedenkt, daß sich diese Darstellung über fast 7 Größenordnungen erstreckt und die

Fehlerbreite nur etwa einen Faktor 3 nach oben und unten ausmacht (gestrichelte Linien in der Abbildung), kann man von einer ausgezeichneten Übereinstimmung sprechen.

Es ist auch interessant, diese Ergebnisse mit den Angaben der Rasmussen-Studie (WASH-1400) (12) zu vergleichen (11,13). Eine entsprechende Gegenüberstellung, die die Spaltedelgase Kr und Xe mit einschließt, wurde in Tab. 2 vorgenommen. Sie zeigt, daß die Ergebnisse des Modells sowohl für das Gap-Inventar als auch für den Gap-Entweichfaktor z.T. erheblich niedriger liegen. Da sich die Freisetzung als Produkt dieser beiden Größen ergibt, sind die Unterschiede zwischen den letzten beiden Spalten natürlich am größten: für Cs liegt die Freisetzung nach dem Modell um den Faktor 200 niedriger und für Iod um den Faktor 60.

Der Grund dafür ist vor allem in der Tatsache zu suchen, daß in den Jahren 1973/74, in denen die Rasmussenstudie entstand, die verfügbaren experimentellen Daten noch sehr inkonsistent waren und deshalb die Tabellenwerte des WASH-1400 vorwiegend aufgrund von theoretischen Dampfdrücken ermittelt wurden.

3. Das PNS-Programm

Das generelle Ziel des beim PNS durchgeführten Programmes läßt sich in zwei Punkten zusammenfassen:

- A. Bestimmung der Freisetzung der radiologisch wichtigen Spalt- und Aktivierungsprodukte unter Kernschmelzbedingungen.
- B. Untersuchung der physikalischen Eigenschaften der gebildeten Aerosole, von denen das Transport- und Ablagerungsverhalten der radioaktiven Stoffe innerhalb des Primärkreises und im Containment abhängt.

Zu diesen generellen Punkten gehören folgende spezifische Fragestellungen:

- A 1 Bis zu welcher Temperatur (und Zeit) erfolgt eine quantitative Freisetzung der Spaltprodukte I, Cs und Te, die nach (14) bereits mehr als 50% der potentiellen radiologischen Folgen verursachen ?
- A 2 Welches Freisetzungsverhalten zeigen die nach (14) nächst-wichtigen Spaltprodukte Ru, Ba, Sr, Sb, Mo und Ce ?
- A 3 In welchem Umfang werden die Elemente Mn, Cr, Fe, Ni, Sn, U und Si freigesetzt, die bei Temperaturen oberhalb von 2 000°C den weitaus größten Masseanteil des gebildeten Aerosols ausmachen ?
- A 4 Was läßt sich über die chemische Form der genannten Elemente im Brennstoff bzw. in der Kernschmelze aussagen ?
- A 5 Spielt die Freisetzung radioaktiver Stoffe während des Eindringens der Schmelze in den Beton der Fundamente noch eine wesentliche Rolle ?
- B 1 Was läßt sich über das Ablagerungsverhalten der freigesetzten Stoffe unmittelbar nach Verlassen der heißen Schmelzumgebung aussagen ?
- B 2 Welche Größen- und Massenverteilung weisen die gebildeten Aerosol-Partikeln auf?
- B 3 Welche Unterschiede bestehen in der chemischen Zusammensetzung der Aerosolpartikel bzw. der Partikelgrößenfraktionen ?

Bei der Untersuchung dieser Fragen war es von Anfang an ein wesentlicher Aspekt, daß die Versuche unter möglichst realistischen Randbedingungen ablaufen; dazu gehören

- a) LWR-typische Zusammensetzung des Brennstoffs und der Kernschmelze, d.h.
 - Konzentration der Spaltprodukte entsprechend realistischen Abbränden,
 - Brennstoff-Pellets in geschlossener Zircaloy-Hülle,
 - Zusätze von Stahl und Beton zur Schmelze

- b) Variierbarkeit der Parameter
 - Atmosphäre (oxidierend, neutral, reduzierend),
 - Druck,
 - Aufheizgeschwindigkeit,
 - Oberflächen/Volumen-Verhältnis (Masse des Schmelzgutes).

- c) Erfassung des Einflusses von Konvektionseffekten in der Schmelze.

3.1 Versuchsanlage

Ein Schema der Versuchsanlage SASCHA ist in Abb. 5 wiedergegeben. Sie besteht im wesentlichen aus zwei Komponenten: einem Hochfrequenz-Induktionsofen (50 kHz, 250 KW) mit einem ThO_2 -Tiegelsystem sowie einer Transport- und Filterstrecke zur Sammlung der freigesetzten Produkte. Während des Versuches wird ein kontinuierlicher Wasserdampf-, Gas- oder Luftstrom durch den Ofenkessel gesaugt. Dieser Strom wird zunächst direkt auf die Schmelzgut-Oberfläche geleitet; dann wird er durch eine kugelförmige Glasglocke oberhalb des Tiegels und die anschließende Filterstrecke abgezogen. Das Filtersystem besteht aus mehreren teils hintereinander, teils parallel angeordneten Membranfiltern sowie einem Iodfilter aus AgNO_3 beschichtetem Sorptionsmaterial. Auf der Rückseite des ersten Filters ist ein Ge(Li)-Detektor montiert, der eine on-line Messung der abgeschiedenen

radioaktiven Aerosole ermöglicht. Außer dieser on-line Messung wird nach jedem Versuch eine integrale Bestimmung der freigesetzten Aktivität vorgenommen, d.h. Ausmessung der Niederschläge in der Glasglocke, den Transportrohren und aller beaufschlagter Filter. Zur Ermittlung der Gesamt-Bilanz wird außerdem die Aktivität der nicht freigesetzten Produkte im Schmelztiegel bestimmt.

In Abb. 6 ist die geometrische Anordnung des Schmelzgutes im ThO_2 -Tiegel dargestellt. Es handelt sich in diesem Fall um eine Schmelzgutmasse von 140 g Corium-A, d.h. 90 g Fissium (s.u.), 24 g Stahl und 26 g Zircaloy. Bei Verwendung eines größeren Tiegels können in der gleichen Schmelzanlage auch Corium-Massen von 1 kg und mehr eingesetzt werden. Eine Konvektion der Schmelze kommt durch den sog. induktiven Röhreffekt zustande, der aus der Ankopplung der geschmolzenen metallischen Bestandteile an das Induktionsfeld resultiert.

Das eben erwähnte Fissium wird anstelle von vorbestrahltem Brennstoff mit hohem Abbrand verwendet. Es besteht aus UO_2 und einer Auswahl von jeweils mindestens 6 der folgenden Spalt-Elemente: Se, Zr, Nb, Mo, Ru, Ag, Cd, Sn, Sb, Te, I, Cs, Ba, Ce und Nd.

Diese Elemente werden zunächst in metallischer oder oxidischer Form im Reaktor aktiviert, mit UO_2 -Pulver vermischt, zu Pellets verpreßt und dann in Zircaloy-Rohr eingeschweißt (15,16). Auf diese Weise lassen sich einerseits realistische Abbrände simulieren und andererseits die Spaltprodukte während und nach den Freisetzungsversuchen auf einfache Weise gammaspektrometrisch verfolgen (16).

Zur Untersuchung der Aerosolpartikeln werden zwei 8-stufige Kaskaden-Impaktoren, eine Spiralzentrifuge, ein Raster- und ein Transmissions-Elektronenmikroskop sowie die Methode der Röntgenmikroanalyse eingesetzt. Weitere experimentelle Details sind den PNS-Halbjahresberichten (15-18) zu entnehmen.

3.2 Ergebnisse

- a) In den ersten Versuchen mit schwach radioaktivem Fissium wurden zunächst 2 Pellets von je 5 g eingesetzt, die sich nicht - wie oben beschrieben - in einer geschlossenen Zircaloy-Kapsel befanden, sondern nur teilweise von einem konzentrisch angeordneten Zircaloy-Rohr umgeben waren. Die Freisetzungsergebnisse sind zusammen mit den wichtigsten Versuchsparametern in Abb. 7 und Tab. 3 dargestellt. Dabei ist besonders darauf hinzuweisen, daß die Freisetzungskurve von Cs bis 2000 °C unterhalb der Kurven für Se, Te und Cd verläuft. Dies läßt darauf schließen, daß Cs in der Schmelze nicht elementar oder als Oxid vorlag, sondern wahrscheinlich als Uranat, was den Befund der Experimente in Oak Ridge bestätigen würde. Wir halten es allerdings für möglich, daß die chemische Form des Uranates nicht Cs_2UO_4 ist, sondern $\text{Cs}_2\text{U}_4\text{O}_{12}$, weil diese Verbindung nach (19) die höhere Temperatur-Stabilität aufweist.

Wichtig ist jedoch die Tatsache, daß für die Cs-Freisetzung auch unter Luft im Bereich von 1200 °C ähnlich niedrige Werte gefunden wurden wie unter Wasserdampf (ORNL: 0.025 %, vgl. Tab.2) und daß offenbar höhere Temperaturen als 2000 °C erforderlich sind, bis die Cs-Freisetzung die Größenordnung von 30 % erreicht.

- b) Bei den Versuchen mit eingekapselten Fissium-Pellets und größerer Schmelzgutmasse ergab sich im Vergleich zu den unter a) erwähnten Versuchen eine um mindestens eine Größenordnung geringere Se-Freisetzung, vgl. Abb. 8. (Hier ist im Gegensatz zu Abb. 7 die Gesamtfreisetzung über der Temperatur aufgetragen, die bei Se um ca. 20 % und bei Cs um ca. 30 % höher liegt als die Freisetzung auf die Filter.) Dieses stark veränderte Verhalten von Se läßt sich durch eine chemische Reaktion mit dem Zircaloy an der Hüllrohr-Innenseite erklären. Da Se ein homologes Element von Te ist, für das bei den Implant-Tests in Oak Ridge (s.o.) ein ähnlicher Hüllrohreffekt gefunden wurde, ist bei künftigen Versuchen mit gekapselten Fissium-Pellets auch für Te eine Reduktion der Freisetzung zu erwarten.

Ob es für den Unterschied der beiden Cs-Kurven in Abb. 8 eine ähnliche Ursache gibt, läßt sich vorläufig nicht sagen. Wir halten es aber für möglich, daß der Spaltprodukt-Transport innerhalb der Zircaloy-Hülle durch ein infolge der UO_2 -Oxidation "geschwollenes" Fissium-Pellet behindert war und eine unbeeinflusste Freisetzung erst dann erfolgen konnte, als die Hülle hinreichend weit aufgerissen bzw. aufgeschmolzen war.

- c) Die Abb. 9 enthält eine Zusammenstellung von Freisetzungswerten einer größeren Anzahl von Elementen für eine Temperatur von $2400\text{ }^{\circ}\text{C}$. Die Angaben für Cs, Se und Ag wurden dabei von Versuchen mit der Maximaltemperatur $2150\text{ }^{\circ}\text{C}$ aus den Freisetzungskurven nach oben extrapoliert, und für die Elemente Mn, Fe, Cr und Co war aus Messungen bei $2500\text{ }^{\circ}\text{C}$ und $2700\text{ }^{\circ}\text{C}$ (16) eine Extrapolation nach unten erforderlich. Alle Werte gelten für Haltezeiten von etwa 3 min bei der angegebenen Temperatur. Beachtenswert ist die hohe Freisetzung von Ag, sowie der relativ niedrige Wert für Ru; denn für dieses Element findet man z.B. in der Rasmussen-Studie (20) sehr widersprüchliche Ergebnisse aus früher durchgeführten Experimenten in oxidierender Atmosphäre.
- d) Beim Transport-Verhalten der verschiedenen Elemente nach der Freisetzung wurden interessante Unterschiede gefunden. Etwa 90 % der freigesetzten schwerflüchtigen Produkte (U,Zr) wurden in dem Glasabsaugsystem direkt über dem Schmelztiegel niedergeschlagen, während es bei den leicht- und mittelflüchtigen Spaltelementen Cs, Se, Te, Cd, Sb, Mo nur 15-30 % waren. Umgekehrt wurden 70-85 % des freigesetzten Anteils dieser Elemente bis zum ersten Membranfilter transportiert, das etwa 1 m vom Schmelztiegel entfernt installiert war. Diese Ergebnisse hängen natürlich stark von den Strömungsbedingungen und der Geometrie ab. Trotzdem ist daraus zu schließen, daß die freigesetzten schwerflüchtigen Produkte zu einem höheren Prozentsatz und in einer geringeren Entfernung

von der Schmelze abgeschieden werden als die Freisetzungserzeugnisse der leichter flüchtigen Elemente. Diese Tatsache dürfte besonders für die Rückhaltung von Pu und anderer Transurane im RDB von Bedeutung sein.

- e) Die Größenverteilung der Aerosolpartikeln erwies sich als trimodal mit Maxima bei Durchmessern von 0,17 μm , 0,30 μm und 0,73 μm . Die Form der Partikeln, die zum 1. und 3. Maximum gehörten, war nahezu kugelförmig, die Partikeln des mittleren Maximums hatten dagegen eine kettenförmige Struktur; sie waren eindeutig durch den Prozeß der Koagulation von kleineren Partikeln entstanden, vgl. Abb. 10 und (21).

4. Zusammenfassung

In diesem Referat wurden zwei experimentelle Vorhaben beschrieben, bei denen die Freisetzung von Spaltprodukten unter verschiedenen Randbedingungen untersucht wird.

Durch die bisherigen Arbeiten in Oak Ridge wird der Temperaturbereich eines Kühlmittelverlust-Störfalles (500 - 1200°C) erfaßt; dieser Bereich wird in weiteren Experimenten bis auf 1600°C ausgedehnt.

Die erhaltenen Ergebnisse sind besonders für die Spaltprodukte Cs und I von Bedeutung; denn sie besagen, daß die Freisetzung bei 1200°C um die Faktoren 200 bzw. 60 niedriger liegt als in der Rasmussen-Studie angenommen.

Für die Berechnung des Quellterms dieser Elemente wurde ein halbempirisches Modell entwickelt, das die experimentellen Ergebnisse aus mehreren Versuchsserien trotz stark unterschiedlicher Randbedingungen in guter Weise beschreibt.

In dem Versuchsprogramm des PNS wird die Freisetzung für hypothetische Kernschmelzen-Unfälle im Temperaturbereich von 1200 - 2700°C untersucht. Mit der beschriebenen Schmelzanlage SASCHA können erstmals Experimente unter realistischen Randbedingungen mit Schmelzgutmassen bis zu mindestens 1 kg durchgeführt werden.

Da Aufbau und Entwicklung der Versuchstechnik mehrere Jahre in Anspruch nahmen, sind für eine Berechnung des integralen Quellterms unter Kernschmelzen-Bedingungen vorläufig nicht genügend experimentelle Daten verfügbar. Dennoch konnte die Freisetzung unter Luft für über ein Dutzend Elemente und Schmelzgutmassen von 30 - 300 g bestimmt werden.

Außerdem liegen erste Ergebnisse über die Form und Größe der gebildeten Aerosol-Partikeln vor. Derartige Informationen werden vor allem auch für die inaktiven Freisetzungsprodukte benötigt, denn sie beeinflussen in starkem Maße das nachfolgende Transport- und Ablagerungsverhalten der freigesetzten Spaltprodukte.

Nach Abschluß der Versuchsserie unter Luft ist in dem PNS-Programm der Übergang auf eine Wasserdampf-Atmosphäre vorgesehen; anschließend soll auch die Freisetzung bei der Wechselwirkung einer Corium-Schmelze mit Beton untersucht werden.

Danksagung

Die Autoren möchten nicht versäumen, allen Kollegen und Mitarbeitern zu danken, die bei der Vorbereitung, Durchführung und Auswertung der Versuche mitgewirkt haben; dies gilt insbesondere für R.A. Lorenz, J.L. Collins, M.F. Osborne, O.L. Kirkland und R.L. Towns vom Oak Ridge National Laboratory, sowie für V. Matschoß, H. Wild, K. Nolte, U. Haase, D. Perinic, H. Knauß, A. Mack, B. Stuka, B. Kammerer, J. Schreibmaier, H. Damm und K.H. Simon vom Kernforschungszentrum Karlsruhe.

Ein besonderer Dank gilt auch Herrn M.F. Osborne, der als Delegierter der NRC für zwei Jahre an dem beschriebenen PNS-Vorhaben mitgearbeitet und wesentlich zu den guten Kontakten zwischen beiden Arbeitsgruppen beigetragen hat.

Literatur

- (1) R.A. Lorenz et al., "Behavior of Iodine, Methyl Iodide, Cesium Oxide, and Cesium Iodide in Steam and Argon," ORNL/NUREG/TM-25 (Juli 1976).
- (2) R.A. Lorenz et al., "Fission Product Release from Simulated LWR Fuel," NUREG/CR-0274, ORNL/NUREG/TM-154 (Oktober 1978).
- (3) R.A. Lorenz, J.L. Collins, and O.L. Kirkland, "Quarterly Progress Report on Fission Product Release from LWR Fuel for the Period July-September 1976," ORNL/NUREG/TM-73 (Dezember 1976).
- (4) R.A. Lorenz, J.L. Collins, and O.L. Kirkland, "Quarterly Progress Report on Fission Product Release from LWR Fuel for the Period October-December 1976," ORNL/NUREG/TM-88 (März 1977).
- (5) A.P. Malinauskas et al., "Quarterly Progress Report on Fission Product Behavior in LWRs for the Period January-March 1977," ORNL/NUREG/TM-122 (Juni 1977).
- (6) A.P. Malinauskas et al., "Quarterly Progress Report on Fission Product Behavior in LWRs for the Period April-June 1977," ORNL/NUREG/TM-139 (September 1977).
- (7) A.P. Malinauskas et al., "Quarterly Progress Report on Fission Product Behavior in LWRs for the Period July-September 1977," ORNL/NUREG/TM-170 (Januar 1978).
- (8) A.P. Malinauskas et al., "Quarterly Progress Report on Fission Product Behavior in LWRs for the Period October-December 1977," ORNL/NUREG/TM-186 (März 1978).
- (9) A.P. Malinauskas et al., "Quarterly Progress Report on Fission Product Behavior in LWRs for the Period January-March 1978," NUREG/CR-0116, ORNL/NUREG/TM-208 (Juni 1978).
- (10) A.P. Malinauskas et al., "Quarterly Progress Report on Fission Product Behavior in LWRs for the Period April-June 1978," NUREG/CR-0370, ORNL/NUREG/TM-242 (September 1978).
- (11) R.A. Lorenz, J.L. Collins, and A.P. Malinauskas, "Fission Product Source Terms for the LWR Loss-of-Coolant Accident: Summary Report," NUREG/CR-0091, ORNL/NUREG/TM-206 (Juni 1978).
- (12) Reactor Safety Study, WASH-1400, App. VII, p.VII-13, Table VII 1-1 (Oktober 1975).

- (13) R.A. Lorenz, J.L. Collins, A.P. Malinauskas, "Fission Product Source Terms for the Loss-of-Coolant Accident", ENS/ANS Int. Topical Meeting on Nuclear Power Reactor Safety, Brüssel, Belgien, 16.-19. Oktober 1978.
- (14) Reactor Safety Study, WASH-1400, App. VI, p.13-21, Table VI 13-1 (Oktober 1975).
- (15) H. Albrecht et al., "Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen", Projekt Nukleare Sicherheit, Halbjahresbericht 1978/1, KFK-2700 (im Druck).
- (16) H. Albrecht et al., Projekt Nukleare Sicherheit, Halbjahresbericht 1977/1, KFK-2500, p. 429 (Dezember 1977).
- (17) H. Albrecht et al., Projekt Nukleare Sicherheit, Halbjahresbericht 1976/2, KFK-2435, p. 400 (April 1977).
- (18) H. Albrecht et al., Projekt Nukleare Sicherheit, Halbjahresbericht 1976/1, KFK-2375, p. 405 (November 1976).
- (19) E.P.H. Cordfunke et al., "Investigations on Cesium Uranates-I", J. Inorg. Nucl. Chem. 37, 1433 (1975).
- (20) Reactor Safety Study, WASH-1400, App. VII, p. VII-107 ff (Oktober 1975).
- (21) W. Muhr, H. Wild, "Die Anwendung der Aerosolzentrifuge nach Stöber zur Untersuchung der beim Kernschmelzen auftretenden Aerosole", 5. Jahreskongreß der Ges. für Aerosolforschung, Karlsruhe, 26. - 28. Oktober 1977.

Tabelle 1: Freisetzung von Cs und I in Dampf,
Low Burnup (LBU) und High Burnup (HBU) Test Series

Versuch	Temp. (°C)	Zeit (min)	Gap-Inventar ($\frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2}$) ^{a)}		Freisetzung (%)	
			Cs	I	Cs	I
LBU-1 ^{b)}	700	300	69	1,47	0,0003	keine Angaben
LBU-2 ^{b)}	900	120	107	2,44	0,12	
HBU-1 ^{b)}	700	300	13,1	1,20	$1,7 \cdot 10^{-5}$	0,0021
HBU-2 ^{b)}	900	120	12,7	1,17	$5,7 \cdot 10^{-4}$	0,0042
HBU-4 ^{b)}	500	1200	13,1	1,20	$3,6 \cdot 10^{-6}$	0,0002
HBU-7 ^{c)}	900	1	12,7	1,17	0,0286	0,0265
HBU-8 ^{c)}	900	60	12,7	1,17	0,0087	0,0322
HBU-9 ^{c)}	1100	8,4	13,1	1,20	0,024	0,0392
HBU-10 ^{c)}	1200	10	11,2	1,03	0,061	0,0331
HBU-11 ^{d)}	1200	10	11,3	1,05	0,031	0,0480

- a) Angaben für das Gap-Inventar pro cm^2 Hüllrohroberfläche nach der Bestrahlung der Prüflinge im Reaktor; die Werte wurden aus dem gemessenen Inventar für die Spaltedelgase abgeschätzt; sie werden u.a. für die Modellrechnungen (Abschnitt 2.5) benötigt.
- b) Die Brennstabhüllen wurden vor dem Versuch angebohrt.
- c) Die Hüllen wurden bei 900 °C durch Erhöhung des Innendrucks auf ca. 20 bar zum Bersten gebracht, dann wurde die Temperatur schnell auf den angegebenen Tabellenwert gesteigert.
- d) Brennstabprüfling vorher schon in Versuch HBU-7 eingesetzt.

Tabelle 3: Verteilung der freigesetzten Spaltprodukte auf die
Komponenten der Versuchsanordnung;

(Exp. Bedingungen: $T_{\text{max}} = 2150 \text{ }^\circ\text{C}$, Luft, 1.5 bar, Durchsatz = 5 l/min; alle Angaben in Prozent)

Element	Glasglocke	Transportstrecke	Filter	Gesamt
Se	3.9	1.0	23.6	28.5
Cs	4.7	1.4	20.1	26.2
Sb	0,8	0.3	3.1	4.2
Mo	0.4	<0.1	2.1	2.6
Cd	7.5	<1.5	26.4	~35.0
Te	8.0	<1.5	31.9	~41.0

Element	Gap- Inventar [%] ^{a)}		Gap-Entweichfaktor		Freisetzung [%] ^{b)}	
	WASH-1400	Modell	WASH-1400	Modell	WASH-1400	Modell
Kr, Xe	8	1.27	1.0	1.0	8	1.27
Cs	15	2.79	0.33	0.0089	5	0.025
I	10	2.79	0.33	0.0191	3.3	0.053

- a) gilt für die stabilen Isotope und solche mit langer HWZ
 Gap-Inventar und Freisetzung für I-131 und Xe-133 liegen 3bis 9 mal niedriger(13)
- b) unter folgenden Annahmen: alle Hüllen bersten, T= 1200°C für 10min

Tabelle 2:

Vergleich zwischen WASH-1400 und ORNL-Modell-Rechnungen

	Phasen	Temperatur [°C]	freigesetzte Elemente *)
Kühlmittel - verlust Störfall	Druckentlastung Wiederauffüllung Kernflutung	< 1200	Kr, Xe I, Cs
hypothetischer Kernschmelzen Unfall	Wasserverdampfung Kernaufheizung	1200 - 1900	Kr, Xe, I, Cs Te, Sb, Sr, Ba Ru, Ce, U, Pu Fe, Cr, Mn, Sn
	Abschmelzen der BE Schmelze im RDB	1900 - 2400	
	Schmelze im Beton	< 2200	

*) relative Freisetzung: <1 bis 100%

Abb. 1:

Hauptmerkmale der beiden Arten von Störfällen

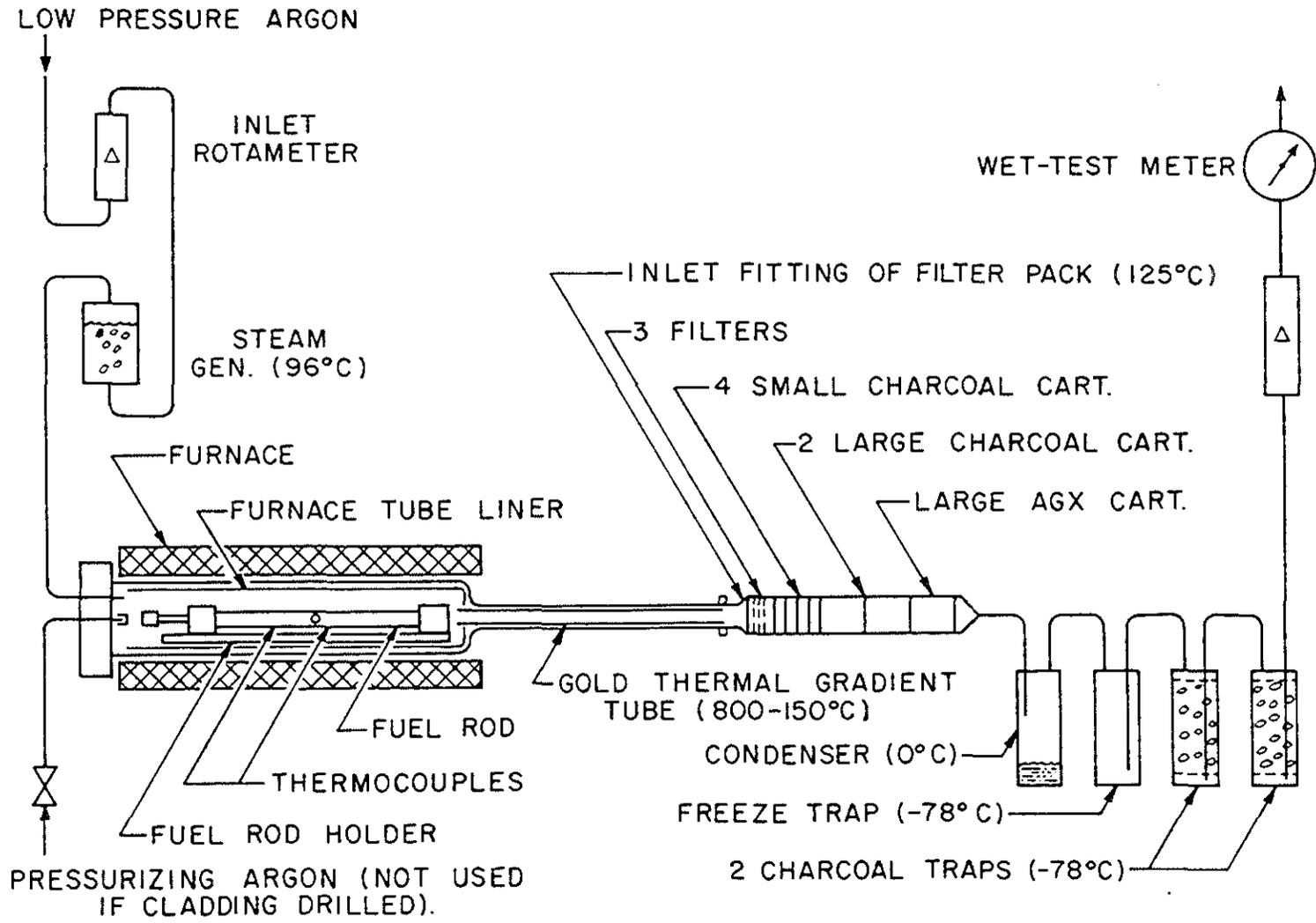


Abb.2: ORNL-Versuchseinrichtung

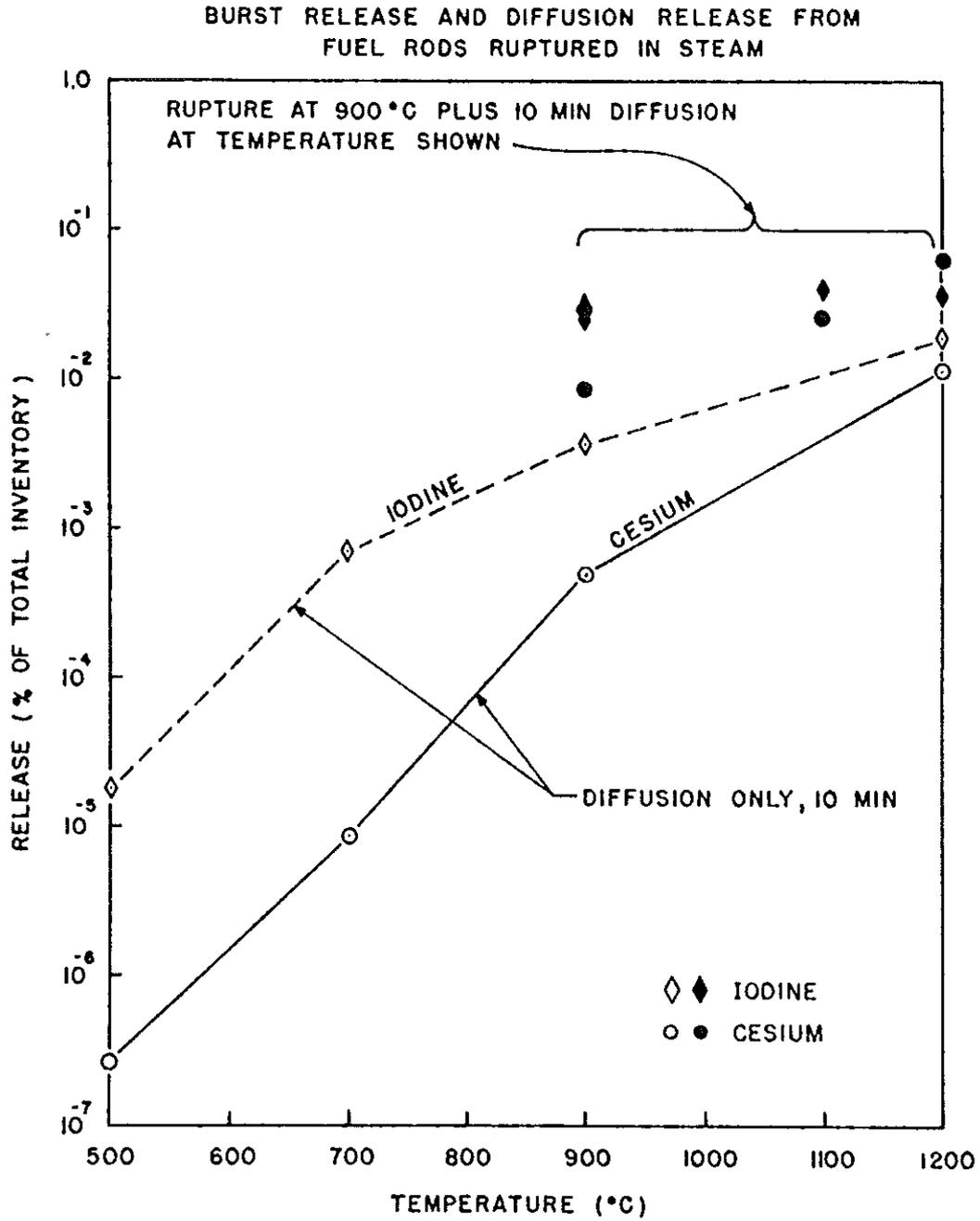


Abb.3: Freisetzung von I und Cs (ORNL-Daten)

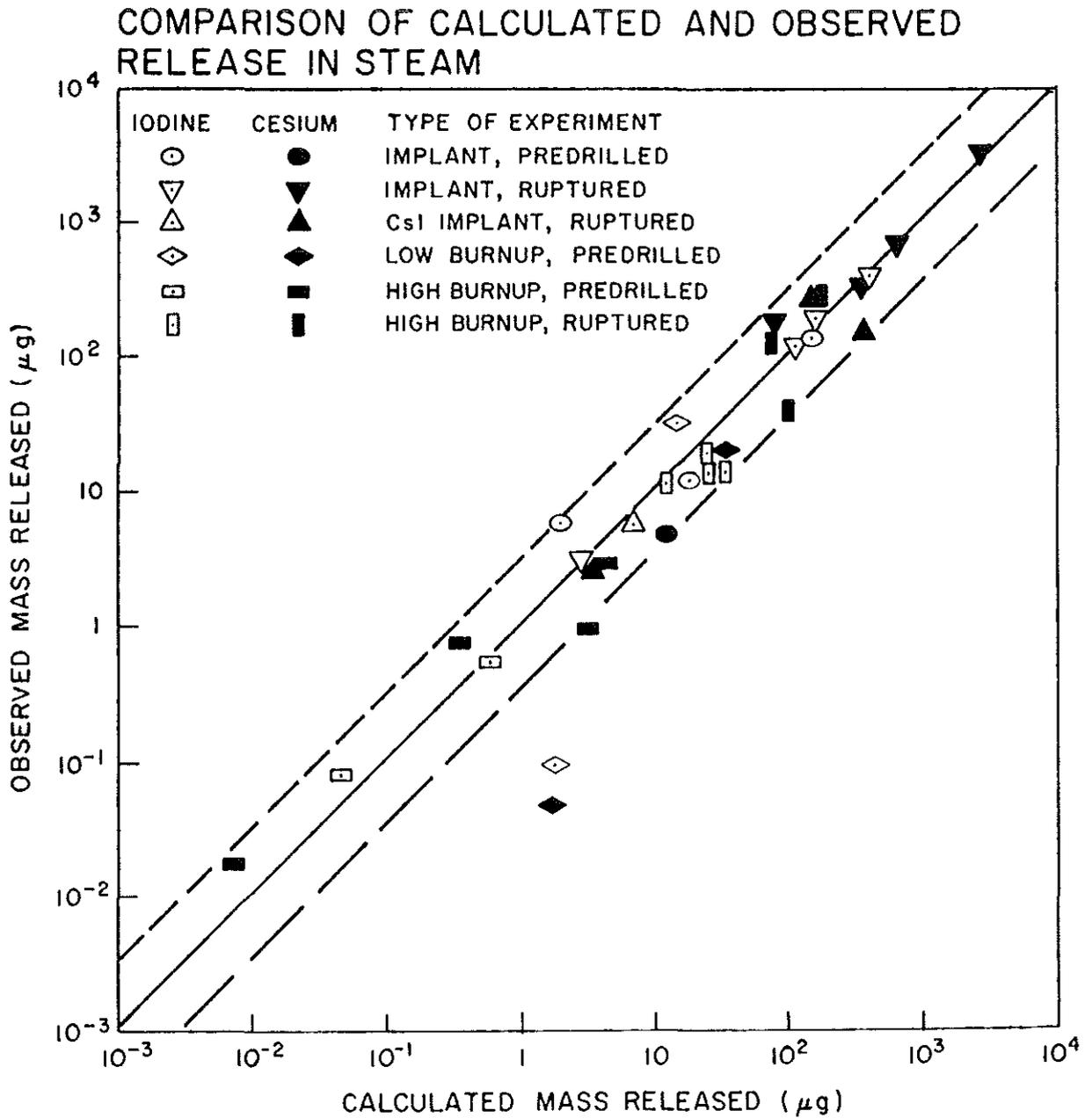


Abb.4: Vergleich der berechneten mit den gemessenen Freisetzungsdaten

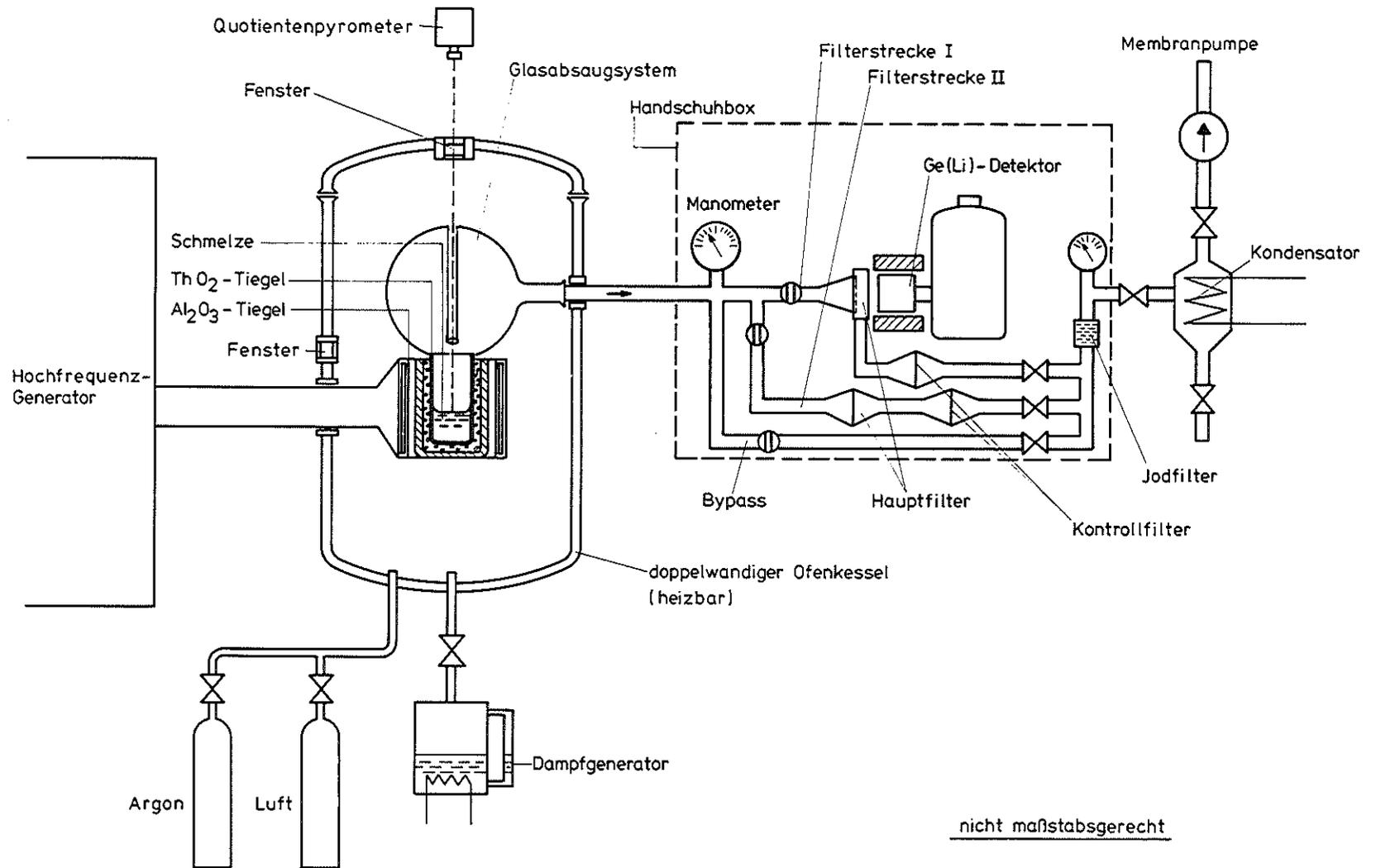


Abb. 5: Schmelzanlage SASCHA mit Filterstrecke

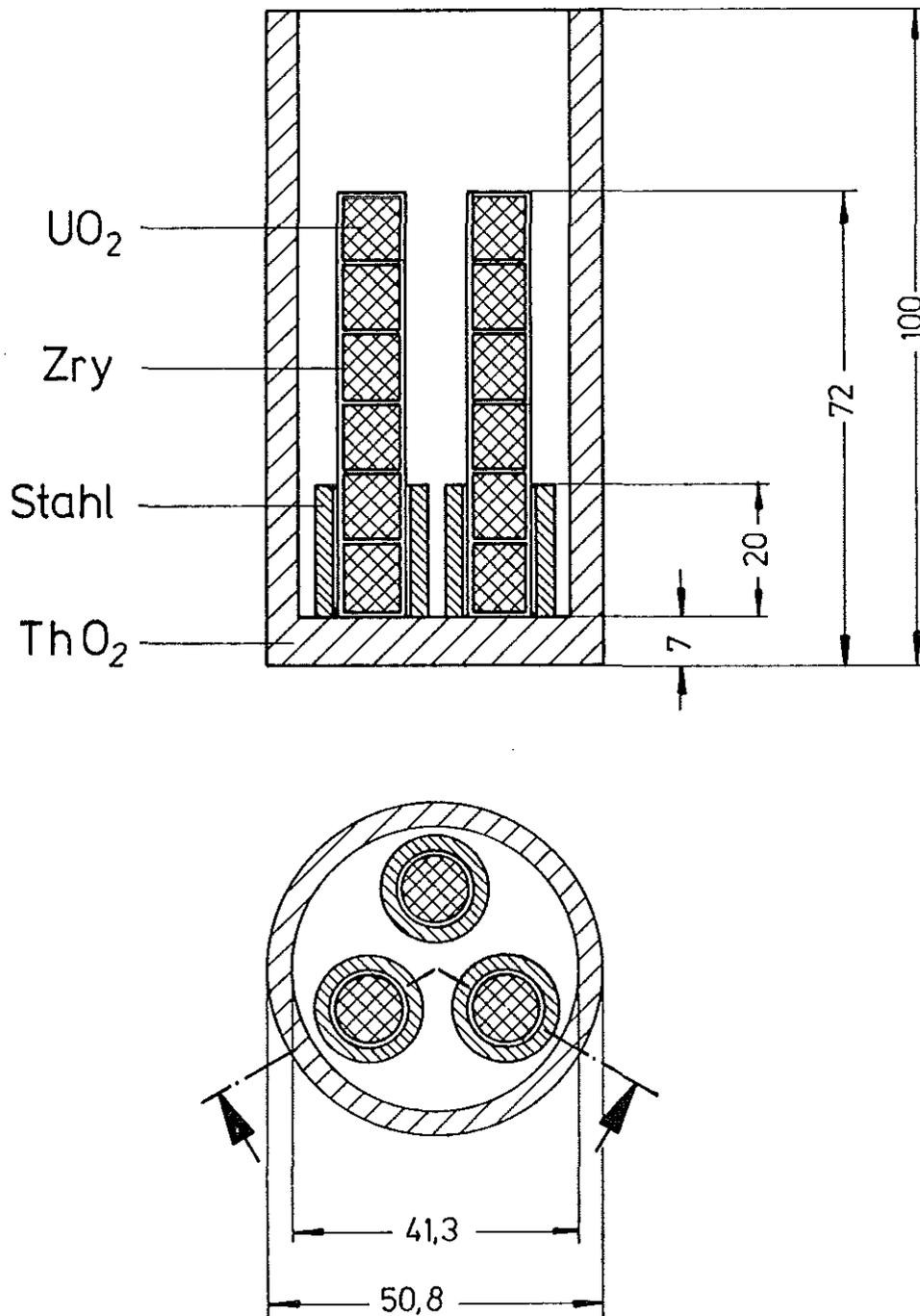


Abb. 6:

Geometrische Anordnung des Schmelz- gutes im ThO_2 -Tiegel

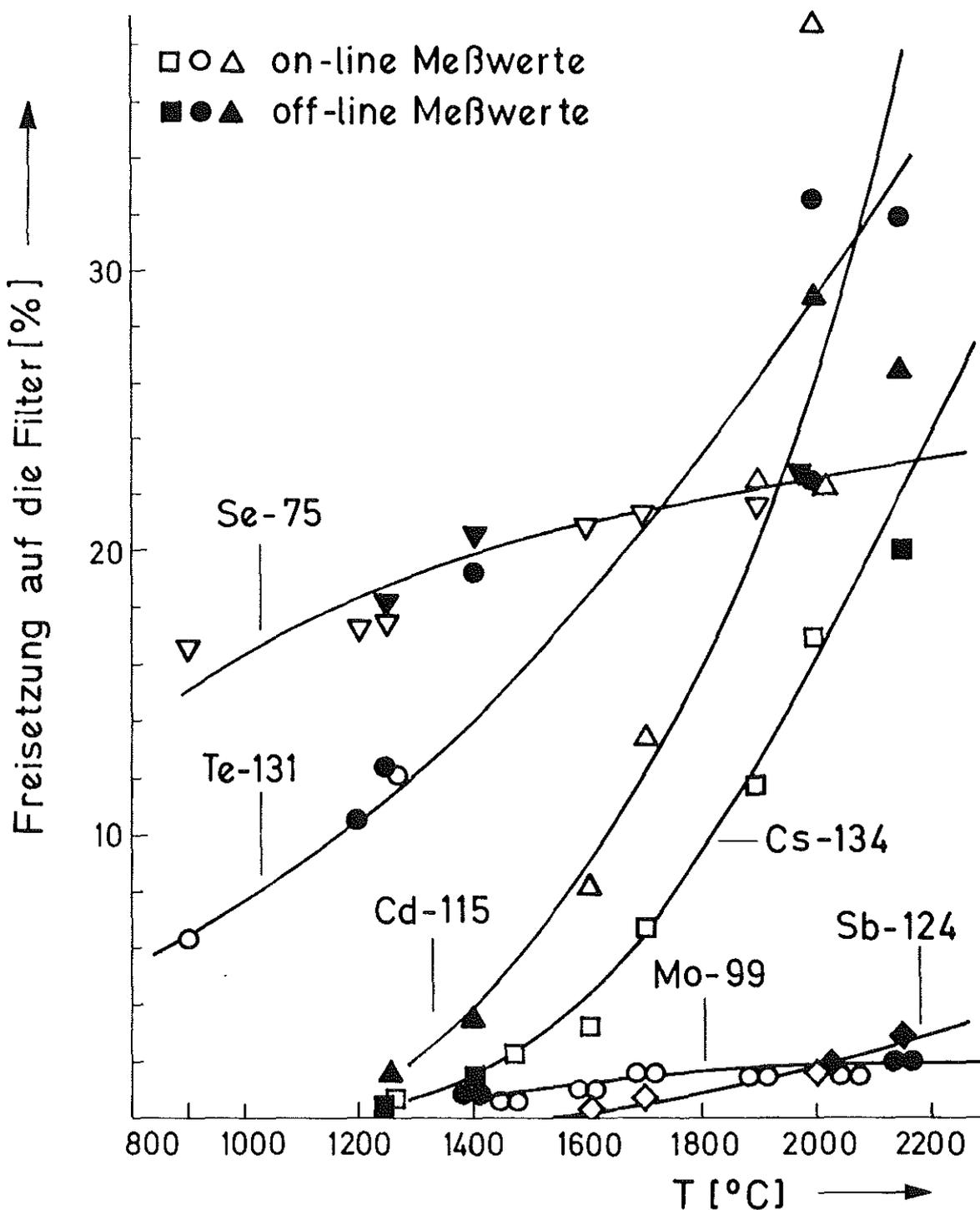


Abb.7:

Freisetzung der Fission-Komponenten als Funktion der Temperatur (Luft, 1,5 bar, 5 l/min, 30 g Corium-E, Fission-Pellet nicht in Zircaloy-Rohr eingekapselt); die Gesamtfreisetzung liegt um einen Faktor 1,2 - 1,35 höher, vgl. Tab. 3

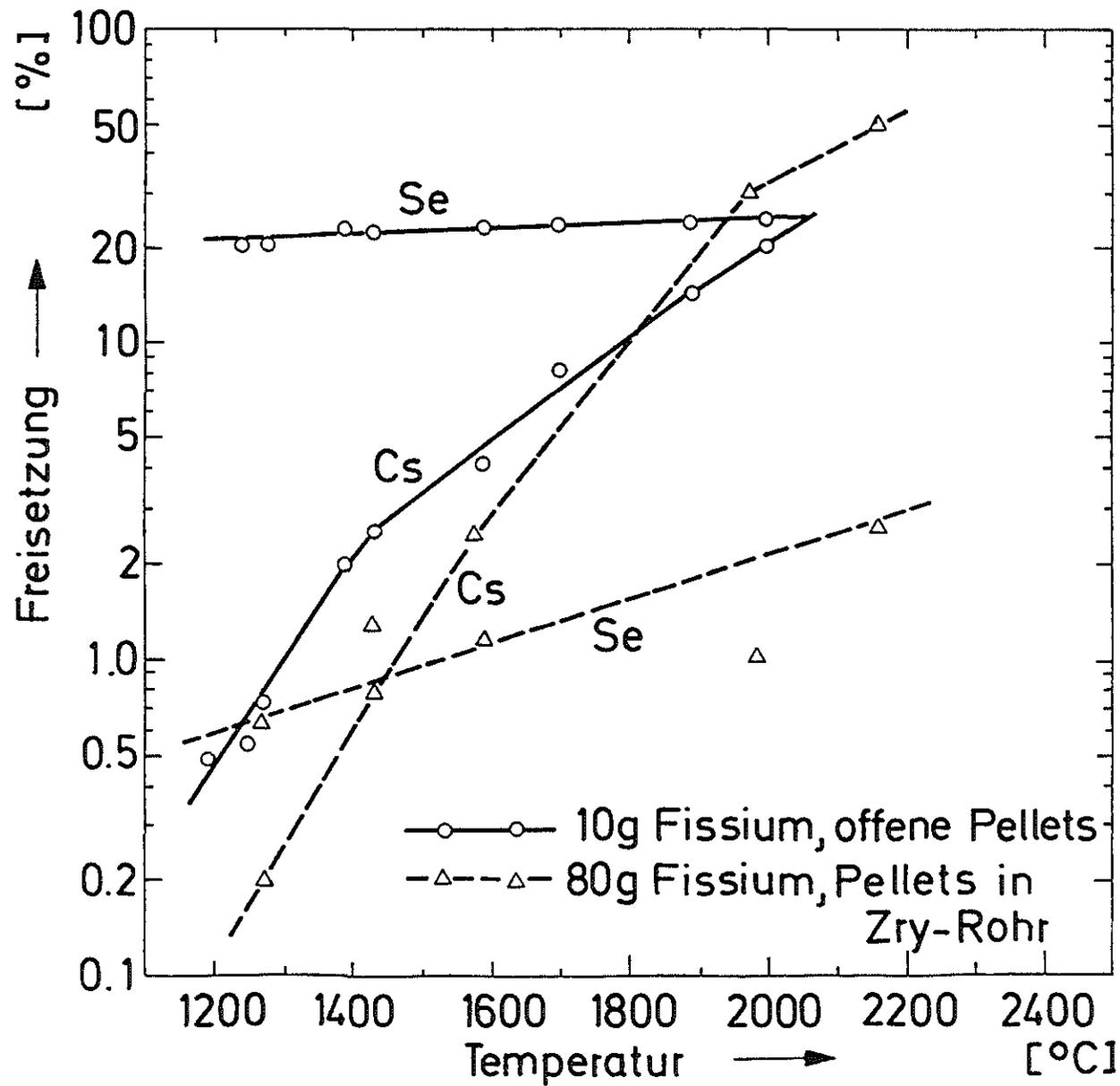


Abb. 8:

Cs- und Se- Freisetzung in Luft

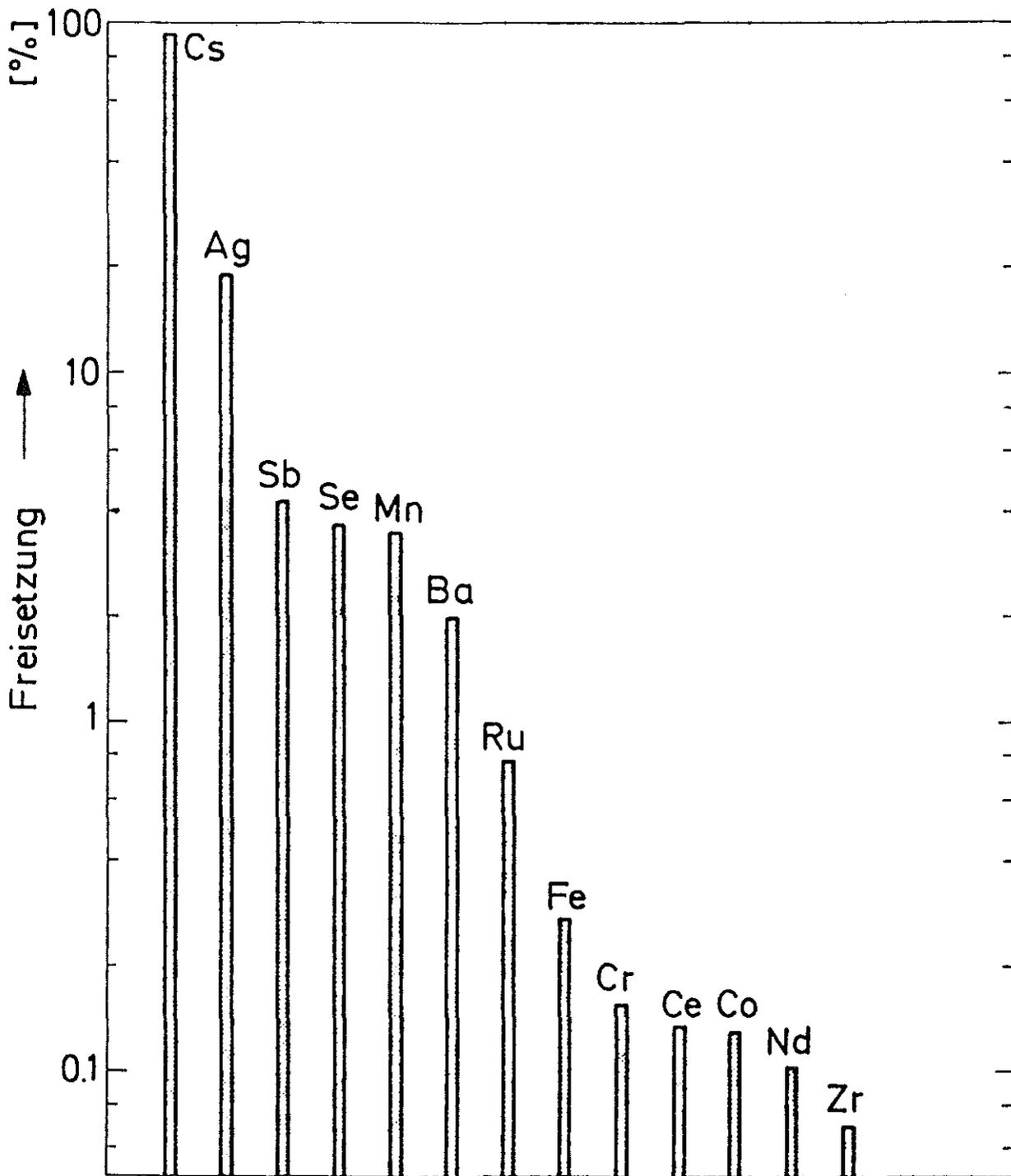
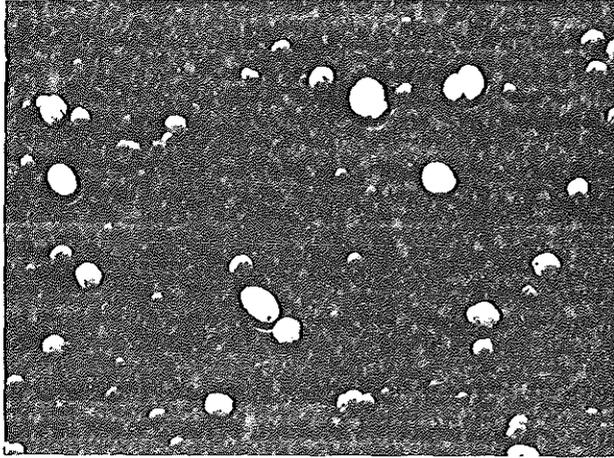
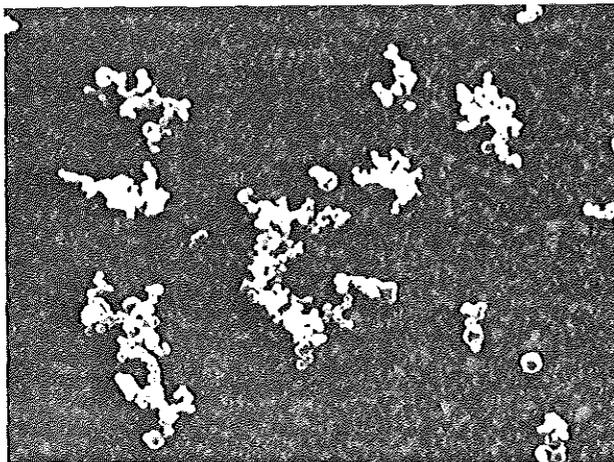


Abb. 9:

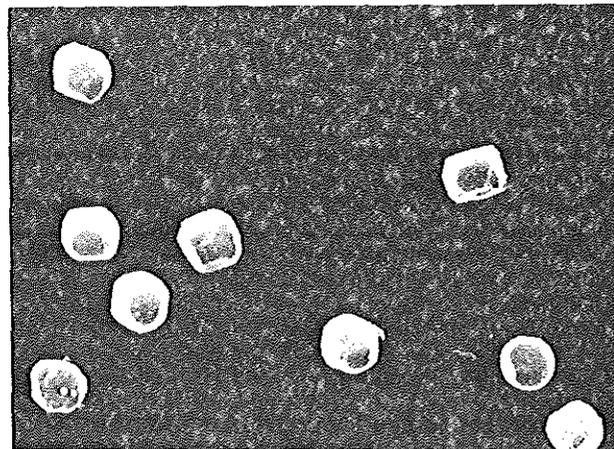
Freisetzung bis 2400°C unter Luft
(z.T. extrapolierte Werte)



Fraktion der
kleinen Partikeln



Fraktion der
mittelgroßen Partikeln



Fraktion der
großen Partikeln

┌───┐
1 μ m

Abb. 10: Beispiele für Aerosolpartikeln aus geschmolzenem Corium

JAHRESKOLLOQUIUM 1978

des

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

Abbau freigesetzter Spaltprodukte
in LWR-Sicherheitsbehältern

H. Bunz, W. Schöck

Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik I

1. Einleitung

Die nach einem Störfall oder hypothetischen Unfall in der Atmosphäre des Containments dispergierten Spaltprodukte stellen die hauptsächliche Quelle der Umgebungsbelastung dar, wenn sie durch Leckagen ins Freie gelangen. Eine erste Unterteilung der Spalt- (und Aktivierungs-)produkte wird gewöhnlich nach Flüchtigkeitsklassen vorgenommen. Betrachtet man den Aggregatzustand der freigesetzten Produkte, so findet man sofort, daß außer den Edelgasen, Tritium, Jod und Methyljodid sowie einigen seltenen Verbindungen alle anderen Spaltprodukte in der Containmentatmosphäre nur aerosolförmig vorkommen können, sei es als feste Partikeln, sei es als Tröpfchen oder in einem Tröpfchen gelöst oder suspendiert.

Das Aerosol im Containment unterliegt einem starken natürlichen Abbau, so daß von dem anfänglich aus der Schmelze freigesetzten Material nur ein geringer Teil in die Umgebung gelangen kann. Arbeiten zur quantitativen Beschreibung der Aerosolabbauprozesse beim Kernschmelzen sind Gegenstand dieses Berichts.

Die Produktion von Aerosol beim Kernschmelzen erfolgt durch Verdampfen von schwerflüchtigem Material beim Niederschmelzen des Kerns oder aus dem

Schmelzsee im Reaktordruckbehälter und Kondensation beim Transport von der heißen Oberfläche der Schmelze in kältere Umgebung, wobei hauptsächlich feste Partikeln entstehen. Im Gegensatz zum Kühlmittelverluststörfall, bei dem im wesentlichen nur Spaltprodukte freigesetzt werden, kommt beim Kernschmelzen wegen der wesentlich höheren Temperaturen noch Strukturmaterial und Brennstoff hinzu. Diese inaktiven Komponenten stellen sogar den weitaus größten Massenanteil und bilden mit den eigentlich interessierenden Spaltprodukten ein intern gemischtes Aerosol, d.h. jede einzelne Partikel enthält gleiche Anteile aller aktiven und inaktiven Komponenten. Man kann also die Spaltprodukte nicht allein betrachten, vielmehr wird ihr Verhalten von der Masse des inaktiven Aerosolanteils dominiert. Wir werden später sehen, daß das eine positive Eigenschaft ist.

Es wird also ein Aerosolverhaltensmodell benötigt, einerseits für realistische Risikoabschätzungen, andererseits für die Auslegung von denkbaren Systemen zur Minderung der Konsequenzen von Unfällen. Ein solches Aerosolverhaltensmodell muß abhängig von der jeweiligen Unfallsequenz die zu jedem Zeitpunkt luftgetragene bzw. abgeschiedene Aktivität berechnen.

Solche Modelle gab es bisher noch nicht und sind auch - außer bei uns - noch nirgends in Arbeit.

2. Stand der Kenntnis

Während das Verhalten der gasförmigen Spaltprodukte relativ gut überschaubar ist, unterliegen Aerosole einer Reihe von komplizierten physikalischen Prozessen. Die für die Vorgänge bei Kernschmelzunfällen wichtigsten seien kurz genannt:

Die beim Verdampfen und Rekondensieren entstandenen Primärpartikeln sind relativ klein und vor allem sehr hoch konzentriert. Die vorkommenden Anzahlkonzentrationen von 10^8 bis 10^{11} Partikeln pro cm^3 sind äußerst instabil, durch Koagulation lagern sich die Primärpartikeln zu größeren Aggregatpartikeln zusammen, die Massenkonzentration ändert sich dabei nicht. Die Koagulationsrate hängt ab von der Größe und der Konzentration der beteiligten Partikeln.

Diese Aggregate gelangen ins Containment; auf die Transportvorgänge und mögliche Rückhaltung im Primärsystem kann in diesem Bericht nicht eingegangen

werden. Im Containment ist die Atmosphäre mit Wasserdampf gesättigt. Durch Abkühlung sowie durch weitere Dampffreisetzung können Übersättigungen auftreten, der überschüssige Wasserdampf kondensiert sofort zu Tröpfchen, wobei die Partikeln als Kondensationskerne dienen. (Die Tröpfchenbildung ist ebenfalls von Konzentration und Größe der Partikeln abhängig).

Wichtig ist, daß nur ein Teil der größeren Partikeln an der Kondensation teilnimmt. Es entsteht ein Aerosol, das aus einer Fraktion submikroskopischer Partikeln und einer Fraktion relativ großer Tröpfchen besteht. Weitere Koagulation zwischen Partikel- und Tröpfchenfraktion führt aber zu einer weitgehenden Homogenisierung des Aerosols, so daß sich nach einiger Zeit der größte Anteil der festen Aerosolbestandteile in den Tröpfchen befindet.

Von den Abscheidemechanismen dominiert im Containment zweifellos die Sedimentation. Sie ist quadratisch von der Größe der Partikeln oder Tröpfchen abhängig. Man sieht hier sofort die Auswirkung der Wechselwirkungsprozesse. Dadurch, daß Koagulation und Kondensation den Radius vergrößern bewirken sie letztlich eine schnellere Abscheidung durch Sedimentation. Weitere Abscheidemechanismen sind Diffusion an die Wände (der Partikelgröße umgekehrt proportional) und Thermophorese an kalte Oberflächen (partikelgrößenunabhängig, proportional zur Temperaturdifferenz Gas - Wand).

Das Zeitverhalten eines "trockenen" Aerosolsystems - d.i. ein Aerosol in nichtkondensierender Atmosphäre - kann heute bereits relativ gut berechnet werden. Solche Rechnungen sind z.B. Bestandteil des Genehmigungsverfahrens für schnelle Reaktoren. Anders ist die Situation beim Leichtwasserreaktor. Die Kondensation von Wasserdampf an Partikeln bei den hohen Temperaturen im Containment ist experimentell noch nicht untersucht. Ferner ist die Modellierung eines solchen schnellen molekularen Prozesses sehr aufwendig.

Nach dem gegenwärtigen Stand der Kenntnis gibt es nur einen Weg, zu einer realistischen Beschreibung des Aerosolverhaltens zu kommen. Die Modelltheorie muß auf der Basis der oben genannten physikalischen Einzelprozesse gegründet werden. Dadurch wird das Modell zwangsläufig zunächst sehr komplex. Die dabei auftretenden Kenntnislücken müssen durch physikalische Einzeluntersuchungen abgedeckt werden. Integrale Experimente sind als Verifikationstest erst am Ende der Modellentwicklung sinnvoll. Dann auch kann eine Reduktion des Aufwands erfolgen durch Weglassen von Prozessen, die mit Sicherheit als vernachlässigbar erkannt wurden.

3. Das NAUA-Programm

Vor diesem Hintergrund wird im Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik das NAUA-Programm durchgeführt (NAUA = NAch-Unfall-Atmosphäre) [1]. Die Ziele des Programms sind

- Erstellung eines realistischen Aerosolverhaltensmodell und Computercodes für die Kernschmelzensituation auf der Basis experimentell abgesicherter Kenntnisse der physikalischen Aerosolprozesse
- Verifikation und Anwendung des Modells auf das Spaltproduktverhalten im Druckwasserreaktor-Containment
- Integration des Modells in ein Codesystem, das den Gesamt- ablauf von Kernschmelzenunfällen beschreibt.

Die dabei anzuwendenden Schritte, die zugleich den zeitlichen Ablauf umreißen, sind

- Formulierung der Einzelprozesse
- Zusammenbau zu einer ersten Modellversion
- Sensitivity-Studien zur Identifikation relevanter Kenntnislücken
- Feasibility-Studien und Planung von Experimenten
- Experimentelle Bestimmung fehlender Parameter
- Vervollständigung und Verbesserung des Modells
- Verifikation durch integrale Experimente
- Anwendung auf DWR-Kernschmelzenunfälle

Es ist festzuhalten, daß dieses Schema nicht einfach geradlinig durchlaufen werden kann, sondern daß eine ständige Wechselwirkung zwischen Experiment und Modelltheorie erfolgen muß. Hierin unterscheidet sich das Vorgehen im NAUA-Programm wesentlich von dem anderer Modellentwicklungen.

Im Konflikt zwischen Genauigkeit und Rechenaufwand werden im NAUA-Modell, ebenso wie in allen anderen Aerosolcodes für Reaktorunfallrechnungen, vier grundsätzliche Annahmen gemacht

- Homogene räumliche Durchmischung des Aerosols in einem Kontrollvolumen
- Interne Mischung der Bestandteile in einer Aerosolpartikel

- Beschreibung der Aerosoleigenschaften als Funktion nur einer unabhängigen Variablen (Größenparameter)
- Beschränkung auf (bezüglich des Größenparameters) konstante Werte der Prozeßkoeffizienten

Die erste Annahme ermöglicht die Übertragung der mikroskopischen Beschreibung der Einzelprozesse auf das gesamte Containmentvolumen. Die Unstetigkeiten des Systems liegen nur an den Wänden, wobei gerade das Konzept der räumlich homogenen Mischung gestattet, unter dem Begriff Wand alle Oberflächen, also auch die der Einbauten, aufzusummieren, ungeachtet ihrer geometrischen Anordnung.

Die anderen Annahmen betreffen das Aerosol selbst. Sie sind im allgemeinen berechtigt und können so lange zur Reduzierung des Rechenaufwands benutzt werden, wie sie nicht durch die Ergebnisse der laufenden experimentellen Untersuchungen widerlegt werden.

Abgesehen von diesen Annahmen enthält das NAUA-Modell keine weiteren vereinfachenden Voraussetzungen. In Abb. 1 ist das Schema des Codes gezeigt. Wichtig ist, daß der zentrale Teil, nämlich die Berechnung des Verhaltens des Aerosolsystems, rein physikalisch erfolgt, ohne Voraussetzungen bezüglich der Randbedingungen machen zu müssen. Der Code ist in der Lage, beliebige Unfallabläufe, insbesondere Quellterme, zu akzeptieren. Dies ist auch physikalisch gerechtfertigt, weil die Aerosolprozesse zwar durch die thermodynamischen Zustände des Containments stark beeinflußt werden, selbst aber keine Rückwirkungen ausüben. Als Ergebnis der Berechnung werden zeitabhängig die luftgetragenen Konzentrationen sowie die abgeschiedenen Massen ausgegeben.

Vorausgesetzt, daß die noch fehlenden Parameter einiger Aerosolprozesse experimentell bestimmt werden, liegt hierin der Hauptvorteil der gewählten Modellkonstruktion:

Die Aussagekraft der Rechenergebnisse hängt nur von der Qualität der Eingabegrößen ab, insbesondere von den Quellfunktionen und von den thermodynamischen Verläufen im Containment, nicht aber von speziellen Annahmen über die Art der beteiligten Prozesse.

Für alle folgenden Aussagen ist somit festzuhalten, daß sie auf dem benutzten Satz von Eingabegrößen basieren, die ihrerseits zum Teil nur auf konservativen Abschätzungen basieren. Sobald zuverlässigere Daten über Unfallabläufe und Quellterme verfügbar werden, können auch die Rechnungen belastbarere Aussagen liefern.

4. Ergebnisse aus Modellrechnungen

Um den Bezug zur Realität von Anfang an zu wahren, wurde den Rechnungen mit dem NAUA-Code ein Zentralfall zugrundegelegt, der im wesentlichen anhand der Reaktorsicherheitsstudie der USNRC [2] definiert wurde. Die wichtigsten Daten sind

Containment	: Volumen	25 000 m ³
	Wandfläche	3 600 m ²
	Bodenfläche	820 m ²
Aerosolquelle:	Gesamtmasse	1 000 kg
	Quelldauer	0.5 h
	mittlerer Partikeldurchmesser	0.1 µm
Dampfquelle:	Sättigungsbedingung gemäß folgender Temperaturfunktion	
	$T = 54 + 75 \cdot \exp(-4 t)$; T in °C, t in h	

Die größten Unsicherheiten bestehen bezüglich der Dampfquelle. Es ist noch nicht geklärt, zu welchen Anteilen der Dampf an den Wänden oder am Aerosol kondensiert. Zwar sind die Wände kälter als das Aerosol, andererseits besitzt das Aerosol eine Gesamtoberfläche, die um drei bis vier Größenordnungen größer ist als die der Wände. Somit erscheint zumindest eine zeitweilige Kondensation am Aerosol plausibel.

In Abb. 2 sind die beiden Grenzfälle dargestellt, daß der Wasserdampf nur am Aerosol oder gar nicht am Aerosol kondensiert. In der Abbildung ist nur die Massenkonzentration des festen Aerosolanteils dargestellt. Mit Kondensation ist wegen der Bildung großer Tröpfchen die Abscheidung durch Sedimentation viel stärker als im Fall ohne Wasserdampfkondensation.

Hier muß auf die Definition des Zentralfalls zurückgegriffen werden. Die entscheidenden Freisetzungen sind bereits nach einer Stunde vorbei,

insbesondere die Wasserdampfquelle. In Wirklichkeit würde durch den Wasserdampf aus der Betonzerstörung weitere Kondensation stattfinden und die Kurven würden stärker differieren.

Allerdings kann die Größenordnung dieser Differenz nicht pauschal angegeben werden, das Verhalten des Aerosolsystems ist zu komplex und kann nur durch Anwendung des gesamten Modells berechnet werden.

Die dominierende Rolle des zu Tröpfchen kondensierten Wasserdampfs wird erkennbar, wenn man die Massenkonzentration für Tröpfchen und feste Aerosolanteile separat betrachtet. Die Abb. 3 zeigt die beiden Fraktionen getrennt. Die anfangs sehr starke Koagulation führt dazu, daß fast alle Partikeln in die Tröpfchen hineingebracht werden. Die Tröpfchen bilden dann das Transportvehikel und nehmen das feste Material beim Ausfallen mit. Erst langfristig bleibt ein Rest von sehr kleinen Partikeln übrig, die der Koagulation entgangen sind, und die dann nur noch sehr langsam abgebaut werden. Allerdings ist die übrig gebliebene Massenkonzentration kleiner als im Fall ohne Kondensation, wie in Abb. 2 gezeigt wurde.

Abb. 4 zeigt den einen Grenzfall, daß aller Dampf an die Wand kondensiert, d.h. daß das Aerosol "trocken" bleibt. Der Parameter ist die insgesamt freigesetzte Aerosolgesamtmasse von 200, 1000 bzw. 2500 kg. Alle Kurven sind auf den Wert der Gesamtmasse normiert. Im Vergleich dazu ist das Ergebnis einer Rechnung mit dem CORRAL-Code gezeigt, der in [2] benutzt wurde. CORRAL liefert in allen Fällen dieselbe Kurve, unabhängig vom Wert der Gesamtfreisetzung.

Man erkennt, daß eine hohe Freisetzung nicht konservativ ist. Besser sichtbar wird das in Abb. 5. Auch im absoluten Maßstab liegen die Massenkonzentrationen bei geringer Gesamtfreisetzung bereits nach 20 Stunden höher als die bei hoher Freisetzung. Das liegt daran, daß eine höhere Massenkonzentration letztlich zu größeren Partikeln führt, die schneller sedimentieren.

Hier wird etwas deutlich, was ganz am Anfang gesagt wurde, nämlich der Einfluß des beim Schmelzen freigesetzten UO_2 und Strukturmaterials. Gerade dieses inaktive Material bewirkt wegen seiner großen Masse den Aerosolabbau. Die Spaltprodukte allein wären sehr lange luftgetragen, wenn sie nicht mit dem inaktiven Material zusammen ausfallen würden.

Abb. 6 zeigt die Aerosolabbaukurven für die gleichen Fälle, diesmal mit Berücksichtigung der Wasserdampfkondensation. Die Unterschiede zum vorangegangenen Bild sind zweifach. Erstens ist der Abbau am Anfang steiler, solange die Wirkung der Kondensation noch anhält. Zweitens sind die langfristigen Unterschiede zwischen den Kurven jetzt größer. In jedem einzelnen Fall ist aber zu jedem Zeitpunkt die Massenkonzentration geringer als im Fall ohne Kondensation. Auch mit Kondensation am Aerosol ist festzuhalten, daß eine geringe Gesamtfreisetzung langfristig zu höheren luftgetragenen Konzentrationen führt als eine hohe, d.h. nicht konservativ ist.

Als summarische Aussage aller dieser eben gezeigten Konzentrationsverläufe der Aktivität im Containment ist nochmals festzuhalten, daß es zwei Parameter gibt, die die Ergebnisse entscheidend beeinflussen. Der erste ist die freigesetzte Masse selbst, hier sind weitere Messungen notwendig, insbesondere auch der Partikelraten direkt an der Quelle. Der zweite ist der Einfluß der Wasserdampfkondensation. Dieses Problem wird in unserem Labor bearbeitet, und wir kommen nun zu den Experimenten.

5. Experimente zur Wasserdampfkondensation

Die höchsten Prioritäten des experimentellen Programms liegen bei der Untersuchung dreier Problemkreise:

- Wasserdampfkondensation an den Partikeln
- Wasserdampftransport zur Wand (latente Wärme)
- Verteilung der Aerosolpartikeln in den Tröpfchen

Die beiden ersten sind - wie bereits ausgeführt - konkurrierende Prozesse, die sowohl einzeln als auch kombiniert in Abhängigkeit von Temperatur und Dampferzeugungsrate gemessen werden müssen.

Der dritte Punkt, die Kenntnis des Inventars von Partikeln in den Tröpfchen, ist ein weiteres Schlüsselproblem, da mit den schnell ausfallenden Tröpfchen auch das darin enthaltene aktive Material aus dem luftgetragenen Zustand entfernt wird.

Der Versuchsstand ist seit einem Jahr in Betrieb. Mit ihm können sowohl diese Probleme bearbeitet werden als auch spätere Verifikationstests durchgeführt werden. Er besteht im wesentlichen aus einem Edelstahlbehälter

von 3,7 m³ Volumen, der bis 150°C voll thermostatisiert ist. Abb. 7 zeigt ein Schema der Anlage.

Ein Elektrodampfkessel liefert den für die Versuche notwendigen Wasserdampf. Dabei ist die Dampfeinspeisung lokal am Boden des Kessels. Bei dieser Methode ist die Dampftrate schlecht kontrollierbar. Zur Erzeugung einer räumlich homogenen und zeitlich genau definierten Übersättigung der Atmosphäre kann das Volumen mit einem eingebauten Federbalgkompensator adiabatisch expandiert werden. Der Expansionshub beträgt 7 %, die Expansionsgeschwindigkeit ist variabel. Der Vorteil der Expansionsmethode besteht darin, daß Wandkondensation ausgeschlossen wird, d.h. daß auch in einem relativ kleinen Behälter reine Volumeneffekte gemessen werden können. Deshalb wurde die Expansionsmethode für die bisherigen Versuche in den meisten Fällen eingesetzt. Die Dampffreisetzungsraten lassen sich so einstellen, daß sie realistischen Verhältnissen entsprechen.

Das vordringliche Problem der Messung der Kondensationsrate am Aerosol wurde zuerst bearbeitet. Die Versuche wurden mit Platinoxidaerosol durchgeführt, das dem UO₂-Aerosol sehr ähnlich ist [3]. Die bisher durchgeführten Experimente decken den Temperaturbereich bis 130°C ab. Sie wurden mit sehr unterschiedlichen Aerosolkonzentrationen und Partikelgrößen durchgeführt sowie mit verschiedener Dampffreisetzungsraten. Die modelltheoretische Aussage wurde bestätigt, daß nicht alle Partikeln am Kondensationsprozeß teilnehmen. Die Ausbeute reicht von < 10 % bis zu fast 100 %.

Versucht man, diese Experimente mit dem NAUA-Modell nachzurechnen, so ergeben sich Abweichungen zwischen gemessener und berechneter Tröpfchenkonzentration, die bis zu einem Faktor 4 betragen und die außerdem bei jedem Versuch verschieden ausfallen. Der Kern des Problems besteht darin, daß die im Modell verwendete Gleichung das Kondensationsverhalten zwar über den größten Teil des Geschehens richtig wiedergibt, daß jedoch in der ersten sehr kurzen Phase des Beginns der Kondensation Abweichungen auftreten. Infolge von Kapillarkondensation in den Zwischenräumen der Aggregatpartikeln setzt die Kondensation früher ein, als vom Modell vorhergesagt.

Solche kurzfristigen Abweichungen lassen sich im allgemeinen durch Korrekturfaktoren berücksichtigen. Durch mehrfach iteriertes Nachrechnen haben wir diese Faktoren für alle Experimente bestimmt.

Das Ergebnis der Anpassung soll beispielhaft an einem Experiment demonstriert werden (Abb. 8). Die Abszisse ist die Expansion des Versuchsstandsvolumens. Die Expansion ist der Zeit und der zur Kondensation gebrachten Dampfmenge proportional. Als Ordinaten sind die Konzentration und der Durchmesser der Wassertröpfchen aufgetragen. Die Punkte sind Meßdaten, die Kurven sind mit NAUA gerechnet. Die Übereinstimmung ist ausgezeichnet.

Das wesentliche Ergebnis ist jedoch, daß es gelungen ist, den Faktor in der Modellgleichung so zu plazieren, daß er für alle Versuche den gleichen Wert annimmt, unabhängig vom Druck, von der Temperatur und von der Partikelgrößenverteilung des Aerosols. Der Korrekturfaktor ist nur noch abhängig vom Material und von der Form der Partikeln.

Weitere Experimente, die sich mit Kondensation an löslichen Partikeln befassen, haben begonnen. Dabei sind ebenfalls Abweichungen vom Modellansatz zu erwarten. Die Versuche sollen klären, wie groß die Korrekturfaktoren in diesem Fall sind. Da im Containment die Partikeln neben unlöslichen auch lösliche Bestandteile enthalten können, würde sich eine verstärkte Abscheidung durch höhere Kondensationsraten auf alle Spaltprodukte gleichmäßig auswirken.

6. Zusammenfassung

Das im LAF durchgeführte NAUA-Programm ist zur Zeit die einzige Aktivität zur Untersuchung des Verhaltens partikelförmiger Spaltprodukte in kondensierender Atmosphäre. Rechnungen mit dem NAUA-Code liefern zu jedem Zeitpunkt die Konzentration des Aerosols in der Nachunfallatmosphäre eines LWR-Containments. Insbesondere von Bedeutung ist das Ergebnis, daß hohe Freisetzung nicht konservativ ist. Dies gilt sowohl mit als auch ohne Berücksichtigung der Wasserdampfkondensation am Aerosol.

Der Einfluß der Kondensation bewirkt aber in jedem Fall eine deutliche Beschleunigung des Abbaus. Messungen zur Quantifizierung dieses Einflusses sind unterwegs. Ergebnisse wurden zur Korrektur der Modellgleichungen verwendet.

Weitere Versuche werden sich mit löslichen Aerosolen und mit Wandkondensation befassen.

Literatur

- [1] H. Bunz, G. Haury, C. Sack, W. Schöck
Halbjahresberichte des Projekts Nukleare Sicherheit:
1976/1, KFK 2375 (1976) / 1977/2, KFK 2600 (1978)
- [2] USNRC Reactor Safety Study, WASH 1400, NUREG 75/014 (1975)
- [3] H. Bunz, W. Schöck
Das Verhalten von hochkonzentrierten Aerosolsystemen in kondensierender Atmosphäre, 6. Jahreskongress der Gesellschaft für Aerosolforschung, Wien, 26.-28.9.1978

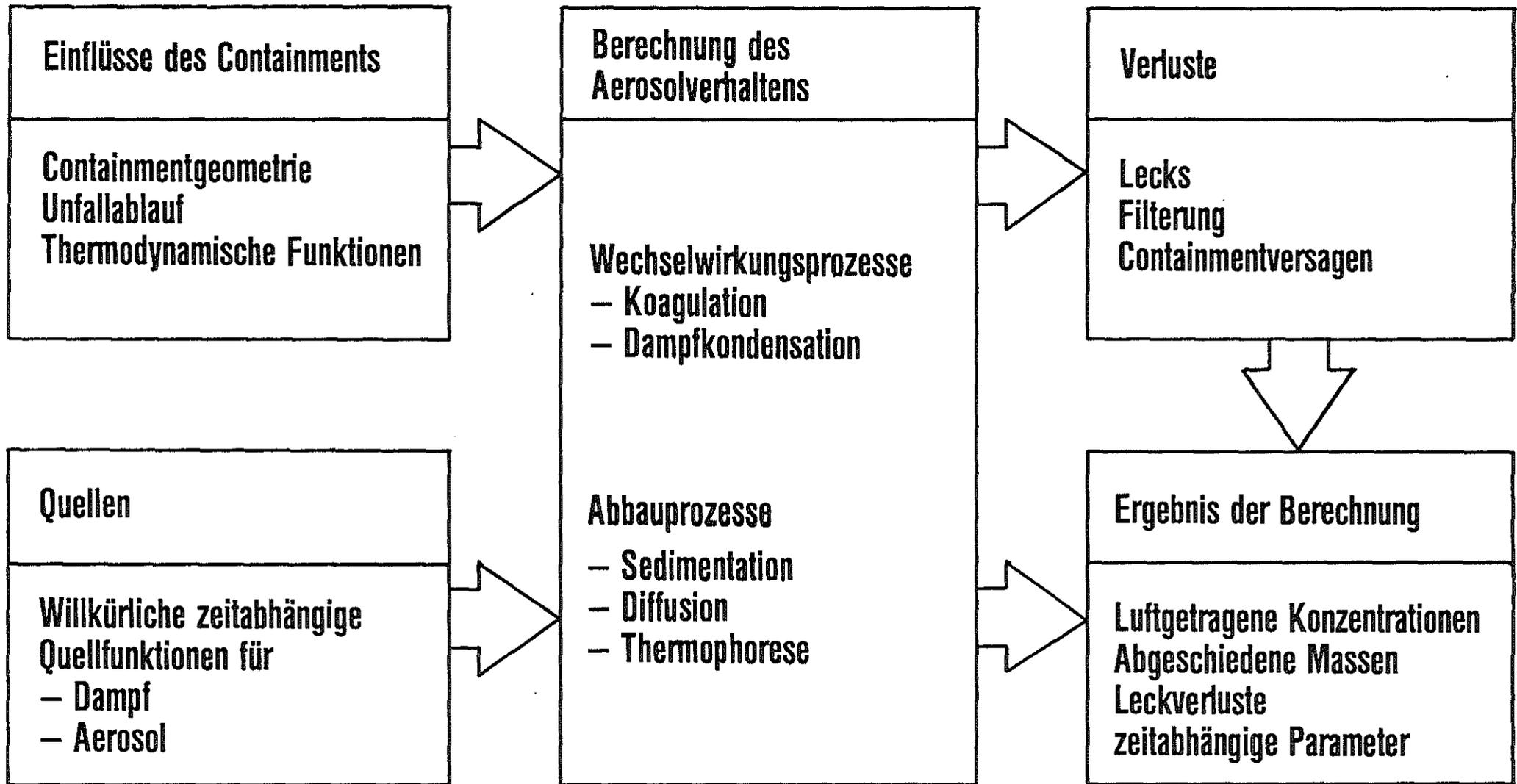


ABB. 1

Schema des NAUA-Codes

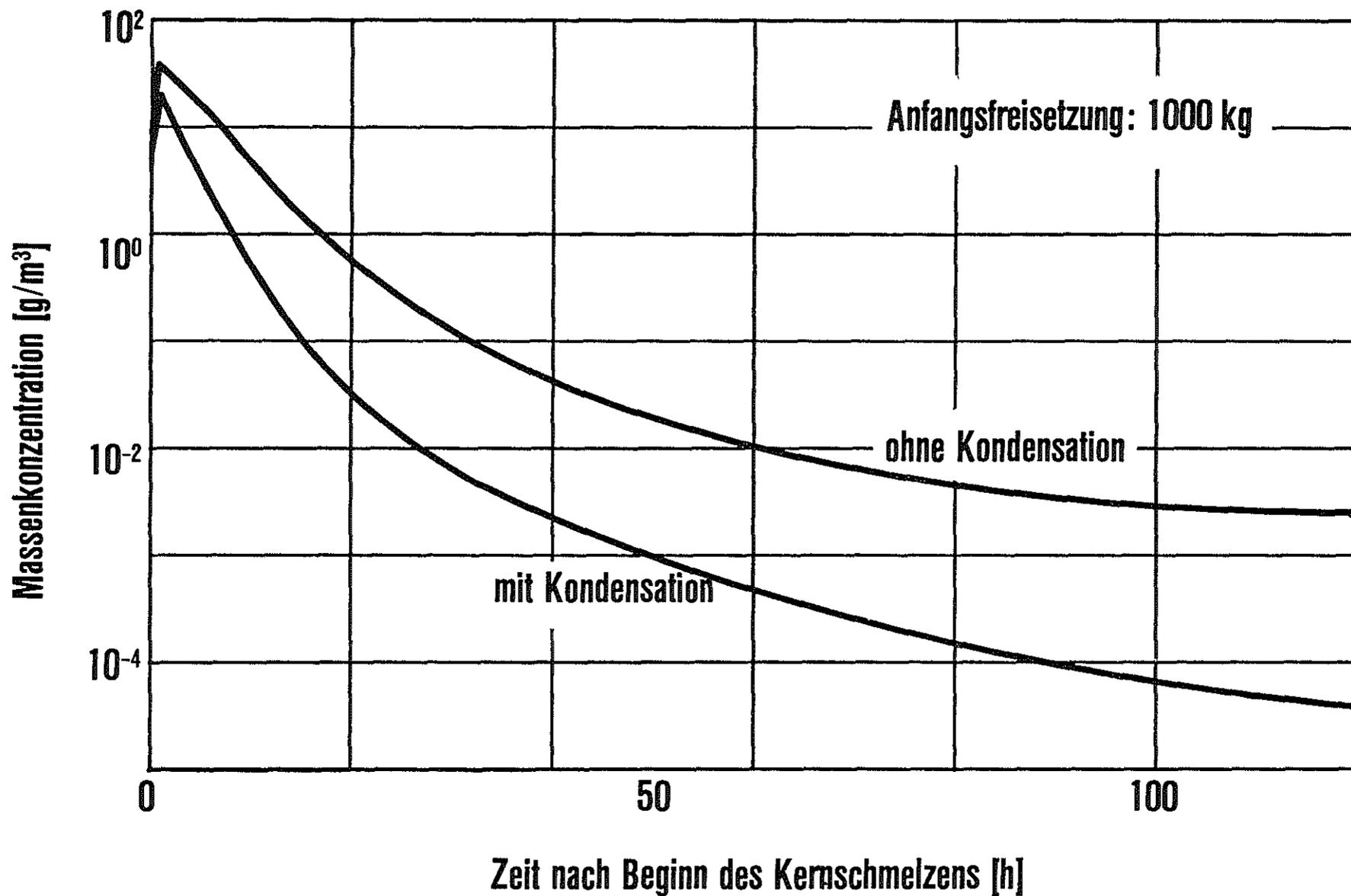


ABB. 2

Abbau der Massenkonzentration im Containment

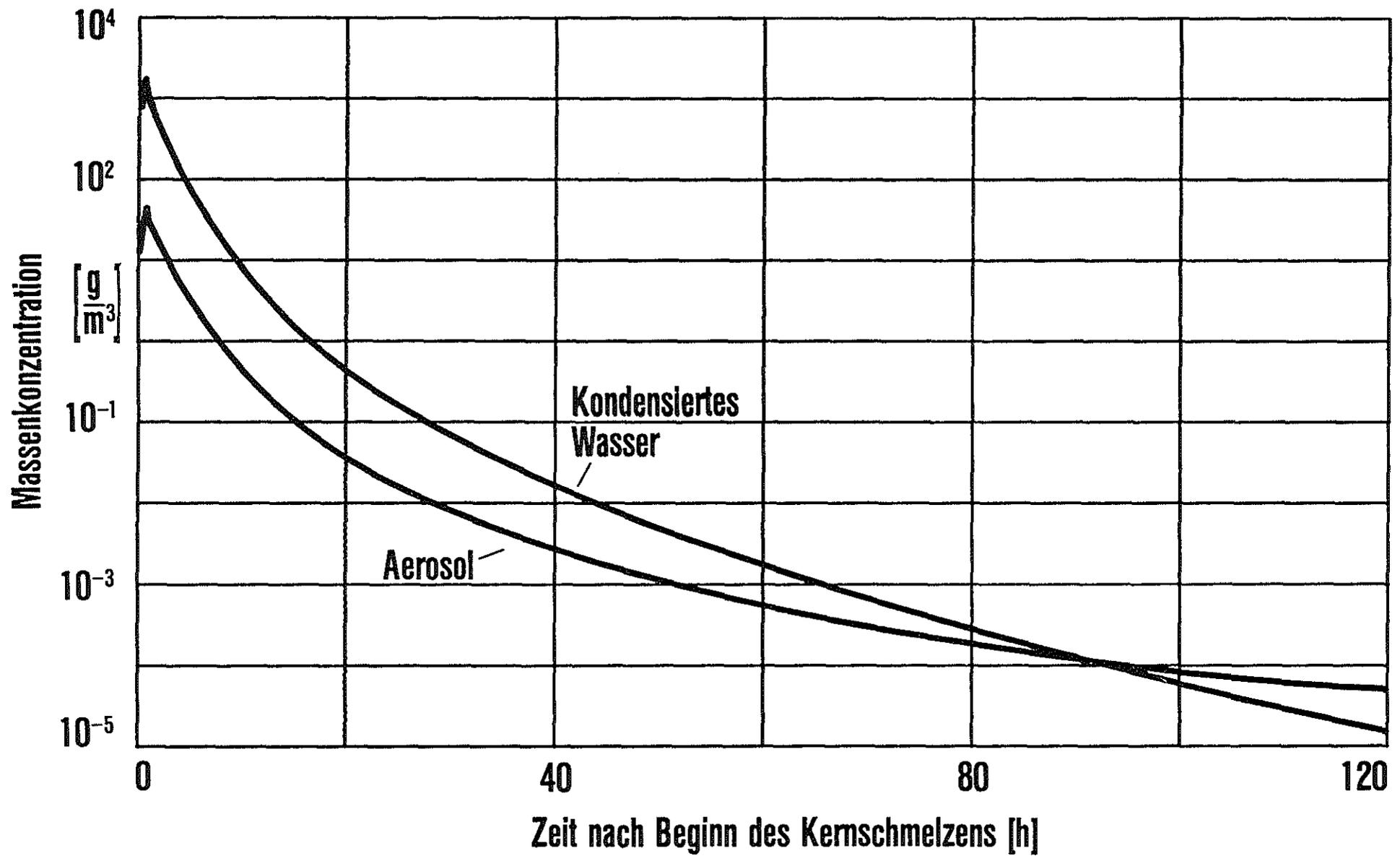


ABB. 3

Abbau der Massenkonzentration im Containment

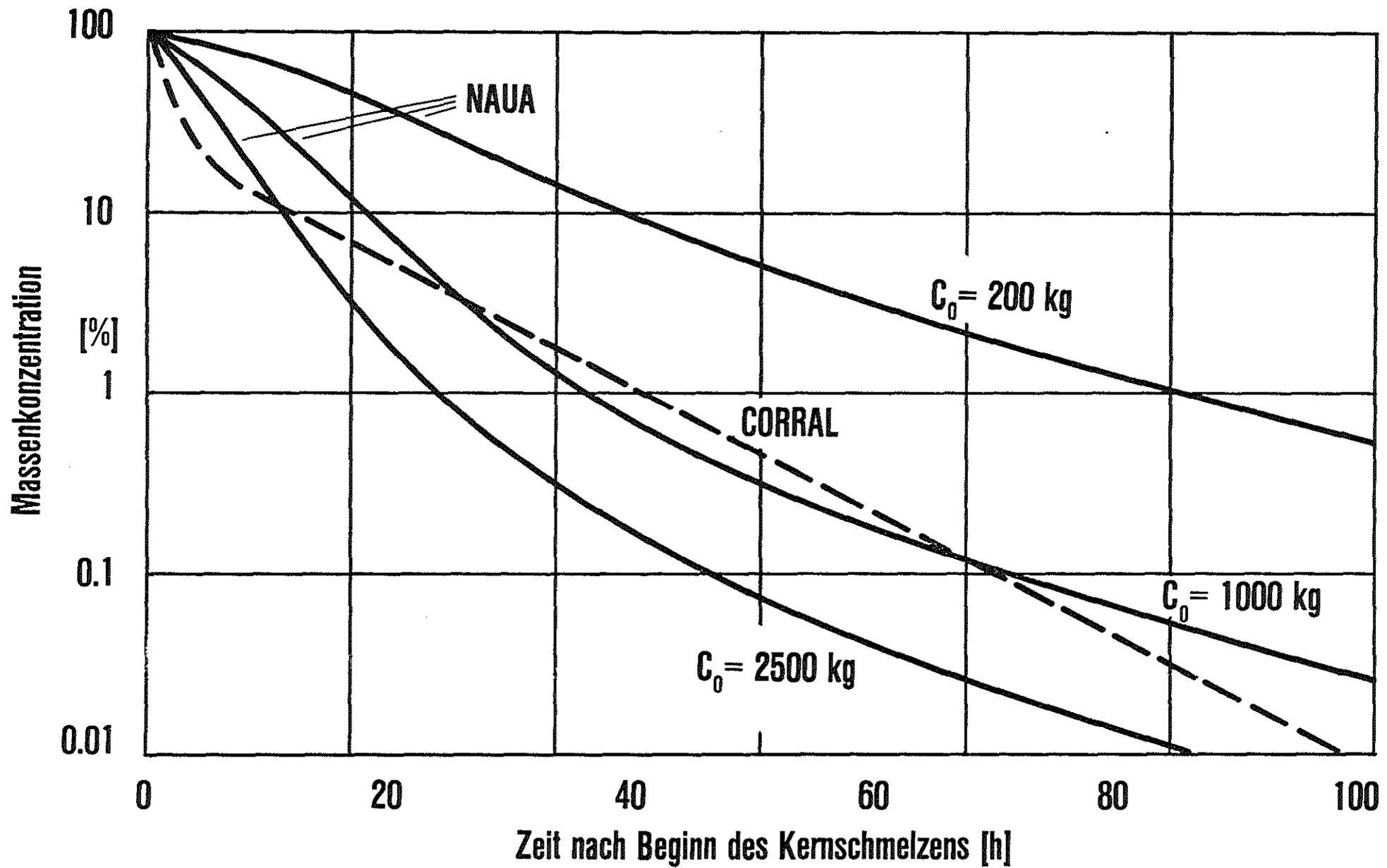


ABB. 4 **Massenkonzentration im Containment, Vergleich NAUA-CORRAL**

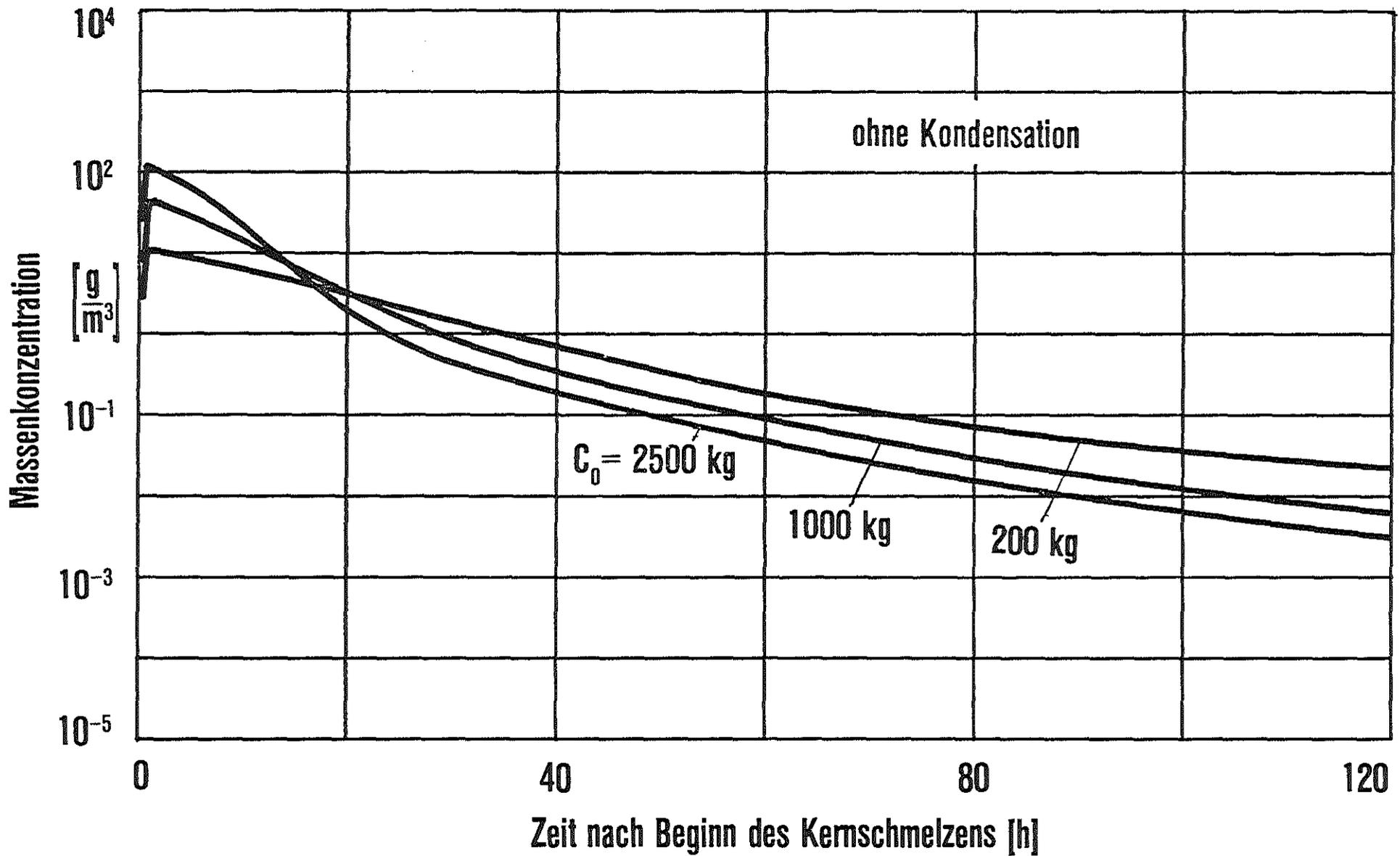


ABB. 5

Abbau der Massenkonzentration im Containment

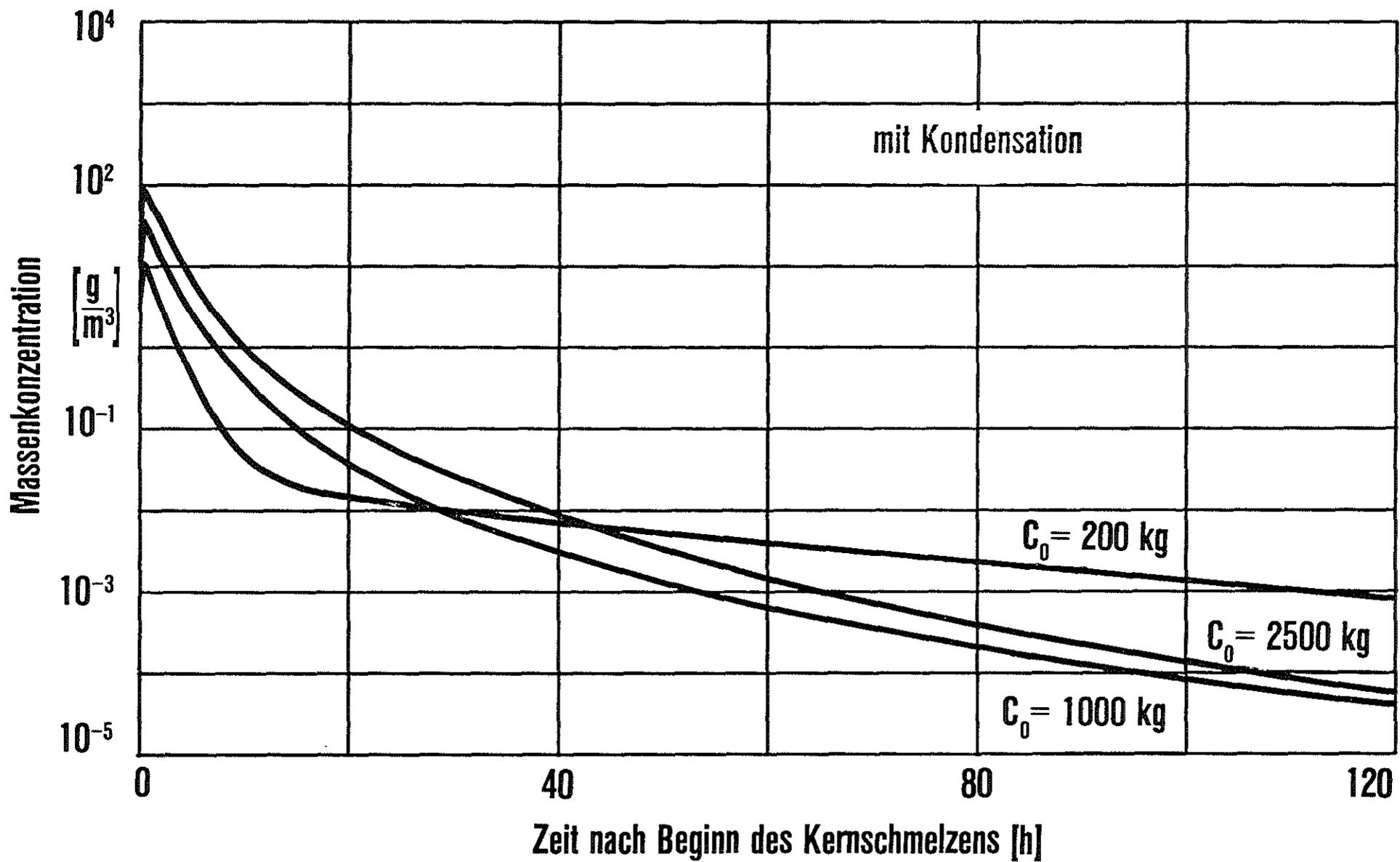


ABB. 6

Abbau der Massenkonzentration im Containment

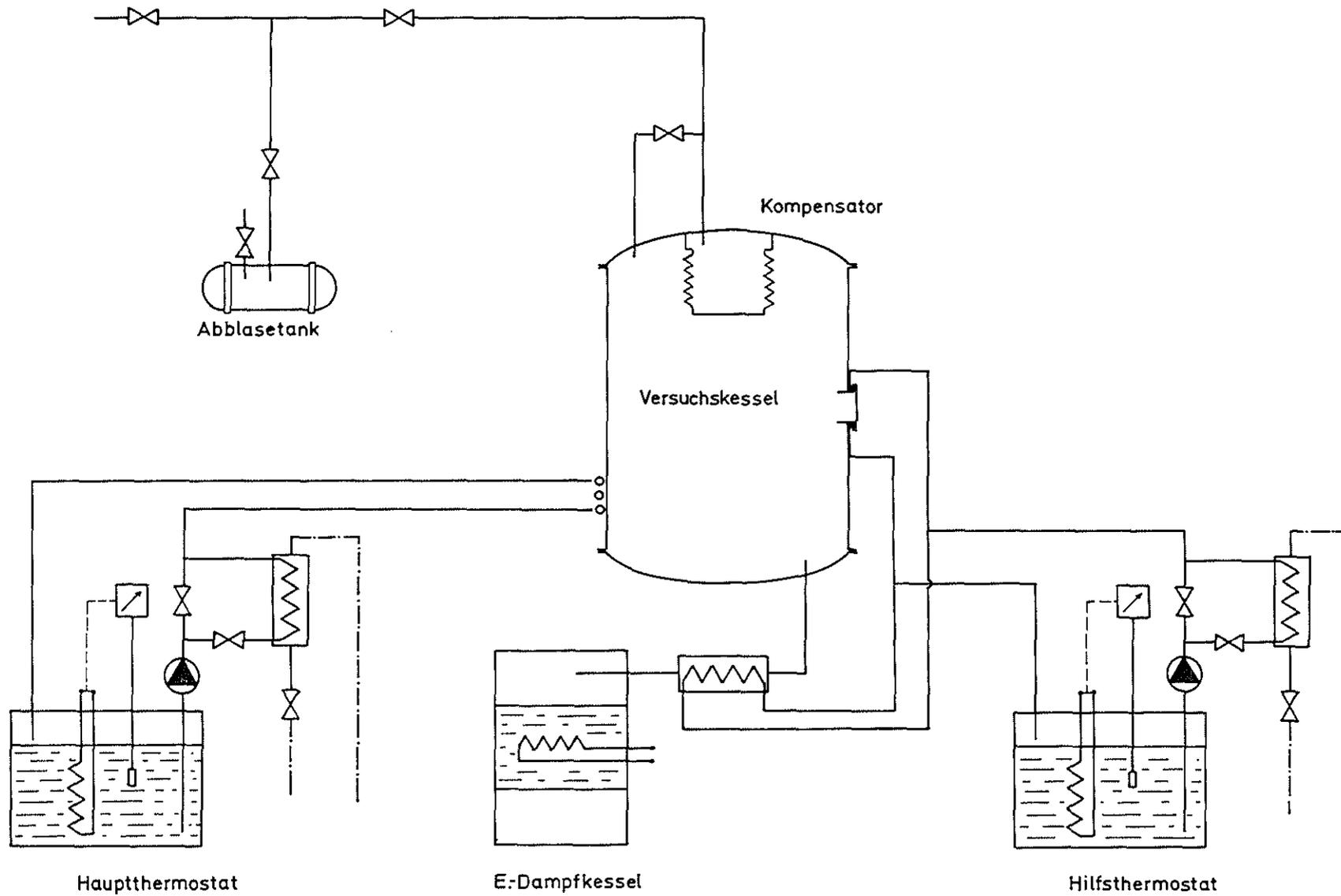


ABB. 7

Schema des NAUA-Versuchsstands

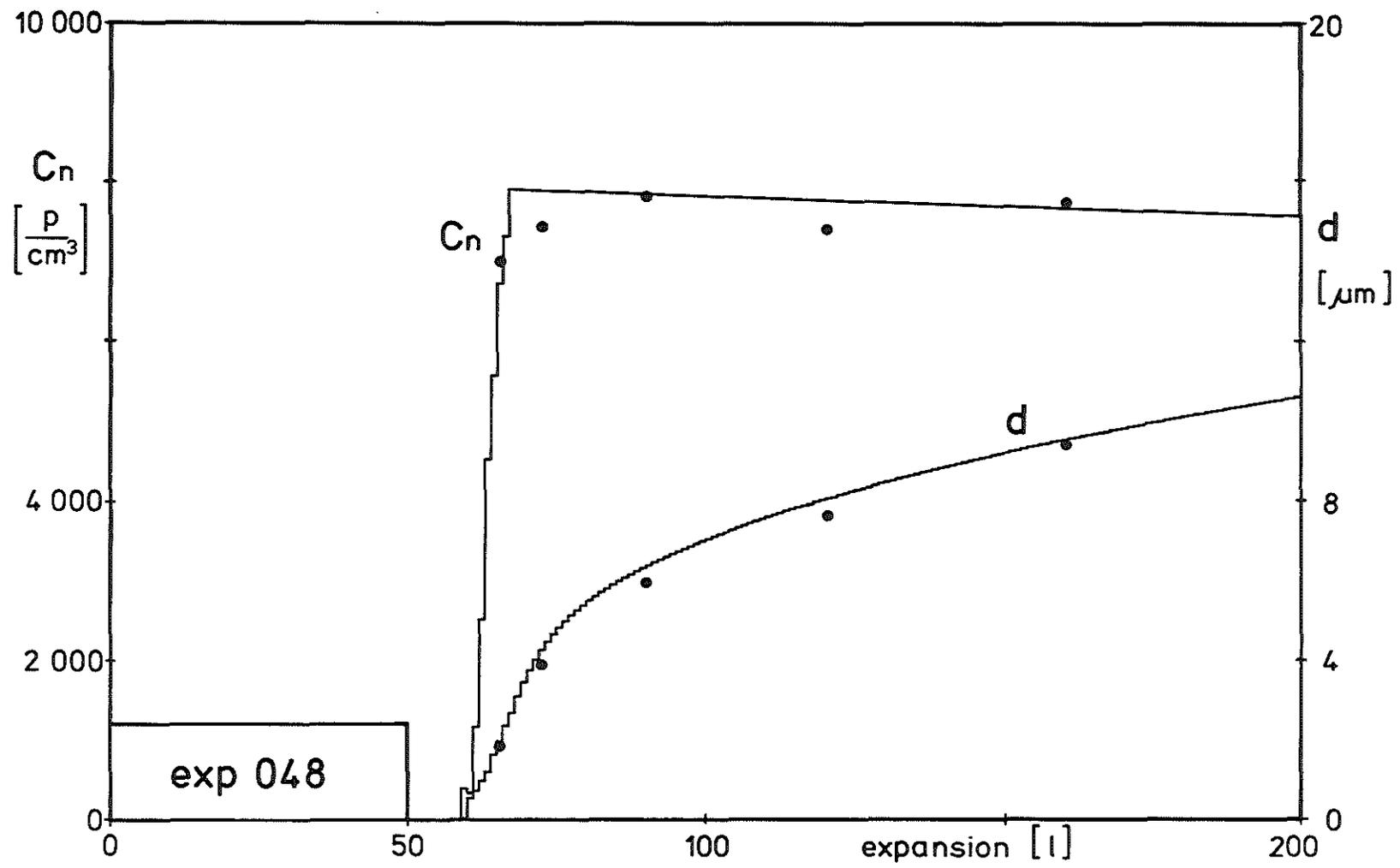


ABB. 8 Vergleich Experiment - Modelltheorie bei einem Expansionsexperiment

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT
JAHRESKOLLOQUIUM 1978

FORTSCHRITTE BEI DER VERBESSERUNG DER
SPALTPRODUKTRÜCKHALTUNG IN KERNKRAFTWERKEN
UND WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGEN

J.G. WILHELM

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
LABORATORIUM FÜR AEROSOLPHYSIK UND FILTERTECHNIK

FORTSCHRITTE BEI DER VERBESSERUNG DER SPALTPRODUKTRÜCKHALTUNG
IN KERNKRAFTWERKEN UND WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGEN

J.G. Wilhelm

Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik (LAF)
Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH

1. Abluftreinigung beim bestimmungsgemäßen Betrieb von Kernkraftwerken

Der heutige Stand der Filtertechnik ermöglicht es, durch den Einsatz von Schwebstoff- und Iod-Sorptionsfiltern grundsätzlich hohe Abscheidegrade unter den Bedingungen des bestimmungsgemäßen Betriebes zu erreichen. Schwierigkeiten entstehen allerdings durch die relativ kurze Standzeit der Iod-Sorptionsfilter, die einen großen Aufwand für die Überwachung der Filter und die Erneuerung des Sorptionsmaterials erforderlich macht. Außerdem fallen relativ große Mengen an Aktivkohle (A-Kohle) in Form von radioaktivem Abfall an, dessen Beseitigung zumindestens einen erheblichen Kostenfaktor darstellt. Durch die Arbeiten des LAF II konnte als Ursache des Leistungsabfalles der A-Kohle der Iod-Sorptionsfilter die Beladung mit organischen Schadstoffen, vorwiegend Lösungsmitteln, festgestellt werden. Durch gaschromatographische Analyse wurden einzelne Schadstoffe in der Abluft des Sicherheitsbehälters eines DWR qualitativ und quantitativ gemessen ¹⁾. Höchste Schadstoffkonzentrationen ergaben sich während und nach der Revisionsperiode. Außerdem wurden Oxidationsvorgänge nachgewiesen (z. B. Reaktion mit NO₂ und Ozon), durch die sowohl die A-Kohle selbst als auch ihre Imprägnierung in Richtung stark sinkender Abscheideleistung verändert wird.

Bei den großen Abluftmengen (Größenordnung 10³ bis 10⁵ m³/h), die zu filtern sind, scheiden kontinuierlich durchzuführende chemische Prozesse zur Beseitigung der organischen Schadstoffe, wie z. B. Verbrennung, aus. Da es sich bei den Schadstoffen um Gemische aus leicht- und schwer adsorbierbaren Stoffen handelt (Abb. 1), lag es nahe, durch eine dem Iod-Sorptionsfilter zusätzlich vorgeschaltete A-Kohleschicht die schwerflüchtigen Schadstoffe aus der Filterzuluft zu entfernen und weiter durch Erhöhung der Filterbett-Tiefe des eigentlichen Radioiodfilters die unvermeidbare Beladung mit leichtflüchtigen Schadstoffen auszugleichen. Durch diese Auslegung kann die Filterstandzeit und damit auch die Sicherheit der Abluftfilterung erheblich erhöht werden.

Durch die zusätzlich für die Filterung benötigte A-Kohle entsteht aber nach wie vor ein erheblicher Anfall an radioaktivem Abfall.

Eine Verbesserung könnte hier durch eine in-situ Regeneration der A-Kohle erreicht werden. Umfangreiche Untersuchungen zur Regeneration ergaben nur bei A-Kohlen, die im Labor mit einzelnen Schadstoffen beladen wurden, gute Ergebnisse. Probefilter aus der Abluft des Sicherheitsbehälters eines DWR zeigten auch nach 8 Monaten Beaufschlagungsdauer und regelmäßiger Durchführung von Desorptionszyklen (mit Erhitzung von Filter und Filterzuluft) keine unterschiedliche Abscheideleistung gegenüber solchen Filtern, die nicht dem Desorptionsprozeß unterworfen wurden ¹⁾. Beispielsweise wurde an einem 25 cm tiefen A-Kohlefilter ein Abfall des Abscheidegrades von 99,998 % auf 99,8 %, also um 2 Größenordnungen, gemessen, und zwar unabhängig von der Zahl der Desorptionszyklen ¹⁾.

Als optimales, inzwischen patentiertes und in Lizenz gebautes Filter wurde das Mehrweg-Sorptionsfilter (MWS-Filter) entwickelt, das eine wesentlich erhöhte Standzeit durch weitgehende Ausnutzung der A-Kohle und damit Minimierung des Abfalles bei Aufrechterhaltung eines hohen Abscheidegrades ermöglicht ²⁾. Abb. 2 zeigt das Prinzip des Filters, Abb. 3 die für KKW entwickelte Bauform. Die Abluftanlage eines DWR mit einem Durchsatz von 90.000 m³/h wird mit MWS-Filtern ausgestattet. Die einschlägigen Arbeiten des letzten Jahres dienten der Optimierung der Filterauslegung.

2. Abluftreinigung nach schweren Störfällen

Bei Einhaltung der Leckraten des Sicherheitsbehälters treten Belastungen der Störfallfilter auf, die mit den heute vorhandenen Komponenten der Filterstrecken sicher beherrscht werden. Im Gegensatz dazu können bei stark erhöhter Leckage des Sicherheitsbehälters sowie einer u. U. notwendig werdenden Druckentlastung die Abluftfilter mit Dampf, Temperatur und Aktivität soweit belastet werden, daß sie versagen.

In Dauerversuchen ³⁾ wurde vom LAF II nachgewiesen, daß mit Hilfe anorganischer Iod-Sorptionsmaterialien auch extreme Bedingungen bei Kühlmittelverlust-Störfällen in Hinsicht auf die Abscheidung von gasförmigem Radioiod beherrscht werden können, wenn durch Tropfenvorabscheidung und Erhöhung des Taupunktabstandes (durch Erwärmung der Filterzuluft) geeignete Abscheidungsbedingungen eingestellt werden. In Tab. I sind die unter extremen Feuchte-, Temperatur- und Druckbedingungen in Langzeitversuchen erreichten Abscheidegrade angegeben.

Grundbedingung für die Funktion der Iod-Sorptionsfilter ist eine vorausgehende Tropfen- und Schwebstoffabscheidung. Die Optimierung von Tropfenabscheidern ⁴⁾ mit hoher Leistung bei niedrigem Druckabfall konnte vom LAF II erfolgreich abgeschlossen werden. Die in Tab. II angegebenen Abscheidegrade wurden mit einem optimierten Tropfenabscheider erreicht, dessen Komponenten ausschließlich aus Edelstahl bestehen. Ein Versagen bei extrem hoher Strahlendosis, wie es bei käuflich angebotenen Feintropfenabscheidern vergleichbarer Leistung zu erwarten ist, kann damit ausgeschlossen werden.

Zur Zeit läuft ein Versuchsprogramm zum Verhalten von Schwebstofffiltern der Klasse S unter Störfallbedingungen, die eine Kombination von extrem hoher Luftfeuchte, erhöhter Temperatur und steilem Druckanstieg einschließen. Untersuchungen zur Abluftfilterung eines belüfteten Sicherheitsbehälters bei Unfällen mit Kernschmelzen sind geplant.

3. Bestimmung der verschiedenen Komponenten des Radioiods in der Abluft kerntechnischer Anlagen

Bei Anwendung der heute üblichen Rechenmodelle zur Ermittlung der Umgebungsbelastung durch KKW zeigt sich, daß die Abgabe von Radioiod in Höhe der Antragswerte zu Strahlendosen führen kann, die einen wesentlichen Anteil des zulässigen Dosisgrenzwertes erreichen. Bei Mehrblockanlagen oder besonderen Ausbreitungsbedingungen, z. B. Tallage des KKW, kann die ¹³¹I-Abgabe zum einschränkenden Faktor für den Betrieb des KKW werden. Bei keinem anderen mit der Kaminfortluft abgegebenen Radionuklid liegen die errechneten Strahlendosen und der Dosisgrenzwert nach § 45 der Strahlenschutzverordnung vergleichbar dicht beieinander.

Von wesentlichem Einfluß auf die Strahlendosis sind die chemischen und physikalischen Komponenten des luftgetragenen Radioiods, da sie das Abscheidungsverhalten von Iod an Weidepflanzen und damit die für die Strahlenbelastung entscheidende Ingestion von Radioiod über den Weide-Kuh-Milchpfad bestimmen. Die Abscheidungsgeschwindigkeiten von elementarem, aerosolförmigem und organisch gebundenem Iod verhalten sich wie 100 : 10 : 1. Dieses Verhältnis geht direkt in die Strahlenexposition über Luftpfad und Ingestion ein. Solange die in der Fortluft auftretenden Komponenten des Radioiods nicht quantitativ bestimmt werden können, muß konservativerweise mit einer Radioiodabgabe in ausschließlich elementarer Form gerechnet werden.

Durch die Entwicklung von diskriminierenden Iodsammlern, die eine quantitative Auftrennung des luftgetragenen Iodgemisches in die bereits genannten Komponenten elementares, aerosolförmiges und organisch gebundenes Iod erlauben, wurden einschlägige Messungen in der Kaminfortluft, und, zur weiteren Klärung, in den einzelnen Abluftströmen von KKW möglich^{5, 6)}. Die diskriminierenden Iod-sammler (Abb. 4) bestehen aus einem Schwebstofffilter und nachgeschalteten Filterbetten aus verschiedenen Iod-Sorptionsmaterialien, die elementares und organisch gebundenes Iod selektiv abscheiden und damit der diskreten Messung zugänglich machen.

Die einwandfreie Trennung der Iodkomponenten und ihre praktisch vollständige Abscheidung wurde in einem Temperaturbereich von 10 - 70°C und für relative Luftfeuchten zwischen 20 und 80 % nachgewiesen, so daß ein weiter Bereich unterschiedlicher Ab- und Raumluftbedingungen beherrscht werden kann.

Über einen Zeitraum von 1 Jahr wurden Messungen in der Kaminfortluft von zwei Druckwasserreaktoren durchgeführt. Weitere Untersuchungen in einzelnen Abluftströmen dienten der Aufklärung der Herkunft der Iodformen und ermöglichten Aussagen zur Verbesserung des Lüftungs- und Filterkonzeptes.

Nach einem SWR-Störfall mit Freisetzung von Kühlmittel wurden kontinuierliche Messungen in der Kaminfortluft während eines Zeitraums von 8 Wochen durchgeführt.

Im folgenden werden einige Meßergebnisse zusammengefaßt.

- Die Anteile an elementarem Iod in der Kaminfortluft der zwei DWR -KKW lagen im Jahresmittel bei Jahresabgaben, die weit unter den Genehmigungswerten liegen, bei 40 bzw. 60 % (Abb. 5 u. 6). Bei Leistungsbetrieb stammte der Hauptanteil des elementarem Iodes bei einem DWR aus der Abgabe ungefilterter Abluft der Probenahmestellen des Primärkühlmittels (Abb. 7). Eine Filterung dieses relativ kleinen Abluftstromes mit einem Iodfilter würde zu einer Senkung der Umgebungsbelastung bei Leistungsbetrieb um den Faktor 4 führen, während durch das vorhandene Filtersystem der Sicherheitsbehälter-Unterdruckhaltung nur eine vergleichsweise geringe Reduktion um 8 % erreicht wurde, da in der Filterzuluft fast ausschließlich organisch gebundenes Radioiod auftrat. Aufgrund der Meßergebnisse wird das Lüftungskonzept verbessert.
- Ein plötzlicher Anstieg des Anteiles an elementarem Iod auf 80 % fiel mit einer Erhöhung der Kühlmittelaktivität durch eine Reaktorabschaltung zusammen.

- Nach dem SWR-Störfall (Beginn der Messung 1 Woche nach Störfalleintritt) sank der Anteil des elementaren Iodes in der Kaminfortluft von fast 50 % auf 10 . Durch die Entnahme von Brennelementen aus dem BE-Lagerbecken und Öffnen des Reaktordruckbehälters wurde jeweils ein Ansteigen des Anteiles an elementarem Iod verursacht.
- In allen Messungen war der Anteil an schwebstoffförmig auftretendem Radioiod gering und lag meistens unter 1 %.

4. Prüfung und Überwachung von Iod-Sorptionsfiltern und Schwebstofffiltern in KKW

Durch Einführung der diskriminierenden Iodsammler in die Filterprüfpraxis kann der Prüfaufwand wesentlich verringert werden, da das Meßverfahren so empfindlich ist, daß in vielen Fällen die Filterabscheidegrade vor Ort mit dem ohnehin in der Abluft vorhandenen Radioiod selektiv für elementares und organisch gebundenes Iod gemessen werden können. Damit entfällt die Herstellung und Einspeisung von radioaktivem Prüfmittel ($\text{CH}_3^{131}\text{I}$). Außerdem kann bei Betriebsfiltern in der Regel die kosten- und zeitaufwendige Bestimmung des Abscheidegrades über Kontrollfilteruntersuchungen im Labor entfallen und ein zuverlässigeres Ergebnis erhalten werden.

Ein Prüfverfahren zur Vor-Ort-Prüfung großer Schwebstoff-Filteranlagen wurde vom LAF II erstmals in Biblis angewandt und ermöglichte die Prüfung von Schwebstoff-Filteranlagen, die aufgrund ihres großen Durchsatzes mit anderen Verfahren nicht überwacht werden können ⁷⁾.

5. Filterung der Abgase von Wiederaufarbeitungsanlagen (WAA)

5.1. Spaltiod und Schwebstoff-Abscheidung

Die größte gasgetragene Aktivität einer WAA liegt im Auflöserabgas vor. Es ist durch das gesamte Edelgasinventar der Brennstäbe, praktisch das gesamte Inventar an Spaltiod und einen Anteil von $< 10^{-4}$ des Brennstoffes und der sonstigen Spaltprodukte, die nur als Schwebstoffe auftreten, kontaminiert. Außerdem wird ^{14}C und ^3H freigesetzt. Weiter können, abhängig von der Führung des Auflöserprozesses, Anteile des Ruthens gasförmig als RuO_4 auftreten.

Am weitesten ist die Iodabscheidung aus dem Auflöserabgas entwickelt ⁸⁾. Seit September 1975 werden in der WAK von Hand zu wechselnde Iodfilter mit dem anorganischen Iod-Sorptionsmaterial AC 6120 eingesetzt.

Sie zeigten Dekontaminationsfaktoren $> 10^3$ (bei neuen Filtereinsätzen $> 10^4$), gute Ausnutzung des Sorptionsmaterials und eine Standzeit, die im wesentlichen durch die Beladung mit Iod bestimmt wird.

In Laborversuchen wurde nachgewiesen, daß mit dem Iod-Sorptionsmaterial AC 6120/H₁ auch bei hohen Iodkonzentrationen, die im Abgas einer großen WA auftreten, eine Abscheidung mit hohen Dekontaminationsfaktoren erreicht werden kann und das in der Imprägnierung des AC 6120/H₁ enthaltene Silber zu ca. 90 % mit Iod umgesetzt wird. Schwankungen der Abgaszusammensetzung haben in einem weiten Bereich keinen wesentlichen Einfluß auf die Kapazitätsausnutzung und den Abscheidegrad.

Das Konzept der Abgasstrecke für eine große WA konnte mit Zustimmung des zukünftigen Herstellers und Betreibers festgelegt werden. Vom LAF II und IT wurde eine Filterstrecke zur Schwebstoff-(Tropfen- und Feststoff-Aerosol) und Iodabscheidung aus dem Auflöserabgas, bestehend aus fernbedienbaren Filtereinheiten im Maßstab 1 : 1 entwickelt und erstellt. Wesentliche Auslegungsziele für ihre Funktionen waren:

- hoher Abscheidegrad der in zwei Stufen erfolgenden Tropfenabscheidung als Voraussetzung für die möglichst vollständige Rückführung der abgeschiedenen, Spaltprodukte und Brennstoff enthaltenden Flüssigkeit in den Aufarbeitungsprozeß,
- Reduktion des Anfalles an radioaktiven Aerosolen am Schwebstofffilter zur Erhöhung der Standzeit des Filtereinsatzes, der nach Ende der Betriebszeit in den festen Abfall überführt wird,
- Reduktion der Ortsdosisleistung der Iodfilter durch weitgehende Vorabscheidung der γ -Strahler enthaltenden Schwebstoffe.

Die Filterstrecke besteht aus Grob- und Feintropfenabscheider, Schwebstofffilter der Klasse S, zwei in Reihe geschalteten Iod-Sorptionsfiltern und einem nachfolgenden Schwebstofffilter zur Rückhaltung von eventuell auftretendem Abrieb des Sorptionsmaterials im Iodfilter. Abb. 8 u. 9 zeigen den Feintropfenabscheider und die Iod-Sorptionsfilter in der fernbedienbaren 1 : 1 Ausführung mit dem von IT entwickelten Deckel.

Alle Filter (bis auf den nicht zu wechselnden Grobtropfenabscheider) wurden für den Einsatz in Filterkesseln gleichen Durchmessers ausgebildet. Ihre Abmessungen erlauben das Einbringen der verbrauchten Filter in die üblichen 200 l Rollreifenfässer für radioaktiven Abfall bei voller Ausnutzung des Faß-Innenvolumens. Weiter waren folgende Anforderungen zu erfüllen:

- weitgehend kontaminationsfreier Wechsel aller Filter mit einem Fernbedienungsmechanismus,
- redundante Ausbildung des Mechanismus zur Öffnung der Filterkessel (hydraulisches Betriebs- und mechanisches Notbetriebssystem),
- automatische Verriegelung der Filterkessel-Deckel gegen Öffnen bei störfallbedingten Druckstößen,
- kontinuierliche Überwachung des Dichtsitzes jedes Filtereinsatzes während des Betriebes,
- Dekontaminierbarkeit aller Filterkessel und Entfernung von lose anhaftender Kontamination der Filter vor dem Wechsel.

Zur Erprobung der im Maßstab 1 : 1 gebauten Filterstrecke für das Auflöserabgas einer großen WA wurde die Versuchsanlage PASSAT⁹⁾ errichtet, in der die einzelnen Filtereinheiten und die gesamte Filterstrecke im Verbundbetrieb unter simulierten WA-Bedingungen erprobt werden kann (Abb. 10).

Die PASSAT konnte im September d. J. erstmalig in Betrieb genommen werden. Die erste Versuchsphase gilt der Optimierung des Feintropfenabscheiders in Hinsicht auf Abscheidegrad, Druckabfall und Abreinigung (Abb. 11). Es handelt sich um einen Fasermattenabscheider, der Tropfen mit einem Durchmesser von $< 10 \mu\text{m}$ mit Abscheidegraden von $\gg 99 \%$ aus dem Abgas entfernen soll. Die z. Z. laufenden Versuche werden mit einem Tropfenaerosol, das vorwiegend aus Tropfen mit einem Durchmesser zwischen 1 und $5 \mu\text{m}$ besteht, durchgeführt. Die bisher gemessenen Abscheidegrade liegen weit über $99,9 \%$ und lassen ggf. eine Reduzierung der Tiefe der Faserschicht zu.

Das zukünftige Versuchsprogramm schließt die Erprobung neu entwickelter Schwebstofffilter der Klasse S mit erhöhtem Abscheidegrad und der Iodfilter ein. Hier sind vor allem die Iodverteilung im Filter und die optimalen Bedingungen für den Spülgaszyklus zu ermitteln, der zur Dekontamination der Außenflächen des Filters vor dem Wechsel benötigt wird. Ein wesentlicher Anteil des PASSAT-Versuchsprogrammes besteht in der Erprobung der Fernbedienungs-einrichtungen für den Wechsel, das Ausschleusen und die Verpackung der kontaminierten Filter.

5.2. Abtrennung der Spalteredelgase aus dem Auflöserabgas

Während der vorgesehenen Lagerzeit der aufzuarbeitenden Brennelemente zerfallen alle radioaktiven Edelgasisotope bis auf ^{85}Kr . Dieses kann nach der Schwefel- und Iodentfernung aus dem Auflöserabgas und einer Vorreinigung von restlichen Bestandteilen wie H_2O , NO_x , CO_2 und KW durch Tieftemperatur-Rektifikation (TTR) abgetrennt werden.

Vom IHCh wird z. Z. in Zusammenarbeit mit IT die Abtrennung von Krypton in einer TTR-Anlage aus zwei hintereinandergeschalteten Trennsäulen untersucht. Die erste Säule trennt Kr und das ebenfalls im Auflöserabgas vorhandene Xe vom Trägergas, das bei dem gewählten Verfahren an dieser Stelle nur noch aus N_2 besteht, ab. In der zweiten Trennsäule wird das Xe von Kr getrennt.

Die Vorreinigung des Abgases schließt bei der untersuchten Verfahrensvariante eine katalytische Reduktion des NO_x und O_2 mit H_2 zu N_2 und H_2O und die Adsorption von H_2O und CO_2 an Molsieben ein. Ein Ru-Katalysator befindet sich in der Erprobung. Durch den Reduktionsschritt kann auch CO_2 , das im Auflöserabgas ^{14}C enthält, zu Methan reduziert werden. Diese Umsetzung soll soweit wie möglich unterdrückt werden, um die Anreicherung von Methan in der 1. Trennsäule zu verhindern und eine Abscheidung von ^{14}C in Form von leicht adsorbierbarem $^{14}\text{CO}_2$ sowie Überführung in eine feste Form zu ermöglichen.

Die Ergebnisse von Laborversuchen zur katalytischen Reduktion von CO_2 mit H_2 ^{10,11)} führten zu folgenden Randbedingungen für den Betrieb des Ru-Katalysators:

- Bei insgesamt reduzierender Atmosphäre muß O_2 in geringen Mengen im Gasgemisch enthalten sein (Abb. 12).
- Der H_2 -Überschuß über den zur Reduktion von NO_x und O_2 benötigten stöchiometrischen Gemischanteil muß so gering wie möglich sein.
- Die Betriebstemperatur des Katalysators muß bei Temperaturen $> 400^\circ\text{C}$ liegen (Abb. 13).

Weitere Untersuchungen gelten dem Methan-Konzentrationsprofil, das sich bei geringen Restanteilen an Methan in der 1. Trennsäule der TTR-Anlage einstellt.

Ein entscheidendes Problem für den Betrieb der TTR-Anlage nach Vorabscheidung des O_2 zur Vermeidung von Ozonbildung ist durch das Ausfrieren von Xe aus dem Dreikomponentensystem N_2 -Kr-Xe in der 1. Trennsäule gegeben. Neue Erkenntnisse mit hohem und niedrigem Kryptonanteil (6500 und 167 vpm im Speisegas) zeigten,

daß eine Variation der Kr-Konzentration (die durch Kr-Rückführung erreicht werden könnte) innerhalb dieser Grenzen keinen Einfluß auf das Ausfrieren von Xenon und damit die Verlegung der 1. Trennsäule hat (Abb. 14), da es sich im Eintrittsbereich des Speisegases in die Kolonne um ein Ausfrieren aus der Gasphase (Desublimation) handelt^{11,12}). Ausfrierungen aus der Flüssigphase wurden bis zu einer Konzentration von 80 % Xe und 20 % Kr im Sumpfbehälter der ersten Trennsäule nicht festgestellt.

Zur Vermeidung von Xe-Ausfrierungen im Eintrittsbereich der 1. Trennsäule von KRETA werden folgende Maßnahmen durchgeführt.

- Konstruktive Veränderung der Trennsäule (größere Öffnungsquerschnitte), die dazu führt, daß Ausfrierungen geringen Umfangs nicht mehr Verlegungen verursachen können,
- Einleitung des Speisegases in einem Bereich höherer Kolonnentemperatur.

Zum Abklingen des abgetrennten ^{85}Kr ($T_{1/2} = 10,8$ a) ist eine Lagerung in Druckgasflaschen vorgesehen. Aus dem radioaktiven Krypton entsteht durch β -Zerfall das Alkalimetall Rubidium, das eine Korrosion der Druckgasflasche verursachen könnte. Vom IRCh werden gemeinsam mit dem IMF II Korrosionsversuche an verschiedenen Druckgefäßen aus Normal- und Edelstahl mit Rb, $\text{Rb} + \text{Rb}_2\text{O}$, Na und $\text{Na} + \text{Na}_2\text{O}_2$ unter Argon durchgeführt. Bei den Versuchstemperaturen von 150 und 200°C liegt Rb, das bei 38,9°C schmilzt, in flüssiger Phase vor und es tritt ein nennenswerter Rb-Partialdampfdruck auf. Erste Untersuchungen von Druckbehältern nach 3000 h Standzeit bei 150°C und 150 bar werden z. Z. ausgewertet.

Die beschriebenen Versuche werden mit längeren Standzeiten fortgesetzt. Weitere Untersuchungen mit höherem Flascheninnendruck sowie zum Einfluß von RbOH , N_2 , NO_x und energiereicher Strahlung werden vorbereitet.

Zur Eignung von Zeolithen zur Lagerung von ^{85}Kr wird im kommenden Jahr berichtet.

6. Zusammenfassung wesentlicher Ergebnisse

Bestimmungsgemäßer Betrieb von KKW:

Neue Filterkonstruktion (MWS-Filter) führt zur Reduktion der Filtervergiftung durch maximale Kapazitätsausnutzung der A-Kohle bei Aufrechterhaltung hoher Abscheideleistung.

Filterentwicklung für Störfälle von KKW, die über den Auslegungstörfall hinausgehen:

Eignung anorganischer Iod-Sorptionsmaterialien nachgewiesen, Feintropfenabscheider entwickelt.

Bestimmung von Radioiodkomponenten:

Meßmethode entwickelt und angewandt. Meßergebnisse ermöglichen Verbesserung des DWR-Lüftungskonzeptes und realistischere Berechnung der Umgebungsbelastung.

Prüfung und Überwachung von kerntechnischen Filteranlagen:

Neue, verbesserte Überwachungsmethode für Iod-Sorptionsfilter in KKW entwickelt und in Anwendung.

Prüfverfahren für große Schwebstoff-Filteranlagen weiter entwickelt und in das Genehmigungsverfahren eingeführt.

Auflöserabgasfilterung in WA:

Prototyp-Iod-Sorptionsfilter in WAK seit Sept. 1975 erfolgreich im Einsatz. Verfahren zur Schwebstoff- und Iodfilterung in GWA mit Komponenten im Maßstab 1 : 1 in PASSAT in Erprobung.

Vorreinigungsschritte für Edelgasabtrennung in ADAMO und KRETA in Erprobung. Reduktion von CO_2 zu CH_4 am Ru-Katalysator durch Beeinflussung der Abgaszusammensetzung und Temperatur des Katalysators vermeidbar. Verlegungen in der $\text{N}_2/\text{Kr-Xe}$ -Trennsäule durch Xe-Ausfrierung apparatespezifisch lösbar.

Literatur

- 1) J. Furrer, R. Gerhard, R. Kaempffer, J.G. Wilhelm, Alterung und Vergiftung von Iod-Sorptionsmaterialien, PNS-Halbjahresbericht KFK 2700, im Druck.
- 2) M. Ohlmeyer, J.G. Wilhelm, Filteranlage zum Reinigen von Gas- oder Luftströmen, DT/PS 25 40 141 (Erteilungsbeschuß 11.9.1978).
- 3) H.-G. Dillmann, H. Pasler, Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spaltprodukten aus der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre, PNS-Halbjahresbericht KFK 2375, S. 121-127 (Nov. 76).
- 4) H.G. Dillmann, H. Pasler, A. Weinert, Entwicklung eines Tropfenabscheiders für Störfallbedingungen, PNS-Halbjahresberichte KFK 2600 (Mai 1978), S. 110-112, KFK 2700 (im Druck) und KFK 2750 (in Vorbereitung).
- 5) H. Deuber, J.G. Wilhelm, Bestimmung der physikalisch-chemischen Komponenten des Radioiods in der Kaminabluft von Kernkraftwerken, KFK-Ext. 30/78-1, April 78 sowie PNS-Halbjahresberichte KFK 2700 (im Druck) und KFK 2750 (in Vorbereitung).
- 6) H. Deuber, J.G. Wilhelm, Determination of the Physico-Chemical ^{131}I Species in the Exhaust and Stack Effluent of a PWR Power Plant, Proceedings of the 15th DOE Nuclear Air Cleaning Conference, Boston, 7.-10.8.1978 (im Druck).
- 7) A. Weinert, H.G. Dillmann, J.G. Wilhelm, Vor-Ort-Prüfung großer Schwebstoff-Filteranlagen, CEC Doc. V/835/77, S. 307-316 (Febr. 1977).
- 8) J.G. Wilhelm, J. Furrer, E. Schultes, Head End Iodine Removal from a Reprocessing Plant with a Solid Sorbent, Proceedings of the 14th ERDA Air Cleaning Conference, CONF-760822, Vol. 1, S. 447-477 (Febr. 1977).
- 9) J. Furrer, K. Jannakos, J.G. Wilhelm, Aerosol- und Iodabscheidung in einer Wiederaufarbeitungsanlage; Konzept der Auflöser-Abgasstrecke PASSAT, Seminar über Radioaktive Ableitungen aus WA, CEC Doc. V/2266/78, S. 519-534 (Febr. 1978).

- 10) R.v.Ammon, G. Knittel, Die Reduktion von CO_2 mit H_2 zu CO und CH_4 am Ruthen-Katalysator. PNS-Halbjahresbericht KFK 2700, im Druck.
- 11) R.v.Ammon, H.-G. Burkhardt, E. Hutter, G. Neffe, Development of a Cryogenic Krypton-Separation System for the Offgas of Reprocessing Plants, Proceedings of the 15th DOE Nuclear Air Cleaning Conference, Boston, 7. - 10. 8. 1978 (im Druck).
- 12) R.v.Ammon, H.-G. Burkhardt, E. Henrich, E. Hutter, G. Neffe, R.-D. Penzhorn, K. Schulz, W. Weinländer, Zur Optimierung des Verfahrens der Tieftemperatur-Rektifikation für die ^{85}Kr -Abtrennung aus dem Abgas von Wiederaufarbeitungsanlagen. Deutsches Atomforum, Reaktortagung 1978, Hannover.
- 13) H.E. Noppel, R.-D. Penzhorn, H.U. Borgstedt, PNS-Halbjahresbericht KFK 2700 (im Druck).

Tab. I: Abscheideverhalten von Ag-Molsieb in Heißdampf bei hoher Temperatur und Druck

Prüfmittel: $\text{CH}_3^{131}\text{I}$, Fördermedium: Heißdampf unterschiedlicher Feuchte,
Nachströmzeit 2 h

Temperatur [°C]	Taupunkt- Temperatur [°C]	Einwirkungs- dauer [h]	Druck [bar]	Abscheidegrad (%) bei Bett-Tiefe von	
				2,5 cm	5,0 cm
150	105	5	1,2	99,2	99,99
150	105	96	1,2	99,9	99,99
160	151	5	5	96,0	99,77
160	151	96	5	95,9	99,75
160	151	96	5	94,8	99,66
300	151	5	5	97,0	99,90
300	151	5	5	98,5	99,88
300	151	5	5	97,6	99,85 ⁺
300	151	96	5	83,9	97,4

⁺ 95 h Nachströmzeit

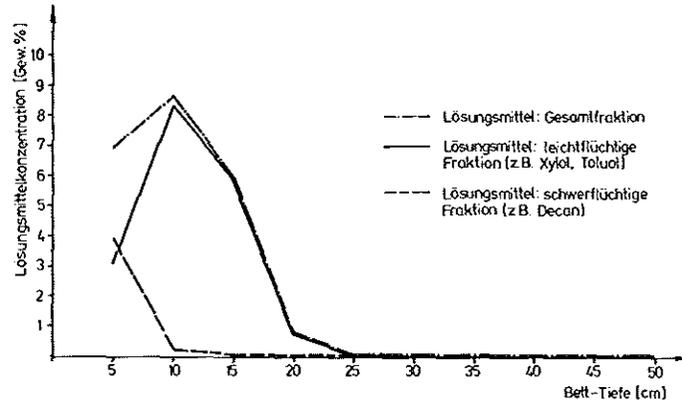
Tab. II: Abscheideleistung eines Feintropfenabscheiders aus optimierten Metallfaserpacks

Tropfenaerosol 2 - 5 μm Tropfendurchmesser, Beaufschlagung: $3,3 \pm 0,9$ kg/h

Trägerluft- Durchsatz [m ³ /h]	V _{lin} [m/s]	Gesamt- Druck- abfall [Pa]	Differentieller Ab- scheidegrad in %		Integraler Ab- scheidegrad in %
			Faser ϕ 22 μm	Faser ϕ 8 μm	Faserpack 22+8 μm
200	0,23	250	96,6	98,9	99,996
300	0,34	320	99,4	97,3	99,98
400	0,46	480	99,5	89,3	99,94

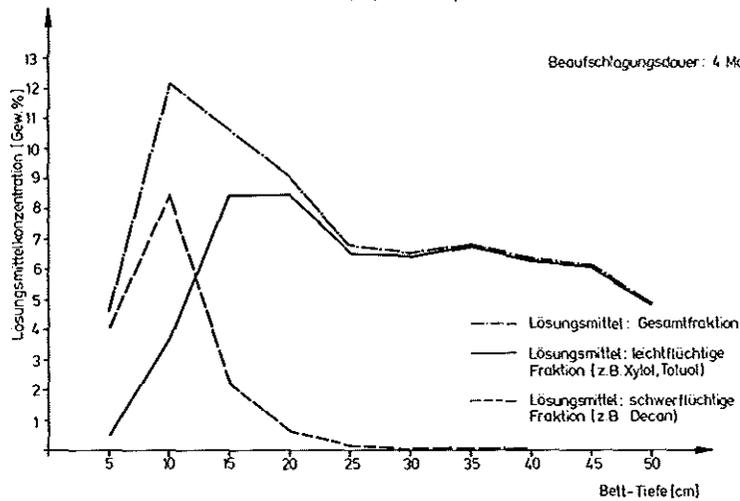
Konzentration der Lösungsmittel in der Adsorptionskohle
(Kohle: SA 1565/ Imprägn. 1% KI, 1,5-3mm)

Beaufschlagungsdauer: 2 Monate



Konzentration der Lösungsmittel in der Adsorptionskohle
(Kohle: SA 1565/ Imprägn. 1% KI, 1,5-3mm)

Beaufschlagungsdauer: 4 Monate



Konzentration der Lösungsmittel in der Adsorptionskohle
(Kohle: SA 1565/ Imprägn. 1% KI, 1,5-3mm)

Beaufschlagungsdauer: 8 Monate

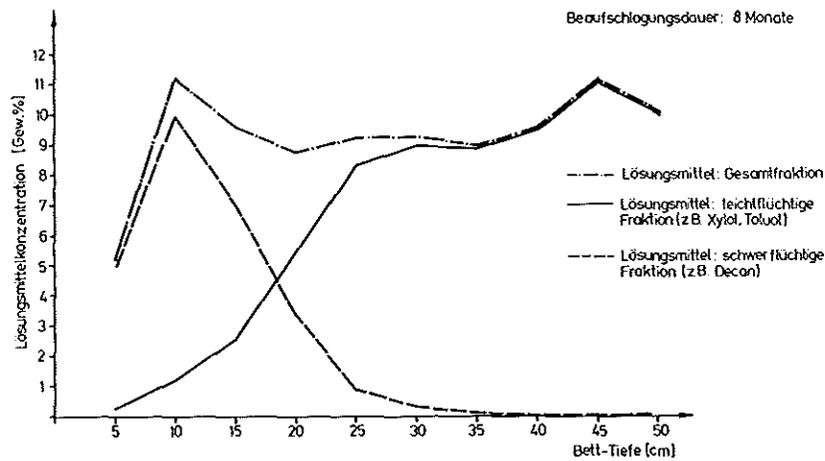


Abb. 1

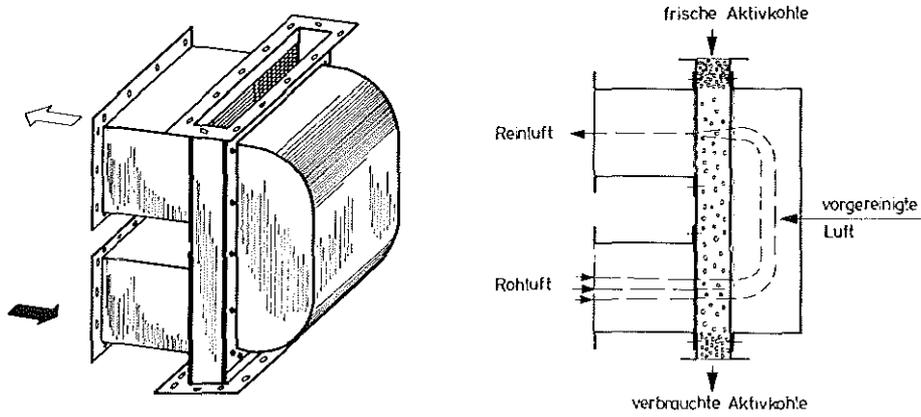


Abb. 2: Prinzipskizze Mehrweg-Sorptionsfilter

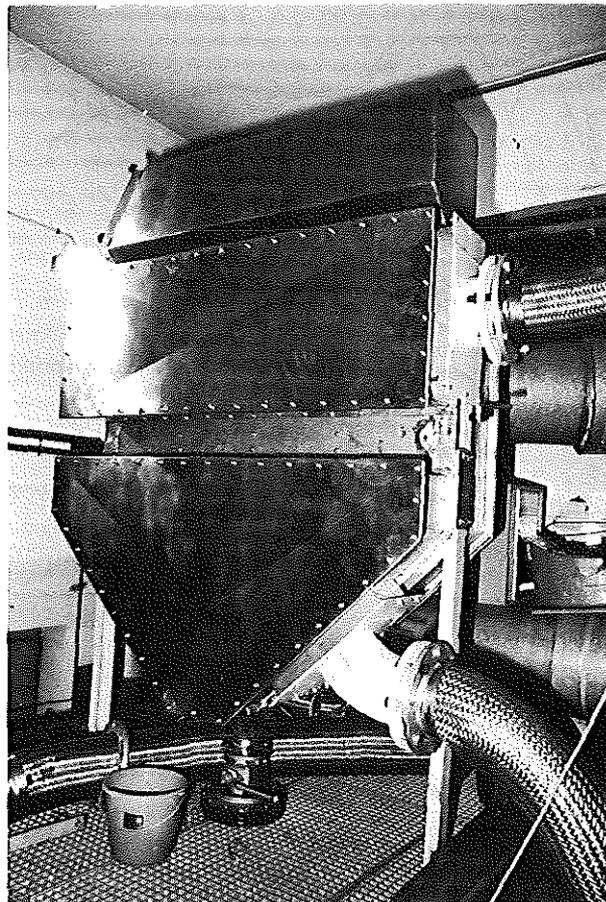
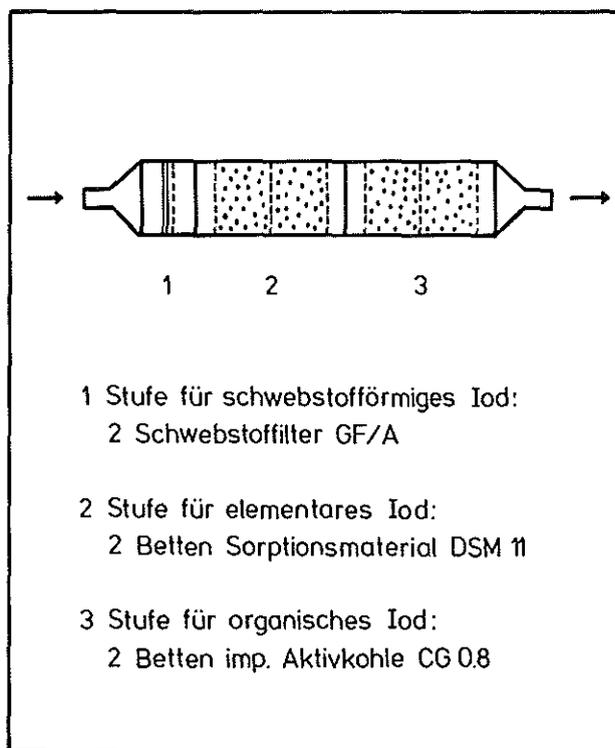
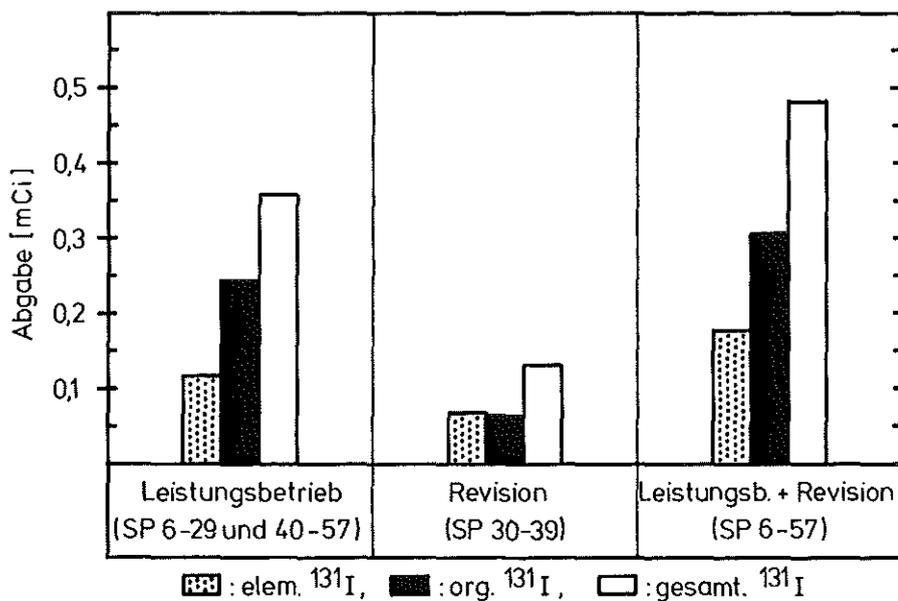


Abb. 3: Mehrweg-Sorptionsfilter für einen Durchsatz von $1800 \text{ m}^3/\text{h}$



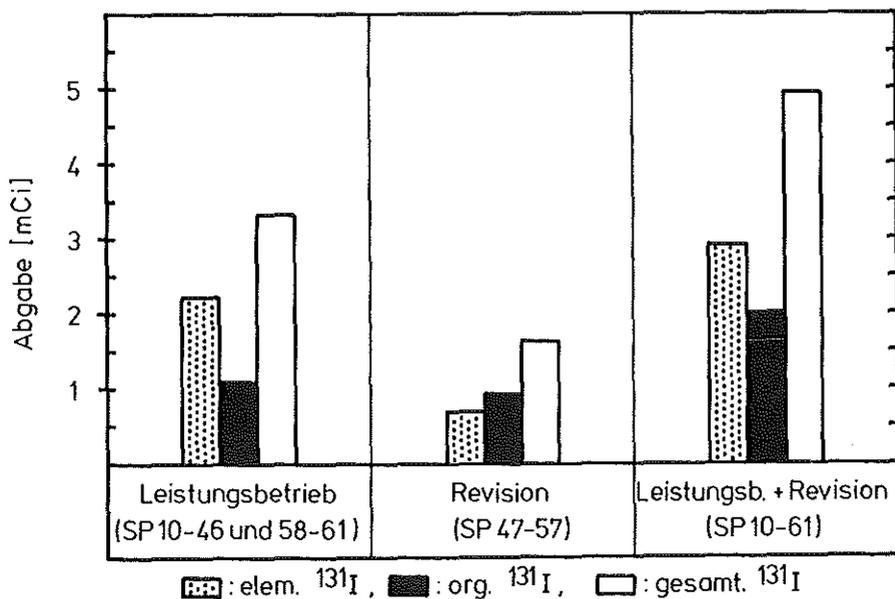
KfK LAF II 14177

Abb. 4: Diskriminierender Iodsammler



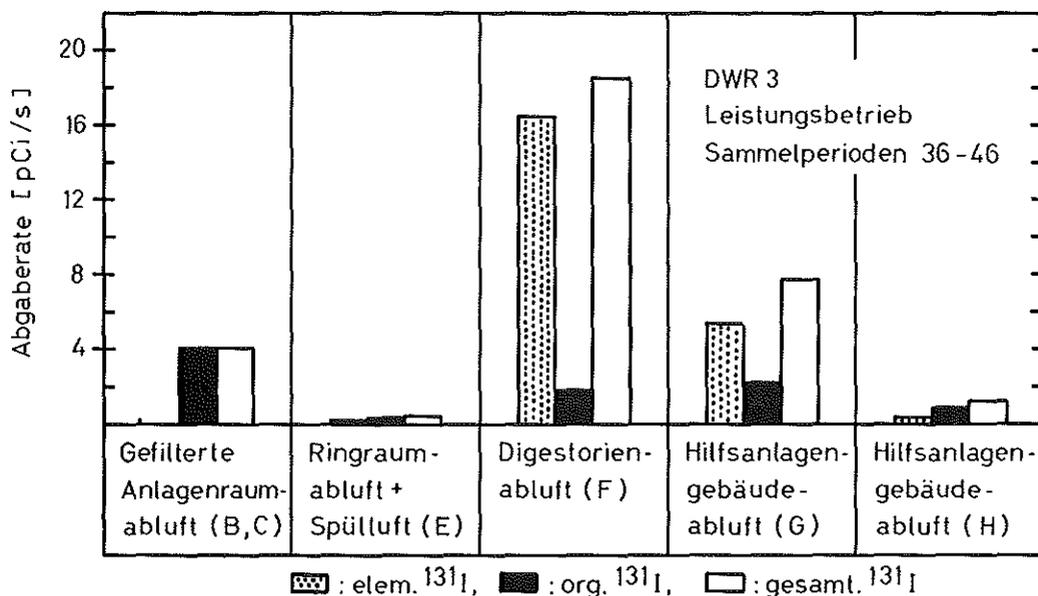
KfK LAF II 142678

Abb. 5: Abgabe der ¹³¹I-Komponenten mit der Kaminfortluft (DWR 2) (SP = Sammelperiode; 1 SP = 1 Woche)



KfK LAF II 142478

Abb. 6: Abgabe der ¹³¹I-Komponenten mit der Kaminfortluft (DWR 3) (SP = Sammelperiode; 1 SP = 1 Woche)



KfK LAF II 141778

Abb. 7: Abgaberate der Abluftströme für die ¹³¹I-Komponenten

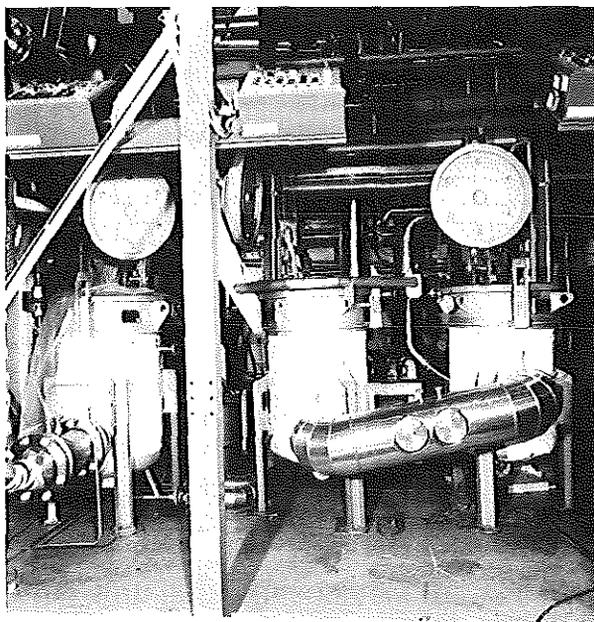


Abb. 8: Fernbedienbare Filterkomponenten der PASSAT
(links: Fasermatten-Abscheider, rechts:
2 Iod-Sorptionsfilter in Reihe)

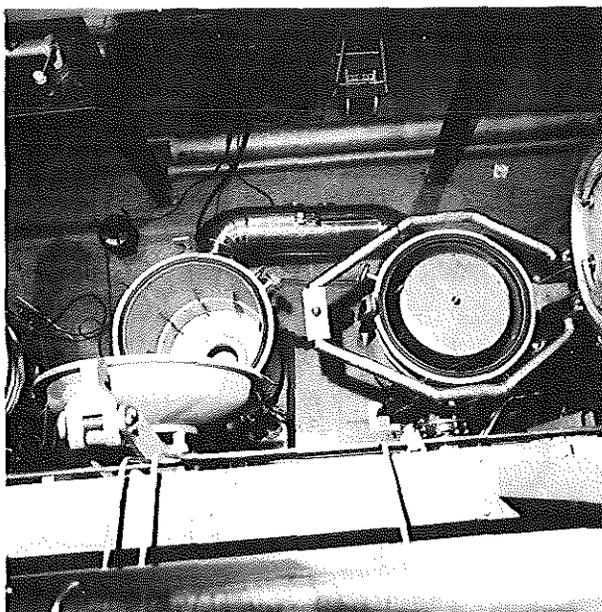


Abb. 9: Iod-Sorptionsfilter der PASSAT
(links: Filterkessel mit Zentrierleisten,
rechts: Filterkessel mit eingesetztem
Trommelfilter).

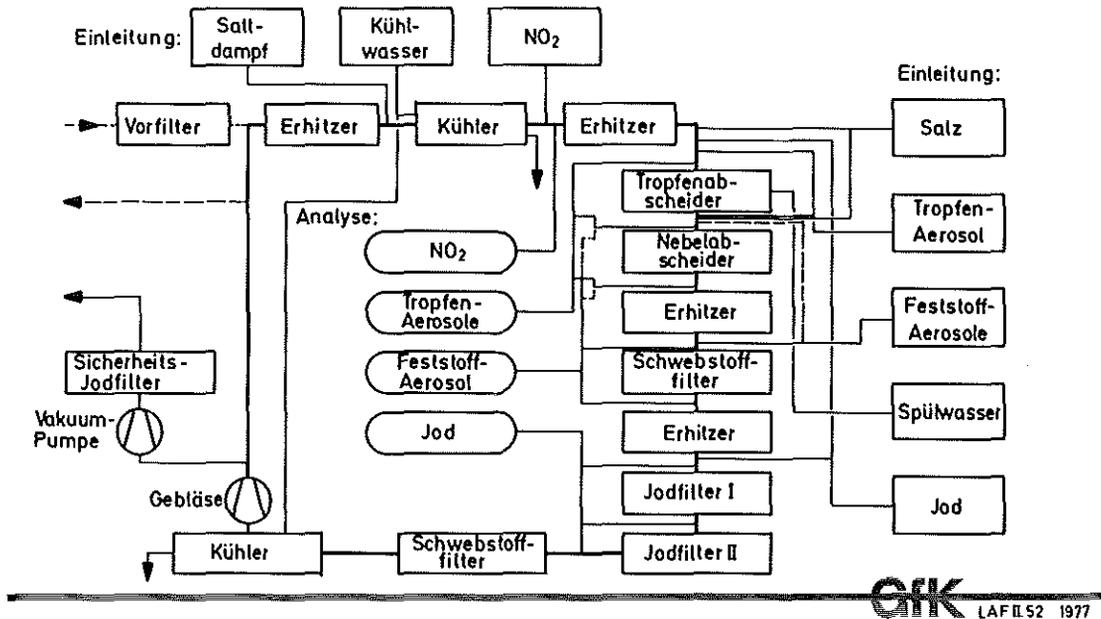


Abb.10 Blockfließbild Passat Medieneinleitung und Analyse

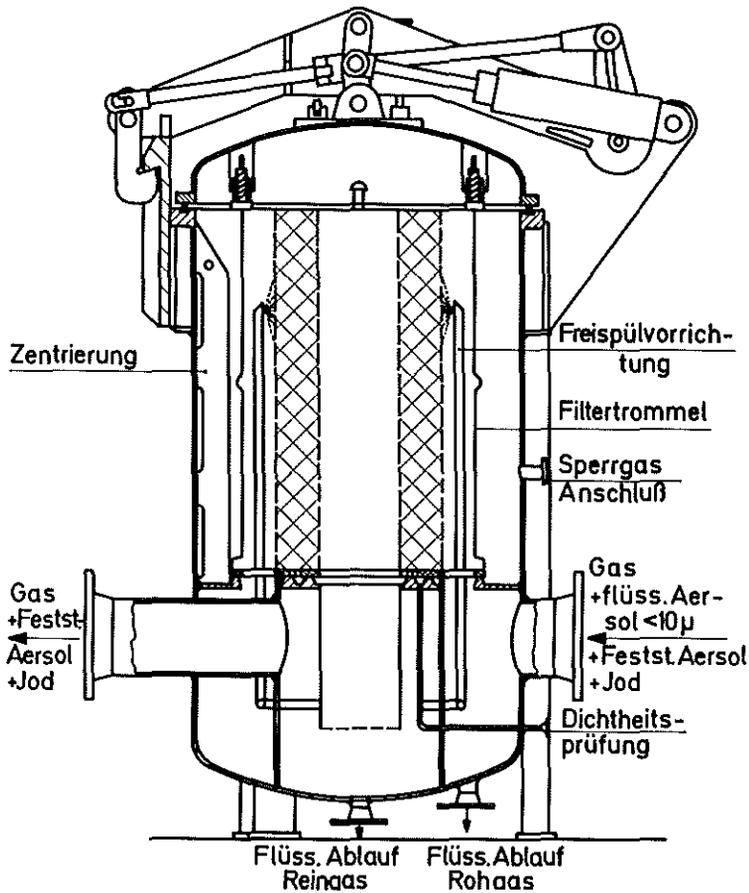


ABB.11: Fasermatten-Abscheider Passat-Komponente II Abscheidung von Tropfen $\leq 10\mu$

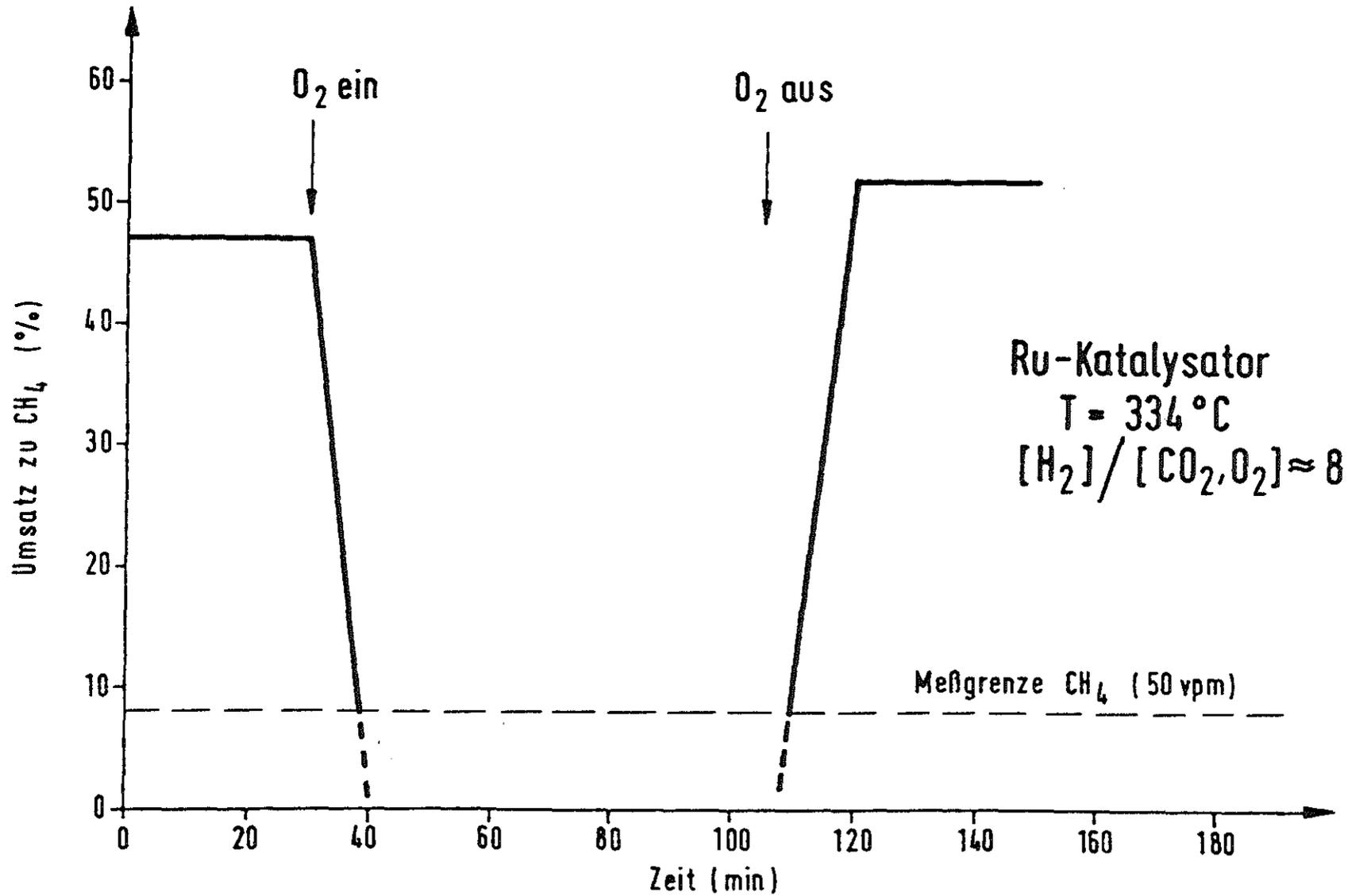


ABB. 12:
 Reduktion von CO_2 mit H_2 zu CH_4 am Ru-Katalysator in Abhängk. v. d. O_2 -Zugabe

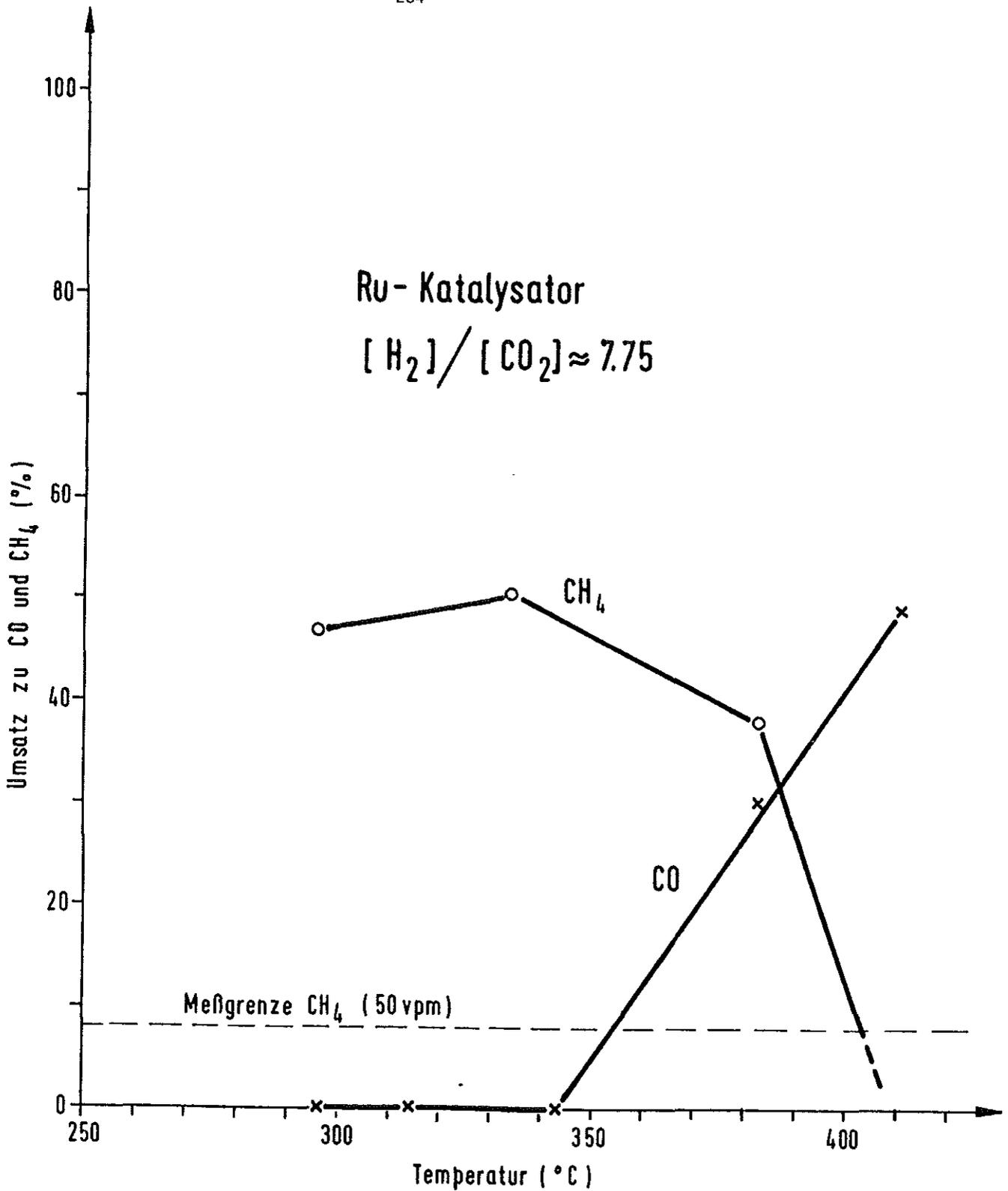


ABB. 13:
Reduktion von CO₂ mit H₂ zu CO und CH₄ am Ru-Katalysator in Abhängigkeit von der Temperatur

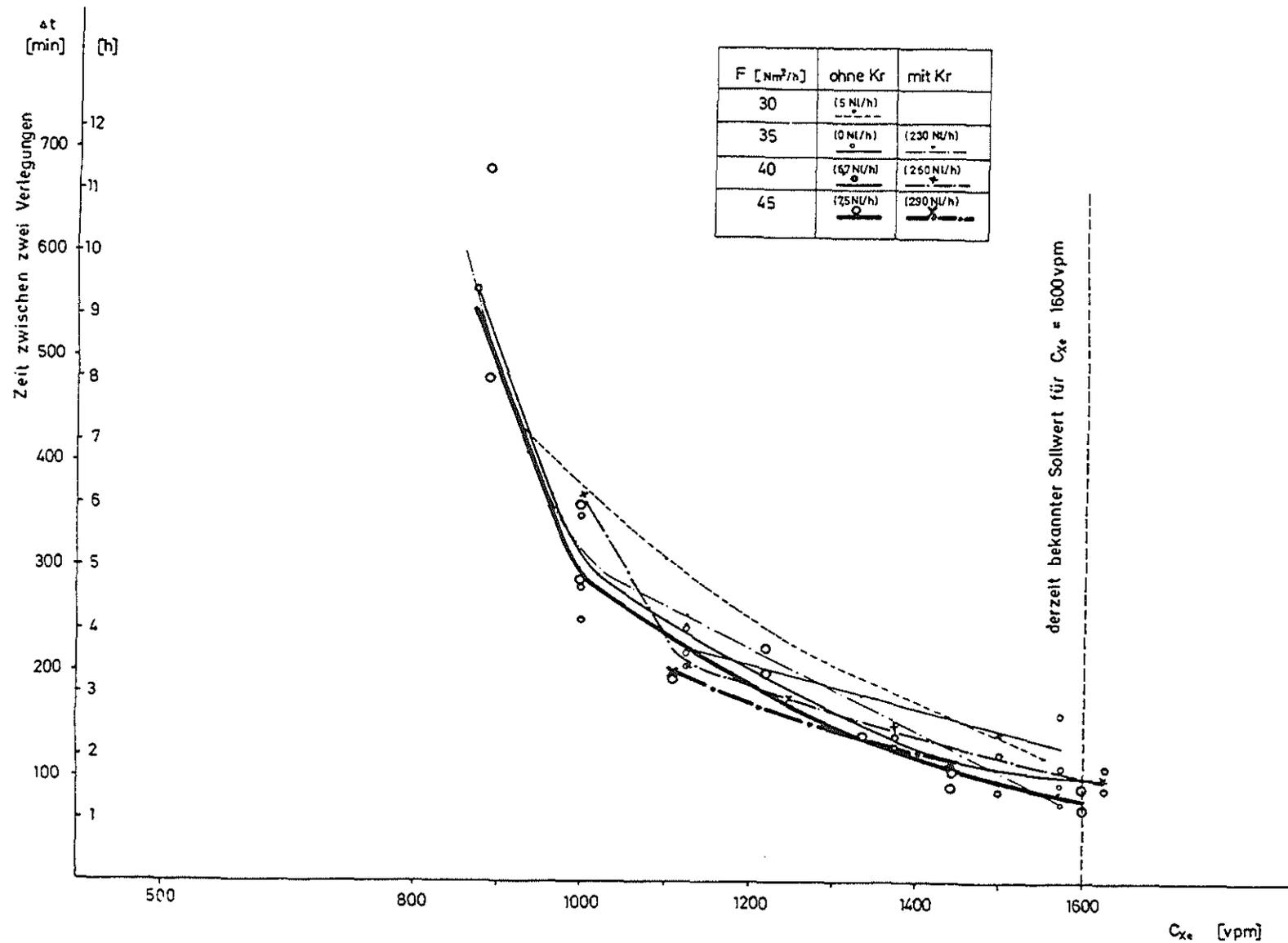


ABB. 14:

Abhängk. d. Xe-Verlegung i. Speisegas-Eintrittsbereich v. d. Xe-Konzentration

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT
JAHRESKOLLOQUIUM 1978

DIE RADIOÖKOLOGISCHE REDUKTION AKUTER
UND LANGZEITIGER KONTAMINATIONEN DER
UMWELT DURCH JOD 129

H. SCHÜTTELKOPF

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
ABTEILUNG SICHERHEIT

JAHRESKOLLOQUIUM 1978

des

PROJEKTES NUKLEARE SICHERHEIT

Die radioökologische Reduktion akuter
und langzeitiger Kontaminationen der
Umwelt durch Jod-129

H. Schüttelkopf

1. Einleitung

Jod-131 war für die Wiederaufarbeitung und ihre Auswirkungen auf die Umgebung immer ein problematisches Radionuklid. Mit der Verlängerung der geplanten Kühlzeit von 150 Tagen auf mindestens 210 Tage wurde wegen der kurzen Halbwertszeit von Jod-131 dieses für die Belastung der Umgebungsbevölkerung bedeutungslos. Im Brennstoff verblieb nur noch Jod-129 als das letzte Radionuklid des Jodes. Jod-129 ist ein niederenergetischer β - und γ -Strahler mit einer Halbwertszeit von $1,6 \cdot 10^7$ Jahren. Über die sicherheitstechnische Bedeutung von Jod-129 war zum Zeitpunkt des Beginnes unserer Arbeiten wenig bekannt. Wegen der langen Halbwertszeit war zu befürchten, daß eine einmal vorhandene Kontamination Ursache einer Langzeitgefährdung der Umgebungsbevölkerung werden könnte. Da der wichtigste Belastungspfad durch Radiojod der Milchpfad ist, sollte bei einer Untersuchung des radioökologischen Verhaltens von Jod-129 vor allem dieser Pfad untersucht werden. Die Untersuchung wurde in der Abteilung Sicherheit

durchgeführt und wurde in den Jahren 1974 - 1978 vom Projekt Nukleare Sicherheit betreut.

2. Die Messung von Jod-129 in verschiedenen Probematerialien

Um die Jod-129-Kontamination der Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) für unsere Untersuchungen ausnützen zu können, war es notwendig, Jod-129 in extrem niedrigen Konzentrationen in Umweltproben bestimmen zu können. Zu Beginn unserer Arbeiten waren keine Methoden publiziert, die es erlaubten, die zu erwartenden Konzentrationen auch tatsächlich zu messen. Daher mußten von uns Analysemethoden für verschiedene Probematerialien erarbeitet werden. Für Abluft-, Abwasser- und verschiedene Prozeßlösungen der Wiederaufarbeitung mußten Analysemethoden erstellt werden, um das Verhalten von Jod-129 in der WAK und seine Emission aus der WAK untersuchen zu können. Für Probematerialien der Umgebung wie Fleisch, Fisch, Pflanzen, Luftfilter, Boden, Wasser und andere, wurden ebenfalls Analysemethoden entwickelt. Eine schematische Darstellung ist in Abb. 1 wiedergegeben. Unsere Analytik nützt hier die hohe Empfindlichkeit der Neutronenaktivierungsanalyse und der γ -Spektrometrie zur empfindlichen Messung von Jod-129 in verschiedenen Probematerialien aus. Der Arbeitsaufwand beträgt für 2 Analysen etwa einen Tag. Die erreichten Nachweisgrenzen werden in Tab. 1 zusammengefaßt. Wie aus Tab. 1 hervorgeht, liegen die Nachweisgrenzen für hochaktive Abfalllösungen in pCi/l-Bereich, für Umweltflüssigkeiten in fCi/l-Bereich und für Luftproben der Umgebung im Bereich von aCi/m³. Mit der Entwicklung dieser empfindlichen Analysemethoden waren die Voraussetzungen geschaffen für die von uns geplanten Untersuchungen.

3. Das Verhalten von Jod-129 in der WAK und die Emission von Jod-129 aus der WAK

In Zusammenarbeit mit der Analytik der WAK wurde das Verhalten von Jod-129 bei Betrieb und in Betriebspausen der WAK untersucht. In Abb. 2 sind einige wesentliche Ergebnisse zusammengestellt. Jod-129 wird während der Auflösung zu etwa 99% in das Abgas freigesetzt. Ein Natronlaugenwäscher hält etwa

die Hälfte des freigesetzten Jod-129 zurück, ein mit Wasser betriebener Wäscher hält kein Jod-129 zurück. Der in der Abluft verbleibende Rest des J-129 wird in die Umgebung über den Abluftkamin freigesetzt. Seit Ende 1975 ist ein Jodfilter in den Abluftkanal des Auflösers eingebaut und die Jodfreisetzung auf diesem Weg wurde praktisch auf Null reduziert. Die verbleibenden 0,5 - 1,0 % des Jod-129-Durchsatzes der WAK, die z.Zt. aus der Anlage freigesetzt werden, stammen aus anderen Abluftsystemen, vor allem aus der Abluft der verschiedenen Behälter.

Der kleine Anteil von Jod-129, der in der Speiselösung verbleibt, verteilt sich während des PUREX-Prozesses auf die verschiedenen Prozeßlösungen. In der hochaktiven Abfalllösung wurden 0,05% des Jod-129-Durchsatzes gefunden. Die Jod-129-Emissionen mit den niederaktiven und mittelaktiven Abfalllösungen und mit den organischen Abfällen liegen je im 0,1%-Bereich. Eine weitere wesentliche Reinigung erfolgt in den Dekontaminationsbetrieben des KfK [1].

Wie aus den Tab. 2 und 3 hervorgeht, ist unter diesen Umständen die Emission von Jod-129 über das Abluftsystem wesentlich wichtiger als die über das Abwassersystem. Die Abgabe von 0,5 - 1,0 % des Jod-129-Durchsatzes der WAK über den Abluftkamin ist ausreichend hoch, um mit den von uns entwickelten, extrem empfindlichen Analysemethoden, den Milchpfad und andere Kontaminationen der Umgebung zu untersuchen.

4. Jod-129 in Schilddrüsen und Milchproben aus der Umgebung der WAK

Die höchsten Jodkonzentrationen in der Umgebung findet man in Schilddrüsen von Haus- und Wildtieren. Zwischen 1975 und 1977 wurden eine Reihe von Schilddrüsen auf ihren Jod-129-Gehalt analysiert. In Abb. 3 sind die Stellen der Probenahme angeführt. Die Ergebnisse werden in Tab. 4 wiedergegeben. Die Jod-129-Gehalte der Schilddrüsen unterscheiden sich um bis zu 4 Größenordnungen. Unterschiede sind wegen der verschiedenen Orte der Probenahmen, der Unterschiede in Alter, Art und Lebensgewohnheiten der Tiere durchaus verständlich. In jedem Fall liegen aber die Jod-129-Konzentrationen in den Schilddrüsen wesentlich über dem natürlichen Jod-129-Gehalt von Schilddrüsen. Dieser Jod-129-Gehalt liegt im Bereich von

maximal 10 fCi/Schilddrüse.

Jod-129 wurde in regelmäßig an 5 Stellen genommenen Kuh- und Ziegenmilchproben gemessen. Die Messungen erfolgten in den Jahren 1975 und 1976. Die Jod-129-Messungen wurden spätestens Ende 1976 an 4 von 5 Probenahmestellen beendet. Die 5. Probenahmestelle liegt am Hauptbeaufschlagungsgebiet der WAK-Abluftfahne; das dort gemähte Gras wird an Ziegen verfüttert. Die Jod-129-Konzentration in dieser Ziegenmilch wurde in den Jahren 1975 bis 1978 regelmäßig gemessen. Die Durchführung solcher Messungen in Kuhmilch war nicht möglich, da im Bereich der Hauptbeaufschlagung mit der Abluftfahne keine Kuhhaltung erfolgt. Bei der Verwendung von Ziegenmilch für solche Untersuchungen ist zu berücksichtigen, daß die Abgabe von Radiojod mit der Milch bei Ziegen 5 mal so hoch ist als bei Kühen [2].

5. Die Langzeitgefährdung der Umgebungsbevölkerung durch Jod-129-Kontaminationen in der Umgebung einer Wiederaufarbeitungsanlage

Bis Mitte 1975 war die WAK in Betrieb und ihre Emissionsrate war etwa um den Faktor 30 höher als in der folgenden Zeit bis 1978. Ab Mitte 1975 erfolgten keine Auflösungen bis im Oktober 1975 ein Jodfilter in das Auflöserabluftsystem eingebaut worden war. Dann wurde die Anlage wieder in Betrieb genommen. Es darf angenommen werden, daß ein wesentlicher Anteil des Jod-129, das in den Jahren vor 1975 von der WAK durchgesetzt wurde, über den Abluftkamin abgegeben worden ist und den Raum der Hauptbeaufschlagung der Abluftfahne kontaminiert hat. Die Reduktion der Emissionsrate von Jod-129 mit der Abluft durch den Einbau eines Filters war eine günstige Gelegenheit, die Veränderung einer vorhandenen Bodenkontamination in der Umgebung der WAK zu studieren.

Für die Jod-129-Konzentration in den Milchproben vom Gebiet der Hauptbeaufschlagung durch die Abluftfahne der WAK war folgendes zu erwarten:

Nach dem Betriebsstopp der WAK Mitte 1975 sollte die Jod-129-Kontamination der Milch mit der biologischen Halbwertszeit von Jod auf Gras abnehmen. Diese Halbwertszeit beträgt 14 Tage. Nach etwa 2 bis 3 Monaten sollte die Jod-129-Kontamination um den Faktor 30 unter den Milchkonzentrationen von der Mitte des Jahres 1975 liegen und sollte dann bis zum Jahre 1978 wegen

weitgehend konstanter Emissionsraten von Jod-129 mit der Abluft konstant bleiben.

Der tatsächliche Verlauf der Jod-129-Konzentration in den Milchproben vom Gebiet der Hauptbeaufschlagung durch die Abluftfahne wird in Abb. 4 wiedergegeben. Die Kontamination der Milch nimmt mit einer Halbwertszeit von 0,3 Jahren von Mitte 1975 bis Ende 1977 ab. Von diesem Zeitpunkt an deutet sich eine Stabilisierung der Jod-129-Kontamination der Milch an; im Mittel liegt die Jod-129-Kontamination der Milch um den Faktor 100 unter den höchsten Werten von Mitte 1975. Zum besseren Verständnis der Ergebnisse soll der Mechanismus der Gras- und damit der Milchkontamination mit Radiojod in Abb. 5 verdeutlicht werden. Die Kontamination von Gras erfolgt einerseits durch Ablagerung von Jod-129 aus der Umgebungsluft und andererseits durch Aufnahme von Jod-129 aus der Erde mit den Wurzeln des Grases. Ist die Emissionsrate einer Wiederaufarbeitungsanlage weitgehend konstant, wird auch die Luftkonzentration über dem Gras weitgehend konstant sein. Da dies seit Mitte 1975 bis 1978 in der Umgebung der WAK der Fall war, ist die Abnahme der Jod-129-Kontamination der Ziegenmilch und damit des als Futter verwendeten Grases nur verständlich, wenn die Aufnahme über die Wurzeln mit der Halbwertszeit von 0,3 Jahren abgenommen hat. Wegen der wesentlich niedrigeren Emission mit der Abluft war die Kontamination aus der Umgebungsluft zu diesem Zeitpunkt vernachlässigbar, verglichen mit der Aufnahme durch die Wurzeln aus dem Boden. Die Reduzierung der Aufnahme von Jod-129 aus dem Boden kann entweder verursacht sein durch die Abnahme der Jod-129-Kontamination des Bodens oder durch eine Reduzierung der biologischen Verfügbarkeit von Jod im Boden. Die Abnahme der Jod-129-Kontamination im Boden kann entweder bedingt sein durch ein Ausgasen von Jod-129 aus dem Boden oder durch ein Auswaschen des Jod-129 durch Niederschläge in tiefere Bodenschichten, die von den Graswurzeln nicht mehr erreicht werden.

Anfang 1976 wurde die Jod-129-Kontamination der Erde in der Umgebung der WAK gemessen. In Abb. 6 werden die Ergebnisse dargestellt. Die höchsten Kontaminationen wurden in den Hauptwindrichtungen gefunden und das Minimum der Kontamination ist mit dem Minimum der Windhäufigkeit in Übereinstimmung. Die Jod-129-Kontamination des Bodens wurde an 10 Positionen in Hauptwindrichtung im Abstand von 200 bis 1000 m von der WAK in den Jahren 1977 und 1978 wiederholt. Im Mittel war die Jod-129-Kontamination leicht an-

steigen (Tab. 5). Zusätzlich wurde 1978 in Hauptwindrichtung eine Probe genommen zur Messung der Vertikalverteilung von Jod-129 im Boden. Wie sich aus der Tab. 6 ergibt, ist die gesamte Jod-129-Kontamination in den obersten 10 cm des Bodens und damit im Bereich der Graswurzeln. Aus diesen Ergebnissen darf geschlossen werden, daß eine Abnahme der Jod-129-Kontamination des Bodens nicht erfolgt ist. Wohl aber hat die biologische Verfügbarkeit des Jod-129 im Boden mit der Halbwertszeit von 0,3 Jahren abgenommen.

Dies bedeutet, daß eine vorhandene Jod-129-Kontamination des Bodens innerhalb einiger Jahre unverändert bleibt, daß aber eine Langzeitgefährdung der Umgebungsbevölkerung daraus nicht resultiert. Die Verfügbarkeit von Jod-129 nimmt nicht mit der physikalischen Halbwertszeit von $1,6 \cdot 10^7$ Jahren ab, sondern mit der Halbwertszeit von 0,3 Jahren.

6. Die Dosisbelastung über den Milchpfad

Die von der Strahlenschutzkommission empfohlenen "Allgemeinen Berechnungsgrundlagen" für die Bestimmung der Strahlenexposition durch Emission radioaktiver Stoffe mit der Abluft erlaube bei bekannter Emissionsrate von Jod-129 einerseits die Berechnung der zu erwartenden Jod-129-Konzentration in Milch und andererseits die Berechnung der Dosisbelastung durch Jod-129 über den Milchpfad. Verwendet man die Jod-129-Emissionsrate der ersten Hälfte von 1975, dann errechnet man eine Milchkonzentration von 41 pCi Jod-129/l. Die tatsächlich nach dem Anlagenstopp gemessenen Werte liegen bei ca. 1 pCi/l. Dies bedeutet, daß durch die genannten "Berechnungsgrundlagen" der Strahlenschutzkommission eine Überschätzung der Milchkontamination um den Faktor 42 erfolgte

Geht man davon aus, daß die Stabilisierung der Jod-129-Kontamination der Milch im Zeitraum zwischen September 1977 und September 1978 eine Folge der in diesem Zeitraum gemessenen Abluftemission ist, so errechnet man mit den "Berechnungsgrundlagen" eine Milchkontamination von 2,4 pCi/l. Die tatsächliche Kontamination betrug im Mittel 0,05 pCi/l und damit liegt auch hier der gemessene Wert um den Faktor 48 unter dem berechneten. Daraus darf geschlossen werden, daß das von der Strahlenschutzkommission erarbeitete und

empfohlene Berechnungskonzept im Falle von Radiojod und dem Milchpfad eine Überschätzung der tatsächlichen Dosisbelastung um mindestens den Faktor 45 ± 3 enthält. Dieses Ergebnis ist in guter Übereinstimmung mit den von H. Riedel [4] und A. Wiechen [5] mit Jod-131 in der Umgebung deutscher Kernkraftwerke gemachten Erfahrungen. Auch eigene Messungen von Jod-131 in der Umgebung des Kernkraftwerkes Obrigheim waren wesentlich niedriger als die berechneten Werte. Bisher wurde nicht berücksichtigt, daß bei den Untersuchungen in der Umgebung der WAK ausschließlich Ziegenmilch verwendet wurde. Wegen der höheren Kontamination der Ziegenmilch durch Radiojod müßte zusätzlich ein Faktor 5 berücksichtigt werden, wenn Aussagen über Kuhmilch getroffen werden.

7. Zusammenfassung

Im Forschungsvorhaben "Untersuchungen zur Radioökologie von Jod-129" wurden analytische Methoden mit extrem niedrigen Nachweisgrenzen für alle wesentlichen Probematerialien entwickelt. Die Verhaltensweise von Jod-129 in einer Wiederaufarbeitungsanlage und seine Emission aus einer Wiederaufarbeitungsanlage wurde vollständig untersucht und verstanden. Die befürchtete Langzeitgefährdung durch eine einmal erfolgte Kontamination der Umgebung mit Jod-129 ist nicht zu erwarten, da die biologische Verfügbarkeit von Jod-129 im Boden mit der Halbwertszeit von 0,3 a abnimmt. Die vom BMI empfohlenen "Berechnungsgrundlagen" überschätzen die Dosisbelastung durch Jod-129 um mindestens den Faktor 45.

8. Literatur

- [1] R. Berg, H. Schüttelkopf, Seminar über Radioaktive Ableitungen aus Wiederaufarbeitungsanlagen für bestrahlten Brennstoff, Karlsruhe, 22.-25. November 1977, S. 81.
- [2] F.O. Hoffman, IRS-W-13 (April 1975).

- [3] Allgemeine Berechnungsgrundlagen für die Bestimmung der Strahlenexposition durch Emission radioaktiver Stoffe mit der Abluft, BMI (1977).
- [4] H. Riedel, A. v. Gadow, STH-Bericht 15/76 (Dezember 1976).
- [5] A. Wiechen, Milchwissenschaft, Band 32, Heft 5, S. 265 (1977).
- [6] Iodine Metabolism in Children and Adolescents in an Area of the Community, AEC-tr-7481 (April 1974).

Tab. 1: Erreichte Nachweisgrenzen für ^{129}J bei der Neutronenaktivierungsanalyse verschiedener Probematerialien

Art des Probematerials	Probenmenge	Nachweisgrenze für ^{129}J
Hochaktive Abfall - Lösung	1 - 10 ml	5 - 0,5 nCi/m ³
Mittelaktive Abfall - Lösung	100 ml	50 pCi/m ³
Niedrigaktive Abwässer	5 l	1 pCi/m ³
Abluft	350 m ³	0,05 pCi/m ³
Oberflächenwasser Grundwasser Trinkwasser Regenwasser Milch	1 - 5 l	$5 \cdot 10^{-3}$ - $1 \cdot 10^{-3}$ pCi/l
Schilddrüsen Fleisch Fisch Pflanzen	20 g	$3 \cdot 10^{-4}$ pCi/g
Boden Sedimente	100 g	$5 \cdot 10^{-5}$ pCi/g
Umgebungsluft Aerosole gasförmiges Jod	10 000 m ³	$0,5 \cdot 10^{-6}$ pCi/m ³ $1,0 \cdot 10^{-5}$ pCi/m ³

Tab. 2: ^{129}J -Emission mit dem Abwasser aus der WAK nach dessen Reinigung in den Dekontaminationsbetrieben des KfK und der Prozentsatz des ^{129}J -Durchsatzes der WAK

Kalender- jahr	Messung von bis	Gesamtemission aus dem KfK in $\mu\text{Ci } ^{129}\text{J}$	Prozentsatz des ^{129}J -Durchsatzes der WAK
1975	Mai - Dez.	192	0,23
1976	Jan. - Sept.	90	0,05

Mittelwert: 0,11 %

Tab. 3: ^{129}J -Emission mit der Abluft der WAK und Prozentsatz des ^{129}J -Durchsatzes der WAK

Kalender- jahr	Messung von bis	Gesamtemission aus der WAK in $\text{mCi } ^{129}\text{J}$	Prozentsatz des ^{129}J -Durchsatzes der WAK
1975	Jan. - Dez.	42,7	30,3
1976	Jan. - Dez.	3,0	0,87
1977	Jan. - Dez.	2,2	0,47
1978	Jan. - Sept.	4,2	2,68

Mittelwert 1975-1978
nach Filtereinbau: 0,92 %

Tab. 4: ^{129}J -Gehalt in Schilddrüsen von Wild- und Haustieren aus der Umgebung der WAK

Probe Nr.	Tierart	Probenahmedatum	^{129}J -Aktivität in der Schilddrüse in pCi
1	Ziegen	April 1977	0,11
2		Juni 1977	3,5
3	Jungziegen	Juli 1977	0,03
4			0,58
5			0,35
6	Kaninchen	April 1975	9,4
7		Mai 1975	0,85
8		Juni 1975	2,0
9		Sept. 1975	3,6
10	Rehe	Juli 1976	4,0
11		Febr. 1976	196
12		Jan. 1976	60
13	Rehkitz	Okt. 1975	2,0
14	Hirsche	Okt. 1975	11
15		Okt. 1977	3,3
16	Wildschwein	Sept. 1976	1,6

Tabelle 5: Mittlere J-129-Kontamination des Bodens im Gebiet der Hauptbeaufschlagung durch die Abluftfahne der WAK

Probenahme	Bodenkontamination in pCi ¹²⁹ J/m ²	
	0-5 cm	0-20 cm ¹⁾
1976	116	216
1977	142	237
1978	71	414

¹⁾ ein Ausreißer wurde vor der Mittelung ausgeschieden

Tab. 6: ^{129}J in Bodenproben eines Vertikalprofiles. Probenahme 1978, 1 km Abstand von WAK, Richtung NO

Probenahmetiefe in cm	^{129}J -Konzentration in fCi $^{129}\text{J/g}$ Trockensubstanz
0 - 5	1,5
0 - 10	41,4
10 - 20	0,41
20 - 30	0,32
30 - 40	$\leq 0,41$
40 - 50	$\leq 0,64$
50 - 60	$\leq 0,78$
60 - 70	$\leq 0,29$
70 - 80	$\leq 1,85$
80 - 90	$\leq 0,41$
90 - 100	$\leq 0,40$
100 - 110	$\leq 1,35$

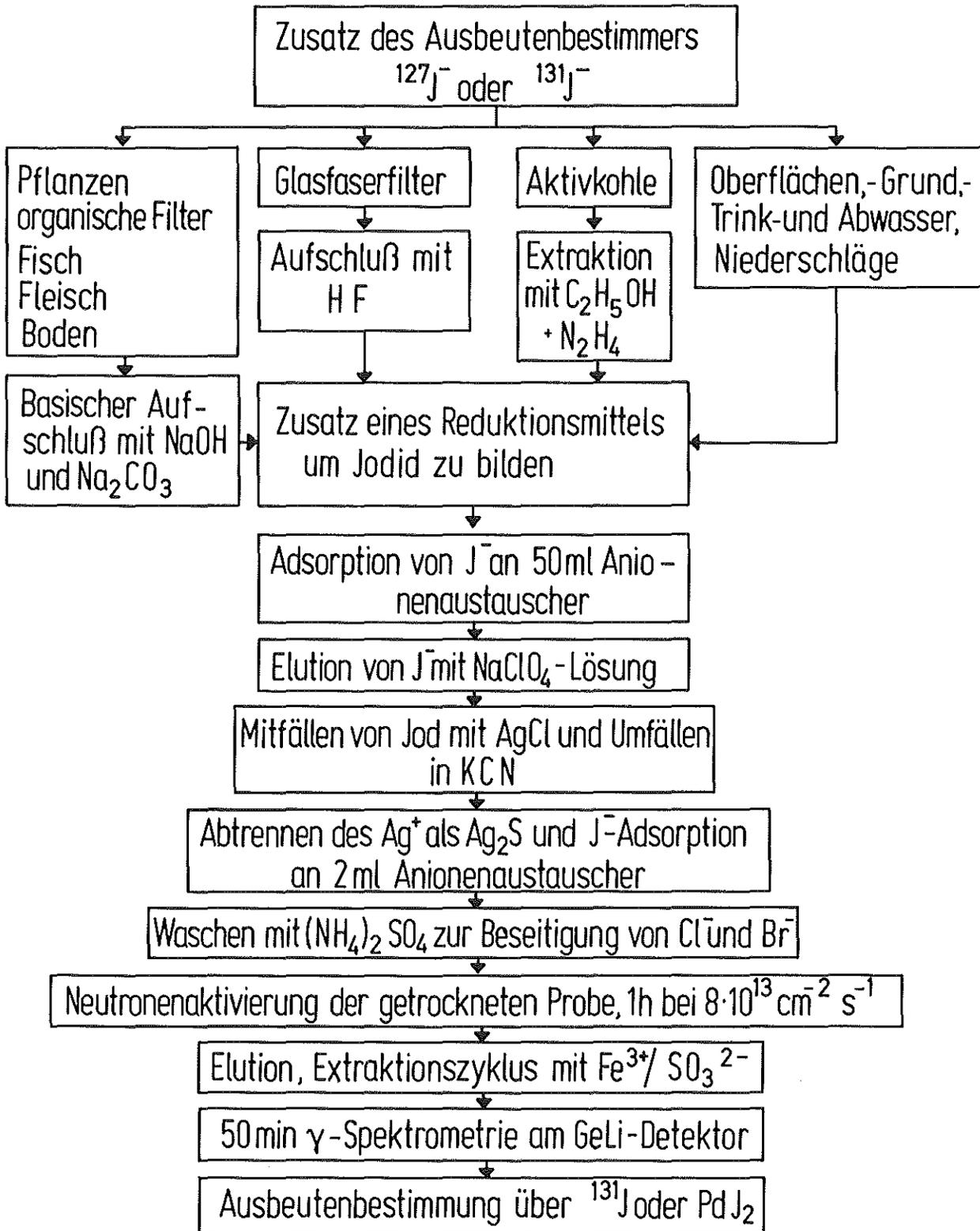


Abb.1: Schema der Analysenmethoden für ¹²⁹J in verschiedenen Probematerialien

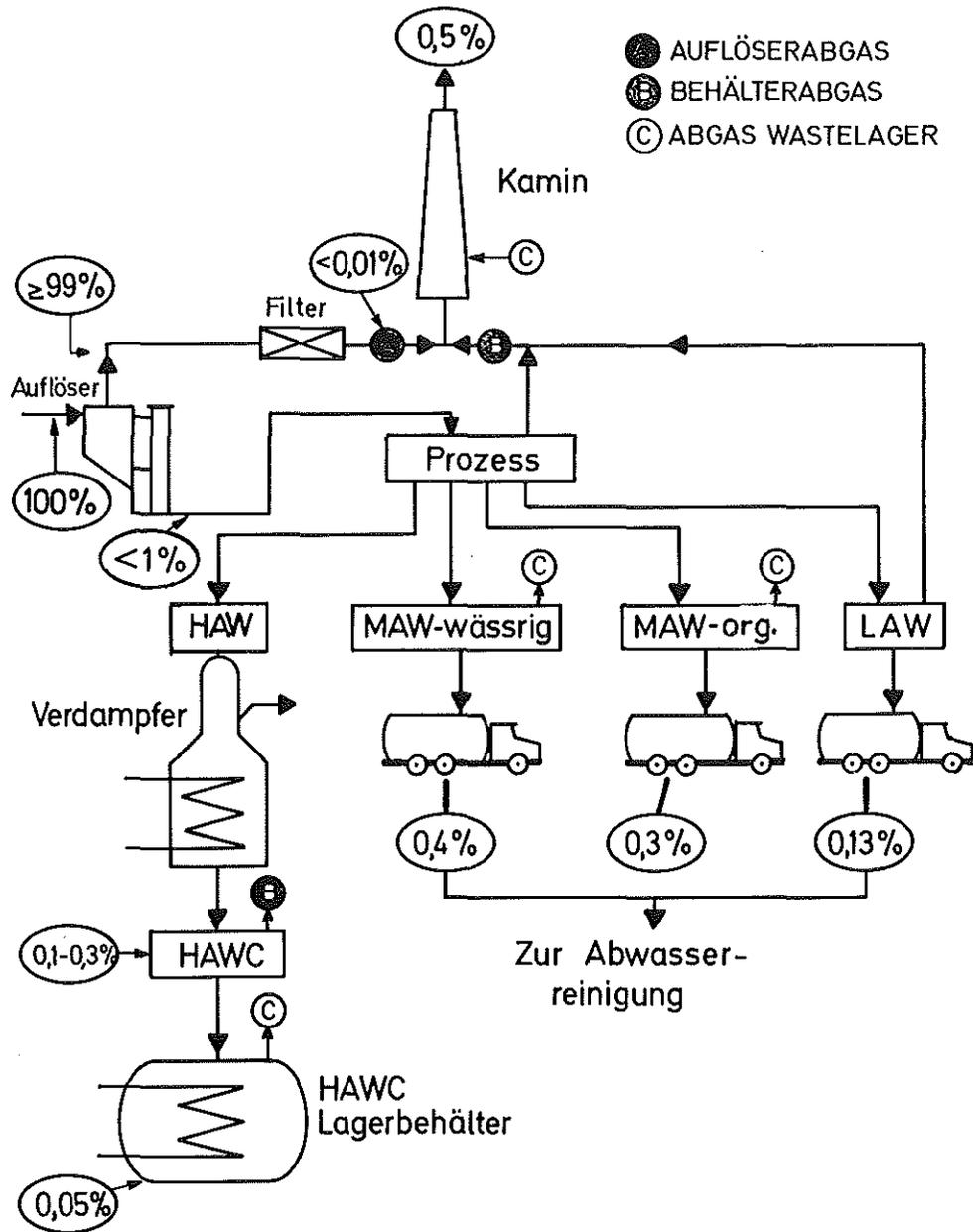


Abb.2: Bilanzierung des ^{129}J -Durchsatzes der WAK. Ein und Ausgänge von ^{129}J in % des ^{129}J -Durchsatzes der WAK

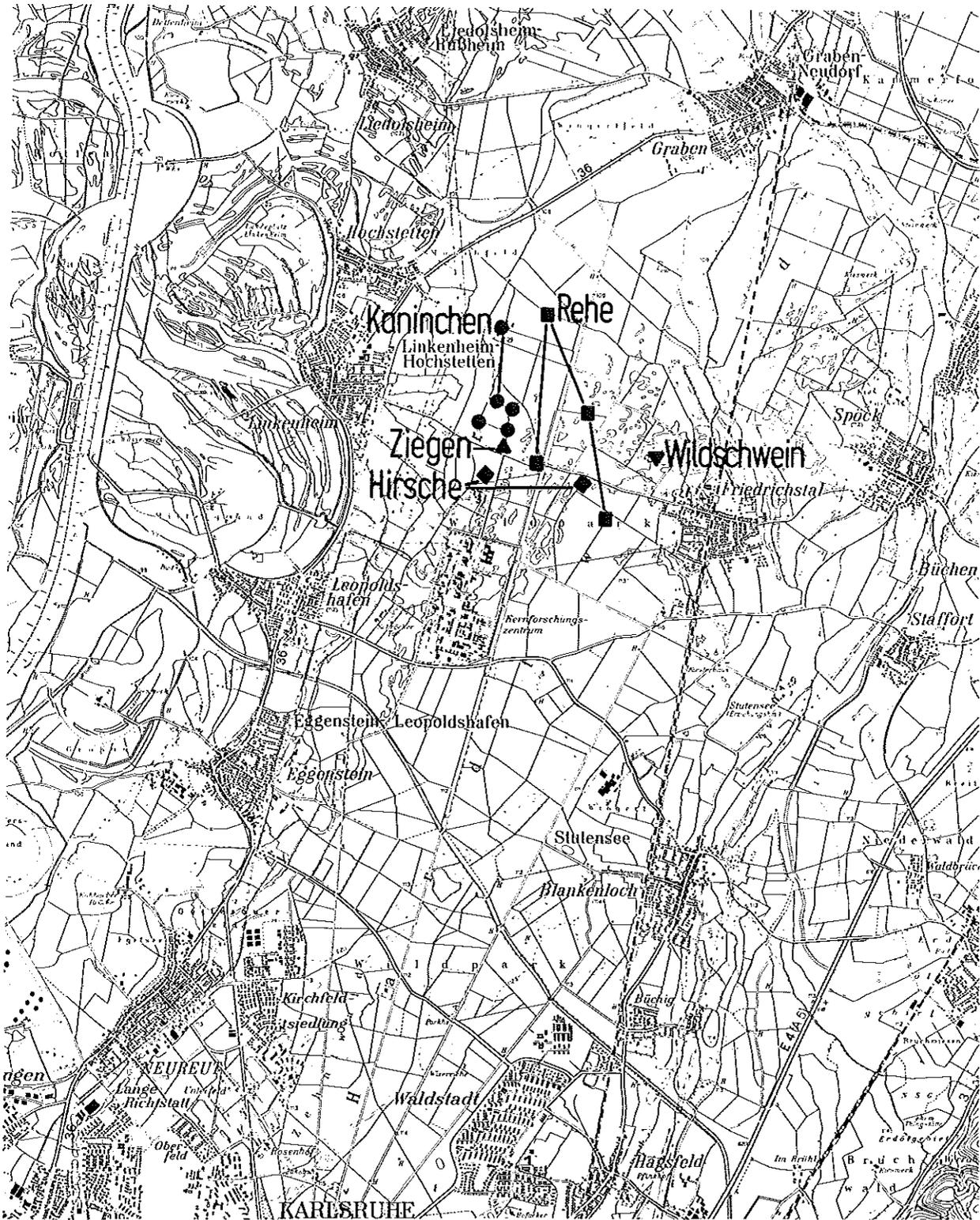
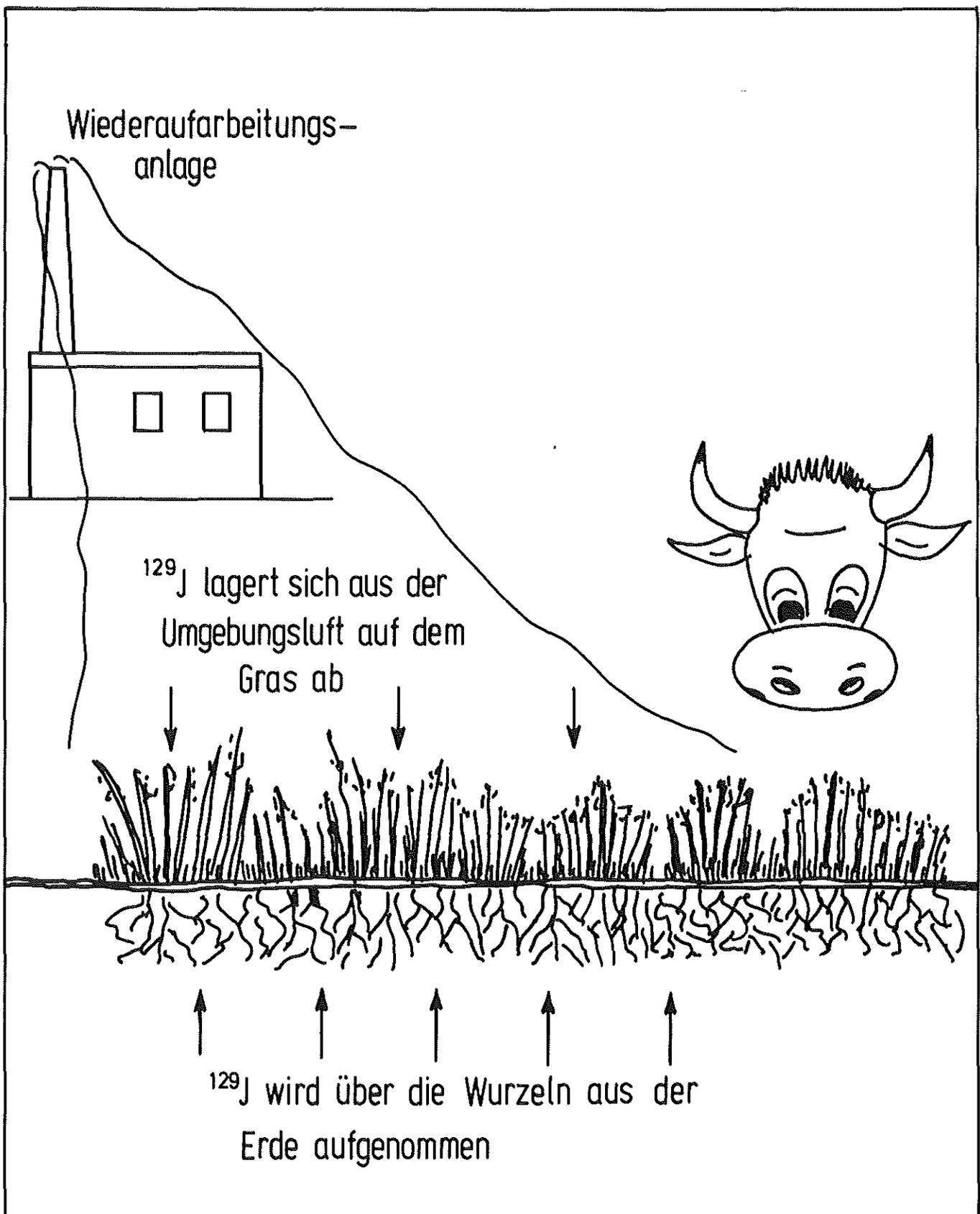
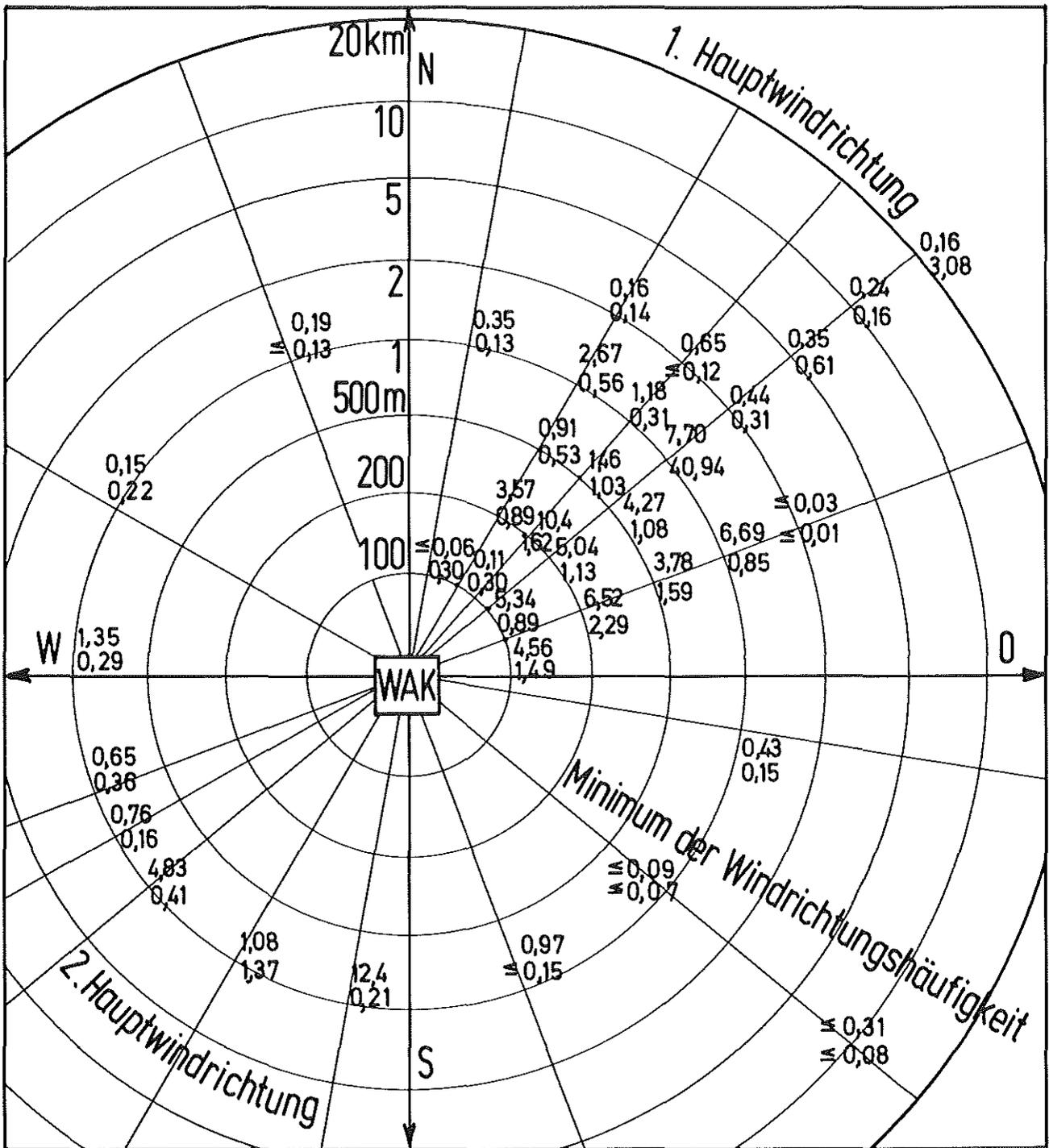


Abb.3: Orte der Probenahme von Schilddrüsen in der Umgebung der WAK



kjk

Abb. 5: Die Kontamination von Gras mit dem ^{129}J aus der Luft und aus der Erde



Obere Zahl: $fCi^{129} J/g$ Trockensubstanz von 0-5 cm. Untere Zahl:
 $fCi^{129} J/g$ Trockensubstanz von 5-20 cm.

Probenahme: Februar – April 1976.



Abb. 6: ^{129}J -KONZENTRATIONEN IN BODENPROBEN AUS DER
 UMGEBUNG DER WAK