

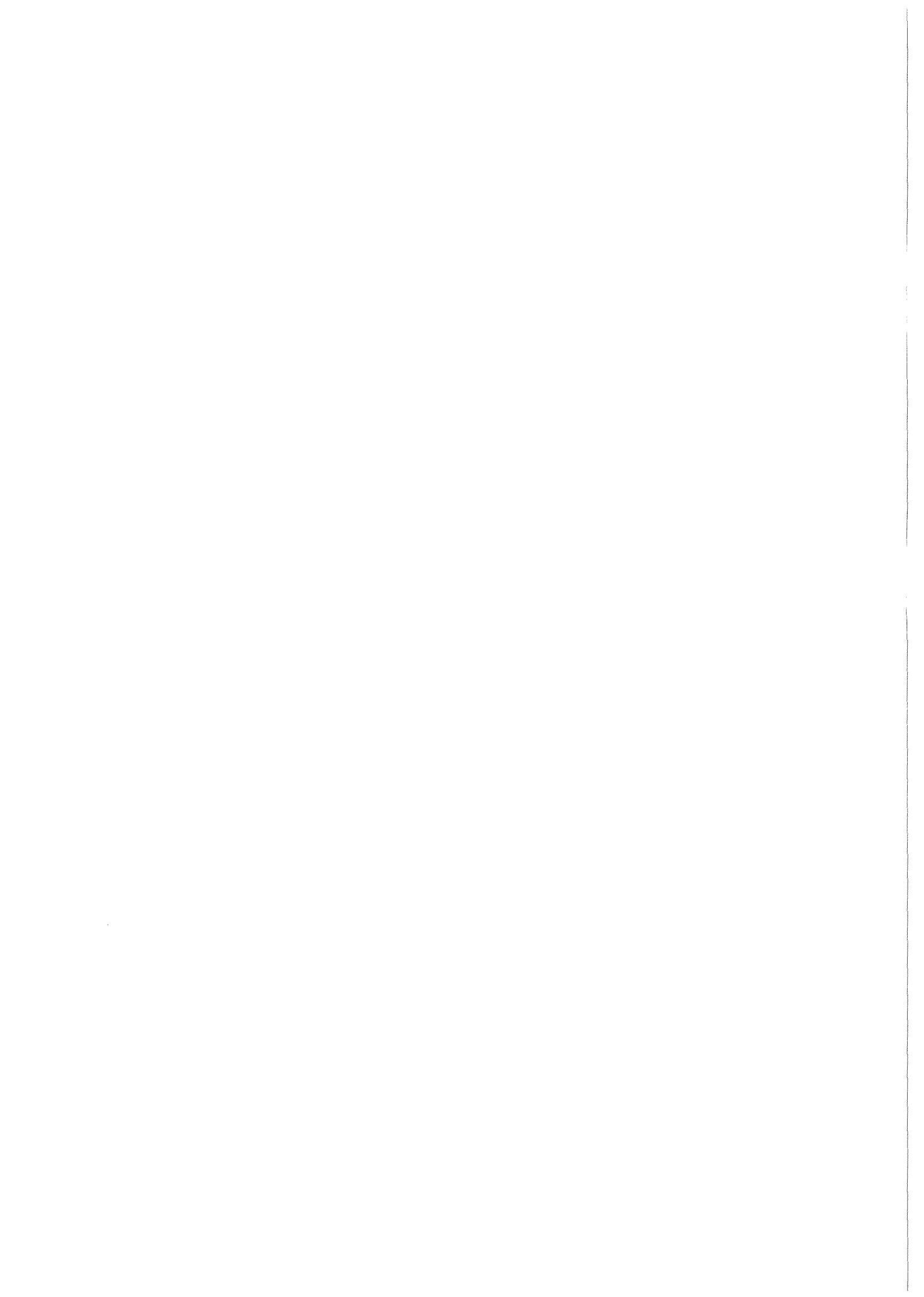
KfK 3470
Januar 1983

**Sammlung der Vorträge zum
Jahreskolloquium 1982 des
Projektes Nukleare Sicherheit**

Karlsruhe, am 26. Oktober 1982

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 3470

Sammlung der Vorträge zum
Jahreskolloquium 1982 des
Projektes Nukleare Sicherheit

Karlsruhe, am 26. Oktober 1982

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	<u>Seite</u>
U.S.N.R.C. Research on Severe Accidents and other Safety Matters Forschungen der U.S.N.R.C. auf dem Gebiet der schweren Kernschäden und anderen Sicherheitsproblemen R.J. Mattson, U.S. Nuclear Regulatory Commission	1 - 13
Stand der Reaktorsicherheitsforschung im Projekt Nukleare Sicherheit Status of the Reactor Safety Research in the Project Nuclear Safety H. Rininsland, A. Fiege, W. Gulden, F. Horsch, J.P. Hosemann, KfK - Projektleitung PNS	15 - 82
Light Water Reactor Hydrogen Safety Research in the United States U.S. amerikanische Sicherheitsforschungen für Wasserstoffprobleme in Leichtwasserreaktoren M. Berman, Sandia National Laboratories; L. Thompson, Electric Power Research Institute	83 - 120
Bewertung von Rissen in Komponenten von Kernkraftwerken Assessment of Cracks in Components of Nuclear Power Plants D. Munz, KfK - Institut für Reaktorbauelemente	121 - 156
Chemische Wechselwirkungen zwischen UO_2 und Zircaloy-4 im Temperaturbereich von 1000 - 2000°C Chemical Interactions between UO_2 and Zircaloy-4 from 1000 to 2000°C W. Dienst, P. Hofmann, D. Kerwin-Peck, ⁺⁾ KfK - Institut für Material- und Festkörperforschung ⁺⁾ Del. von EG&G, Idaho	157 - 194
Untersuchung der Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton in der BETA-Versuchsanlage Investigation in the BETA-Test Facility into the Interaction between a Core Melt and Concrete H. Alsmeyer, KfK - Institut für Reaktorbauelemente M. Peehs, Kraftwerk Union Aktiengesellschaft, Erlangen D. Perinic, KfK - Hauptabteilung Ingenieurtechnik	195 - 224

Seite

Zum Verhalten von Schwebstofffiltern unter hoher
Differenzdruckbelastung

225 - 260

On the Response of HEPA Filters to high
Differential Pressures

V. Rüdinger, J. Wilhelm,
KfK - Laboratorium für Aerosolphysik und
Filtertechnik

Radioökologische Untersuchungen zum Verhalten
der Aktiniden in der Umwelt

261 - 278

Radioecological Research on the Behavior of
Actinides in the Environment

H. Schüttelkopf, M. Pimpl,
KfK - Hauptabteilung Sicherheit

U.S.N.R.C. RESEARCH ON
SEVERE ACCIDENTS AND
OTHER SAFETY MATTERS

By

Dr. Roger J. Mattson, Director
Division of Systems Integration
Office of Nuclear Reactor Regulation
U.S. Nuclear Regulatory Commission

Talk Presented at the Projekts Nucleare Sicherheit
1982 Annual Meeting - October 26, 1982
Karlsruhe Nuclear Research Center, FRG

In this talk I will summarize reactor safety research in the U.S. regarding severe accidents and other matters. But first let me describe some of the background for this research.

The U.S.N.R.C. has under consideration a proposed policy statement on Severe Accidents (SECY 82-1A) and an accompanying draft report, NUREG-0900, "Nuclear Plant Severe Accident Research Plan." These papers represent an evolution of technical judgment and reactor safety policy starting with the Reactor Safety Study (WASH-1400) in 1974 and the TMI-2 Action Plan in 1980. These programs may lead to requirements for licensing that go beyond our present regulatory system.

To date, the U.S. regulatory system has been based on a standardized review of the capability of the power plant to cope with a prescribed set of conditions, and a highly formalized process of site evaluation. The process is manageable and has promoted a high level of public safety. However, as technical innovation and operations have proceeded, it has become increasingly clear that the regulatory process is incomplete. In particular, the lack of a systematic treatment of multiple failures that might lead to severe accidents and the lack of an overall policy on severe accidents have led to unpredictability and instability in the licensing process.

Insights gathered from the Reactor Safety Study and subsequent applications of Probabilistic Risk Assessment (PRA), taken together with the extensive review of our experience at TMI-2 have led the staff to propose changes in the licensing process to supplement the already high level of public safety and to provide, as well, a mechanism for assessing the benefit from further regulatory requirements for severe accidents.

Basically, we propose to answer three questions (viewgraph 1):

- How safe are existing and future plants?
- How can safety be improved?
- Are the costs for the improvements justified?

The first question is to be answered by drawing upon knowledge gained from PRAs of a significant number of plants. These studies tell us that the accident sequences that dominate the public risk are those which involve core melt. Therefore, in addressing the second question of how safety can be improved, we ask; how can the likelihood of core melt be reduced (prevention)?, and how can the consequences of core melt accidents be reduced (mitigation)?

Answering these questions in a systematic way has led us to set up the process depicted in viewgraph 2. This process is heavily dependent on PRA. Two concepts are involved: Is the plant safe enough because it meets licensing criteria (including siting criteria) and, in addition, has it a low enough level of public risk as estimated by probabilistic

risk assessment? And, should there be additional regulatory requirements imposed because the benefits from reducing the risk are greater than the cost of the additional requirements (as safe as reasonably achievable)?

The problem is that this process only gives an appearance of method; many quantitative answers are required in areas where there is very little data, and it is known that even when probabilistic risk assessments are performed to very high standards there are large uncertainties in the answers.

One way to make the method more predictable would appear to be to introduce a safety goal to help answer the question: Is the plant safe enough--does it have an acceptably low level of public risk? But the imposition of a fully quantitative safety goal probably suggests that we know more than we do. Perhaps the best we can do is to use PRA to verify that even when large uncertainties are allowed for, the plant presents, with a high level of confidence, an acceptably low level of public risk. A safety goal would help illustrate what is meant by "acceptably low" risk but it is not necessary to have a safety goal in order to decide that the risk is "acceptably low." The cost-benefit analysis of possible regulatory requirements for additional engineered safety features is also subject to uncertainties. There are uncertainties in the estimate of the benefits of risk reduction, and in the costs.

The importance of understanding the uncertainties is illustrated by early studies of the Zion and Indian Point Plants (NUREG/CR-1409, 1410, and 1411). These studies used a combination of PRA to define accident sequences, risk, and risk-reduction levels, and best-estimate, mechanistic codes, to predict the physical response of the containment. The objective was to estimate the potential risk reduction of a few additional regulatory requirements, especially a filtered vent system for the containment. The potential for consequence reduction from such vents had been pointed out in earlier studies (e.g. NUREG/CR-1655) and we expected that our work on specific plants would clearly bear out this point.

To our surprise, doubts began to arise about the amount of benefit from this type of vent and about its potential drawbacks. When design studies for the vent appeared to require a three foot hole, or perhaps larger, we began to understand that there were safety problems that could arise from maloperation of the vent.

In order to test the earlier conclusion of the PRA that predicted a significant benefit from filtered vents, we needed to understand the details of the physical processes in the accident sequences that dominate risk. We found on closer study that sequences with containment failure at essentially zero time (for example, by steam explosion and the formation of penetrating missiles) do not dominate risk because of low probability.

We began to look more favorably on a filtered vent since it would be the kind of device that could come into operation some time after the onset of a meltdown to delay containment

failure. But then we realized that if it were only to be used many hours after meltdown, it might not be cost effective. We thus needed to understand more about an engineered system to vent containment. We took as design conditions the output from an early version of the MARCH Code, a code which is currently the main computational tool of PRA. Detailed studies showed these outputs of MARCH to be highly questionable.

Two steps were taken to correct this deficiency, namely the improvement of the MARCH code, and investigation of the physical conditions accompanying the progression of a core melt accident. When we redid our calculations, we could not justify the backfit of filtered vents to Zion or Indian Point (see NUREG-0850). Since those studies were completed, we have worked hard to understand a new question--the dominance of risk at some sites by seismic events. This work appears to show greater value in well designed containment vents than we had estimated earlier. And so our decisions are not final yet. These steps in increasing our understanding of severe accidents have broadened into areas other than the MARCH code. The result is the plan of research I am describing to you today.

One thing appears clear: PRA studies have generally treated core melt accident sequences conservatively in terms of the likelihood of failure and the nature of the radiological release. Unless and until those conservatisms are removed, PRA methods by themselves are insufficient for judging the cost effectiveness of design modification to reduce the risk of severe accidents.

The NRC is not the only source of work on severe accidents in the U.S. The nuclear industry has sponsored a program called IDCOR to pull together best current technology and develop an industry point of view on severe accidents. The Electric Power Research Institute (EPRI) has sponsored a number of important programs addressing the problem of hydrogen in containment and the size and nature of the radiological source term. We coordinate program management and exchange information regularly with IDCOR and participate in joint programs with EPRI. In addition, the NRC has secured the participation of a number of countries in its program of physical research.

The structure of our program is shown in the third slide. As you can see, two types of codes are to be used.

One is a set of improved PRA codes--MELCOR and MATADOR. These codes are projected to be the future mainstays for the assessment of risk and for risk-benefit analysis.

We will also rely on a family of mechanistic codes: RELAP or TRAC, SCDAP, TRAP-MELT, CONTAIN. they will describe in detail, according to our best available knowledge, what happens in various phases of a severe

accident. Many of you are familiar with the RELAP and TRAC codes which are widely used in analysis of loss-of-coolant accidents. The other codes I have listed may not be so complex as TRAC but they too will be an attempt to provide a good physical description of events.

The codes will be carefully compared to assure that the PRA codes predict the correct sequence of events, that the timing of events is reasonably correct, and that they include the physical phenomena that may affect the level of risk or the events in the sequences.

The mechanistic codes will depend upon a large program of physical research. This program is underway, and first versions of most of the codes have been produced.

Slide four shows the way we can categorize the physical research program. Some of the topics shown in figure four are pursued in other programs. The treatment of intact geometry, for example, is well handled by TRAC or RELAP. We do not intend to expand that program. Similarly, ex-plant phenomena are already being studied elsewhere.

In addition to these physical research topics, there are programs on improvements in PRA methods and applications. Altogether the plan comprises thirteen elements. These elements are shown in slide five.

Five of the thirteen elements involve PRA methods and applications. For example, element number 10 represents the application of PRA codes to the assessment of risk.

In Element 11 new data will be incorporated into the evaluation of consequences. Eventually the results of studies on Fission Product Release and Transport in Element 9 will have to be incorporated into reevaluations of risk in both plant-specific and siting analyses.

Element 12 will answer the question of how safety can be improved. It involves a series of risk reduction and cost analyses. It is worthwhile to digress here to point out that such studies are not necessarily straightforward and there is an occasional tendency to jump to unwarranted conclusions. For example, if one has a conservative PRA and then does a realistic evaluation of risk after the addition of a certain mitigation feature, the value of the feature can be significantly over estimated. That may seem like an obvious error, but we are seeing papers published and conclusions drawn on the basis of such errors.

Element 13 represents the development of ways to take these highly technical procedures and implement them in the licensing process in accordance with the Commission's Rules.

The other elements, 2 through 9, represent phases of physical research.

Elements 2 and 3 are an effort to analyse system behavior for the accident sequences that dominate risk. We use "best estimate" methods. The analyses will permit us to extract and organize knowledge to use existing plant systems to maximum advantage for recovery from an accident. There are two objectives to this work. First it will improve our understanding of how to stop accidents short of core melt. And second, if that were not possible, we aim to provide an organized body of knowledge on how to manage containment systems so as to minimize offsite consequences.

Element 4 represents the largest single expenditure within the program. This research on Severe Fuel Damage is an integrated program of out-of-pile testing, in-pile testing, and an associated program of analysis, The Severe Core Damage Analysis Program, SCDAP, to enable us to predict how core damage proceeds. The major effort is at the Power Burst Facility at Idaho National Engineering Laboratory (INEL) and consists of five tests to the point of complete clad melting (Phase One) and three or four tests in the fuel melting stage (Phase Two). The impetus for these tests arises from the observation that at TMI-2 the fuel underwent severe damage without melting in any large scale way, and without threatening the integrity of the pressure vessel or the containment. Thus, accidents that lead to core uncovering do not necessarily lead to core melt down. Moreover, the rates of fission product release and hydrogen generation appear to depend on some of the details of the accident scenario. With these tests we intend to provide a check on how fission products are released and transported away from the fuel. We also will obtain good data on how hydrogen is generated and transported so that we can develop effective strategies for its control. And, we hope to provide data on how an uncovered core can be recovered and cooled. There is little doubt that rapid reflooding will produce thermal shock to the fuel as it did at TMI-2, producing a rubble bed. The coolability of such beds--the bed at TMI-2 appears to be five foot thick--is included in our research.

This program has attracted wide-spread international support, without which it will not succeed. You are well aware of the collaboration between the researchers here at Karlsruhe and our researchers on fuel melt, aerosols, and related topics. There is also close collaboration on the hydrogen problem between U.S. and F.R.G. groups. More broadly, we are inviting extensive international collaboration and coordination of programs related to severe fuel damage, especially regarding the tests of severe core damage (Phase One) and of core melt progression (Phase Two) to be carried out at the Power Burst Facility (PBF) at Idaho National Engineering Laboratory. The Phase Two Core Melt Progression tests are proposed to carry the fuel beyond the melting point to supplement data from the Marviken V aerosol test. These Phase Two tests will also determine what additional sources of hydrogen actually occur in the course of fuel melt down. They will also give us data on how the molten fuel interacts with the structure in the pressure vessel as the accident progresses.

We are meeting with a great deal of interest in soliciting support for the Phase Two tests and believe we will be successful. Your understanding and support of our efforts are appreciated.

The next group of programs addresses events in the containment:

- How is hydrogen transported and burned, what loads does it impose on equipment?
- How are fission products transported into the containment, and how do they settle out there?
- How does the molten core interact with the concrete and other structures to yield gases, additional fission products and, basemat penetration?
- How does the containment respond to the various types of loads? What is the nature of leakage?

We will analyze in this area with the CONTAIN code which has recently been issued for trial use. The research program also includes scale model testing of containment response.

To summarize, we aim to have sufficient data and methods in hand in 1984 to form a sound technical basis for Commission rules on severe accidents. During the following two years we will develop data to confirm the decisions and allow the rules to be implemented in the licensing process.

That concludes my remarks on severe accident research. I would like to mention briefly some other reactor safety research topics of high interest in the U.S. today.

The first of these is the development of integral systems data to verify computer modeling of B&W reactors in accidents. You are familiar, because of F.R.G. support, with the GERDA facility at Alliance, Ohio. We believe the data from the tests to be conducted there in the next few months will be very useful for natural circulation conditions following a small break LOCA. But we have additional interests and steps are underway to discover how best to address them.

Research options are being considered by the NRC and B&W owners to develop a data base for the design features unique to the B&W 2 x 4 loop design. A working group has been established composed of representatives from NRC, each utility with a B&W reactor, B&W and EPRI. The group has prepared a list of specific areas for research and phenomena or system effects tests within each area. The next step will be evaluation of the available research facilities to meet the listed data needs. Our Advisory Committee on Reactor Safeguards has strongly supported the building of a new facility.

Two operating facilities, SRI and GERDA, and a proposed new facility, Semiscale MOD5, are being considered. Both existing facilities have shortcomings. For example, SRI is very small and limited to low pressures. GERDA, though large, has only one loop, no primary coolant pumps, and a short core. The proposed Semiscale facility would be scaled on a power/volume basis but would retain full system elevations. The Semiscale facility would be a 2 x 4 loop design with once through steam generators, active coolant pumps, vent valves, and a full length core. The data acquisition system and operating staff of the current Semiscale facility would be available for the MOD5 facility.

The NRC has also been supportive of the idea of an international consortium to share in the control and funding of the LOFT facility in Idaho. There are useful data that could be obtained from that facility if the costs were shared.

Of course, we are also pursuing important lessons from Three Mile Island regarding the human elements in reactor safety. Many code analyses are underway in government and industry laboratories to support the nationwide introduction of a new system of emergency procedures for use by the operators in the control room. These symptom-oriented procedures should yield much higher operator reliability in response to complex events involving multiple failures. Recent operating experience with steam generator tube ruptures and reactor coolant pump seal failures are reminders that we must maintain strong research programs and test facilities to continue to improve our understanding of the dynamic response of complex reactor systems.

That concludes my prepared remarks. I will be glad to respond to your questions.

FORSCHUNGSPROGRAMM
ÜBER SCHWERE REAKTOR
UNFÄLLE

WIE SICHER SIND
KERNKRAFT-
WERKE

WENN NICHT SICHER
GENUG, WIE KÖNNEN SIE
SICHERER GEMACHT
WERDEN?

ERFASSUNG DER
WAHRSCHEINLICHKEIT
DES UNFALLES

- DATA ANALYZE
- SYSTEM ANALYZE
- PHÄNOMENOLOGISCHE FORSCHUNG
- UNSICHERHEITSANALYZE

ERFASSUNG DER
KONSEQUENZ DES
UNFALLES

- ENTWICKLUNG DER RECHENPROGRAMME
- PHÄNOMENOLOGISCHE FORSCHUNG
- UNSICHERHEITSANALYZE

ERFASSUNG DER
WAHRSCHEINLICH-
KEITSÄNDERUNG

- DATA ANALYZE
- SYSTEM ANALYZE
- PHÄNOMENOLOGISCHE FORSCHUNG
- UNSICHERHEITSANALYZE

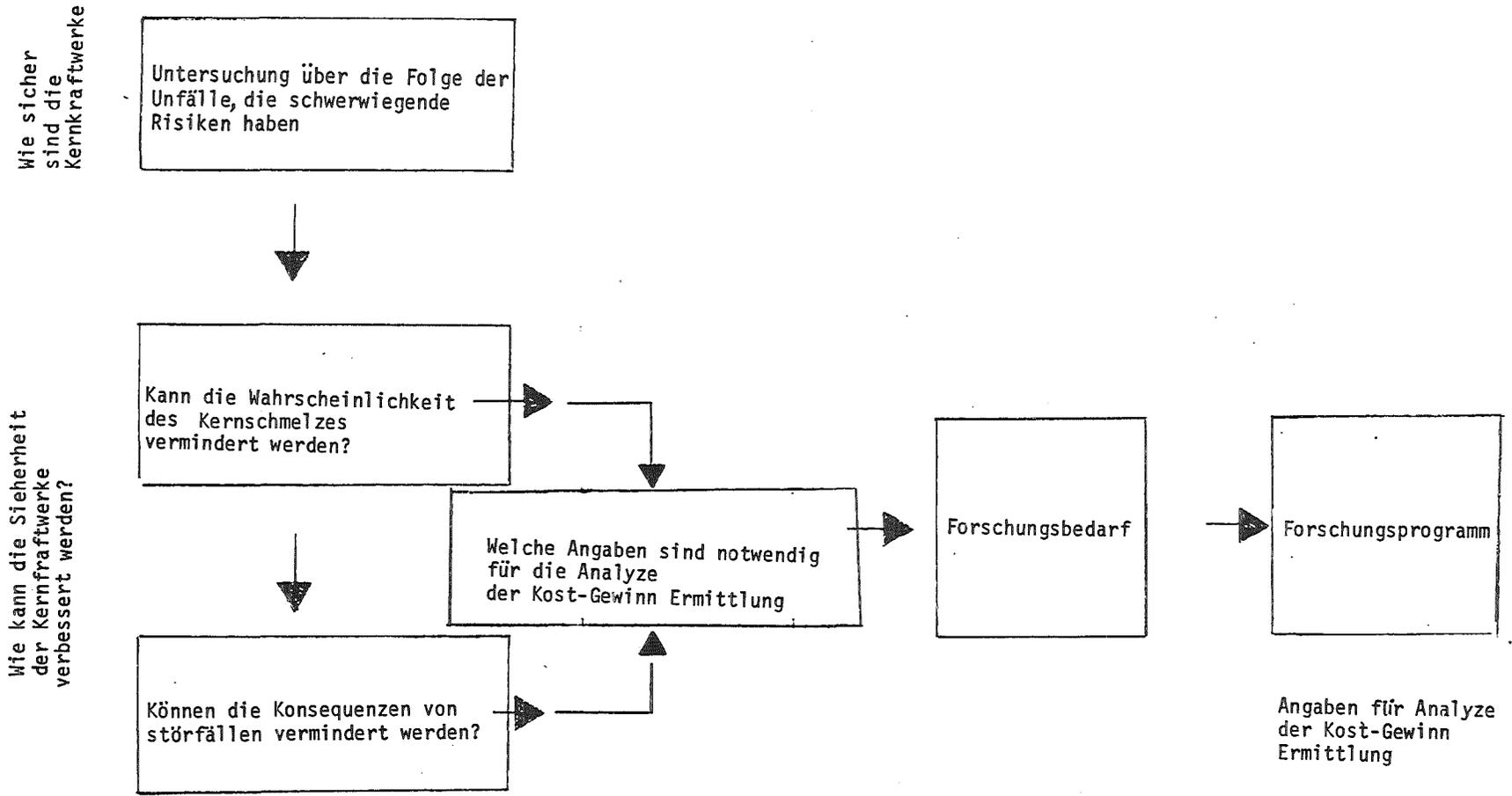
ERFASSUNG
DER KONSEQ-
UENZÄNDERUNG

- ENTWICKLUNG DER RECHENPROGRAMME
- PHÄNOMENOLOGISCHE FORSCHUNG
- UNSICHERHEITSANALYZE

ERFASSUNG
DER KOSTEN

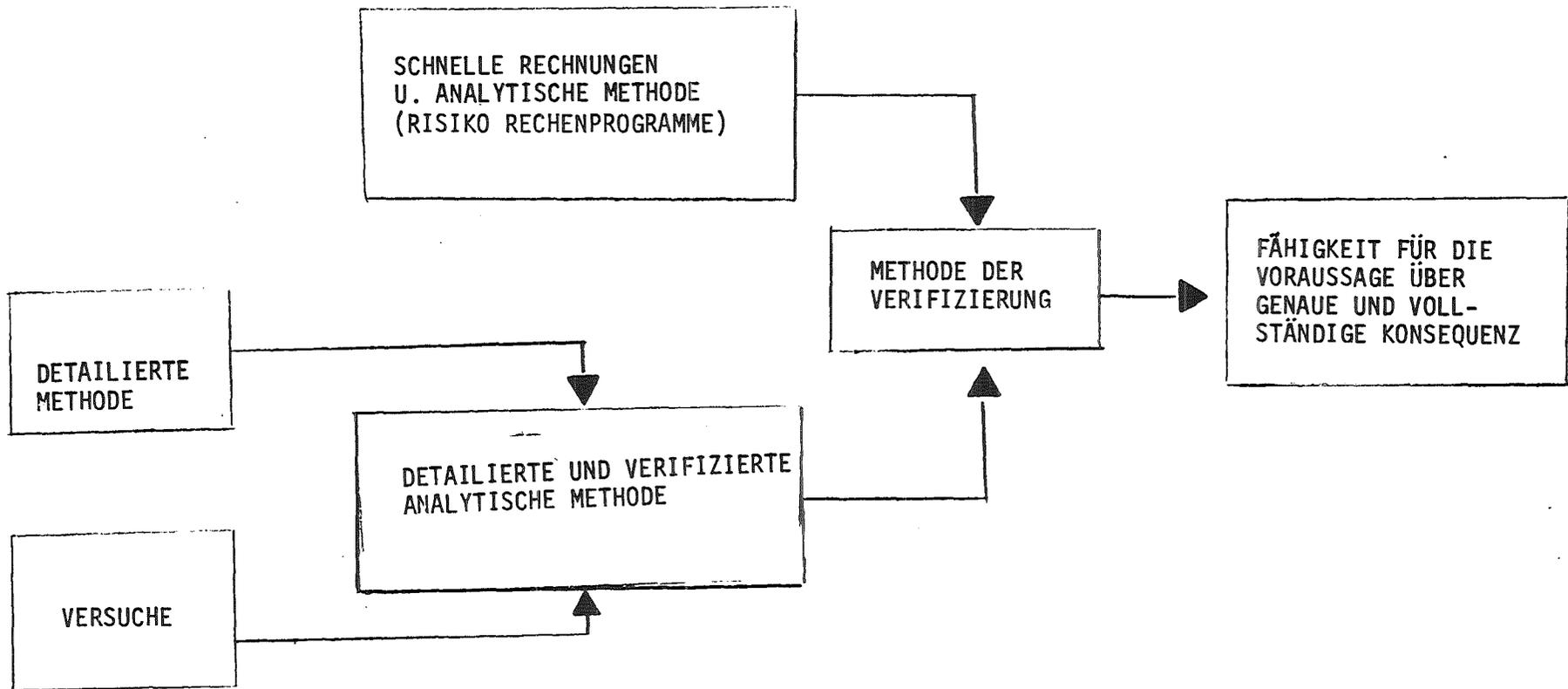
AUFLAGE FORMILI-
ERUNG ÜBER DIE
ÄNDERUNG FÜR DIE
INDUSTRIE

ANALYZE DER
REGELWERKE



Bestimmung und Gebrauch der Forschung

GENAUE UND VOLLSTÄNDIGE ANALYZE DER KONSEQUENZ DURCH PRA
(WAHRSCHEINLICHKEIT-RISIKO ANALYZE) BRAUCHT:



PHASEN EINES UNFALLES

INTAKT GEOMETRIE

KERN DEGRADIERUNG

SCHMELZ VERLAUF

VERHALTEN VON AEROSOL UND
SPALTPRODUKTEN IM REAKTORKÜHLSYSTEM



IM REAKTORDRUCKBEHÄLTER

VERSAGEN DES REAKTORDRUCKBEHALTERS-
SICHERHEITSBEHÄLTER WECHSELWIRKUNG

VERHALTEN VON KERN AUSSERHALB DES REAKTORDRUCKBEHÄLTERS

WASSERSTOFF PROBLEMATIK IN SICHERHEITSBEHÄLTER

VERHALTEN VON SICHERHEITSBEHÄLTER

VERHALTEN VON AEROSOLEN UND SPALTPRODUKTEN IM SICHERHEITSBEHÄLTER



SICHERHEITSBEHÄLTER

VERSAGEN DES SICHERHEITSBEHÄLTERS -- WECHSELWIRKUNG MIT ATMOSPHÄRE

VERHALTEN VON AEROSOL UND SPALTPRODUKTEN
IN DER UMGEBUNG



AUSSERHALB DES
KERNKRAFTWERKES

PROGRAMM ELEMENTE

UNFALLSWAHRSCHEINLICHKEITSANALYZE

ANALYZE DER FOLGEN VON REAKTORUNFÄLLE

BEHANDLUNG DES UNFÄLLES

VERHALTEN DES GESCHÄDIGTEN BRENNSTOFFES

WASSERSTOFFBILDUNG UND SEINE KONTROLLE

BRENNSTOFF - STRUKTUR WECHSELWIRKUNG

SICHEHEITSBEHÄLTER ANALYZE

VERSAGENSART DES SICHERHEITSBEHÄLTERS

FREISETZUNG UND TRANSPORT DER SPALTPRODUKTE

ENTWICKLUNG DES RISIKO RECHENPROGRAMMS

KONSEQUENZEN DER UNFÄLLE UND RISIKO ERMITTLUNG

RISIKO VERMINDERUNG UND KOST ANALYZE

REGELWERK ANALYZE UND STANDARDSENTWICKLUNG



PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT
JAHRESKOLLOQUIUM 1982

STAND DER REAKTORSICHERHEITSFORSCHUNG IM
PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

H. RININSLAND
A. FIEGE
W. GULDEN
F. HORSCH
J.P. HOSEMANN

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

Stand der Reaktorsicherheitsforschung im Projekt Nukleare Sicherheit

Zusammenfassung

Zum Abschluß der Untersuchungen zum 2F-LOCA wird über das dynamische Verhalten von Kernstützen beim Blowdown berichtet. Die Ergebnisse eines 7x7-Bündelversuches im REBEKA-Prüfstand bestätigen die bisherigen Erkenntnisse aus den 5x5-Bündelversuchen.

Erste Aufheizversuche mit Brennstäben bei höheren Temperaturen in Wasserdampf lassen vermuten, daß eine Temperatureskalation zu Temperaturen weit über 2200°C aufgrund inhärenter Effekte nicht zu erwarten ist.

Neue Versuchs- und Rechenergebnisse zeigen, daß die Unfallfolgen nach einem Kernschmelzenunfall aufgrund der konservativen Annahmen in den bisherigen Risikostudien stark überschätzt wurden.

Die Erprobung von ersten prototypischen Metallfaserfiltern ergab, daß dieses neue Filtermaterial aufgrund hoher mechanischer, chemischer und thermischer Beständigkeit für Störfallfilter unter extremen Bedingungen geeignet ist.

Außer der Ergebnisberichterstattung wird über einige experimentelle Vorhaben berichtet, deren Programme geplant sind und deren Versuchsanlagen sich in der Konstruktionsphase oder im Aufbau befinden.

Status of the Reactor Safety Research in the Project Nuclear Safety

Abstract

The dynamic behavior of control rod guide tubes during blowdown is reported. The results of a 7x7-bundle test at the REBEKA facility confirm the existing knowledge from the previous 5x5-bundle tests.

First heating up experiments with fuel rod simulators at higher temperatures in steam atmosphere seem to show that a temperature escalation up to temperatures above 2200°C may not be expected due to inherent effects.

New experimental and calculational results show, that the existing risk studies are overestimating the consequences of a core meltdown accident due to conservative assumptions. Even for the adverse case of the release category 2 no early fatalities are to be expected.

The testing of first prototypical metal fiber aerosol filters confirms that this new filter material is suitable for accident filters due to its high mechanical, chemical and thermal resistance under extreme conditions.

Besides reporting new results some planned experimental projects are reported.

Stand der Reaktorsicherheitsforschung im Projekt Nukleare Sicherheit

H. Rininsland
A. Fiege
W. Gulden
F. Horsch
J.P. Hosemann

1. Einleitung

Während des vergangenen Jahreszeitraums haben sich die internationalen Forschungsaktivitäten und Diskussionen über Reaktorsicherheit fast ausschließlich mit dem Bereich der schweren Störfälle und hypothetischen Unfälle und den sich daraus ergebenden Konsequenzen befaßt. Die Untersuchungen zum Auslegungstörfall wurden weitgehend abgeschlossen. Dies spiegelt sich wider sowohl in dem breit angelegten amerikanischen Programm zum Severe Core Damage, über das von R.J. Mattson im einzelnen berichtet wird, wie auch in den Versuchsplanungen der Inpile-Versuchsprogramme wie in der Power Burst Facility (PBF), im Phebus - Reaktor oder im SUPER SARA Programm. Auch die inzwischen vorliegenden Berichte zum britischen Public Inquiry für den ersten englischen DWR in Sizewell zeigen deutlich die Priorität von Störfällen, die über den Auslegungstörfall hinausgehen.

Wie aus den vergangenen PNS-Statusberichten bekannt, hat das PNS diese Schwerpunktverlagerung seit einigen Jahren allmählich vollzogen. Im vorliegenden Berichtszeitraum wurden erste wesentliche Ergebnisse erzielt.

Zunächst wird jedoch über die seit Jahren bearbeiteten Vorhaben zur dynamischen Beanspruchung von Reaktorkomponenten zu berichten sein.

Entsprechend der Struktur des PNS-Programmes werden sich die Ergebnisberichte über die Vorhaben zum Brennstabverhalten bei Störfällen, zu Kernschmelzenunfällen in LWR und zum Verhalten sowie zur Rück-

haltung und Auswirkung nach Störfällen freigesetzter Radionuklide anschließen.

2. Dynamische Beanspruchung von Reaktorkomponenten bei Störfällen

2.1 Vorbereitung, Berechnung und Auswertung von HDR-Experimenten

Die PNS-Vorhaben zur Untersuchung des dynamischen Verhaltens von Reaktorkomponenten hatten ihren Ursprung in begleitenden Analysen zu Versuchen der Phase I am stillgelegten Heißdampfreaktor HDR in Karlstein.

Ziel dieser Untersuchungen war der Nachweis, daß die bei einem plötzlichen Bruch der Primärkühlmittelleitung auftretenden dynamischen Beanspruchungen der Reaktoreinbauten Abschaltbarkeit und Nachkühlbarkeit des Reaktors nicht in unzulässiger Weise beeinträchtigen.

Die begleitenden Arbeiten zu den in den vergangenen Jahren durchgeführten Blowdown, Snapback und Prallplattenversuchen konzentrierten sich auf drei Bereiche:

- Entwicklung und Verifizierung von fluid-strukturdynamischen Rechenprogrammen zur Analyse der Beanspruchung von Reaktordruckbehälter und Reaktordruckbehältereinbauten,
- Auslegung, Vorausberechnung und Auswertung der HDR-Blowdown- und Snapback-Experimente zur dynamischen Belastung und Beanspruchung von Reaktordruckbehälter und Reaktordruckbehältereinbauten,
- Meßtechnische Erfassung und Auswertung des dynamischen Verhaltens der Versuchseinbauten im Reaktordruckbehälter.

Entsprechend dem Zeitplan der HDR-Experimente der Phase I werden diese Arbeiten größtenteils im Jahr 1983 abgeschlossen. Eine Beteiligung an einzelnen HDR- Experimenten der geplanten Phase II ist vorgesehen.

Die entwickelten Rechenprogramme

Abb. 1 gibt einen Überblick über die wichtigsten im Rahmen dieser Vorhaben entwickelten und verifizierten Rechenprogramme. Sie sind im wesentlichen abgeschlossen und stehen zur Untersuchung der dynamischen Vorgänge in Fluid und Struktur beim Kühlmittelverluststörfall eines DWR zur Verfügung. Im Mittelpunkt des Interesses steht dabei das dynamische Verhalten des Kernmantels aufgrund der im Kühlmittel laufenden Druckwellen.

CYLDY3

modelliert das dynamische Verhalten dünner, elastischer Kreiszyklinderschalen. Die Bestimmung der Eigenfrequenzen und Eigenschwingungsformen erfolgt mit hoher Genauigkeit durch analytische Lösung der Flüggeschen Schalengleichungen. Die Schalenenden sind ringversteift; ein Ring ist frei, der andere elastisch gebettet. Angewendet wird das Programm auf den Kernmantel und zylindrischen Teil des Druckbehälters. Eine hohe örtliche Auflösung ist möglich.

DRIX2D

berechnet instationäre Zweiphasenströmungen im thermodynamischen Nichtgleichgewicht. Die Geschwindigkeitsfelder von Wasser und Dampf werden getrennt behandelt. Das Verhalten von Druckwellen im Zweiphasengemisch kann untersucht werden, wobei nicht die einschränkende Annahme einer homogenen Strömung gemacht werden muß. Einsatzschwerpunkt ist die Ermittlung des Massenstromes und seiner räumlichen Verteilung bei räumlich oder zeitlich stark beschleunigten Strömungen, wie beispielsweise beim Blowdown.

FLUX

berechnet Belastungen und Beanspruchungen von Kerneinbauten in einem DWR in der unterkühlten Anfangszeit eines Blowdowns. Wesentliche Kennzeichen sind ein dreidimensionales Geometriemodell mit elastischem Kernmantel, die Berücksichtigung der Fluid-Struktur-Wechselwirkung und die Annahme kompressibler Potentialströmung. Kernmantel und RDB werden durch CYLDY3 approximiert. Für die Zweiphasenströmung kann DRIX2D angekoppelt werden. Die Bewegungsgleichungen für Fluid und Struktur werden simultan mit einem stabilen, impliziten Differenzverfahren integriert. Die Verwendung fortschrittlicher Lösungsverfahren für große lineare Gleichungssysteme

("schnelle elliptische Löser") führt zu hoher numerischer Effektivität.

Abb. 2 zeigt als Beispiel für ein Ergebnis des Programms DRIX2D die Druckprofile im Blowdown-Stutzen beim HDR-Versuch V32. Unten ist das Maschennetz gezeigt. Rechts ist die Bruchstelle, links der Übergang zum RDB. Aufgetragen ist der Druck als Funktion der axialen Koordinate zu verschiedenen Zeiten.

Abb. 3 enthält als Beispiel für Ergebnisse aus FLUX-Rechnungen das Isobarenfeld und die (stark vergrößert aufgezeichnete) Kernmantelverformung beim Blowdown in einem typischen DWR zum Zeitpunkt $t = 40$ ms nach Blowdown-Beginn.

Wesentliche Ergebnisse

Der Vergleich von Experimenten und Rechnungen zeigte, daß zur Erzielung aussagekräftiger Ergebnisse eine sachgemäße Modellierung der Fluid-Strukturkopplung unbedingt erforderlich ist, und daß zur Beschreibung der Systemantwort auf lokal begrenzte Belastungen ein hohes Auflösungsvermögen im Fluid- und Strukturteil der Rechenprogramme zweckmäßig ist.

Als konkrete Beispiele seien die Vorausberechnungen zum HDR-Blowdownversuch V32, der als deutsches Standardproblem Nr. 5 mit internationaler Beteiligung ausgeschrieben war, und der Versuch V33, bei dem ein Leck mit reduzierter Bruchfläche (ein Viertel des Rohrquerschnittes) simuliert wurde, erwähnt.

Die Vorausberechnungen für den Versuch V33 bestätigen den bereits früher erhobenen Befund, daß eine Reduktion des Bruchöffnungsquerschnittes auch beim HDR keine hierzu linear proportionale Reduktion der Belastungsgrößen für die RDB-Einbauten mit sich bringt.

Wie Abb. 4 zeigt, stimmen die mit den Programmen FLUX4, DRIX2 und CYLDY3 für das Standardproblem voraus berechneten Ergebnisse gut mit dem Experiment überein. Daß das nicht selbstverständlich ist, zeigt Abb. 5, in der Ergebnisse eines Rechenprogramms, das eine einfachere Modellierung der Fluidodynamik enthält, zusammen mit den experimentellen Ergebnissen aufgetragen sind.

2.2 Anwendung der Rechenprogramme auf DWR-Komponenten

Die in den vergangenen Jahren entwickelten Rechenprogramme wurden in der Zwischenzeit auf eine Reihe aktueller Fragen aus der Genehmigungspraxis für DWR-Anlagen angewandt und in Teilbereichen weiterentwickelt. Die Anwendungen wurden in Abstimmung oder gemeinsam mit Gutachtern und Herstellern durchgeführt. Im folgenden werden exemplarisch einige Beispiele herausgegriffen.

Weiterentwicklung des Programmes FLUX

Die Weiterentwicklungen in FLUX haben zum Ziel, die Rechenmodelle den Gegebenheiten eines modernen, großen Druckwasserreaktors anzupassen. Sie umfassen im einzelnen folgende Teilbereiche:

- ein Blendenmodell zur Simulation kleiner Bruchquerschnitte an Bruchstützen,
- ein Verfahren zur Simulation von spielbehafteten Lagern im Reaktordruckbehälter, bei denen es zu Anschlägen kommen kann,
- ein Rechenmodell für den Kern, das die Fluid-Struktur-Wechselwirkung zwischen den Brennelementen und dem Wasser sowie deren Bewegung im Verbund mit den Gitterplatten und dem Kernmantel modelliert.

Zur Abstützung und Verifikation dieses Kernmodells wurde ein Schwingungsprüfstand in Betrieb genommen. Er ermöglicht die Untersuchung des Koppelverhaltens stabförmiger Strukturen in Fluiden.

Das Verhalten der DWR-Corestützen beim Blowdown durch den heißen Stutzen

Die Berechnung der Strömungskräfte auf die Core-Stützen erfordert eine 3D-Modellierung des Strömungsfeldes im oberen Plenum (Abb. 6). Die Geometrie dieses Strömungsfeldes ist sehr kompliziert, da alle

die vielen Core-Stützen Fluid-Ränder darstellen, Die geringen Abstände der Core-Stützen erzwingen eine extrem feine Diskretisierung des Fluid-Feldes. Der Einsatz üblicher Lösungsmethoden führt deswegen zu einem Rechenaufwand, der jenseits unserer Computer-Kapazität liegt (bisher ist weltweit eine einzige 3D-Rechnung bekanntgeworden, allerdings für wesentlich größere Abstände der Core-Stützen als in unserem Falle).

Durch den Einsatz eines Randintegral-Verfahrens gelang es, den numerischen Aufwand so zu reduzieren, daß auch das komplizierte 3D-Strömungsfeld zwischen den zahlreichen eng benachbarten Core-Stützen befriedigend beschrieben werden konnte.

Der Vergleich mehrerer Rechnungen mit unterschiedlichen Annahmen zeigt, daß gewisse Vereinfachungen zulässig sind. So spielt es keine Rolle, ob die Bruchöffnung am Blowdown-Stützen plötzlich oder innerhalb von 4 ms erfolgt.

Vor allem aber ergab sich, daß die Vernachlässigung der Fluid-Kompressibilität keinen erheblichen Einfluß auf die maximalen Core-Stützen-Verformungen und Spannungen hat. Dies bedeutet, daß - im Gegensatz zu weit verbreiteten Vermutungen - die Ausbreitung von Druckentlastungswellen nicht von wesentlicher Bedeutung ist.

Abb. 7 zeigt die berechneten Kräfte für den mittleren Abschnitt der Core-Stützen. Selbstverständlich sind diese Kräfte um so größer, je näher sich die Stützen am Blowdown-Stützen befinden.

Die sich ergebenden Spannungen in den Stützen mit großem Durchmesser überschreiten den elastischen Bereich nur geringfügig. Lediglich bei einer einzigen kleinen Stütze in unmittelbarer Nähe des Blowdownstutzens muß mit Versagen gerechnet werden. Diese Aussagen gelten für eine sehr schnelle und volle Öffnung des Blowdownstutzens.

Damit ist gezeigt, daß auch unter recht ungünstigen Annahmen die wesentlichen Reaktordruckbehälter-Einbauten den Blowdown-Banspruchungen standhalten.

2.3 Störfallbeanspruchung von DWR-Stahl-Containments

Die Zielsetzung dieses Vorhabens umfaßt die drei Teilbereiche:

- Überdruckbeanspruchung oberhalb der Auslegungsgrenzen
- dynamische Beanspruchung (z.B. durch Erdbeben)
- lokales Beulen

Zum ersten Teilbereich liegen bereits erste Ergebnisse vor.

Eine Überdruckbeanspruchung oberhalb der Auslegungsgrenzen wird beim postulierten Kernschmelzunfall erwartet. Für die Unfallfolgen ist die Zeit bis zum Versagen, aber auch die Art des Versagens von erheblicher Bedeutung.

Aus diesem Grunde wird das mechanische Verhalten des Containments beim Überschreiten der Fließgrenze genauer untersucht. In diesem Fall kann das Containment in guter Näherung als Kugelmembran behandelt werden. Eine besonders gute örtliche Auflösung ist im Bereich von Störstellen (größere Wandstärken im Stützenbereich und Imperfektionen, die bei der Herstellung in Form von Unterschleifungen, Kantenversatz, Schweißfehlern, Riefen u.a. im Rahmen der nach KTA-Regel zulässigen Toleranzen entstanden sind) erforderlich. Hier werden Dehnungskonzentrationen erwartet, die schließlich zum Versagen führen.

Zur Durchführung von Rechnungen wurde das Computerprogramm ROTMEM entwickelt. Abb. 8 zeigt als erstes Ergebnis plastische Verformungen bei 10 bar Überdruck. Ein besonders wichtiges Ergebnis ist die Dehnungskonzentration im Schadensbereich vor dem Stützen (am Nordpol). Sie wird durch das plastische Materialverhalten erheblich verstärkt. Es sei jedoch darauf hingewiesen, daß das verwendete Stoffgesetz noch durch Experimente überprüft werden muß. Um dabei die Mehrachsigkeit des Spannungszustandes richtig zu erfassen, werden Laborversuche in kleinem Maßstab durchgeführt. Am Rand fest eingespannte, ebene Kreismembranen werden einseitig mit Druck beaufschlagt, bis sie - nach erheblichen Verformungen - versagen.

Dynamische Beanspruchungen werden vor allem durch Erdbeben verursacht. Zwar ist man in Deutschland nach bisherigen Rechnungen weit vom Versagen entfernt. Auf der anderen Seite wurden hierbei aber Abweichungen von einer Idealgeometrie nicht berücksichtigt, die möglicherweise einen nicht unerheblichen Einfluß haben. Aus diesem Grunde soll das dynamische Verhalten des Containments unter Berücksichtigung der wesentlichen Imperfektionen untersucht werden. Neben theoretischen Arbeiten sind insbesondere Messungen an einer Modell-Kugelschale, Durchmesser etwa 1,2 m, Wandstärke 1 mm, geplant. Eine formgenaue Kugelschale wird zur Zeit in einem komplizierten Zerspanungsverfahren hergestellt.

3. Brennelementverhalten bei Störfällen

3.1 Untersuchungen zum Kühlmittelverluststörfall - REBEKA-5

Über den weitgehenden und erfolgreichen Abschluß der Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen wurde während des Jahreskolloquiums 1981 berichtet. In der damaligen Berichterstattung über die Ergebnisse des REBEKA- und FEBA-Programmes wurde angekündigt, daß ein weiterer REBEKA-Versuch mit einem 7 x 7 - Bündel (gegenüber den bis dahin eingesetzten 5 x 5-Bündeln) in Vorbereitung ist. Dieser Versuch REBEKA 5 ist inzwischen erfolgreich durchgeführt worden und hatte zum Ziel, letzte Zweifel an der Aussagefähigkeit der 5 x 5-Bündel-Experimente auszuräumen und insbesondere den Einfluß der Stab-zu-Stab-Wechselwirkung auf das Aufblähen der Hüllrohre nochmals in einem größeren Bündelverband zu untersuchen.

Die REBEKA-Bündelversuche haben das Ziel, experimentelle Informationen über den Aufblähvorgang von Zircaloyhüllen in der Wiederauffüll- und Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles zu liefern, um Aussagen über das Ausmaß und die Verteilung von Kühlkanalversperrungen machen zu können.

REBEKA-5 (Abb. 9) ist ein Out-of-pile-Bündelexperiment in 7 x 7-Anordnung mit 49 Brennstabsimulatoren voller Länge und stufenlosem

cosinusförmigem, axialem Leistungsprofil. Alle 49 Brennstab-simulatoren waren mit Zircaloyhüllrohren versehen und mit Innendruck beaufschlagt. Der äußere Ring von Stäben war in diesem Experiment ebenfalls verformungsfähig, um eine maximale mechanische Wechselwirkung zwischen den Stabhüllen zu ermöglichen.

Die zu untersuchenden Fragen waren, ob ein stufenloses cosinusförmiges, axiales Leistungsprofil, eine intensive Stab-zu-Stab-Wechselwirkung und/oder die Bündelgröße selbst, die Dehnungen bzw. die Hüllkanalversperrungen vergrößern können.

Bei einer stationären Bündeltemperatur von etwa 150°C erfolgte die Innendruckaufgabe von 70 bar auf die Stäbe. Das Bündel wurde von 150°C auf 765°C mit etwa 7 K/s aufgeheizt. Während der Aufheizphase herrschte im Bündel eine abwärtsgerichtete Dampfströmung von 2 m/s.

Mit Erreichen einer Hüllrohrtemperatur in Bündelmitte von 765°C wurde das Bündel mit einer kalten Flutrate von etwa 3cm/s geflutet. (Systemdruck 4 bar, Flutwassertemperatur 130°C).

Die Verformung begann in der Aufheizphase. Der maximale Innendruck wurde mit 88 bar gemessen. Das Bersten der inneren 25 Stäbe erfolgte in der frühen Flutphase in einem Zeitintervall von 25 Sekunden bei etwa 800°C und 68 bar.

Abb. 10 zeigt das axiale Verformungsprofil der inneren 25 Stäbe. Trotz einiger lokal recht hoher Dehnungen beträgt die mittlere maximale Berstdehnung der inneren 5 x 5 Stäbe nur 52%, die der inneren 3 x 3 Stäbe 48 %. Die Kühlbedingungen während der plastischen Verformung verursachten eine axiale Verteilung der Berststellen um die axiale Mittelebene des Bündels, so daß die maximale Kühlkanalversperrung wie im kleineren REBEKA-3-Experiment nur 52 % beträgt. Abb. 11 zeigt einen Schnitt durch das verformte Bündel in der Ebene maximaler Kühlkanalversperrung, der den Eindruck der Seitenansicht, die ein stark versperrtes Bündel vermittelt, wieder entschärft. Trotz mechanischer Wechselwirkung der

Stäbe untereinander und des stufenlosen cosinusförmigen Leistungsprofils tritt keine Vergrößerung der Kühlkanalversperrung auf verglichen mit Ergebnissen an Versuchen mit kleineren Bündelanordnungen, d.h. es konnte kein Einfluß der Bündelgröße selbst auf die Dehnung oder Kühlkanalversperrung festgestellt werden. Die REBEKA-5 Ergebnisse stehen mit dem bisherigen Erkenntnisbild in guter Übereinstimmung.

3.2 Untersuchungen zu schweren Kernschäden

Ziel dieser Forschungsvorhaben ist:

- die Untersuchung der relevanten physikalischen und chemischen Phänomene im Hochtemperaturbereich,
- die Entwicklung von Rechenmodellen zur Beschreibung des Schadensausmaßes im Hochtemperaturbereich,
- die Quantifizierung der Sicherheitsreserven der in allen Leichtwasserreaktoren vorhandenen Sicherheitssysteme und das Ausloten ihrer Möglichkeiten, eine Hochtemperaturtransiente vor dem Übergang zum unkontrollierten Kernschmelzenunfall abzufangen.

Das Gesamtprogramm umfaßt.

1. Einzeleffektuntersuchungen zur
 - Hochtemperaturoxidation von Zircaloy und Strukturmaterial in Wasserdampf und zur
 - Wechselwirkung zwischen Zircaloy und UO_2 .
2. Einzelstab- und Bündelexperimente mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren (CORA-Programm).
3. Out-of-pile-Versuche zur Langzeitkühlbarkeit schwer beschädigter Kernstrukturen (COLD-Programm).

4. Glühexperimente zur Spaltgasfreisetzung.
5. Modellentwicklung und Weiterentwicklung des Programmsystems SSYST.

3.2.1 Einzeleffektuntersuchungen

Die Hochtemperaturoxidationsversuche an Zircaloy4-Hüllrohrabschnitten in Wasserdampf wurden bis zu Temperaturen von 1600°C und Versuchszeiten bis zu 25 h fortgesetzt (Abb. 12). Es zeigte sich, daß die Sauerstoffaufnahme zwischen 1000 und 1500°C mit guter Genauigkeit durch die ursprünglich für Kühlmittelverluststörfälle aufgestellten kinetischen Gleichungen beschrieben werden, die von einer parabolischen Zeitabhängigkeit und einer exponentiellen Temperaturabhängigkeit der Oxidation ausgehen. Die parabolische Zeitabhängigkeit der Oxidationskinetik wird erst durch den fortschreitenden Konsum der Hüllrohrwand begrenzt.

Der bei Temperaturen unterhalb von 1000°C und Standzeiten von $>0,5$ h beobachtete Breakaway-Effekt mit linearer Zeitabhängigkeit der Sauerstoffaufnahme wurde bei hohen Temperaturen nicht mehr beobachtet.

In der Arrheniusauftragung der parabolischen Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten gegen die reziproke absolute Temperatur (Abb. 13) finden die Ergebnisse Anschluß an die bisherigen Untersuchungen bei Temperaturen $< 1200^{\circ}\text{C}$. Die bei 1550°C auftretende Diskontinuität der linearen Funktionen ist der ZrO_2 -Umwandlung von der tetragonalen in die kubische Struktur zuzuschreiben.

Über die Ergebnisse der bisher durchgeführten Untersuchung zur Wechselwirkung zwischen Zircaloyhüllrohren und UO_2 -Brennstoff gibt der Bericht von W. Dienst, P. Hofmann und D. Kerwin Auskunft.

3.2.2 Stand des CORA-Programms

Die wesentlichen Ziele des CORA-Programms sind:

- Untersuchung der konkurrierenden Effekte der Hüllrohroxi-
dation in Wasserdampf und der Bildung schmelzflüssiger Phasen
zwischen nichtoxidiertem Zircaloy und UO_2 -Brennstoff unter
realistischen Randbedingungen,
- Untersuchung des Verhaltens von flüssigen Phasen in Brennstoff-
bündeln und ihre Wechselwirkung mit Dampf,
- Bestimmung des Einflusses von Abstandshaltern, Absorbermaterial
und Steuerstabführungsrohren,
- Untersuchung der Fragmentation von stark versprödeten und
zerstörten Brennstäben während des Quenchvorganges,
- Durchführung von Out-of-pile-Referenzversuchen für Inpile-
Experimente, wie PBF, Phebus und SUPER SARA.

Die Ergebnisse dienen der Verifizierung von Rechenmodellen, die mit Hilfe von Einzeleffektuntersuchungen aufgestellt werden. Diese Zielsetzung verlangt eine gut instrumentierte, flexible Versuchsanlage, in der sowohl Einzelstäbe wie auch Bündelanordnungen bis zum Schmelzen der Zircaloyhüllrohre aufgeheizt und anschließend mit Wasser gequenchet werden können. Abb. 14 zeigt das Schema der Versuchsanlage mit ihren Hauptkomponenten.

Inmitten eines schalenförmig aufgebauten Hochtemperaturschirmes (1) befindet sich das Testbündel (2) von max. 37 Stäben verschiedener Ausführung in einer 7 x 7 Anordnung.

Die Stablänge beträgt etwa 2 m, wobei jeweils 0,5 m lange unbeheizte Enden der aktiven Stablänge von 1 m vorgeschaltet sind.

Unterhalb des Bündels befindet sich der wassergefüllte Quenchtrichter (3), der hydraulisch mit einstellbarer Geschwindigkeit über das Bündel gefahren werden kann. Über dem Hochtemperatur-

schirm erkennt man den Schwallkondensator (4), der mit seinem Volumen gleichzeitig als Druckabbausystem bei zu intensiven Ausdampfvorgängen während des Quenchvorganges wirkt.

Die Kondensation des Überschußwasserdampfes aus dem Oxidationsvorgang erfolgt mit dem Schwadenkondensator (5).

Alle Anlagenkomponenten, bei denen eine Kontamination während oder nach dem Versuchsablauf nicht auszuschließen ist, sind in dem Containment (21) zusammengefaßt, das neben seiner Funktion als Kontrollbereich gleichzeitig die einer druckfesten Hülle übernimmt.

Alle Komponenten, bei denen keine direkte Kontaminationsgefahr besteht, befinden sich außerhalb des Containments; dazu zählt insbesondere der Leitstand zur Steuerung des Versuchsablaufs.

Abb. 15 zeigt die konstruktive Ausführung und die Anordnung der wichtigsten Hauptkomponenten innerhalb des Containments.

In Abb. 16 sind der Brennstabsimulator sowie einige mögliche Stabanordnungen im 7 x 7-Bündel dargestellt. Um eine möglichst realistische Simulation des Stabverhaltens zu ermöglichen, ist es vorgesehen, einzelne Stäbe oder Stabgruppen mit Vollpellets in das Bündel zu integrieren.

In Abb. 17 ist der Ablaufplan eines Bündelversuches schrittweise dargestellt.

In der Montagephase A der Einzelstäbe zu einem Bündel ist der Hochtemperaturschirm in das Gehäuse des Quenchtrichterantriebes abgesenkt und seitlich versetzt. Dadurch werden die Montagemaßnahmen am Bündelkopf oder z.B. das Durchschieben der Stäbe durch die Abstandshalter wesentlich erleichtert.

Für die Aufheizphase B wird das Quenchtrichtergehäuse wieder unter die Bündelachse gefahren, der Hochtemperaturschirm hochgezogen und angeflanscht. Die gesamte Apparatur wird evakuiert und mit Inert-

gas gespült. Während des Aufheizvorgangs strömt Sattedampf vom Bündelfuß aus gleichmäßig über den Bündelquerschnitt.

Beim Quenchvorgang C wird der wassergefüllte Quenchtrichter in den Hochtemperaturschirm eingefahren. Er dient dann gleichzeitig bei dem zu erwartenden heftigen Ausdampfvorgang als Schutzschild für den Hochtemperaturschirm.

In den Phasen D und E wird schrittweise zuerst der Hochtemperaturschirm und dann der Quenchtrichter aus der Bündelebene abgesenkt, und der Bündelzustand ist wieder frei inspizierbar.

Für die Phasen der Bündelfixierung, den Ausbau und die Nachuntersuchungsvorbereitung ist, wie in der Phase A, das Unterteil der Versuchsanlage seitlich verschoben.

Wir gehen davon aus, daß die Versuchsanlage CORA 1984 zur Verfügung stehen wird.

Im Rahmen des CORA-Programms sind insgesamt etwa 22 Einzelstabversuche und etwa 20 Bündelversuche vorgesehen. Die Versuchsmatrix ist in den Tab. 1 und 2 (Abb. 18a und 18 b) dargestellt,

Bis zur Fertigstellung der Versuchsanlage CORA wird ein Teil der Einzelstabversuche, bei denen kein Quenchvorgang vorgesehen ist, in der aus früheren Abschmelzversuchen zur Verfügung stehenden Anlage NIELS durchgeführt. Diese Experimente sind bereits unterwegs und konzentrierten sich in der ersten Phase auf den Einfluß der bei der Zirkon-Wasserdampf-Reaktion freiwerdenden Reaktionsenergie auf den Temperaturanstieg. Erste Ergebnisse mit Einzelstäben und einer 3 x 3 Bündelanordnung (Abb. 19) deuten darauf hin, daß möglicherweise inhärente Effekte, wie die Ausbildung von Wasserstoffschichten und Diffusionsbarrieren auf der Oberfläche des Zirkonoxids oder das Abfließen von geschmolzenem Zircaloy, die sehr heftig verlaufende Temperaturskalation vorübergehend abbremsen können. Falls dieses vorläufige Ergebnis mit gezielten Einzeleffektuntersuchungen weiter erhärtet werden kann, bedeutet dies, daß bei Überschreiten der bisherigen Auslegungsgrenzen mehr

Zeit für die Reaktivierung von Sicherheitssystemen besteht, als bisher angenommen wurde.

3.2.3 Stand des COLD-Programms

Die im Rahmen des Vorhabens COLD-Programm durchgeführten out-of-pile Experimente zur Langzeitkühlbarkeit beschädigter Kernstrukturen bzw. Schüttbetten dienen dem Auffinden von Kühlbarkeitsgrenzen für ein größeres Spektrum von Randbedingungen, insbesondere für Fälle, wo nur Naturkonvektion für die Umwälzung des Kühlmittels verfügbar ist; sie sind darauf ausgerichtet, Grenzwerte der Wärmeabfuhr zu ermitteln und die beteiligten Mechanismen zu verstehen. Von den bis jetzt erzielten Ergebnissen werden im folgenden einige genannt, die mit idealisierten Schüttbetten aus 3 mm Kugeln gewonnen wurden:

- Beziehungen für die maximal ohne Dryout kühlbare Leistungsdichte in Betten mit "TOP FED" Kühlung, die bisher nur bis 25 cm Bett-
höhe experimentell untermauert waren, gelten unverändert auch bis 50 cm Bett-
höhe und vermutlich darüber (Abb. 20).
- Es wurde gefunden, daß die Stelle, an der beim Dryout die erste
Überhitzung stattfindet, am unteren Ende des Bettes liegt, wenn
die kleinste, zum Dryout führende Leistung zugeführt wird und
daß diese Stelle bei höherer Leistung weiter oben liegt. Ein
Rechenmodell, daß auf dem erstmals beobachteten hydraulischen
Dryout-Mechanismus aufgebaut wurde, kommt zu sehr ähnlichen Er-
gebnissen (Abb. 21).
- Wenn die Kühlflüssigkeit anders als bei den o.g. Ergebnissen
nicht nur von oben, sondern auch durch einen permeablen Boden
von unten dem Bett zuströmen kann ("BOTTOM FED"), ist die Dry-
out-Wärmestromdichte sehr viel höher; bei Naturumlauf durch einen
Downcomer von Bett-
höhe ergibt das Experiment eine Verbesserung
auf mehr als den doppelten Wert (Abb. 22). Das erleichtert die
Kühlung beschädigter Kernstrukturen wesentlich, wird aber in
existierenden Rechenmodellen noch nicht richtig beschrieben.

In weiteren Versuchen sollen sehr tiefe Betten (nach Möglichkeit bis zu 2 m tief) und ein variabler Kühlmittelzufluß von unten untersucht werden.

3.3 Code-Entwicklung zum Brennstabverhalten

Mit der Fertigstellung der Version SSYST-3 noch in diesem Jahr ist die Programmentwicklung zum Brennstabverhalten unter LOCA-Bedingungen abgeschlossen. Das Programmsystem ist einsetzbar für folgende Analysen:

- Verhalten von Brennstäben und Brennstabsimulatoren unter Störfallbedingungen, die nicht zum Aufschmelzen der Stäbe führen,
- Ermittlung des Schadensumfangs im Kern eines DWR bei Kühlmittelverlust mit großem Leck unter Verwendung von Einzelstabmodellen und probabilistischen Methoden.

Weiterentwicklung von SSYST zur Analyse des Brennstabverhaltens bei hohen Temperaturen

Das modulare Programmsystem ist so konzipiert, daß es mit geringem Aufwand für den Einsatz für beliebige Störfallszenarien erweitert werden kann. Zur Analyse des Verhaltens von Brennstäben und Brennstabsimulatoren unter SFD (=severe fuel damage)-Bedingungen muß das Code-System SSYST um einige Modelle für den Bereich hoher Temperaturen erweitert werden.

Basis zur Erstellung und Verifikation werden die Einzeleffekt-Untersuchungen zur Oxidation von Zry bei hohen Temperaturen, die experimentellen und theoretischen Untersuchungen zur Wechselwirkung von Zry und UO_2 , sowie die in den Anlagen NIELS und CORA durchzuführenden integralen Einzelstab- und Bündelexperimente sein.

Schwerpunkt der Modell-Entwicklung sind die folgenden Phänomene:

1. Die Oxidationskinetik bei hohen Temperaturen zur Ermittlung des
 - Sauerstoffprofils im Hüllrohr
 - Einflusses eines begrenzten Dampfangebots auf das Sauerstoffprofil.
2. Entstehung und Verhalten schmelzflüssiger Phasen beim Kontakt Brennstoff-Hülle.
3. Einfluß des Wasserstoff- und Dampf-Konzentrationsprofils an der Hüllrohroberfläche und im angrenzenden Kühlkanalbereich auf das Oxidationsverhalten.

Parallel dazu müssen zum besseren Verständnis und zur Interpretation der NIELS- und CORA-Experimente einige der anlagentypischen Phänomene in Rechenprogrammen modelliert werden wie z.B.

- Wärmeproduktion durch elektrische Heizleiter
- Geometrischer Aufbau des Simulators
- Einfluß des Zry-Shrouds auf das Stabverhalten
- Einfluß der Dampfführung auf das Stab- und Bündelverhalten.

Zur Zeit ist der unter Punkt 1 erwähnte Modul zur detaillierten Berechnung des Oxidationsverhaltens bei hohen Temperaturen bereits fertiggestellt. Mit der Entwicklung der übrigen Moduln wurde begonnen.

4. Kernschmelzen

Im Statusbericht des letzten Jahres konnte berichtet werden,

- 1) daß eine komplette Liste von Freisetzungsdaten der wichtigsten Spaltprodukte und Aerosole aufgrund der systematischen Freisetzungsexperimente in der SASCHA-Versuchsanlage aufgestellt werden konnte,

2) daß mit Hilfe des NAUA-Codes das Verhalten der nach dem Kernschmelzenunfall luftgetragenen Partikelmasse beschrieben und als Zeitfunktion berechnet werden kann,

3) der Code WECHSL die Betonzerstörung beschreibt und auf dieser Basis der Containment-Code COCMEL den zeitabhängigen Druckaufbau im Containment zu berechnen gestattet.

Auf der Basis der vorhandenen Ergebnisse und mit Hilfe der verbesserten Rechenverfahren wurde eine Neubewertung der Unfallfolgen für die Freisetzungskategorien 6 und 2 im Falle des Niederdruck-Kernschmelzenunfalles vorgenommen. Diese Ergebnisse wurden von PNS auf der diesjährigen Jahrestagung der Kerntechnischen Gesellschaft zur Diskussion gestellt. Es sei in Erinnerung gerufen, daß der Niederdruckfall eines Kernschmelzenunfalls durch das doppelendige spontane Versagen der Primärkühlmitteleitung eingeleitet wird und nach dem hypothetischen Versagen des Sumpfkühlbetriebes in den unkontrollierten Kernschmelzenunfall mündet.

Bei der Freisetzungskategorie 6 wird durch einen allmählichen Druckaufbau das Containment spät versagen, d.h. aufgrund der jetzigen Kenntnisse nach 4.5 Tagen. Beim FK 2 wird angenommen, daß bereits bei Unfallbeginn das Containment eine Öffnung mit einem Durchmesser von 300 mm aufweist; d.h. daß z.B. beide in Reihe liegende Abschlußklappen des sog. Containmentabschlusses in der Fortluftleitung des Containments in ihrer Schließfunktion versagen.

Die wesentlichen PNS-Ergebnisse lassen sich in den folgenden beiden Tabellen zusammenfassen - und zwar aufgeteilt nach den radioologisch wichtigsten Elementen - und mit den Ergebnissen der Deutschen Risikostudie (DRS) vergleichen. Angegeben sind jeweils die auf das Kerninventar bezogenen freigesetzten Massen aller Isotope eines Elementes. Dabei ist der radioaktive Nachzerfall seit Blowdown nicht berücksichtigt.

Beim FK 2 (Abb. 23) führen die neuen Ergebnisse zu einer Verminderung der Jod (I_2)- und Caesium-Freisetzung um 1 1/2 Größenordnungen gegenüber der DRS. Der Unterschied bei Tellur, vor

allem bei Barium und Strontium ist noch größer. Die Edelgase werden in jedem Falle zu 100% freigesetzt, jedoch zeitlich stärker verzögert, als in der DRS angenommen.

Beim FK 6 (Abb. 24), der häufigsten Freisetzungskategorie, zeigen die PNS-Resultate für die Jodfreisetzung eine Verringerung um 5 Größenordnungen, bei Caesium und Tellur um 3 und bei Barium und Strontium um 4 Größenordnungen gegenüber den Werten der DRS.

Bei der Berechnung der Unfallfolgen auf der Basis der neuen Ergebnisse mit dem Rechensystem UFOMOD, das auch für die DRS eingesetzt wurde, zeigte sich u.a., daß das Jod für die Unfallfolgen bestimmend ist und zwar auf dem Ingestionspfad. Bei einer Diskussion über das UFOMOD im Sinne einer realistischen Betrachtungsweise sollte überlegt werden, ob es für den hypothetischen Kernschmelzenunfall sinnvoll ist,

- a) den Ingestionspfad zu berücksichtigen,
- b) Dosen, die unterhalb den nach § 28.3 Strahlenschutzverordnung zugelassenen liegen, in die Berechnung der Früh- und Spätschäden einzubeziehen.

Berechnet man die Unfallfolgen mit der derzeitigen UFOMOD-Version, so ergeben sich beim FK 6 weder Früh- noch Spätschäden. Beim FK 2 treten rechnerisch bei fast allen Wetterbedingungen keine Fröhschäden mehr auf. Lediglich bei extrem ungünstigen Bedingungen werden nach UFOMOD einige wenige Fröhschäden ausgerechnet. Die Spätschäden verringern sich um den Faktor 6. Es sei nochmals darauf hingewiesen, daß mehr als 3/4 aller Spätschäden sich beim FK 2 aus Strahlendosen ergeben, die unterhalb der Grenzwerte des § 28.3 StrSchV liegen. Fast 90% aller Spätschäden sind auf Ingestion zurückzuführen.

Die hier kurz dargestellte Neubewertung der Unfallfolgen beruht auf dem bisherigen Stand des Wissens. Bestätigung und Verbesserung des Wissens werden aus den noch vor uns liegenden Untersuchungsprogrammen erwartet.

1) Hier ist zunächst das BETA-Programm zu nennen, daß im Vortrag von H. Alsmeyer, M. Peehs und D. Perinić mit einer Beschreibung der aufwendigen BETA-Anlage und der geplanten Versuchsmatrix im Detail vorgestellt wird. Hier sei nur auf folgende Punkte hingewiesen:

- Die Vorversuche auch mit Tiegeln in BETA-Dimension sind abgeschlossen.
- Tiegeltechnik und Instrumentierung sind erfolgreich erprobt.
- Die Inbetriebnahme der BETA-Anlage wird in der 2. Hälfte 1983 erwartet, so daß Anfang 1984 mit dem Versuchsbetrieb begonnen werden kann.
- Das geplante Versuchsprogramm könnte in 1985 beendet werden.
- Die Gesamtkosten des BETA-Programms, d.h. Anlagen- und Versuchskosten ohne Personalkosten der KfK-F+E-Mannschaft, werden bei ca. 20 Mio DM liegen.

Die Ergebnisse dienen der Verifizierung der entwickelten Codes wie WECHSL (KfK), KAVERN (KWU) und CORCON (Sandia), um möglichst realistisch den Zeitpunkt des Versagens des Sicherheitsbehälters sowie auch die treibenden Kräfte, die die Freisetzung aus Leckagen im Sicherheitsbehälter bestimmen, zu ermitteln.

2) Für eine abschließende Demonstration der NAUA-Berechnungen und des Containmentcodes der KWU COCMEL ist eine Versuchsreihe im Modell-Containment von Battelle/Frankfurt unter dem Namen DEMONA geplant. Neben KWU, Battelle und PNS wird sich die Schweiz an den Versuchen beteiligen. Hierzu wurde zwischen dem EIR und dem PNS 1982 ein Vertrag abgeschlossen. Mit Billigung des BMFT wurde von deutscher Seite beschlossen, sich unmittelbar, d.h. finanziell an dem internationalen Marviken V -Projekt nicht zu beteiligen, das der Untersuchung des Aerosolverhaltens im Primärkreis dient. Die deutsche Seite ist jedoch bereit, das DEMONA-Projekt statt Geld in diese internationale Zusammenarbeit einzubringen.

- 3) Da das Jod, wie bereits gesagt, in erheblichem Maße die Unfallfolgen bestimmt, ist seinem physikalisch-chemischen Verhalten vor allem in der Nachunfall-Atmosphäre besondere Bedeutung beizumessen. In dem zur Zeit verwendeten neuen Jodmodell mußten mangels genauen Wissens noch einige pessimistische Annahmen gemacht werden. Um diese durch realistische experimentelle Ergebnisse zu ersetzen, wird im PNS im IRCH ein F+E-Vorhaben zur Frage der Wechselwirkung Jod/Aerosol vorbereitet, während die KWU die Wechselwirkung Jod/Sumpfwasser untersucht, um den Verteilungskoeffizienten in Abhängigkeit vom Verhältnis I^-/I_2 zu bestimmen.
- 4) Zur Zeit wird bei den Berechnungen zum FK 6 angenommen, daß der Sicherheitsbehälter bei Erreichen des rechnerischen Berstdruckes von 9 bar Überdruck spontan birst, so daß alle luftgetragene Radioaktivität im Containment unmittelbar in die Umgebung freigesetzt wird. Diese Versagensweise scheint unter Berücksichtigung z.B. des Leck-vor-Bruch-Kriteriums nicht realistisch. Hier sollten bruchmechanische Überlegungen und Experimente an den verwendeten Sicherheitsbehälterstählen zu einer realistischen Beurteilung des Containment-Versagens führen. Um hierzu einen Beitrag zu liefern wurden im IRB bruchmechanische Untersuchungen am Werkstoff 15 MnNi63 in das Programm aufgenommen.

5. Rückhaltung, Verhalten und Auswirkung freigesetzter Radionuklide aus kerntechnischen Anlagen

5.1 Filterentwicklungen für Kernkraftwerke

Wie bereits im Statusbericht des letzten Jahres mitgeteilt, konzentriert sich das LAF II (Wilhelm und Mitarbeiter) auf die Messung der Störfallbelastbarkeit von Schwebstofffiltern und die Erarbeitung von Verbesserungsvorschlägen für den konstruktiven Aufbau und die Materialauswahl. Neben hoher Temperaturfestigkeit und Feuchteresistenz ist bei Störfallfiltern noch eine ausreichende Differenzdruckbelastbarkeit zu fordern.

Nachdem die Finanzierungsprobleme im Laufe des letzten Jahres gelöst werden konnten, wurde Mitte des Jahres mit dem Bau der Versuchsanlage BORA begonnen, in der Filter verschiedener Bauart einer Differenzdruckbelastung unter erschwerten thermodynamischen Bedingungen wie sie unter Stör- bzw. Unfallbedingungen zu erwarten sind, unterworfen werden können. Der Bericht von V. Rüdinger beschreibt die Anlage und die Untersuchungsziele und geht auf Ergebnisse von Vorversuchen an einem Prüfstand des Los Alamos National Laboratory in Las Cruces ein.

Mit Zielrichtung auf hohe Temperaturfestigkeit - nach heutigen Erkenntnissen sind bis zu 160°C Lufttemperatur im Containment bei einem schweren Störfall zu erwarten - sowie hohe Differenzdruckbelastbarkeit wurde eine Neuentwicklung auf der Basis von Metallfasern in Angriff genommen. Von den Erwartungen, die in diesen Schwebstofffiltertyp gesetzt werden, wurde bereits beim letzten Jahreskolloquium berichtet. Nunmehr liegen die ersten experimentellen Ergebnisse zu den erreichbaren Dekontaminationsfaktoren vor. Abb. 25 zeigt eine elektronenmikroskopische Aufnahme der Faser eines solchen Metallfaserfilters. Abb. 26 zeigt einen Aufriß des Teststandes, in dem der Abscheidegrad des Filters mit Uraninaerosolen, wie sie in Abb. 27 durch ihr Spektrum charakterisiert sind, gemessen wurde und Abb. 28 gibt die Ergebnisse für die kleinsten gegenwärtig verfügbaren Fasern wieder. Selbst bei so hohen Anströmgeschwindigkeiten wie 35 cm/sec (entsprechend etwa der 14-fachen Ausströmung der von normalen Glasfaserfiltern) wurden noch Deko-Faktoren von besser als 10^5 erreicht.

Abb. 29 zeigt einen Vorschlag für die geometrische Anordnung eines solchen Metallfaserfilters, welche sowohl dem Ziel einer möglichst großen effektiven Oberfläche auf kleinstem Raum als auch einer möglichst effektiven Dichtungsmöglichkeit von Filter und Gehäuse Rechnung trägt.

In einer zeitlich begrenzten Aktion wurde die an deutschen Kernkraftwerken weitgehend eingesetzte kaliumjodidimprägnierte Aktivkohle in ihrer Jodsorptionsfähigkeit verglichen mit anderen neueren Aktivkohlen, die z.T. auf anderem Basismaterial aufbauen (Abb. 30). Es zeigt sich, daß die in unseren Kernkraftwerken benutzte Aktivkohle über verschiedene Parameter gesehen jedem Vergleich mit den anderen im Vergleichstest geprüften standhält (Abb. 31).

5.2 Rechenmodelle zur atmosphärischen Ausbreitung

Eines der im PNS verfolgten Ziele bei der Entwicklung von Rechenmodellen zur Beschreibung der atmosphärischen Ausbreitung ist die Berechnung von Ortsdosen im regionalen Bereich (bis ca. 100 km) nach störfallbedingter Freisetzung als erste Information zur Führung von Meßtrupps. Nach unserer heutigen Kenntnis wird diesen Zweck voraussichtlich ein Trajektorien-Modell mit phänomenologischer Behandlung der transversalen Diffusion am besten erfüllen. Die besondere Hürde ist auch hier die Beschaffung ausreichend vollständiger Eingangsdaten. Eine experimentelle Methode zur Gewinnung der Trajektorien und gleichzeitig der transversalen Diffusionskenngrößen ist die Verfolgung von Tetroonflügen (Abb. 32). Der Frequenzumsetzer (Abb. 33), der unter dem Tetroon hängt, erlaubt es, diesen trotz störender Streustrahlung bei zu großen Entfernungen (etwa 100 km) mit dem Radar zu verfolgen. Im Rahmen des PNS wurden seit 1977 von der Meteorologiegruppe der Hauptabteilung Sicherheit insgesamt 60 Flüge sowohl mit, als auch ohne Frequenzumsetzer durchgeführt. Eine Zusammenstellung enthält die Tabelle in Abb. 34. Auf die experimentelle Technik soll hier nicht mehr eingegangen werden, da sie an dieser Stelle schon zu früherer Gelegenheit ausführlich beschrieben wurde. Die Flughöhen liegen zwischen 250 und 1200 m über Grund. Die drei bisher gewählten Experimentierorte haben bestimmte Charakteristika. Der Startpunkt Witthohwar für den Anfang zum Erlernen der Experimentiertechnik besonders geeignet, da dort von einem flachen Hügel aus die Ballone gestartet werden können und bis in eine Entfernung von mehr als 40 km keine höhere Erhebung als dieser Hügel existiert. Der Startpunkt Dorum erlaubt die Messung typischer Flugdaten für den Grenzbereich Küste/küstennahes Wasser. Der Startpunkt in der Nähe des Kernforschungszentrums Karlsruhe bietet die Möglichkeit, Flugdaten aufgrund der besonderen Strömung im Oberrheintal zu messen.

Die Ergebnisse aus verschiedenen Flugserien sind in Abb. 35 in Form des horizontalen Ausbreitungsparameters σ_y über der Entfernung in einer doppellogarithmischen Skala zusammengefaßt.

Die dünnen Linien geben die Ergebnisse der am Kernforschungszentrum Karlsruhe durchgeführten Tracerexperimente mit Emissionshöhen von 160 m und 195 m wieder. Diese Tracerexperimente lieferten Meßwerte bis zu Quellentfernungen von ca. 10 km; jenseits von 10 km sind die Kurven extrapoliert. Aus dieser Abbildung können die folgenden Schlußfolgerungen gezogen werden:

- Die σ_y -Werte aus den Tetroontrajektorien sind vergleichbar mit denen aus den Tracerexperimenten.
- Im Gegensatz zu den σ_y -Kurven aus den einzelnen Tracerexperimenten, die sehr stark differierten, streuen die σ_y -Kurven der einzelnen Tetroon-Maßkampagnen nur geringfügig.
- Es ist keine ausgeprägte Abhängigkeit des σ_y von der atmosphärischen Stabilität festzustellen.

5.3 Radioökologische Untersuchungen

Über das Teilprojekt der radioökologischen Untersuchungen zum Verhalten der Aktiniden in der Umwelt und dessen Beeinflussbarkeit wird Dr. Schüttelkopf ausführlich berichten. Ein Ergebnis soll beispielhaft den Nutzen solcher Untersuchungen veranschaulichen. Auf der Suche nach einem chemischen Mittel zur Dekontamination einer plutoniumkontaminierten landwirtschaftlichen Nutzfläche wurden Versuche zur Mobilitätserhöhung des Plutoniums mit Chelatbildnern durchgeführt. An eine solche Möglichkeit einer Plutoniumkontamination könnte man im Zusammenhang mit einem Störfall an einer Wiederaufarbeitungsanlage denken. Die erste Versuchsphase mit einer Diethyl-Triamin-Penta-Essigsäure (DTPA) ergab, daß für Boden aus dem Gelände des Kernforschungszentrums Karlsruhe ein Dekofaktor von 300 für die oberste 5 cm dicke Bodenschicht nach Begießen mit 115 l/m^2 0,1 molarer (ph = 7) DTPA-Lösung erreicht werden kann. Die Ausgangskontamination war ca. $1,6 \mu\text{Ci/m}^2$ Plutonium.

5.4 Störfallanalyse zur Wiederaufarbeitungsanlage

Im Rahmen von Störfallanalysen zur zukünftigen großen Wiederaufarbeitungsanlage untersucht das IDT im Rahmen des PNS die Auflöserabgasreinigung auf Störfallmöglichkeiten, die entweder aus internem Versagen oder aus transienten Belastungen aus dem Auflöser herrühren können. Dabei wird das dynamische Verhalten der verschiedenen in dem Abgasreinigungssystem enthaltenen Barrieren unter Störfallbedingungen untersucht. Die mathematische Modellierung des untersuchten Systems greift dabei zurück auf drei Hilfsmittel:

- den Freisetzungsbaum des Systems,
- den Fehlerbaum der Barrieren in ihrem Defektzustand,
- Simulationsmodelle für das Verhalten der Barrieren im intakten und defekten Zustand, das sind die sog. Transportzellen.

Für die erste größere Komponente einer solchen Abgasreinigung, welche im KfK als Versuchsanlage PASSAT aufgebaut ist, wurde eine solche Analyse nunmehr abgeschlossen. Das Ergebnis war, daß eine größere Jodfreisetzung nur nach Ausfall der beiden Erhitzer innerhalb der Reparaturzeit (Abb. 36) stattfinden kann. Abb.37 zeigt beispielhaft, wie bei einem zeitlich fast zusammenfallenden Versagen der beiden Erhitzer die Menge des freigesetzten Jodes ansteigt. Dies hat seinen Grund im Anstieg der relativen Feuchte des Abgases in dem Jodsorptionsmaterial. Die Menge des freigesetzten Jodes ist letztlich davon abhängig, zu welchem Zeitpunkt der 2. Erhitzer nach Ausfall des 1. Erhitzers versagt mit der Randbedingung, daß die Reparaturzeit für den 1. Erhitzer 8 Stunden beträgt. Bei 37 Versuchsrechnungen mit zufällig ausgewürfelten Startzeiten ergab sich, daß im Durchschnitt 12 g pro doppeltem Erhitzerausfall freigesetzt werden. Annahmen: 1.) Konstante Jodkonzentration ca. 1 g/m^3 in 8 Stunden, wobei eine Auflösung nur 4 Stunden beträgt. 2.) Freisetzung von 1.2 kg Jod pro Auflösung; in WAA bei Auflösung von 1 t Brennstoff Freisetzung von 128 g/tu.

6. Zusammenfassung

- 1) Im Bereich der dynamischen Beanspruchung von Reaktorkomponenten konnte für die Kernstützen im Falle eines Blowdown gezeigt werden, daß die Fluidbeschleunigung für die Beanspruchung maßgebend ist. Lediglich bei sehr schneller und voller Öffnung des Blowdown-Stutzens treten an kleinen Stützen in der Nähe des Blowdownstutzens höhere Beanspruchungen auf.
- 2) Ein 7x7-Bündelversuch im REBEKA-Prüfstand hat ergeben, daß trotz mechanischer Stab-zu-Stab-Wechselwirkung keine größeren Kühlkanalversperrungen in Vergleich zum 5x5-Bündel auftreten. Die Ergebnisse der REBEKA-Versuche können somit auf Reaktorbrennelemente übertragen werden.
- 3) Erste Untersuchungen zum Einfluß der Reaktionsenergie, die bei der Reaktion Zirkon-Wasserdampf bei höheren Temperaturen frei wird, auf den Temperaturanstieg lassen vermuten, daß möglicherweise inhärente Effekte wie Wasserstoffschichten an der Hüllrohroberfläche und Diffusionsbarrieren auf der Oberfläche des Zirkonoxids oder das Herunterlaufen von geschmolzenem Zircaloy oder Eutektikum eine zu erwartende heftige Temperaturskalation stark abbremsen können.
- 4) Auf der Basis neuer Ergebnisse zum Kernschmelzenunfall und mit Hilfe verbesserter Modellierung der physikalischen und chemischen Vorgänge konnte gezeigt werden, daß die Unfallfolgen nach einem hypothetischen Kernschmelzenunfall in den bisherigen Risikostudien stark überschätzt werden. Selbst für den ungünstigen Fall der FK 2 sind keine Frühtoten mehr zu erwarten.
- 5) Die Erprobung von ersten prototypischen Metallfaserfiltern ergab, daß selbst bei 14-fachen Anströmungsgeschwindigkeiten gegenüber konventionellen HEPA-Filtern neben ausreichender mechanischer Standfestigkeit noch Deko-Faktoren von besser als 10^5 erreicht werden. Die weitere Erprobung wird den Einfluß von hoher Feuchte und hoher Temperatur sowie die Möglichkeit ermitteln, die Masseneinspeicherfähigkeit zu verbessern.

6) Zur Dekontamination von landwirtschaftlichen Nutzflächen konnte in ersten Versuchen eine starke Mobilitätserhöhung des Plutoniums in größere Bodentiefen durch eine Diethyl-Triamin-Penta-Essigsäure erreicht werden. Diese Versuche werden fortgesetzt.

7) Im Rahmen der Störfallanalyse zur Wiederaufarbeitungsanlage konnte für die erste größere Komponente der Auflöserabgasstrecke, und zwar das Jod- und Aerosolfilter, eine solche Analyse abgeschlossen werden. Nur bei Ausfall beider Erhitzer sind Jodfreisetzungen zu erwarten; (ca. 10^{-2} g/m³).

Außer der Ergebnisberichterstattung konnte über einige experimentelle Vorhaben berichtet werden, deren Programme geplant sind und deren experimentelle Einrichtungen sich in der Konstruktionsphase befinden, wie die Anlagen CORA für die out-of-pile-Untersuchungen zum Severe Fuel Damage, BORA zur Prüfung von Aerosolfiltern unter mechanischer, thermischer und korrosiver Belastung, BETA zur Untersuchung der Schmelze-Beton-Wechselwirkung.

Rechenprogramme

CYLDY Schalendynamik von Kernmantel und Reaktordruckbehälter

DRIX2D Instationäre Zweiphasenströmung im thermodynamischen Nichtgleichgewicht (Ausströmung aus dem Bruchstutzen)

FLUX Dreidimensionale Strömung im Reaktordruckbehälter mit Fluid-Struktur-Kopplung



ABB. 1:

Dynamische Beanspruchung von Reaktorkomponenten

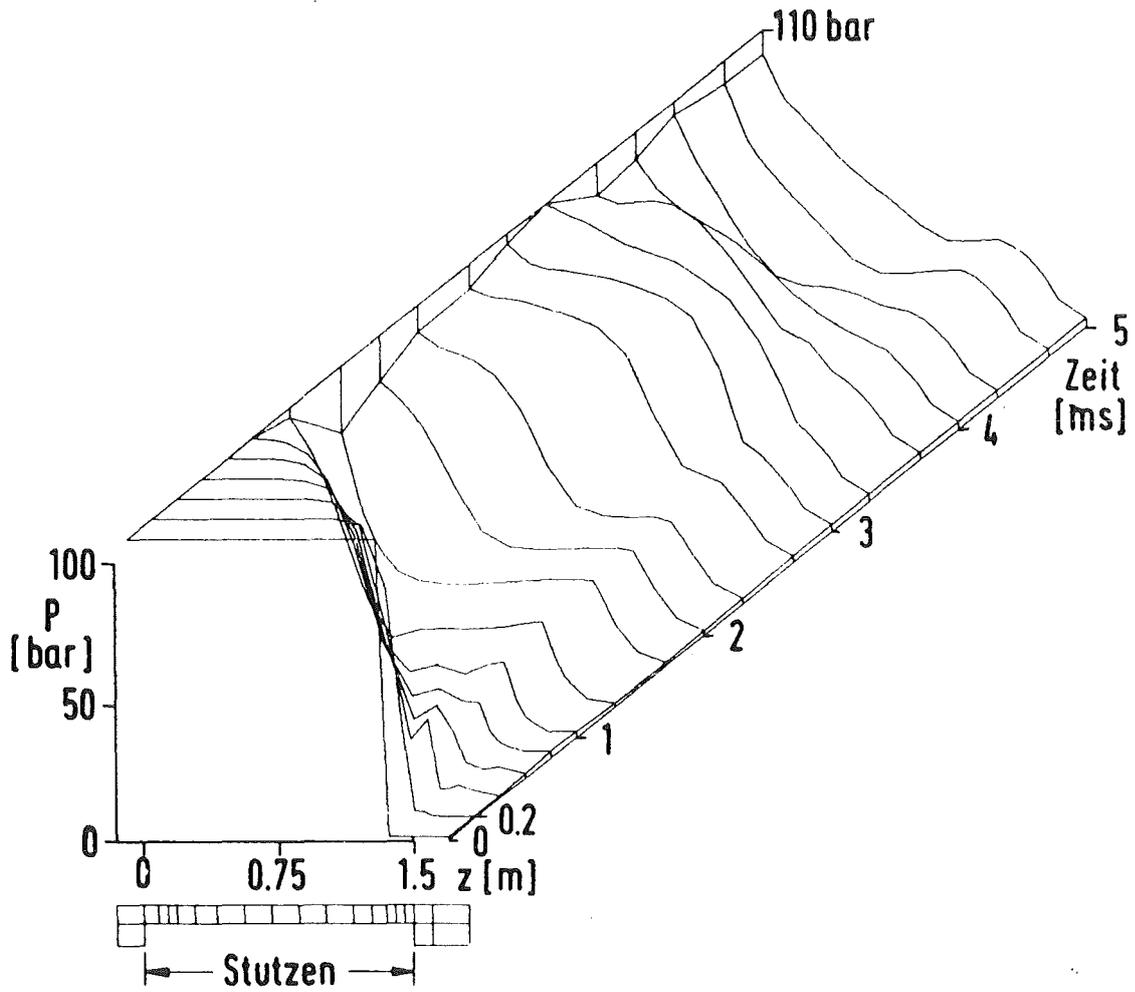
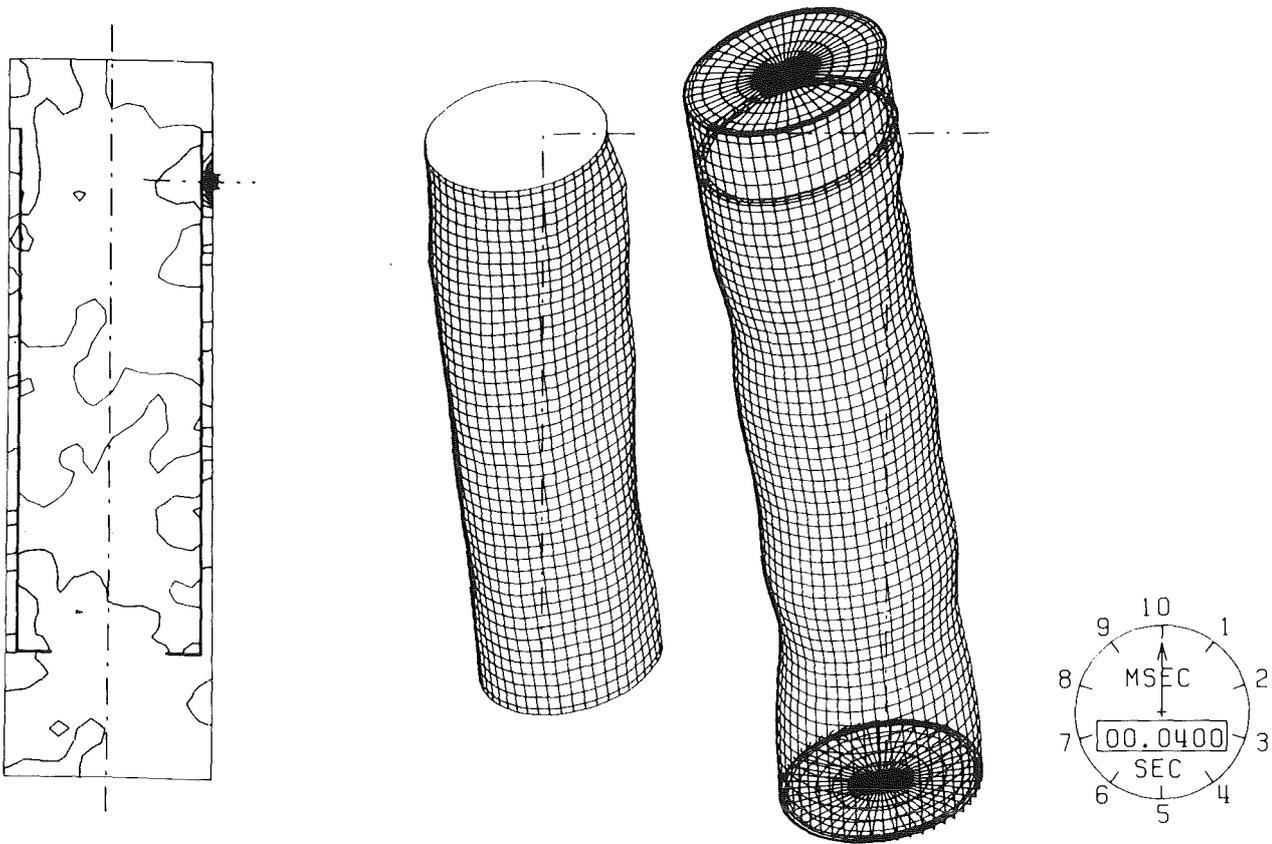


ABB. 2: DRIX2D - DRUCKPROFILE IM BLOWDOWNSTUTZEN
BEIM HDR-VERSUCH V32



Strukturverformung

Isobaren
 $\Delta p = 0.5 \text{ bar}$

Kernmantel
300 fach

RDB
1000 fach

ABB. 3:

**Isobarenfeld und Strukturverformung für den HDR-Versuch V32
40 ms nach Blowdown-Beginn**

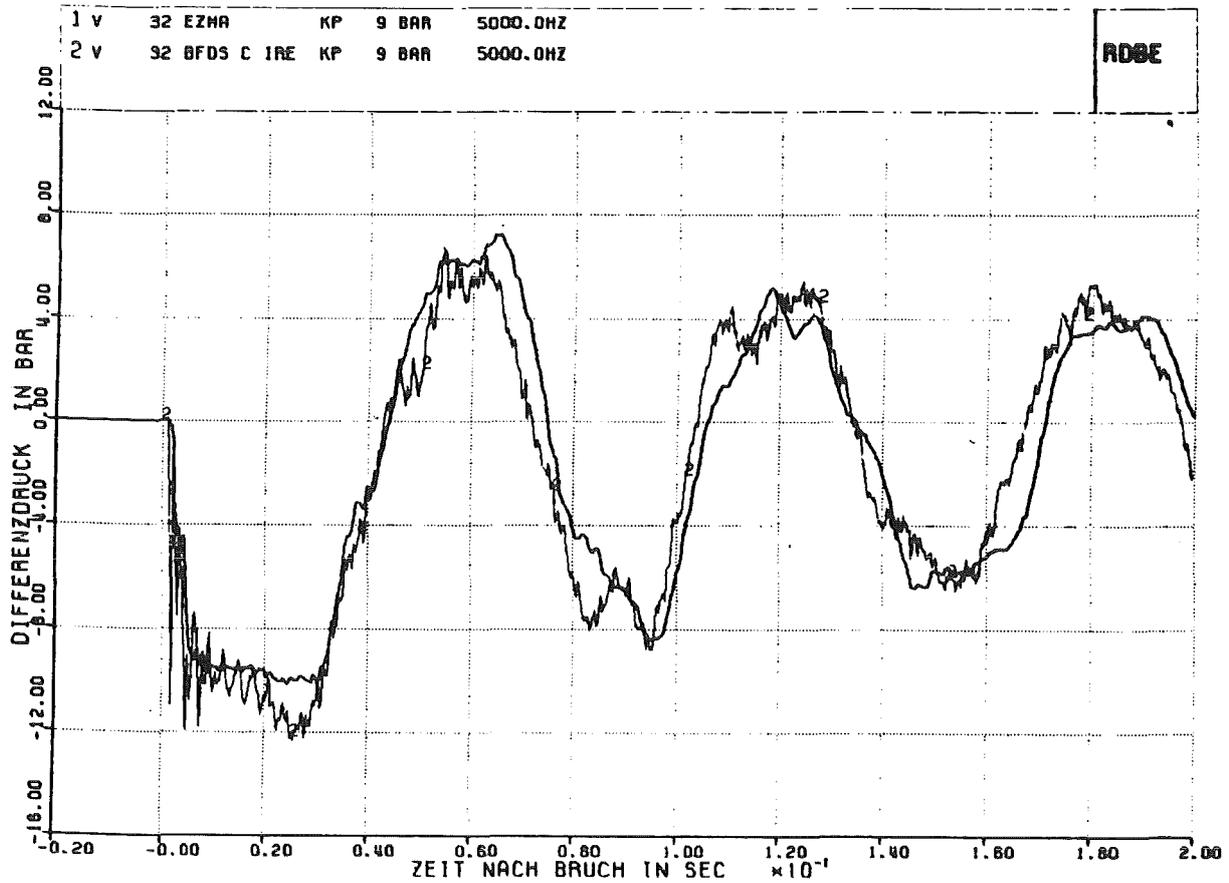
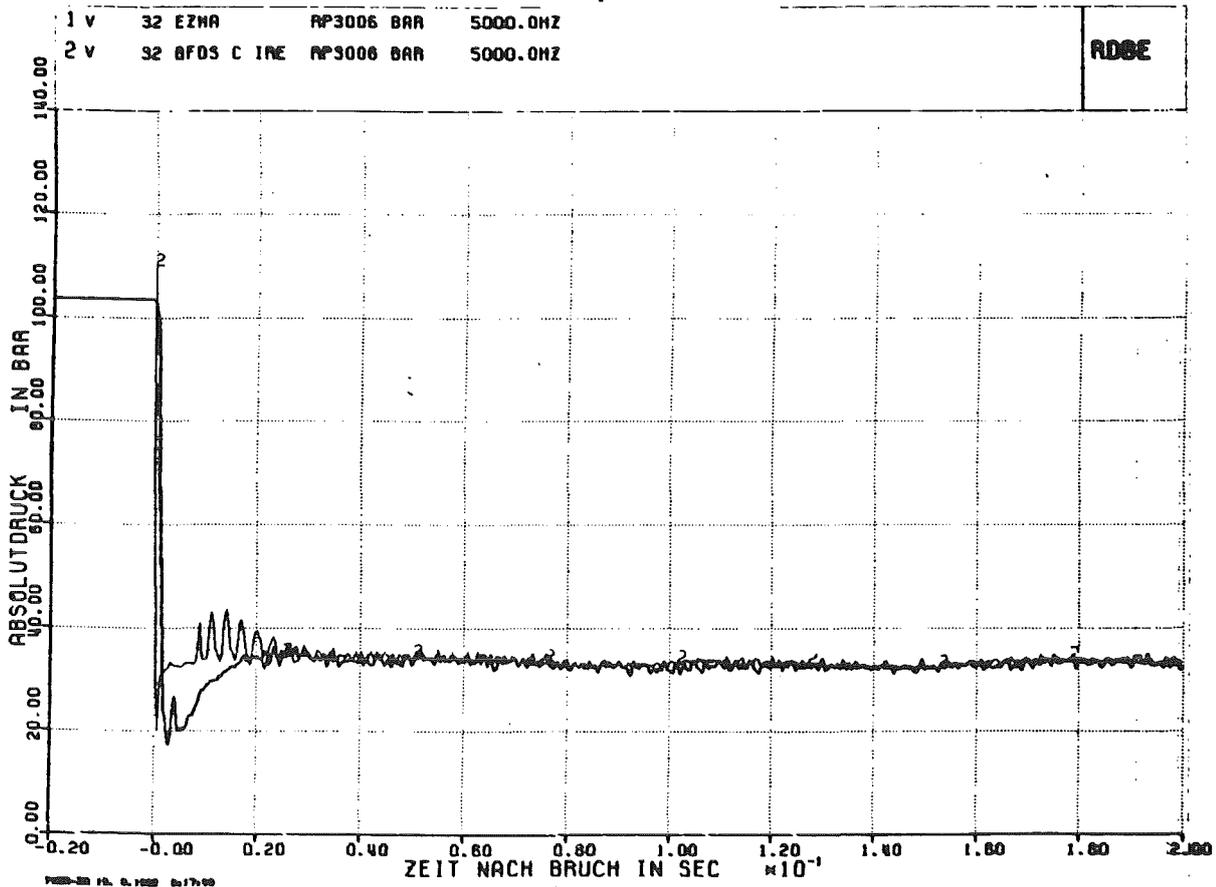


ABB. 4: HDR-BLOWDOWNVERSUCH V32 (STANDARDPROBLEM NR. 5)
VERGLEICH EXPERIMENT UND FLUX-RECHNUNG
ABSOLUT- UND DIFFERENZDRUCK

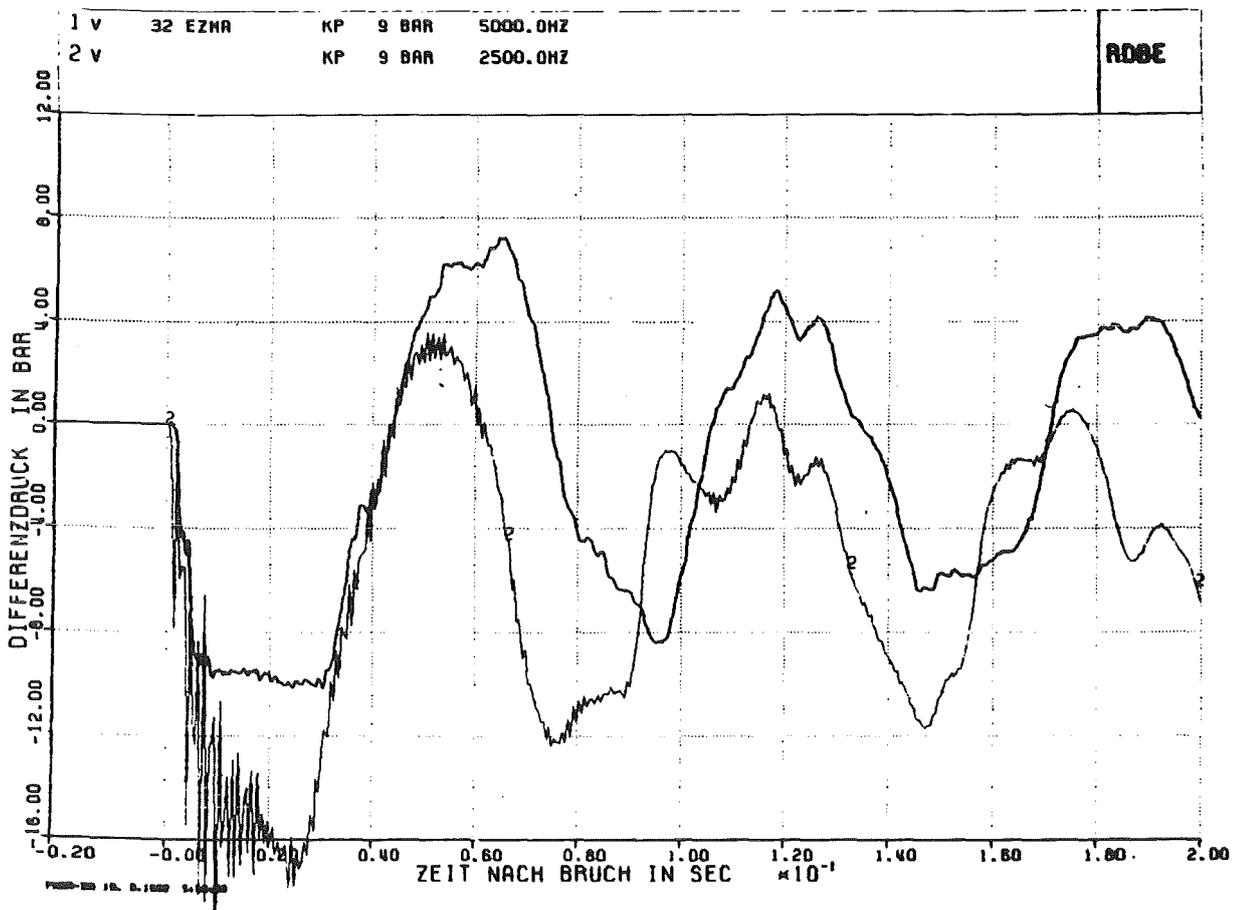
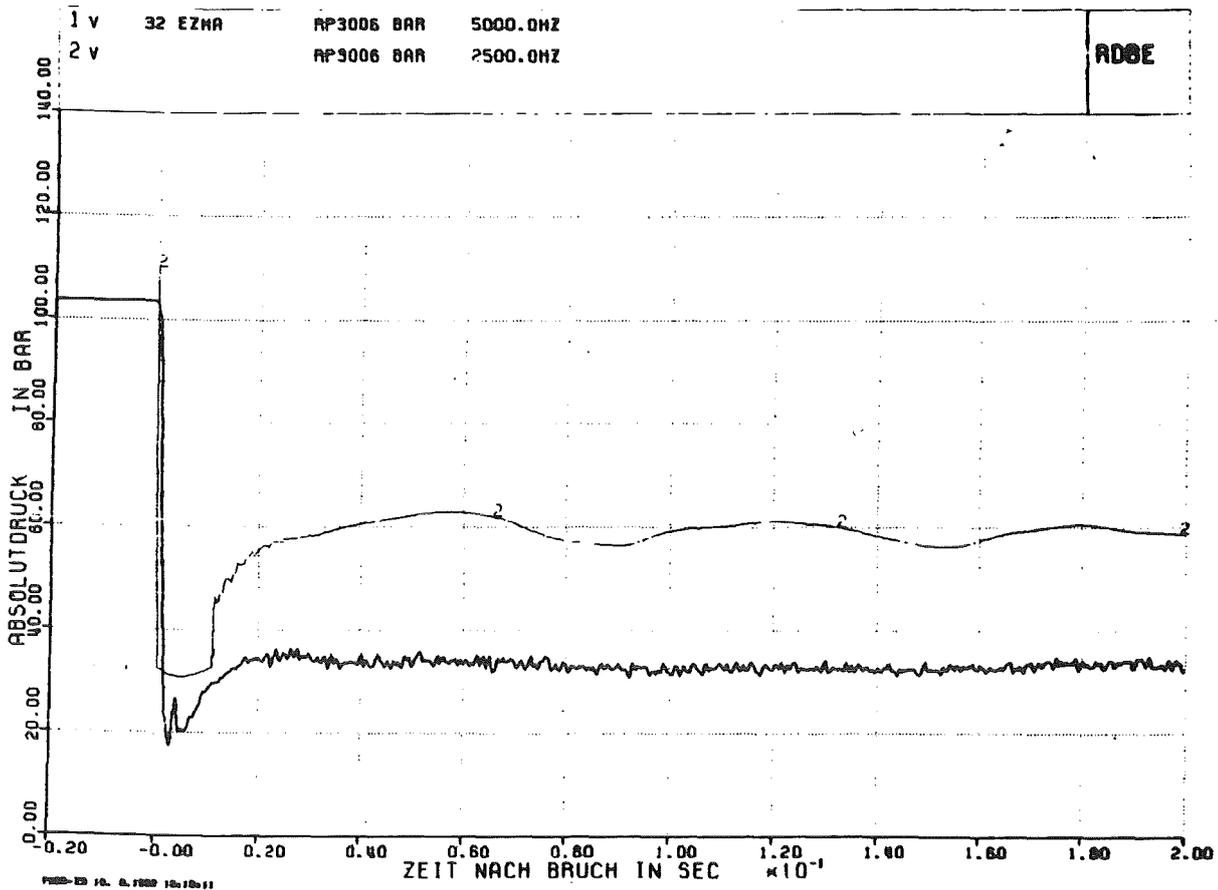


ABB. 5: HDR-BLOWDOWNVERSUCH V32 (STANDARDPROBLEM 5)
VERGLEICH EXPERIMENT UND RECHNUNG MIT EINFACHEREM
FLUIDMODELL, ABSOLUT- UND DIFFERENZDRUCK

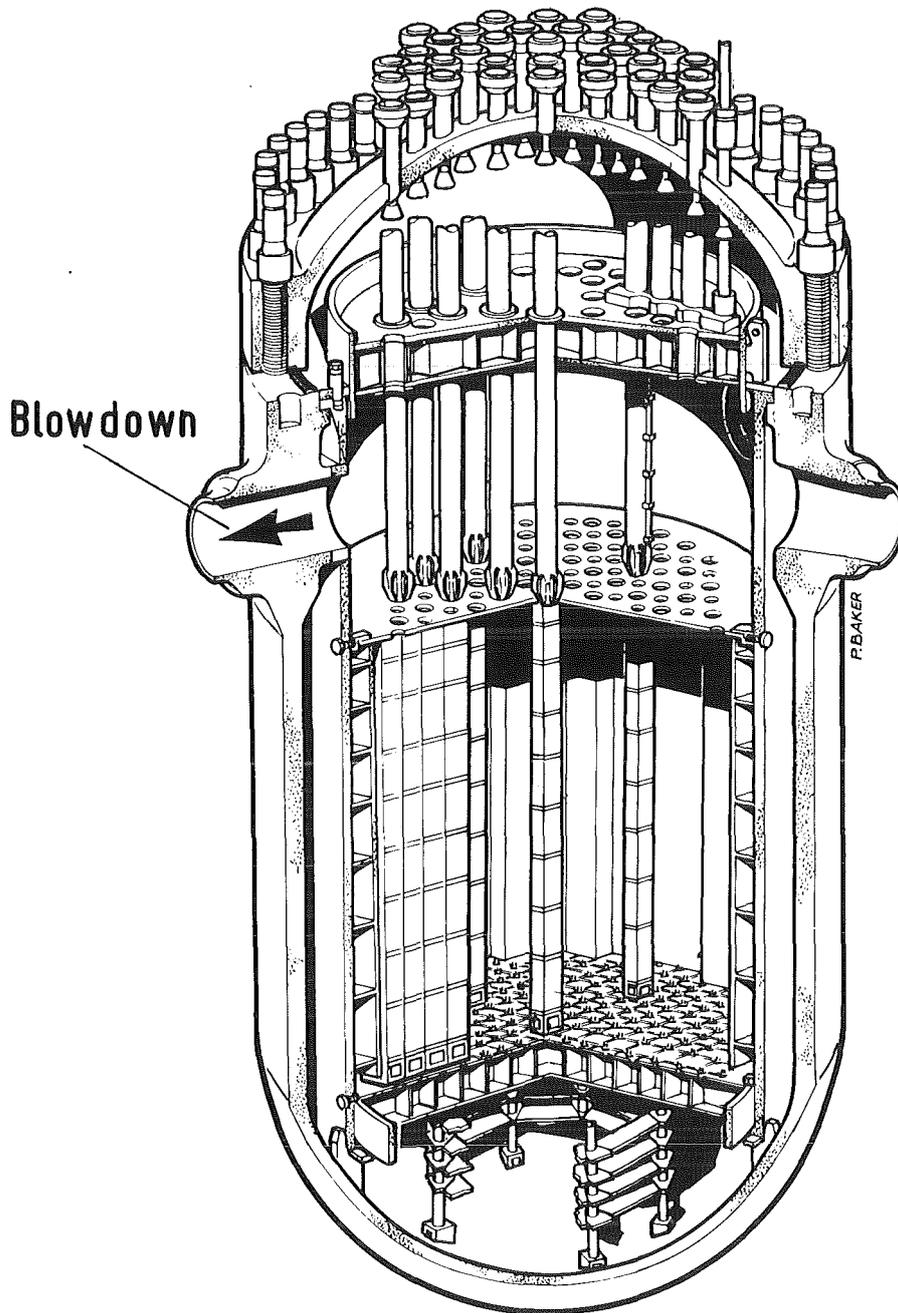
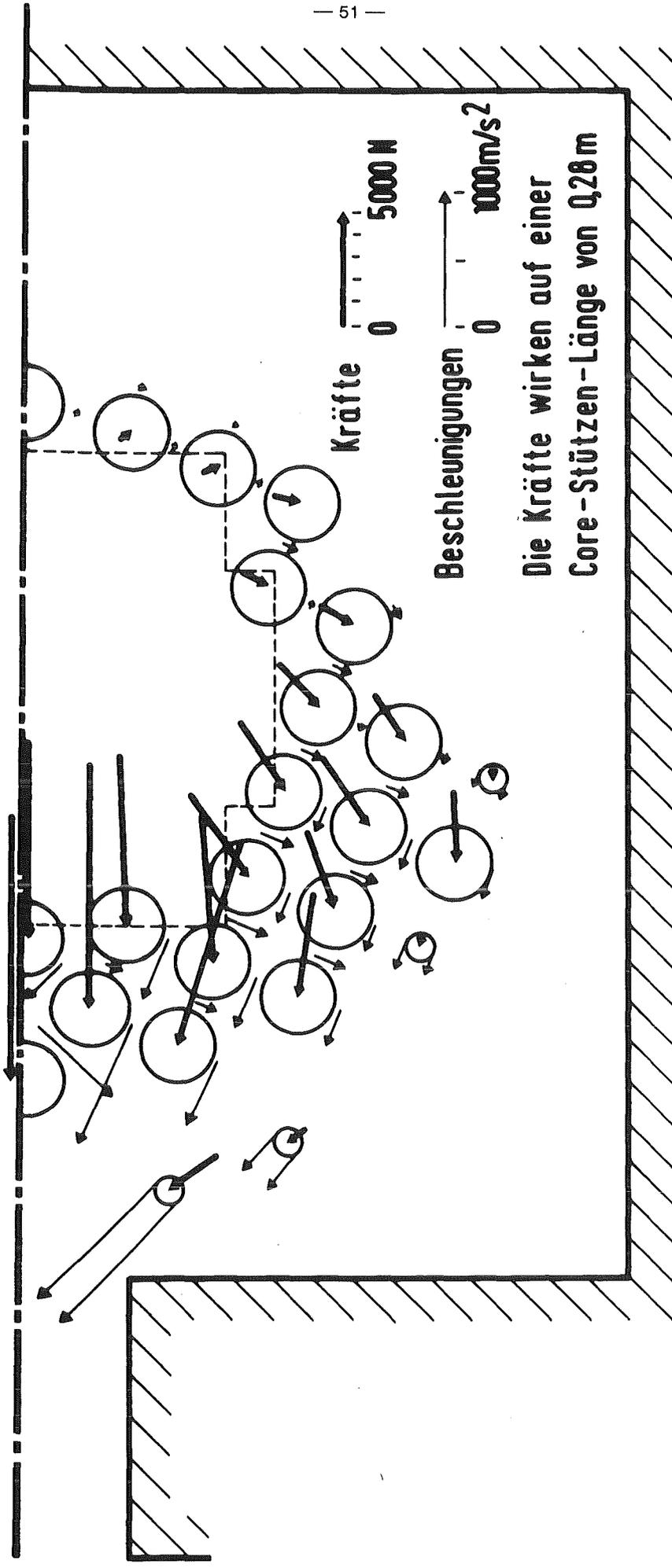


ABB. 6: Core-Stützen in einem typischen DWR



Die Kräfte wirken auf einer
Core - Stützen - Länge von 0,28 m



ABB. 7: Core - Stützen - Kräfte und Strömungsbeschleunigungen

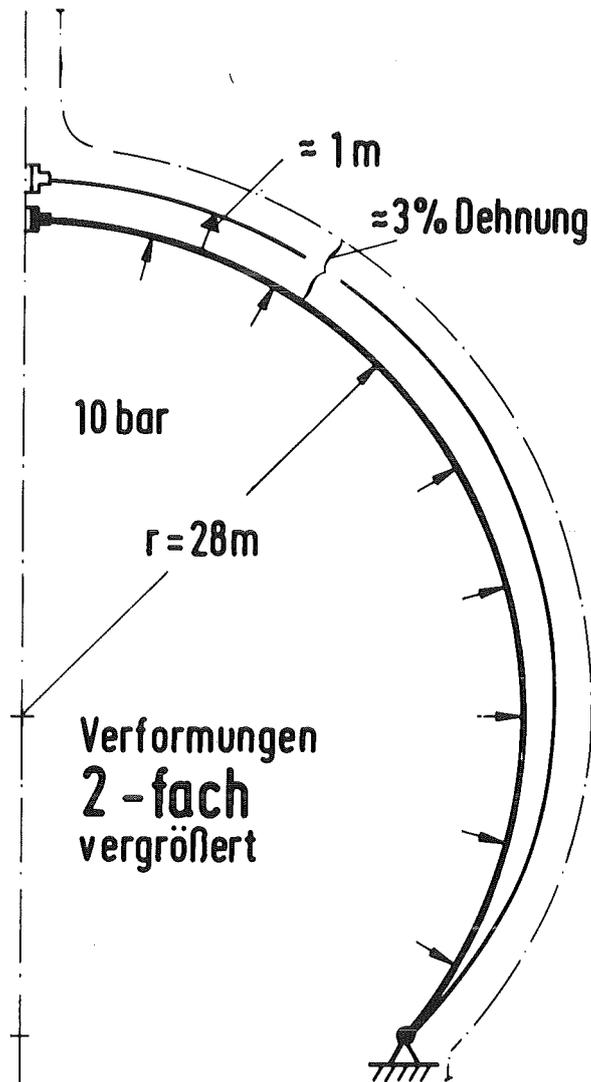
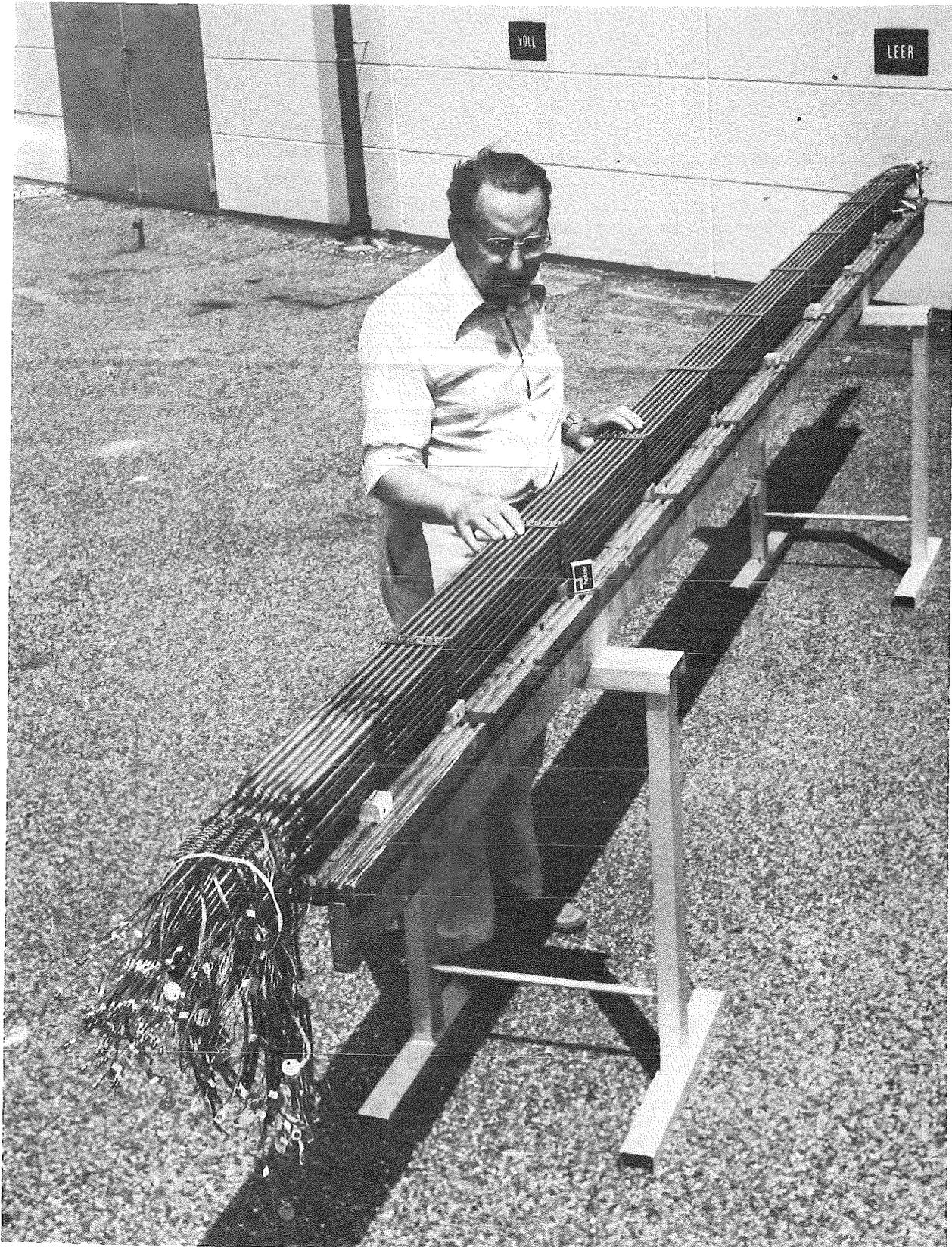


ABB. 8: Große plastische Verformungen eines Containment-Modells durch Innendruck



KfK

ABB. 9:

REBEKA fuel rod simulator bundle

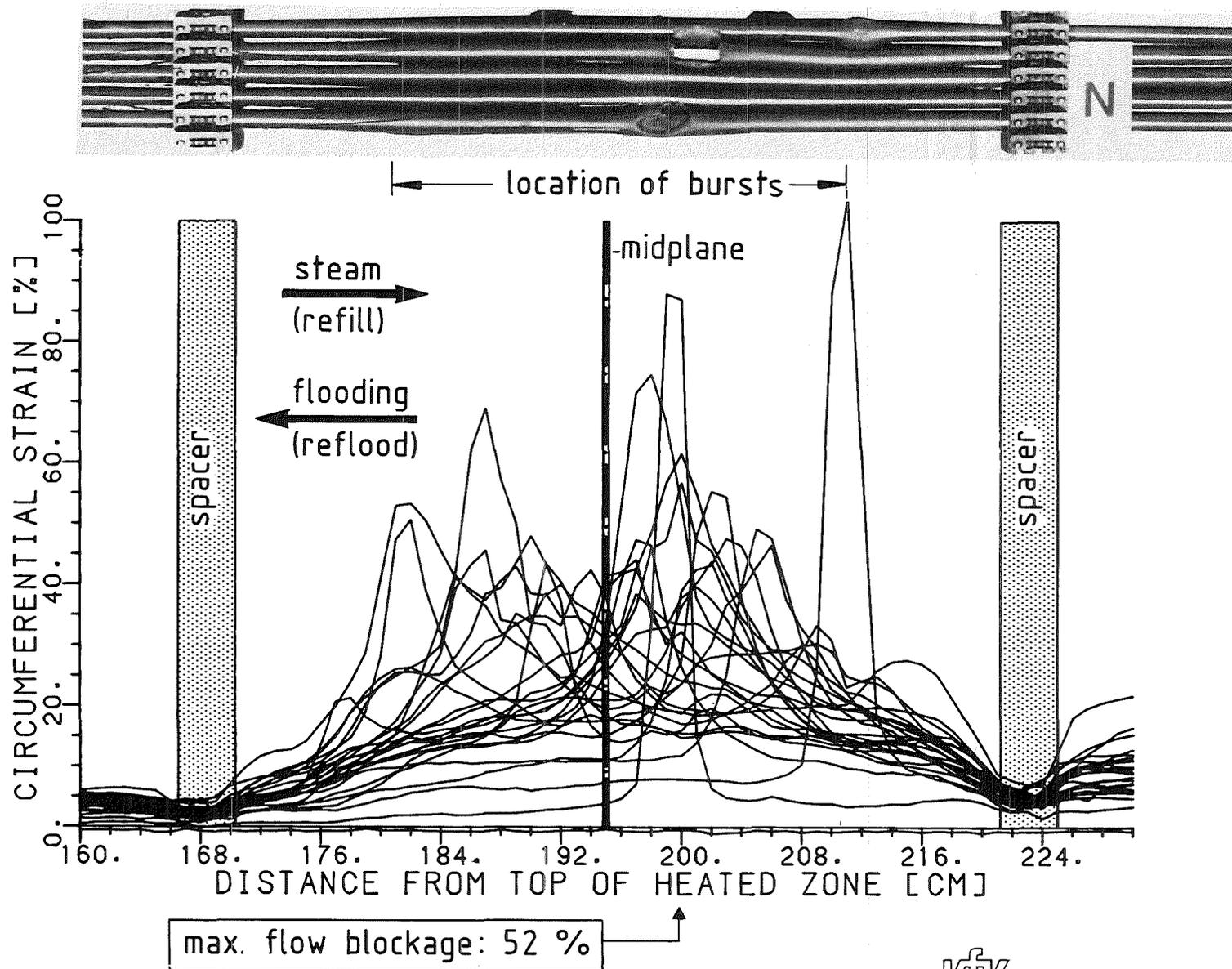


ABB. 10: REBEKA 5
axial deformation profile of the inner 25 rods

axial plane: 2000 mm from top.

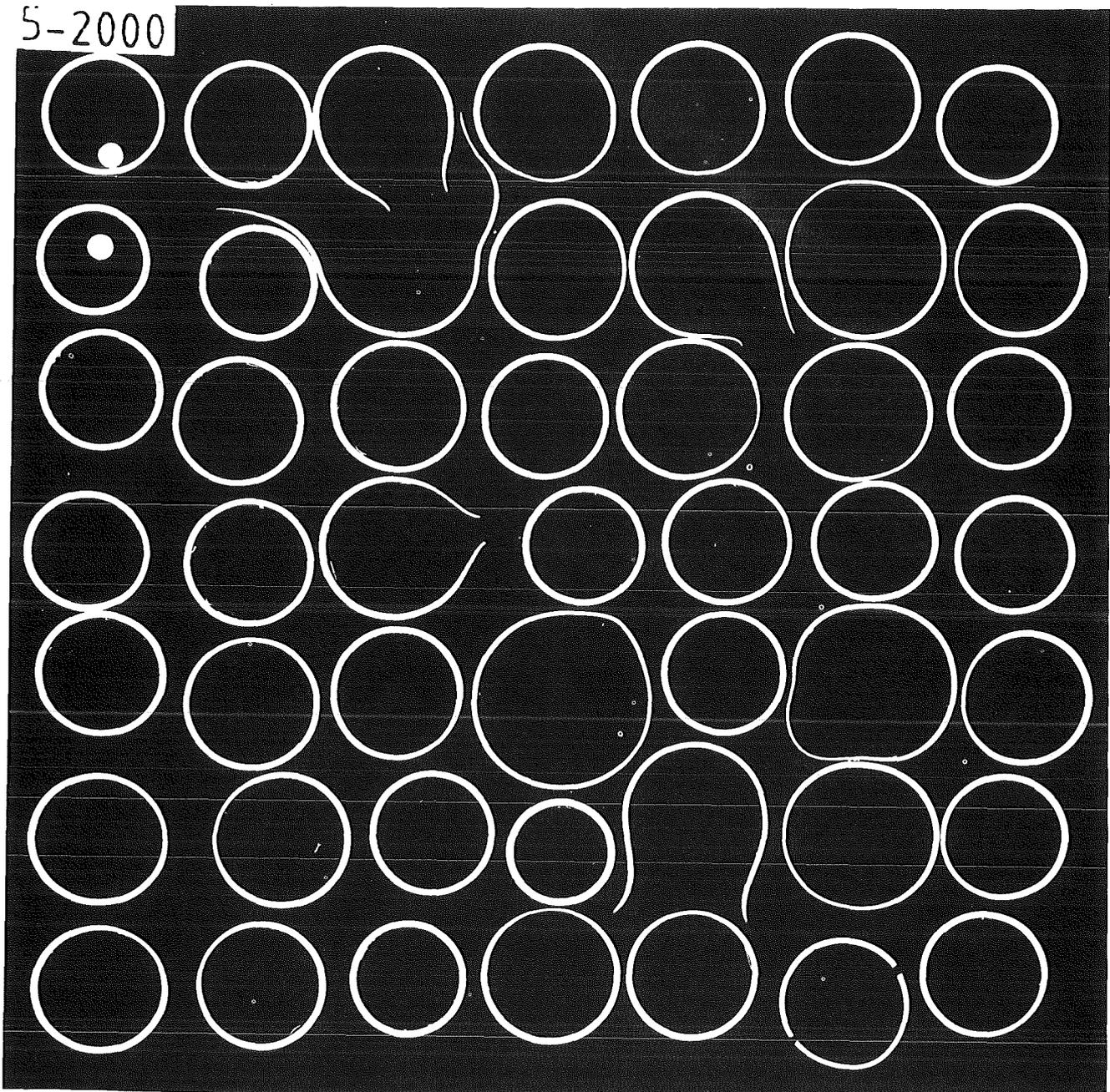


ABB. 11:

kfk

REBEKA 5 bundle cross-section
axial level of max. flow blockage

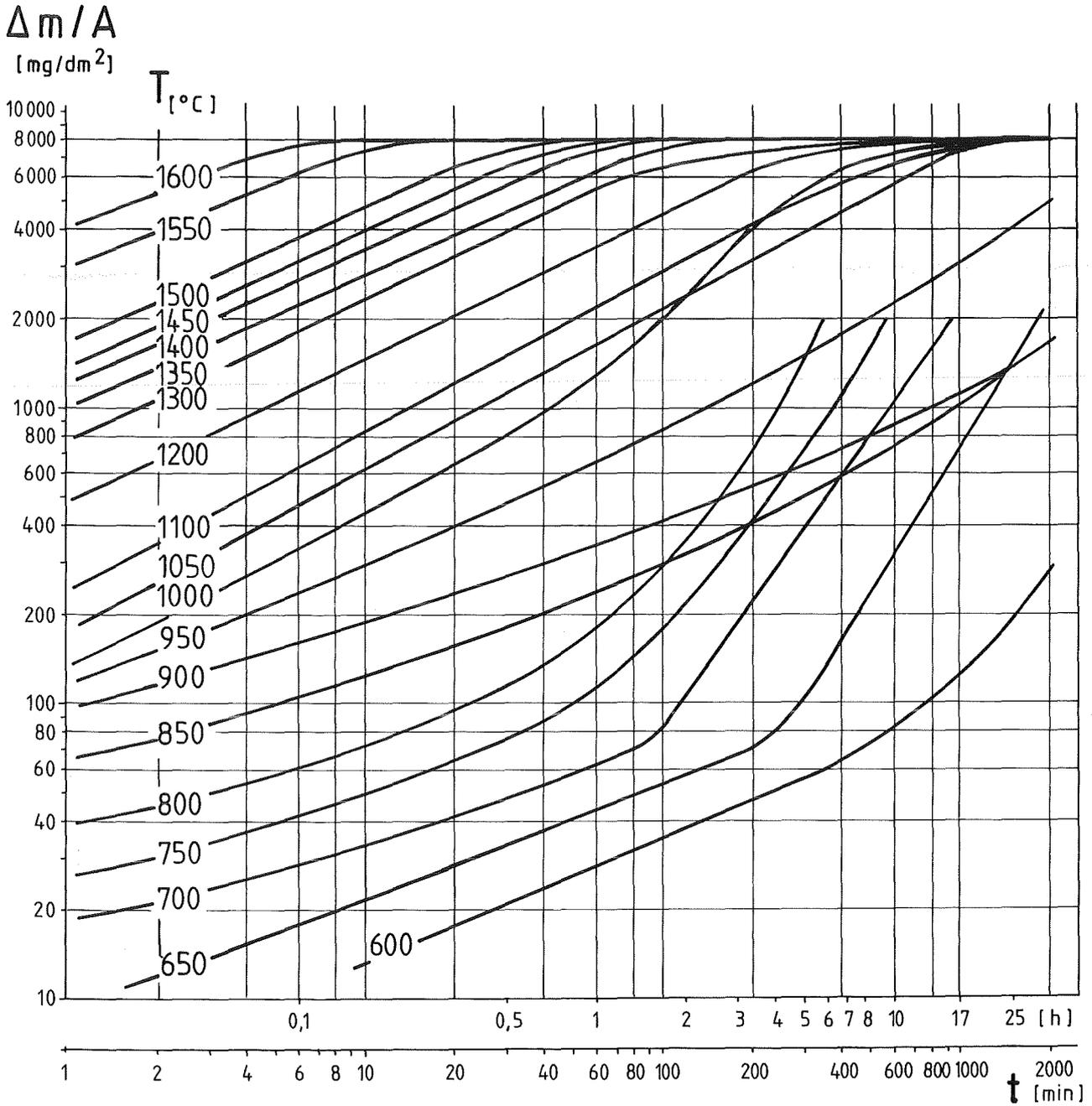


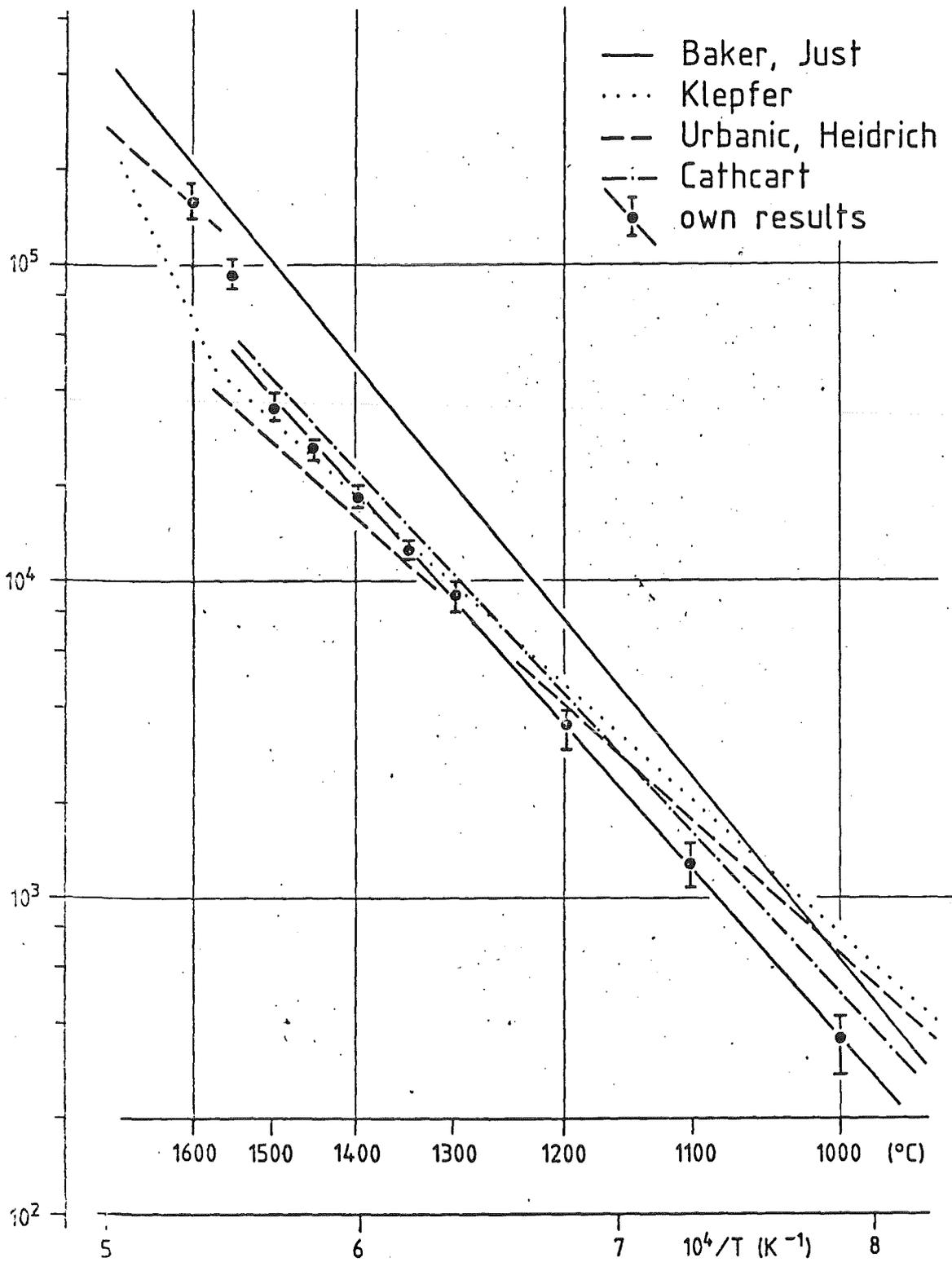
ABB. 12:

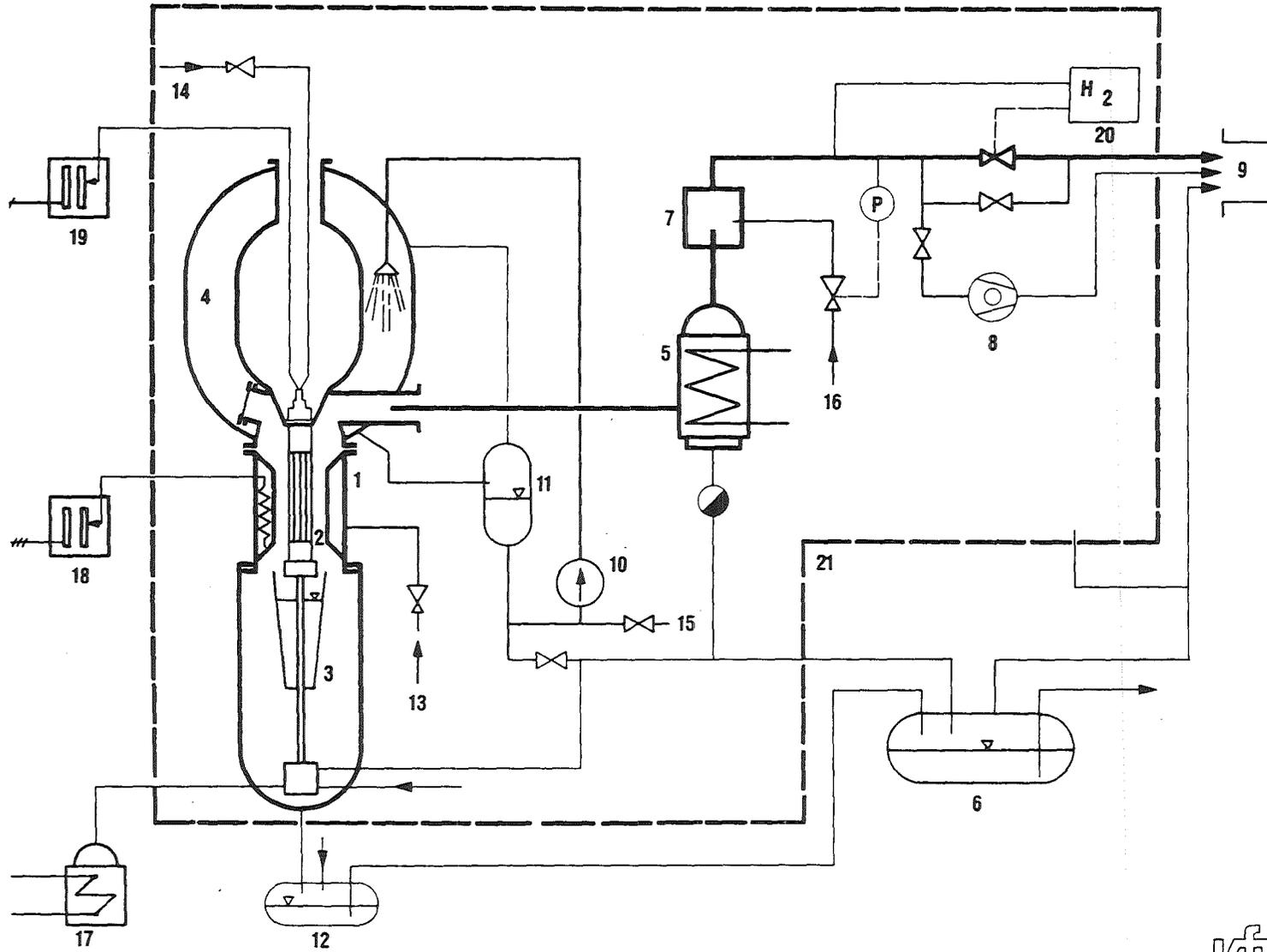
Isotherme Zircaloy 4 / Wasserdampf-Oxidation. Kinetik der Sauerstoffaufnahme bei verlängerten Reaktionszeiten (600 - 1600 °C)

ABB 13: ARRHENIUSAUFTRAGUNG DER PARABOLISCHEN REAKTIONSGESCHWINDIGKEITSKONSTANTEN

K_p ÜBER DER REZIPROKEN ABSOLUTEN TEMPERATUR

$(\text{mg O}_2/\text{dm}^2)^2/\text{s}$





- 1 high temperature shield
- 2 rod bundle
- 3 quench facility
- 4 surge condenser
- 5 vent condenser
- 6 condensat container
- 7 mixing chamber
- 8 vacuum pump
- 9 exhaust gas system
- 10 spray pump
- 11 spray collector
- 12 condensat transfer tank
- 13 Ar-input
- 14 fisson gas simulation
- 15 water supply
- 16 inert gas
- 17 steam generator
- 18 HT-shield power supply
- 19 bundle power supply
- 20 H₂-detection
- 21 containment



ABB. 14: SFD - experiment facility CORA - schematic

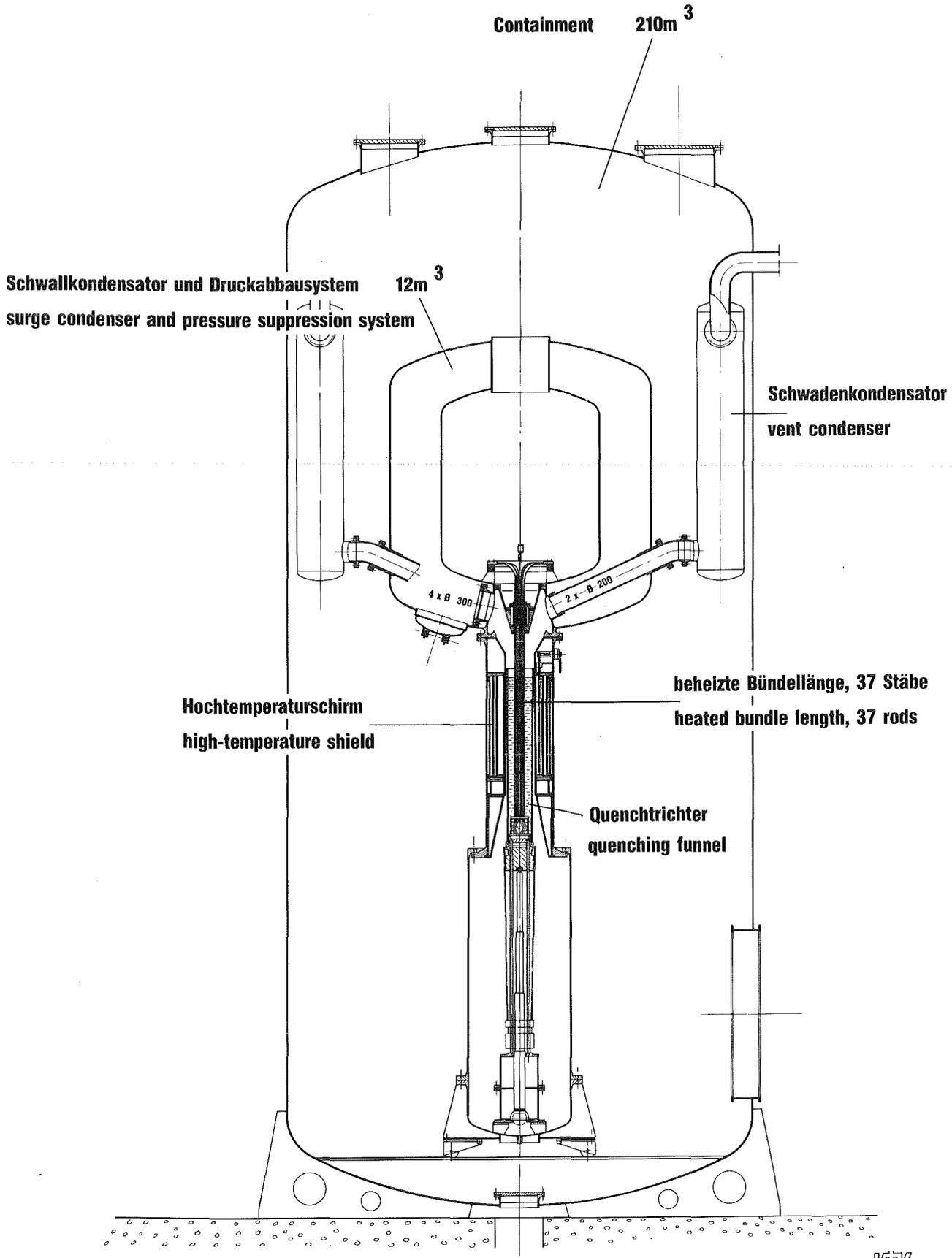
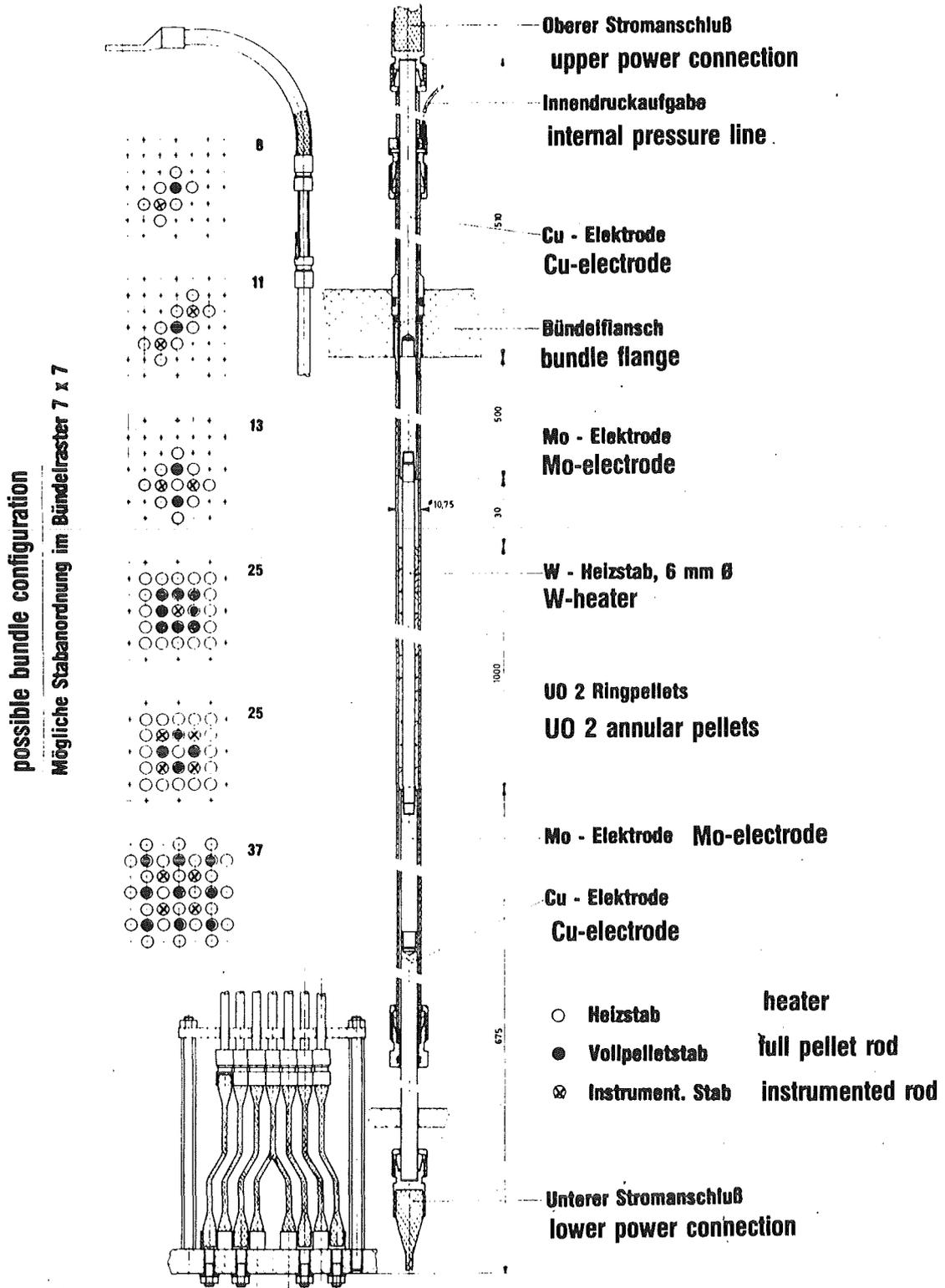
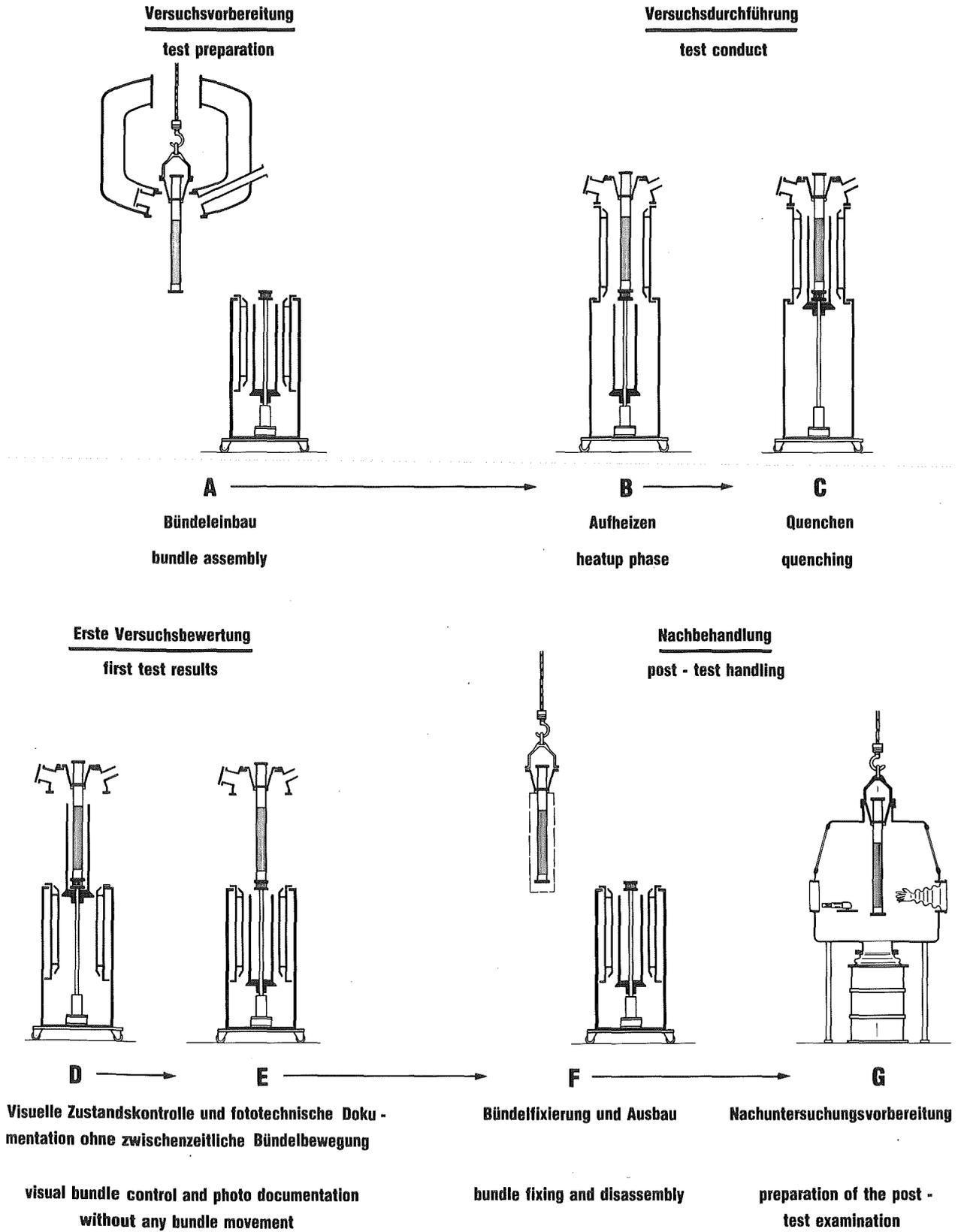


ABB. 15: Severe fuel damage - Versuchsanlage CORA
PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT PNS



= ABB, 16:

SFD - Versuchsanlage CORA
 Beheizter Brennstabsimulator
 SFD - experiment facility - heated fuel rod simulator



IT - 1982

ABB. 17: SFD - Versuchsanlage CORA, Versuchsablaufschritte

TAB. 1: VERSUCHSMATRIX FÜR DIE EINZELSTAB-EXPERIMENTE ZUR UNTERSUCHUNG SCHWERER KERNSCHÄDEN

Test Nr.	Aufheizgeschwindigkeit [°C/sec]	Max. Temp. [°C]	Umgebungsatmosphäre	Stab-Druck Δp [bär]	Pelletzustand	Hüllrohrzustand	Testende	Teststand	Versuchsziel
1	0.2	2000	Dampfüberschuß	0	unbehandelt	kein Blähen	langsam in Inertgas	NIELS	Einfluß der Temperatureskalation auf die Temperaturanstiegsgeschwindigkeit
2	0.5	"	"	"	"	"	"	"	
3	1.0	"	"	"	"	"	"	"	
4	2.0	"	"	"	"	"	"	"	
5	4.0	"	"	"	"	"	"	"	
6	0.5	"	Dampfmangel	"	"	"	"	"	Einfluß von Dampfmangel
7	2.0	"	"	"	"	"	"	"	
8	2.0	"	Dampfüberschuß	"	vorgecracked	"	"	"	Einfluß des Pelletzustandes
9	4.0	"	"	"	"	"	"	"	
10	2.0	"	"	10	unbehandelt	"	"	CORA	Einfluß Hüllrohr/Pelletkontakt
11	4.0	"	"	"	"	"	"	"	
12	2.0	"	"	0	vorgecracked	extern gebläht	"	NIELS	Einfluß des Ballooning und Berstens auf die Auflösung des UO ₂ durch Zirkaloy
13	2.0	"	"	"	"	gebläht ohne Bersten	"	CORA	

ABB. 18 A

TAB. 1: (FORTSETZUNG)

Test Nr.	Aufheiz- geschwindigkeit [°C/sec]	Max. Temp. [°C]	Umgebungs- atmosphäre	Stab- Druck Δp [bar]	Pellet- zustand	Hüllrohr zustand	Testende	Teststand	Versuchsziel
14	2.0	2000	Dampf- überschuß	+ 90	vorgecracked	Blähen u. Bersten bei 800°C (α -Phase)	langsam in Inertgas	CORA	siehe Seite 1
15	2.0	"	"	+ 10	"	Blä.+Berst. bei 1100°C (β -Phase)	"	"	
16	0.5	"	"	0	unbehandelt	kein Blähen	quenchen	"	Fragmentierung durch Abschrecken
17	4.0	"	"	"	"	"	"	"	
18	0.5	"	"	"	vorgecracked	"	"	"	
19	4.0	"	"	"	"	"	"	"	
20	2.0	"	"		"	blähen ohne Bersten	"	"	Einfluß des Ballooning auf die Fragmentierung
21	2.0	"	"	+ 90	"	Blähen u. Bersten bei 800°C (α -Phase)	"	"	
22	2.0	"	"	+ 10	"	Blähen u. Bersten bei 1100°C (β -Phase)	"	"	

TAB. 2: VERSUCHSMATRIX FÜR DIE BÜNDELEXPERIMENTE ZUR UNTERSUCHUNG SCHWERER KERNSCHÄDEN

Test Nr.	Aufheizgeschwindigkeit [°C/sec]	Max. Temp. [°C]	Umgebungsatmosphäre	Stabdruk P [bar]	Pelletzustand	Hüllrohrzustand	Testende	Teststand	Versuchsziel
101	0.5	2000	Dampfüberschuß	0	vorgecracked	kein Blähen	langsam	CORA	Einfluß der Heizrate auf die Auflösung und Fragmentierung. Einfluß des Berstens auf die Auflösung und die Fragmentierung bei verschiedenen Aufheizraten.
102	0.5	"	"	"	"	"	quenchen	"	
103	4.0	"	"	"	"	"	langsam	"	
104	4.0	"	"	"	"	"	quenchen	"	
105	0.5	"	"	+ 90	"	$\alpha - 800^{\circ}\text{C}$	langsam	"	
106	0.5	"	"	"	"	"	quenchen	"	
107	4.0	"	"	"	"	"	langsam	"	
108	4.0	"	"	"	"	"	quenchen	"	
109	0.5	"	"	+ 10	"	$\beta - 1100^{\circ}\text{C}$	langsam	"	
110	0.5	"	"	"	"	"	quenchen	"	
111	4.0	"	"	"	"	"	langsam	"	
112	4.0	"	"	"	"	"	quenchen	"	
Test Nr.	Aufheizgeschwindigkeit [°C/sec]	Max. Temp. [°C]	Umgebungsatmosphäre	Pelletzustand	Führungsrohr	Absorber	Testende	Teststand	Versuchsziel
113	2.0	1750	Dampfüberschuß	Al ₂ O ₃	CrNi-Stahl	Ag/In/Cd	langsam	CORA	Einfluß der Absorberstäbe und Führungsrohre auf die Blockage und die Fragmentierung.
114	2.0	"	"	oder UO ₂	"	"	quenchen	"	
115	2.0	"	"	"	"	Borsilikat Glas	langsam	"	
116	2.0	"	"	"	"	Grauer Absorber	langsam	"	
117	2.0	"	"	"	"	Leerrohr	langsam	"	
118	2.0	"	"	"	Zry	Ag/In/Cd	langsam	"	
119	2.0	"	"	"	"	"	quenchen	"	
120	2.0	"	"	"	"	Borsilikat Glas	langsam	"	

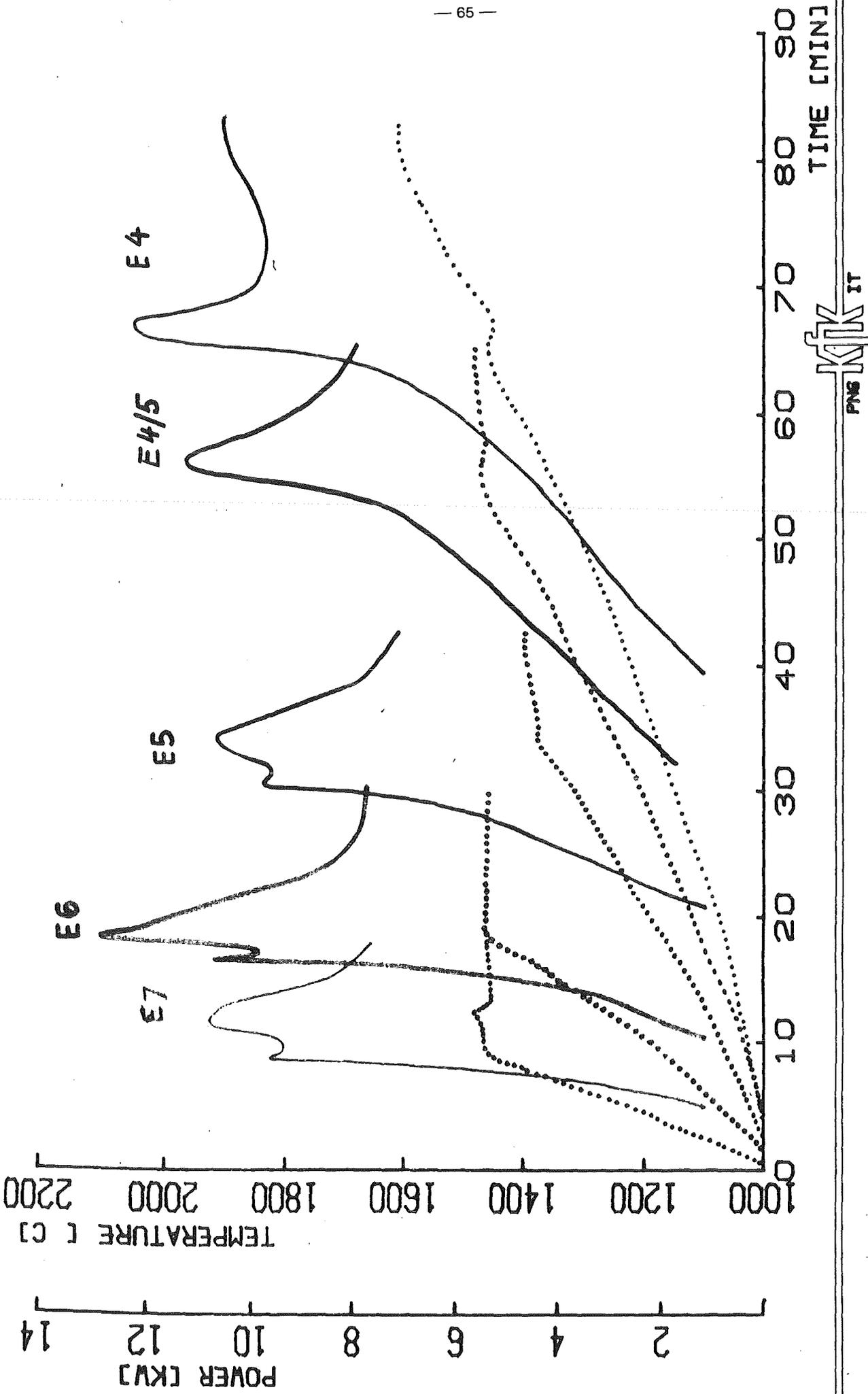
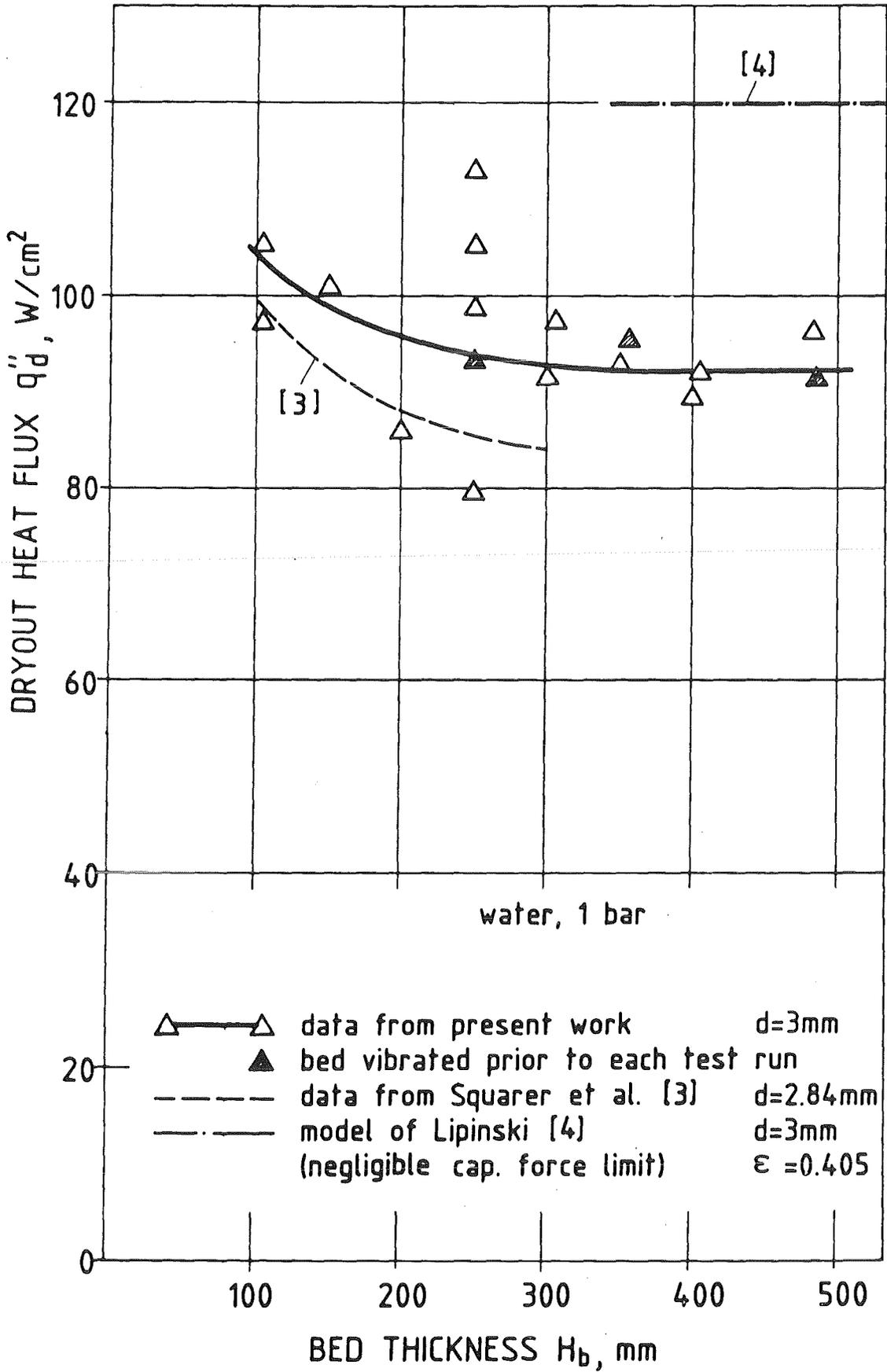


ABB.: 19 TEMPERATURE (—) ON ROD AND ELECTRIC POWER (.....) FOR TESTS ESS1 4.5.6.7



ABB, 20:

DRYOUT HEAT FLUX IN DEEP TOP-FED BEDS

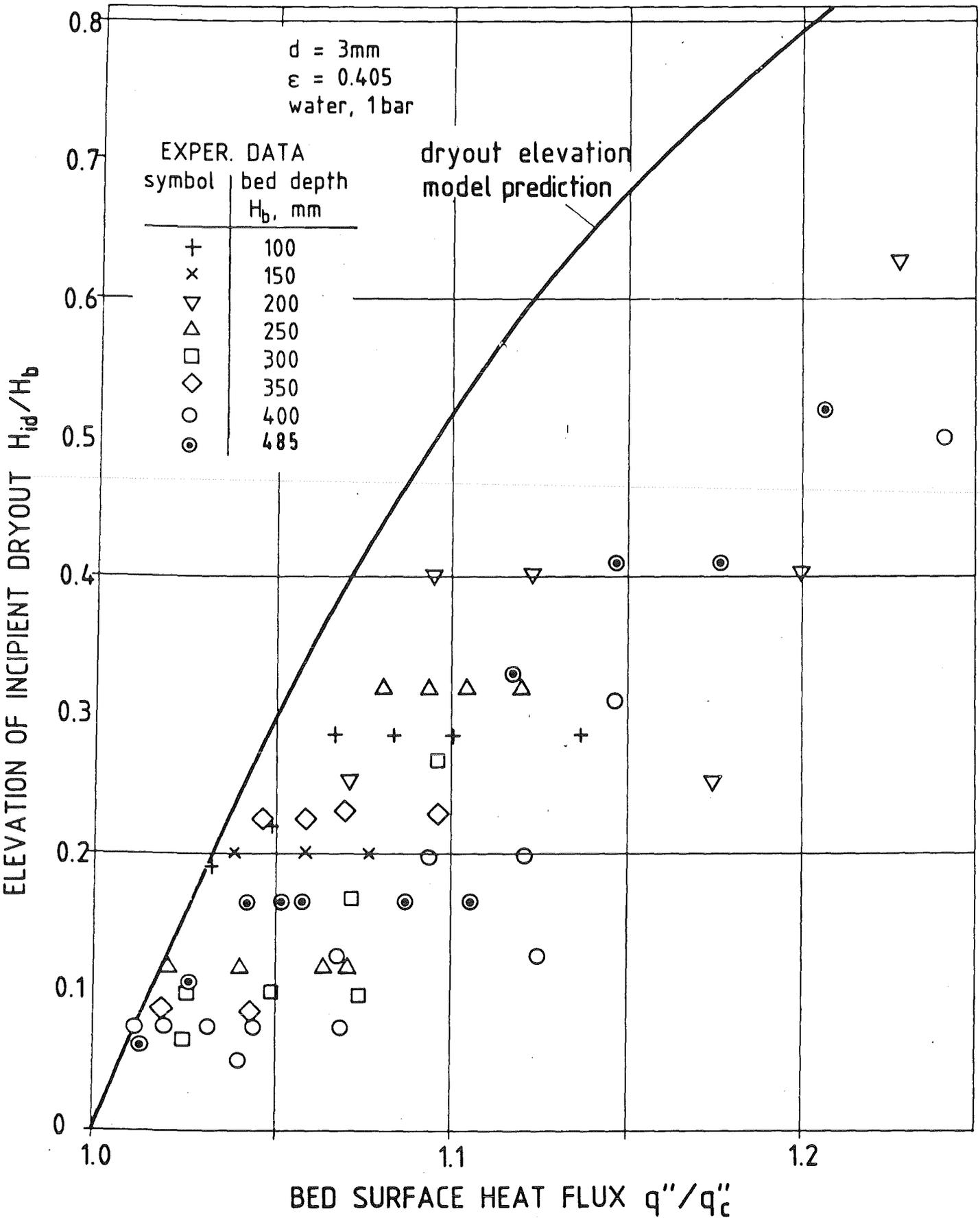
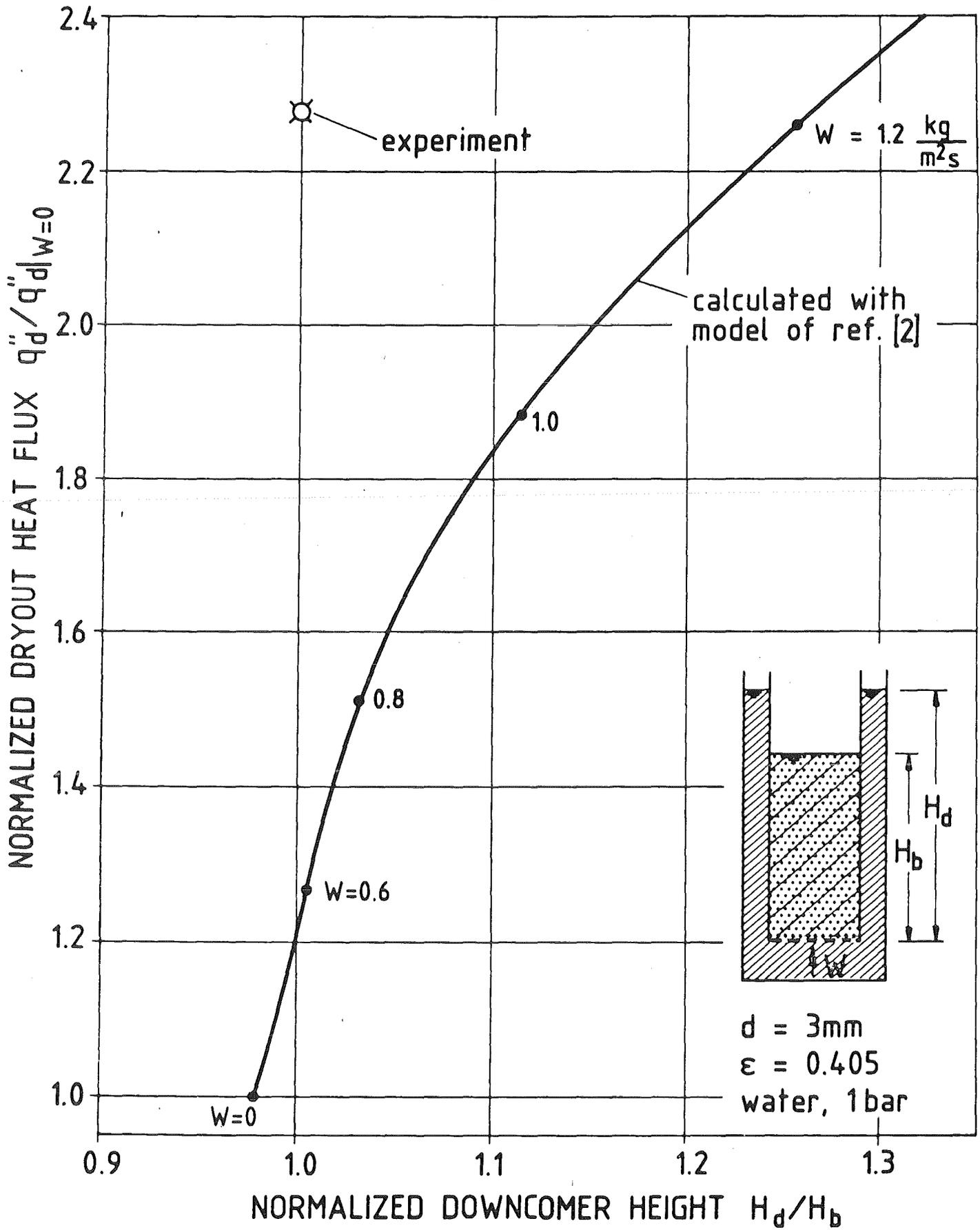


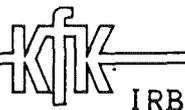
ABB. 21:

ELEVATION OF INCIPIENT DRYOUT AS A FUNCTION OF HEAT FLUX IN A TOP-FED BED



$d = 3mm$
 $\epsilon = 0.405$
water, 1bar

ABB. 22:



INCREASED DRYOUT HEAT FLUX IN A BED WITH DOWNCOMER DRIVEN BOTTOM INJECTION

	maximal freigesetzter Anteil des Kerninventars				
	Kr-Xe	J ₂ -Br	Cs-Rb	Te	Ba-Sr
DRS, A	1,0	3,9 E-1	2,6 E-1	1,6 E-1	3,0 E-2
PNS (best estimate)	1,0	6,4 E-3	6,9 E-3	5,6 E-3	6,9 E-5

FK2 (Niederdruckpfad) Leck: $D_i = 300$ mm



ABB. 23: Maximalfreisetzung aus dem Reaktor bezogen auf das Kerninventar (radioaktiver Zerfall nicht berücksichtigt)

	maximal freigesetzter Anteil des Kerninventars				
	Kr-Xe	J ₂ -Br	Cs-Rb	Te	Ba-Sr
DRS , A	1,0	E-2	8,7 E-4	9,3 E-4	9,6 E-5
PNS (best estimate)	1,0	1,1 E-7	9,6 E-7	7,8 E-7	9,6 E-9

— 70 —

FK 6 (Niederdruckpfad)



ABB. 24: Maximalfreisetzung aus dem Reaktor bezogen auf das Kerninventar
(radioaktiver Zerfall nicht berücksichtigt)

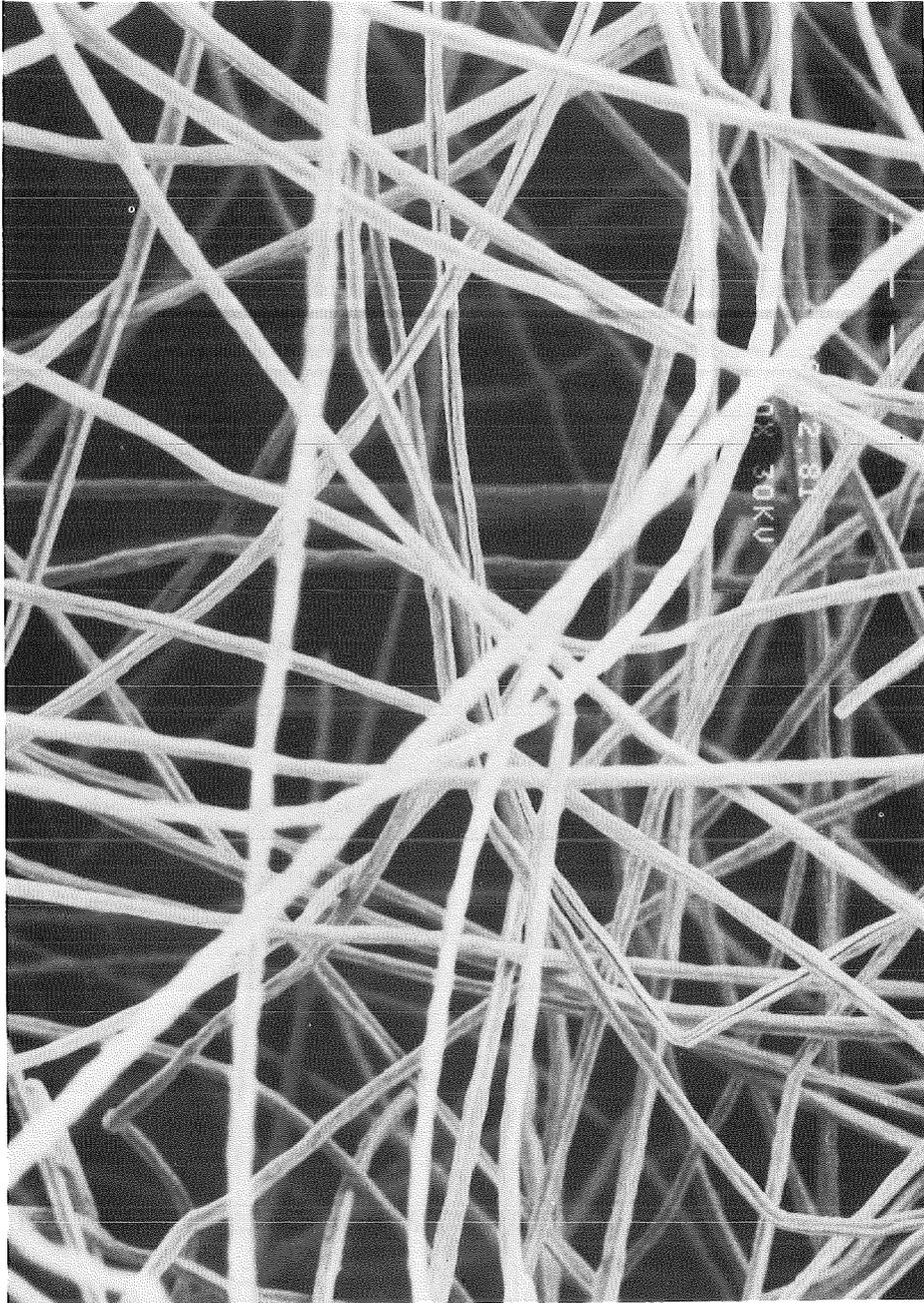
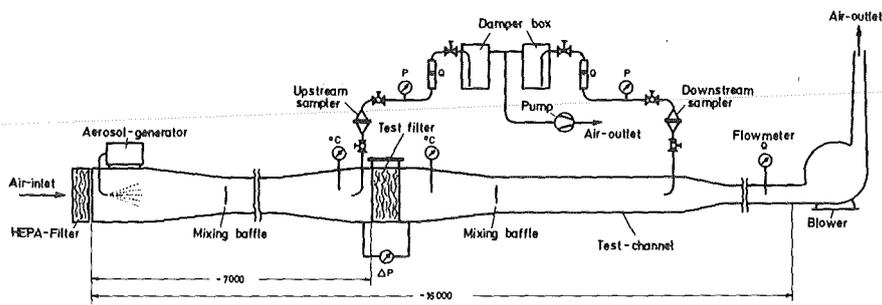
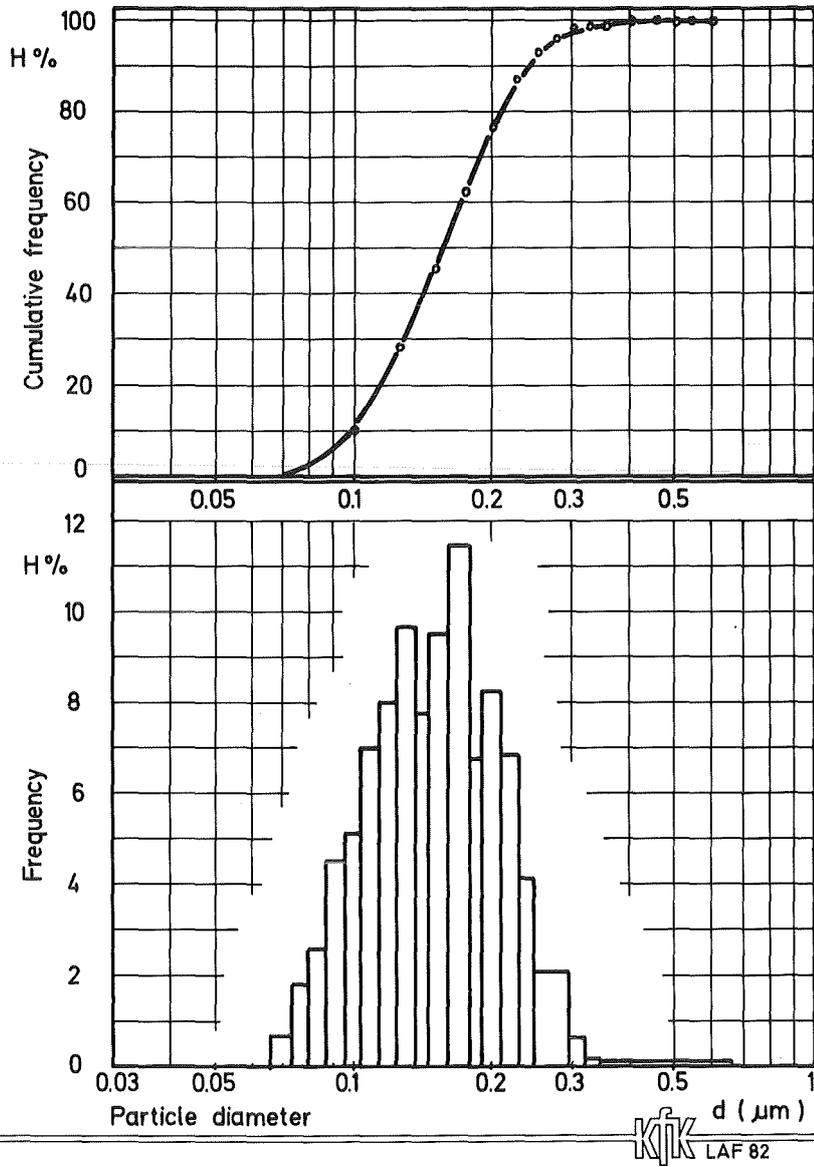


ABB. 25: ELEKTRONENMIKROSKOPISCHE AUFNAHME VON
 $4\ \mu$ - METALLFASERN



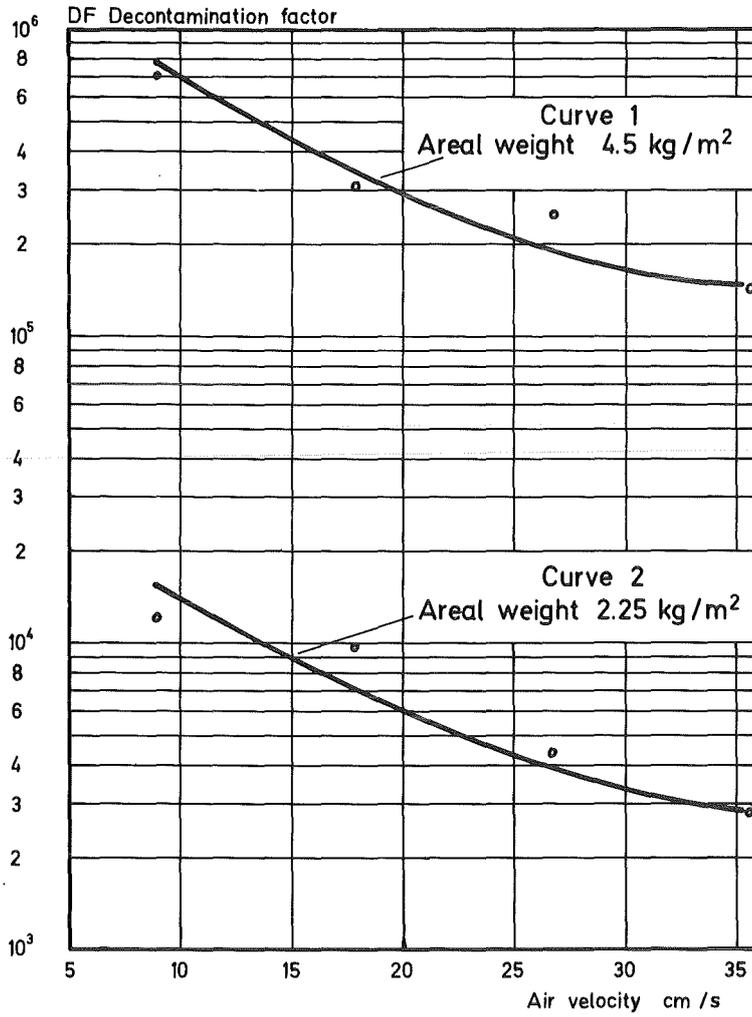
TEST-RIG FOR PARTICLE FILTERS UNDER NORMAL CONDITIONS

ABB. 26: TESTSTAND FÜR HEPA-FILTER UNTER NORMALBEDINGUNGEN



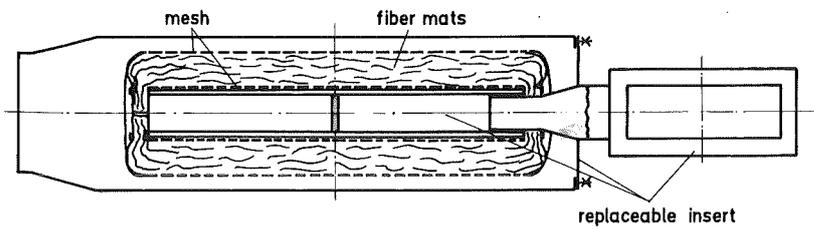
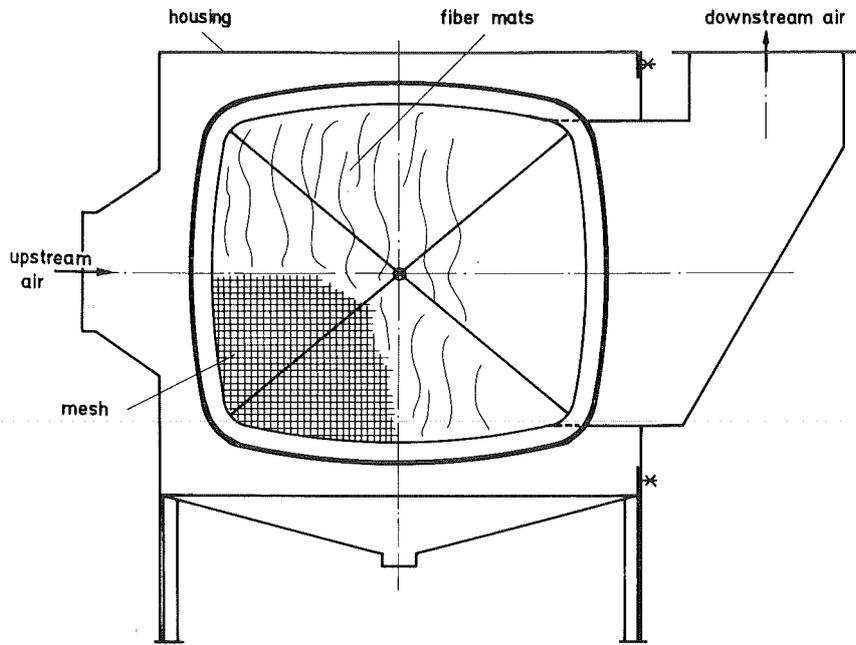
URANINE PARTICLE SPECTRUM

ABB. 27: SPEKTRUM DER URANIN-TESTAEROSOLE



DECONTAMINATION FACTOR OF 2 μm FIBERS

ABB. 28: GEMESSENER VERLAUF DES DEKONTAMINATIONSFAKTORS FÜR 2 μ METALLFASERFILTER



DEEP-BED PARTICLE FILTER HOUSING WITH ONE TYPE
OF REPLACEABLE INSERT

KTK LAF II 22.10.1981
Dillmann, Pasler

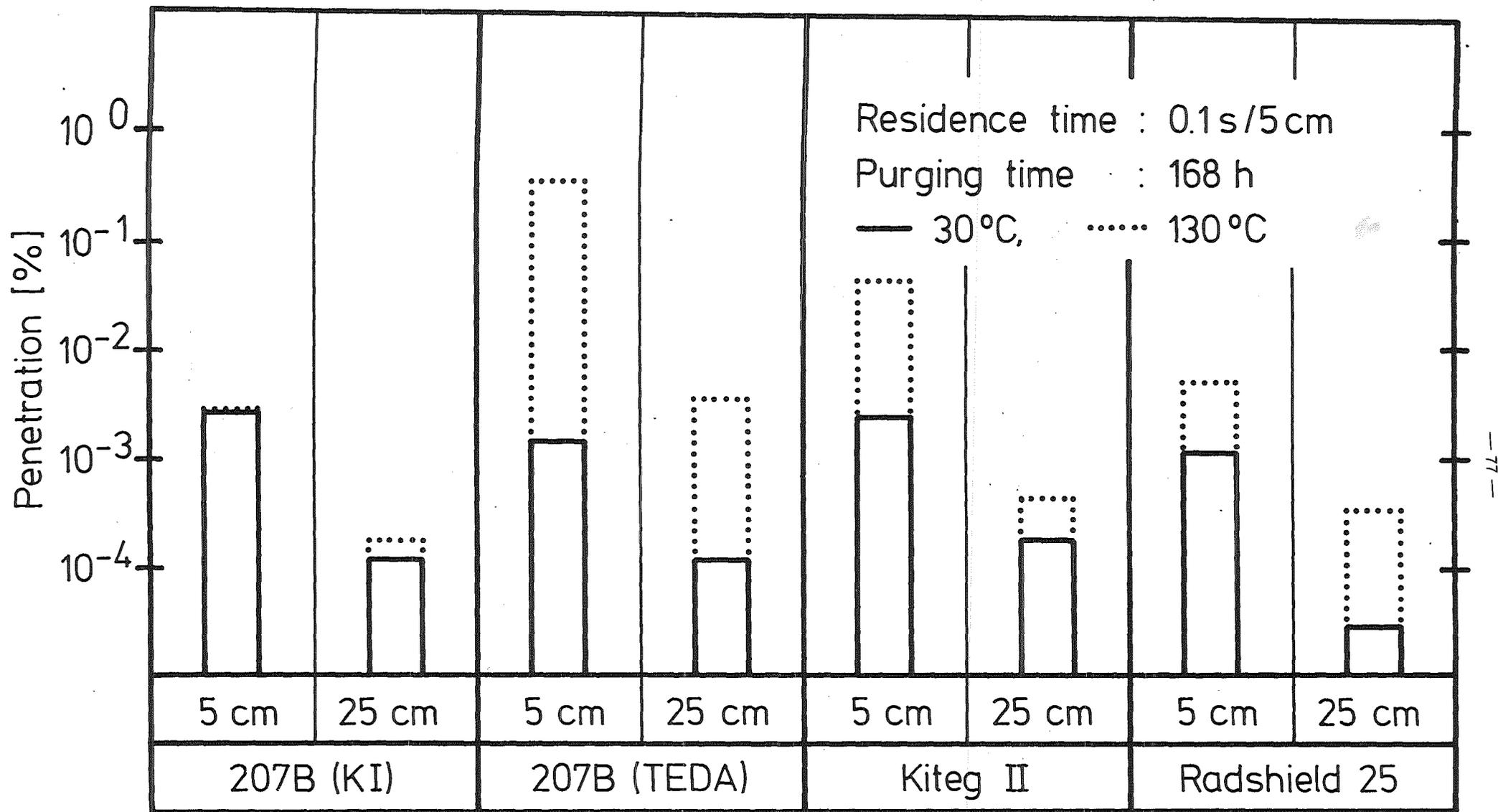
Abb. 29: VORSCHLAG FÜR EINE ANORDNUNG DER METALLFASERMATTEN
ZU EINEM TIEFBETT-HEPA-FILTER

DATA OF ACTIVATED CARBONS

Designation	Base material	Impregnant
207B (KI)	coal	KI
207B (TEDA)	coal	TEDA
Kiteg II	coconut shell	KI, tert. amine
Radshield 25	coconut shell	tert. amine



ABB. 30: AKTIVKOHLEMATERIALIEN IM VERGLEICHSTEST



LAF II D8246E

ABB. 31: DURCHLÄSSIGKEIT UNTERSCHIEDLICHER IMPRÄGNIERTER AKTIVKOHLEN GEGENÜBER ¹³¹J ALS J₂

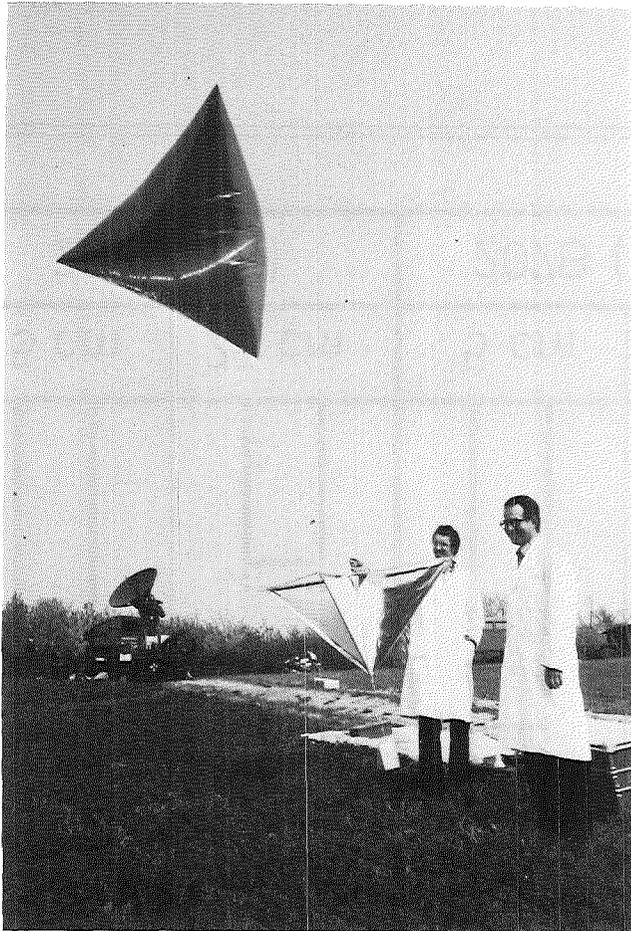


ABB. 32: TETROON MIT PASSIVEM
REFLEKTOR UND RADAR
(IM HINTERGRUND)

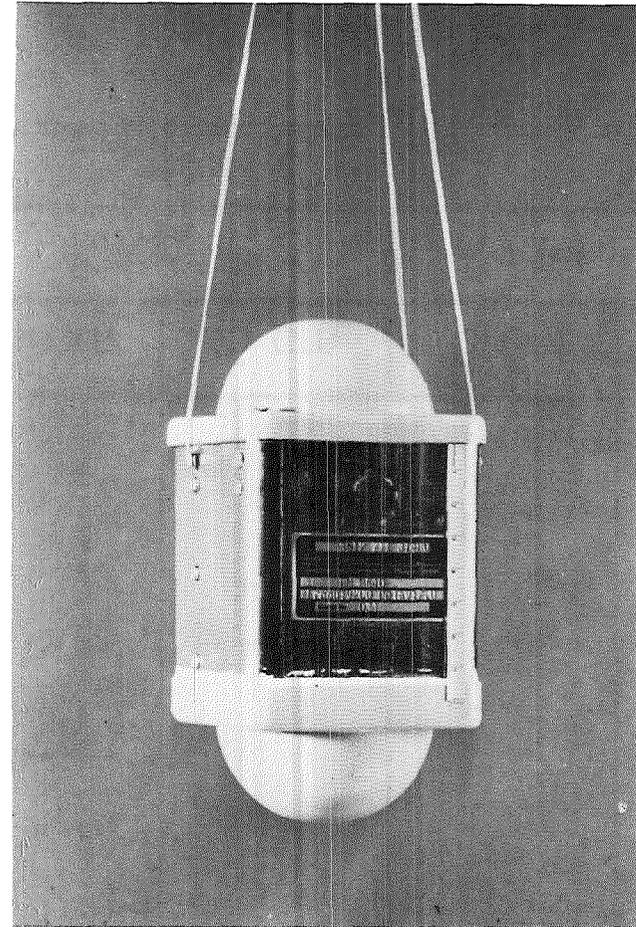


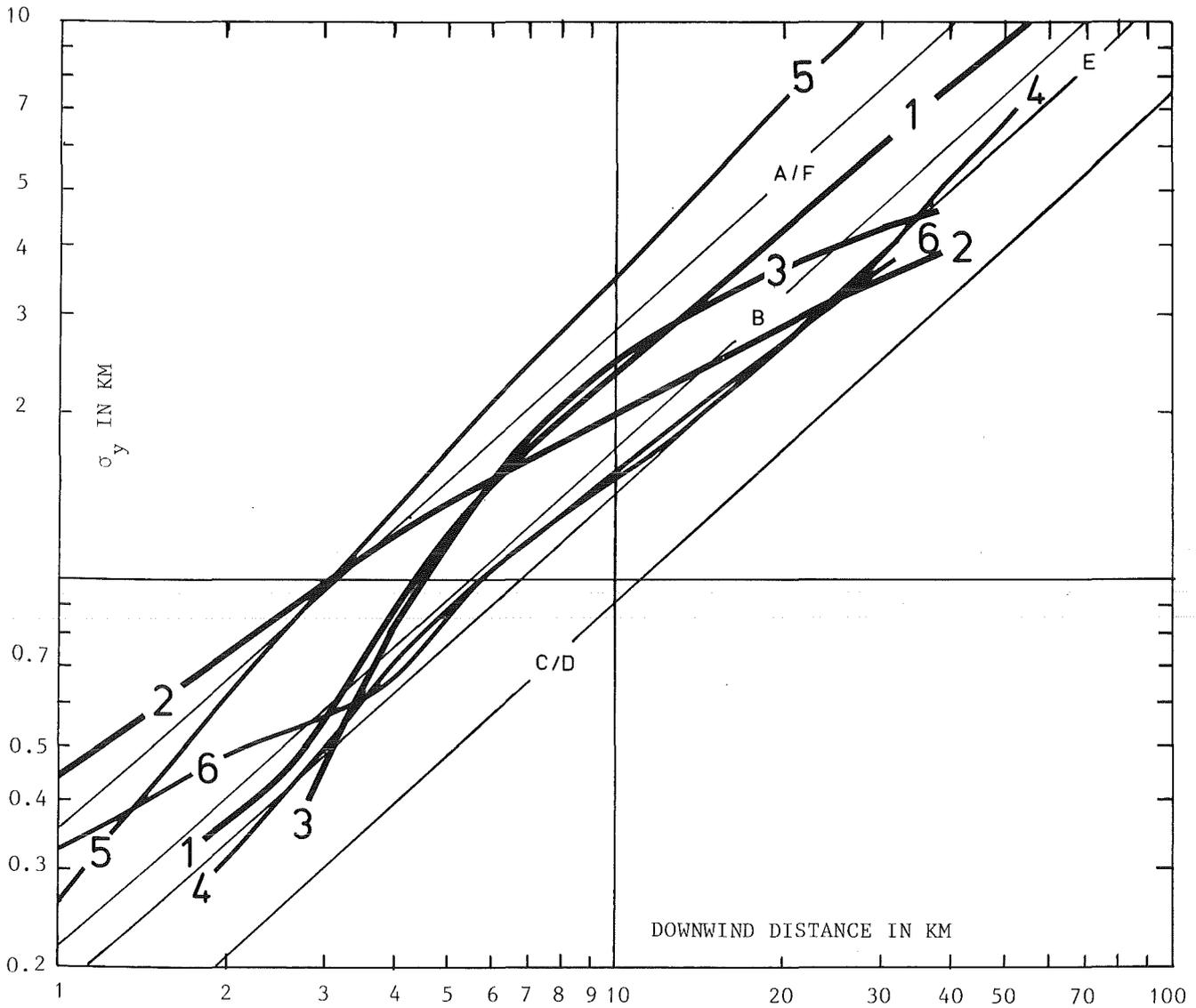
ABB. 33: FREQUENZUMSETZER
(=TRANSPONDER) ZUR ERHÖHUNG
DER REICHWEITE BIS CA. 100 KM

Campaigns with radar tracked tetroons.
 Witthoh: Highland in Southern Germany
 KNRC: Upper Rhine Valley
 Dorum: North Sea Coast

Datum	Experimentierort	Anzahl der Flüge		Flughöhe in m	erreichte Entfernung unter Radar- beobachtung in km	atmosphärische Stabilität
		Transponder				
		ohne	mit			
25.08.77	Witthoh	2		500-750	14-24	leicht instabil
25.04.-27.04.78	KNRC	6		350-700	10-29	leicht instabil
16.07.-18.07.79	Witthoh	4	2	300-850	6-65	leicht instabil
08.10.80	KNRC	5		250-1000	17-49	neutral
24.08.-26.08.81	Witthoh		4	450-1000	45-94	instabil
29.09.-06.10.81	Dorum	27	2	250-1200	11-51	neutral
12.05.-17.05.82	KNRC		8	300-1000	46-83	instabil

ABB. 34: MESSKAMPAGNEN MIT RADAR-VERFOLGTEN TETROONS.

WITTHOH: HÜGELÄHNLICHE ERHEBUNG IN SÜDDEUTSCHLAND
 KNRC: OBERRHEINTAL
 DORUM: NORDSEEKÜSTE



No. of flight series	Site	Date	Number of flights	stratification
1	Witthoh	18.07.79	2	slightly unstable
2	Witthoh	25.08.81	2	unstable
3	KNRC	27.04.81	2	unstable
4	KNRC	08.10.80	5	neutral
5	Dorum	01.10.81	5	neutral
6	Dorum	02.10.81	5	neutral

ABB. 35: VERLAUF DER AUS TETROONFLÜGEN HERGELEITETEN STANDARDABWEICHUNGEN DER HORIZONTALEN DIFFUSION ALS FUNKTION DER ENTFERNUNG IM VERGLEICH ZU DEN AUS TRACEREXPERIMENTEN BIS CA. 10 KM GEMESSENEN UND DARÜBER HINAUS LINEAR EXTRAPOLIERTEN σ_y .

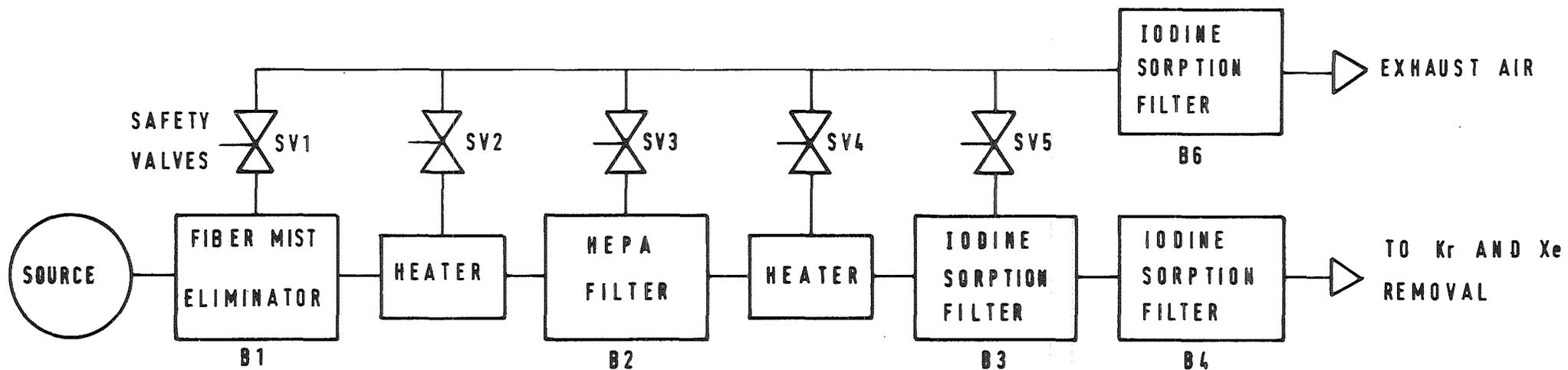


ABB. 36: BLOCKDIAGRAMM DER AEROSOL- UND JODFILTEREINHEIT (PASSAT)

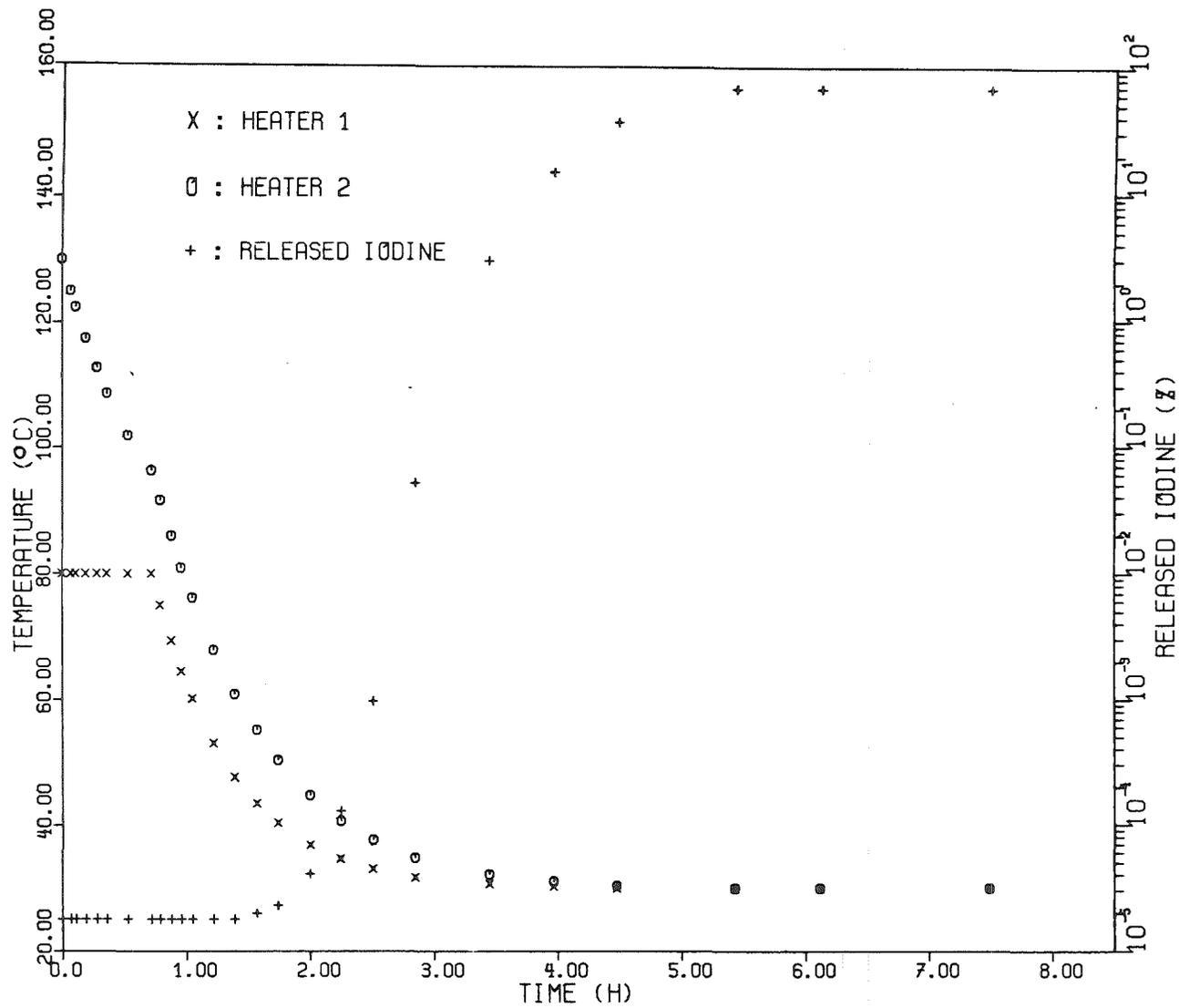


ABB. 37: AUSFALL BEIDER ERHITZER INNERHALB DER REPARATURZEIT UND DADURCH BEDINGTER ANSTIEG DER DURCHLAESSIGKEIT DER JODFILTER



PROJECT NUKLEARE SICHERHEIT

JAHRESKOLLOQUIUM 1982

LIGHT WATER REACTOR HYDROGEN SAFETY RESEARCH IN
THE UNITED STATES

Marshall Berman
Sandia National Laboratories

Loren Thompson
Electric Power Research Institute

Kernforschungszentrum, Karlsruhe
Federal Republic of Germany

USNRC-SPONSORED RESEARCH ON HYDROGEN
BEHAVIOR AND CONTROL DURING HYPOTHETICAL
REACTOR ACCIDENTS

Presented at

JAHRESKOLLOQUIUM 1982

KARLSRUHE, FEDERAL REPUBLIC OF GERMANY

OCTOBER 26, 1982

by

Marshall Berman
Sandia National Laboratories
Albuquerque, New Mexico
United States of America

ABSTRACT

Sandia National Laboratories is conducting a hydrogen research program for the U. S. Nuclear Regulator Commission. The program has two major objectives: assessment of the threat to nuclear power plants (containment structure, safety and control equipment, and the primary system) posed by hydrogen combustion; and assessment of proposed hydrogen control and disposal methods, and development of new concepts. This paper discusses the major program elements, recent research results, and future plans.

INTRODUCTION

The reactor safety community has always been aware that accidents more severe than the design basis accident (DBA) could pose a threat to public safety from water reactor operation. The accident at Three Mile Island, although benign in terms of public health and safety, nevertheless indicated that such severe accidents can occur. In particular, the hydrogen combustion which occurred at TMI highlighted the potential threat from the generation and burning of hydrogen during severe accidents. As a consequence, several research efforts have been undertaken in the United States, Europe and Japan to improve our understanding of hydrogen behavior and to reduce the risk associated with unanticipated combustion. This paper discusses the research performed by Sandia and its contractors for the NRC. The following paper discusses the EPRI-sponsored programs.

A number of fundamental questions and issues arise when examining the hydrogen problem for light water reactor (LWR) plants. These questions and issues are related to the four natural divisions of the problem: hydrogen production; hydrogen transport, release, and mixing; hydrogen combustion; and prevention or mitigation of hydrogen combustion. Unknowns and uncertainties exist in each of the four problem areas. For example, the rate of hydrogen production during a degraded-core or molten-core accident, hydrogen-water solubility dynamics, the rate of hydrogen mixing, the effect of geometrical structures and scale on combustion, flame speeds, combustion completeness, and mitigation-scheme effectiveness, are all important issues with significant uncertainties. Our approach to resolving the uncertainties includes analytical modelling, computer simulation, and experimentation on several scales. The products of this research program will include:

1. Assessment of the threat for several classes of reactors and containment designs;
2. Assessment of the adequacy of existing safety systems and mitigation strategies;
3. Identification and concept demonstration of improved mitigation and detection systems;
4. Publication of manuals and reports on: evaluation of the state-of-the-art; phenomena important to threat assessment; operator strategies and training; and reactor safety issues;
5. Development and application of computer codes for addressing the generation, transport, combustion and mitigation of hydrogen during hypothetical reactor accidents.

From its inception, this program has been planned and executed in close cooperation with other programs including the industry research effort conducted by the Electric Power Research Institute and various interested utilities.

Considering the large diversity of issues related to the hydrogen problem, the elements of the various research programs have remained, to a large extent, complementary to each other. Where overlap has occurred, the data have frequently supported each other and raised our confidence in the accuracy and reliability of the results; in some cases, possible discrepancies have arisen, and further research will be required to resolve these questions.

RESEARCH PROGRAM ELEMENTS AND RESULTS

There are several aspects to the hydrogen issue (see Appendix): hydrogen generation (sources), transport and mixing, combustion, and ultimately mitigation and control. Figure 1 illustrates the interdependence of these aspects; phenomenological information from these areas must eventually be incorporated into models which can predict reactor and containment responses during hypothetical accidents. The NRC research program is addressing many areas within each of these groups; current research emphasizes those aspects of the problem which are considered to be most urgent, based on current information; future research directions will obviously depend on information produced from the current research.

The Hydrogen Behavior program (A-1246)* is the first, the largest, and the most comprehensive of the NRC hydrogen programs. It addresses most of the items shown in Fig. 1 which are not specifically addressed by the other programs. The primary emphasis of this program is on the combustion aspects of the hydrogen problem; it also ensures that the research elements are well organized, and integrates these elements into the reactor accident analysis tasks.

Several philosophies have been incorporated into the various hydrogen programs to maximize their utility to the NRC. First, the programs contain both experimental and analytical elements. This facilitates the use of the experimental data, as well as providing guidance to and assessment of the code-development efforts. Secondly, the programs are designed to provide interim, scoping information to assist in current decision-making processes and in answering urgent licensing questions. The programs are also designed to address long-term research goals; i.e., experimental facilities of broad scope and equipped with adequate instrumentation are being designed and built to comprehensively address important reactor safety issues. These facilities will be intimately coupled with longer-term code-development activities. This two-pronged approach is consistent with meeting urgent licensing needs, without compromising the more detailed information that will be needed in the long-term evaluation of the consequences of severe reactor accidents.

*The numbers following the program titles are NRC contract identification numbers.

Figure 2 illustrates the relationships between the various code-development tasks and their applications. The HECTR code (see Fig. 3) is intended to be a fast-running reactor accident analysis tool which will calculate the transport and combustion of the fuel and oxidant gases during hypothetical reactor accidents. It is a one-dimensional, multicompartment, control-volume code, which will model the various engineered safety features in different containments. It includes heat transfer (radiation, convection, conduction, droplet evaporation), flame initiation and propagation, and a rudimentary model for transport and mixing (see Fig. 4). It employs other codes for the definition of the source term (e.g., MARCH, CORCON, MELCOR, etc.), or internally calculates this term by means of tables or simple formulas. It may also incorporate simplified versions of more complex flame-propagation codes. HECTR has been and will continue to be used for reactor accident calculations (see Figs. 5-8); it may also provide models for incorporation into the large, second-generation accident analysis codes such as MELCOR. A version of HECTR called HECTR-ES is being used to provide pressure and temperature histories for the evaluation of equipment survival. These histories are used directly in heat transfer codes to predict the response of equipment to hydrogen burns; they are also being used to guide the design of experimental facilities which will simulate temperature histories at reactor scales.

An analytic effort is underway at Sandia Livermore (SNLL) to predict the possibility and consequences of flame acceleration in reactor accidents. This effort includes the modification and application of complex vortex-dynamics codes (Figs. 9-10) as well as simpler codes, and even empirical correlations when appropriate. This code development effort is closely coupled to the experimental study of accelerated flames at Sandia Albuquerque (SNLA) and at McGill University.

Under NRC sponsorship, several hydrogen transport codes are currently being evaluated. The best of these codes will be pursued, both for comparisons to experiments, and to provide benchmark calculations. However, with the extension of HECTR's capability to the modelling of transport and mixing, the need for simplified 1-D pure transport codes will diminish. Code storage limitations and run-time constraints, however, may extend the utility of RALOC or similar codes for pure transport calculations.

Detonation loads have been calculated by a modified version of the Sandia CSQ code for several plants (Figs. 11-12). The code can sometimes calculate non-conservative loads (i.e., less than the classical Chapman-Jouquet predictions), because it empirically assumes a finite run distance for transition to

detonation. Nevertheless, it provides pressure-time behavior for calculating impulses delivered to structures (which are needed for structural failure calculations). The calculated impulses (i.e., the time integrals of pressure), however, are generally quite accurate. Although refinement and improvement of CSQ for these calculations is quite possible, it is not planned for the immediate future.

Figure 13 lists the various experimental facilities available for the hydrogen research effort. A large pre-existing capability has been tapped for this work (e.g., the VGES 16-ft tank, the FITS tank, two large sites for detonation testing at SNLA, and 10 tubes and channels of various lengths and diameters at McGill University). Some new facilities have been built (e.g., steam:hydrogen jet facility), or will be built shortly (FLAME). These facilities, together with those employed by EPRI and the utilities should suffice for most experimental investigations. Figure 14 shows those facilities which are being used to address questions dealing with deflagration phenomena. Figures 15 and 16 connect the appropriate facilities to studies of detonations and accelerated flames, respectively.

Deflagration experiments in the VGES burn tank (Fig. 17) and in the FITS burn tank (Fig. 18) have addressed the following issues: flame shape and speed; combustion completeness; effects of igniter type and location; quiescent versus dynamic (turbulent) initial conditions; effects of steam, carbon dioxide and water foams; equipment survivability; and the effects of initial pressure, temperature, and gas concentrations. Some very important conclusions can be drawn from this body of experimental data, many of which have also been confirmed in studies conducted by EPRI and the utilities. It is important now to understand that the earlier concept of "flammability limits" is insufficient (and sometimes misleading) for reactor safety applications. The experiments show that such limits are not based on physical and chemical properties of the component gases alone; rather, they depend on ignition type and strength, vessel geometry and size, the nature and geometry of obstacles which may be present (and their heat transfer properties), the initial gas composition, temperature and pressure, and the velocity of the gases (quiescent versus moving). In addition, flame ignition must clearly be distinguished from flame propagation; e.g., hydrogen can be burned in the neighborhood of an igniter or on the surface of a catalyst, without any flame propagation occurring. This clearly complicates the job of the reactor safety analyst. If he wishes to know if a particular mixture of gases will sustain a propagating deflagration (and to know the resulting pressure rise), he will need to describe the initial and boundary conditions of the problem sufficiently accurately to determine flame speeds, combustion completeness,

and the important heat transfer mechanisms. Future experiments planned for the deflagration facilities (Fig. 14) will investigate the effects of nonhomogeneous concentrations, multiple simultaneous or sequential ignitions, the effects of aerosols on combustion (and combustion on aerosols), and the performance of various mitigation schemes.

The steam:hydrogen jet facility (Fig. 19) has two major objectives: to understand the behavior of such jets issuing from breaks in the primary system as a function of hydrogen and steam concentrations, flow velocities, gas temperatures, break size, and the nature and placement of flameholders (i.e., obstacles); and to examine deliberate flaring through high-point vents as a mitigation concept. The facility is operational.

A desirable result of the detonation research would be to either demonstrate that the probability of detonation occurrence is so small as to present a negligible threat, or to make that probability small by means of preventive measures or mitigation features. For example, at the inception of this program, the "accepted" values for "detonability limits" of hydrogen:air mixtures was 18-59% hydrogen. If such concentrations could be ruled out for reactor accidents, then detonations would be impossible. However, our research has already shown that "detonability limits" (in the classical sense of specific numbers independent of geometry and size) are no more fundamental properties of nature than were "flammability limits". A very extensive program at McGill University (using hydrocarbons as well as hydrogen) coupled with large-scale critical-tube-diameter experiments (Fig. 20) at the VGES site, has led to the production of U-shaped curves as shown in Figs. 21-22. The detonation cell width, λ , appears to be a fundamental parameter of detonations. Small values of λ correspond to highly detonable gases (such as acetylene and hydrogen) or to near-stoichiometric mixtures. The larger the value of λ , the more difficult it is to establish and maintain a steady detonation wave. It now appears that the cell width can be related to other important parameters of detonations such as initiation energy, critical tube diameter, and detonability limits. The critical tube diameter d_c , is the minimum diameter which will permit a steady planar detonation wave to propagate into an open volume (i.e., become a spherically expanding wave). The solid curve in Fig. 21 shows the critical tube diameter as a function of hydrogen concentration (in air) calculated by the empirical equation, $d_c = 13 \lambda$; the specific points refer to direct measurements of d_c . A similar curve can be drawn where the ordinate is the critical energy for direct initiation of a detonation. Hence, Fig. 21 relates detonability limits to geometry, size, and the relative concentrations of the gases. Figure 22 is a direct plot of detonation cell width, λ , as a function of the relative

fractions of hydrogen and air, and including additions of carbon dioxide gas. This curve can again be employed to indicate detonability limits. As the concentrations move away from stoichiometric conditions (29.6% hydrogen in air), the establishment of steady propagating detonation waves requires larger volumes; i.e., λ , and also d_c , become larger, indicating that the mixture is becoming less detonable. Similarly, the addition of carbon dioxide also reduces the detonability of the mixture. Figure 23 pictorially represents our current thinking concerning the relationships between geometry, size and concentration and the possibility of a sustained propagating detonation wave. For cylindrical tubes, detonations can propagate if the tube diameter exceeds about $1/2 \lambda$; the critical tube diameter for cylindrical tubes is 13λ . For channels of rectangular cross section, the critical tube diameter varies from about 11λ (for square cross sections) to about 3λ for aspect ratios of the order of or greater than about 5. Experimental evidence for these conclusions has been produced both at small (McGill University) and large (Sandia) scales. It may be possible to extrapolate this information to predict the minimum cloud sizes for various degrees of confinement in other geometries. For example, a cloud may need to be at least $1.5 - 5.5 \lambda$ in height above one surface (one degree of confinement) for propagation to be possible. Similarly, a spherical detonation (zero degrees of confinement) may be possible for a cloud of diameter 6.5λ or larger. These predictions are also sketched in Fig. 23. It should be emphasized that these results are tentative, and further work is clearly required to increase our confidence in the extrapolations.

U-shaped curves such as Fig. 22, but with the CO_2 additions replaced by steam, would also be valuable for reactor accident analyses. We plan to conduct these experiments (i.e., measure λ as a function of the relative concentrations of hydrogen, air and steam) in the VGES 1.5' x 42' tube in FY83.

We expect these detonations results to be very valuable to reactor analysts and plant designers. For example, if one wishes to rule out the possibility of a detonation occurring within a particular duct, and then exiting into a large open volume, he needs only to know the duct dimensions and a conservative estimate of the local hydrogen concentrations. If the duct height is less than about $1/2 \lambda$, a detonation probably could not develop in the duct; if the duct height is less than about $3-13 \lambda$ at its exit, then even a propagating detonation wave would be quenched in the larger room. Hence, important questions such as these can be answered without considering the more complex phenomenological questions dealing with transition to detonation.

There is an intermediate form of combustion between slow deflagrations and classical Chapman-Jouguet (C-J) detonations that is sometimes called accelerated flames. Flame speeds in the laboratory coordinate system are vastly greater than the laminar burning velocities, but can still be well below the C-J conditions. These flames are of interest in reactor accident analysis since they can lead to pressures and temperatures in excess of the adiabatic, isochoric combustion predictions for equivalent concentrations. There is also the possibility that accelerated flame can become a "strong" jet ignition source capable of direct initiation of a detonation in a neighboring region. In contrast to the low probability of detonations, the existence of some degree of flame acceleration is probably quite likely.

An extensive experimental investigation of flame acceleration has been underway at McGill University for many years, primarily studying various hydrocarbons. The NRC is supporting part of this effort, which is aimed specifically at reactor accident simulations using hydrogen. The small-scale experimental effort at McGill is strongly coupled to the larger-scale program at SNLA, where the FLAME (Flame Acceleration Measurements and Experiments) facility is being built (Fig. 24). The McGill experimental program has already produced a significant body of data with important applications to reactor safety. It now appears that hydrogen is very sensitive to flame acceleration (as is acetylene). Significant flame acceleration (flame speeds on the order of hundreds of m/s) has been observed in hydrogen:air mixtures as lean as 10% H₂. The degree of acceleration depends strongly on tube geometry and size, obstacle nature and blockage ratio, and gas concentrations. Recent data have also shown an extreme sensitivity to the degree of confinement along a channel; e.g., vent areas representing about 10% of the top face of the channel can lead to order-of-magnitude reductions in flame speed. If this strong dependency on venting persists in the large-scale tests in the FLAME facility, it would indicate that flame acceleration in large channels (e.g., the ice condenser upper plenum) could be significantly moderated by partial venting.

Experiments to date indicate that the mechanisms governing flame acceleration may represent a precarious balance of positive and negative factors associated with flame folding and turbulence. Two positive factors that lead to an increase in burning rate are the increase in flame area due to folding, and the increase in the local burning velocity of the folds due to higher turbulent diffusivities associated with fine-scale turbulence; the increase in flame areas is a result of the gas flow ahead of the flame being greatly perturbed by the presence of obstacles. In the absence of negative factors, the volumetric burning rate would continue to increase until a

transition to detonation occurred. The negative factors that lead to a decrease in the burning rate are reaction quenching due to excessive flame stretching, and rapid cooling due to turbulent mixing. If the negative factors are strong enough, the flame may be quenched; if they are of intermediate strength, then a steady, strong flame can be produced which does not undergo transition; if the factors are sufficiently weak, then transition to detonation may take place.

This particular approach can be extended to the more general problem of intercompartmental transmission of flames. Considering accelerated flames to be a subclass of deflagrations, there are six possible modes of transmission. The upstream (or donor) compartment can be either in the deflagration or detonation mode; the downstream (receiver) compartment can be in either the deflagration or detonation modes, or the flame could be extinguished. Research on these questions is also being actively pursued.

HYDROGEN COMBUSTION MITIGATION AND CONTROL

Many operating plants already have hydrogen mitigation and control systems in place (e.g., recombiners, sprays, deliberate ignition systems); some are contemplating the deployment of new schemes. The NRC will need to develop the capability to assess these schemes for licensing purposes. Consequently, a major task of the research effort includes the evaluation of proposed equipment, concepts and operational schemes to prevent or mitigate the effects of hydrogen combustion during LWR accidents. One of the first accomplishments in this area was the analysis of three mitigation schemes being considered for the Sequoyah nuclear power plant: deliberate ignition, water fogging, and post-accident inerting with Halon. The results of this study were published in NUREG/CR-1762. The Grand Gulf hydrogen igniter system was also reviewed in a study funded by NRR; the results were documented in NUREG/CR-2530. Laboratory experiments were conducted on water fogs and foams, and are discussed in NUREG/CR-2767.

All the analytical and experimental facilities described previously are available for mitigation research. The candidate schemes with the highest potential (as currently perceived) are being studied now; these include deliberate ignition; deliberate flaring; the addition of diluents (water fogs and foams) in combination with deliberate ignition; and (partial or total) pre- and post-accident inerting. More advanced schemes will be addressed in the later stages of the research, if that proves to be necessary.

EQUIPMENT SURVIVABILITY

Current research may show that some reactor containments are strong enough to survive hydrogen combustion events without failing. However, it still is necessary to show that important safety equipment will not only survive, but will continue to perform their intended function, in order to bring the plant to a safe shutdown condition after an accident and maintain it in that condition. It is reasonable to assume that the primary threat to equipment during deflagration is thermal overloading. If significant flame accelerations occur, or transitions to detonations, then mechanical loads may be of concern. The basic elements of the hydrogen research program are being utilized to predict the range of pressure and temperature environments that might occur during reactor accidents. These combustion environments are then used in the Hydrogen Burn Survival (HBS) program to experimentally and analytically assess the effects of hydrogen combustion on equipment.

The current program on hydrogen burn survivability is phased in two parts: (1) to provide information to NRR in the short-term on the effects of hydrogen combustion on equipment for near-term licensing decisions and (2) to develop reliable methods to predict the response of equipment to the temperature and pressure environments produced during multiple hydrogen deflagrations. The need to investigate hydrogen detonations is also being considered. The program has already combined an early version of the HECTR code with a standard heat transfer code to calculate thermal responses to single burns. In addition, heat flux gages, simulated equipment surfaces, and some actual pieces of equipment have been subjected to single burn environments in the experimental facilities at SNLA. A report (NUREG/CR-2730) has been issued based on preliminary tests and analyses; it concludes that the hydrogen burn environment may pose a threat to some components.

Future efforts include additional burn tests in the FITS facility as well as large scale simulation tests planned for the Radiant Heat Facility and the Solar Thermal Test Tower. These facilities would be used to perform scoping tests on actual components in simulated full-scale hydrogen burn environments. The purpose of these tests would be to identify potential failure modes, if any. In addition, the analyses will be extended to include the effects of multiple burns.

COMBUSTIBLE GAS IN CONTAINMENT

The objective of this program is to determine the rates and quantities of hydrogen that could be generated by corrosion of coatings in containments, and to determine the nature and quantity of the debris resulting from the corrosion process. Preliminary

estimates of hydrogen generation were made in NUREG/CR-1561. Zinc inventories in some PWR and BWR plants were gathered and published in NUREG/CR-2021. The first test series addressed the rate of hydrogen production from galvanized steel samples immersed in solutions with varying properties; viz.; temperature, pH and boric acid concentration. These results have been published in NUREG/CR-2812. Research on this program will continue to address the effects of other initial conditions of hydrogen production (e.g., spraying of solution versus immersion); debris will be collected and studied.

CONCLUSIONS

It is clear from the preceding discussion that the current research program has already produced results of significant value to reactor safety analyses. Several other programs supported by the Office of Research (Fig. 25) are also contributing to the resolution of hydrogen-related questions. The Molten Core-Concrete Interactions program (A-1019) and the Core Melt Technology program (A-1218) will provide information on the production of combustible gases (carbon monoxide and hydrogen) due to core-concrete reactions. The Molten Core-Coolant Interactions program (A-1030) can provide information on the amounts and rates of hydrogen generated by the explosive and nonexplosive interactions of molten metals and water.

The primary objective of the Code Assessment and Applications program (A-1205) is to evaluate several thermalhydraulic computer codes (TRAC, RELAP4 and 5, etc.). A major subtask, however, is the assessment of the German (GRS) hydrogen transport code, RALOC. This code has been used to evaluate hydrogen transport and mixing times in various containments as a function of source rates and other initial conditions.

There are also several research programs that will use the codes and experimental data generated by the hydrogen programs. The Containment Integrity program (A-1249) will use the predictions for mechanical loads resulting from combustion. The Containment Analysis (A-1198), MELCOR (A-1339), and SASA (A-1258) programs will all use the models and codes developed for hydrogen behavior analyses.

In the short time that the hydrogen research programs have been in place, we have already advanced our understanding of many hydrogen-related phenomena pertinent to reactor safety questions. We are quite optimistic that the ultimate result of these research efforts will be the resolution of hydrogen-related issues to the satisfaction of the NRC and most other affected parties, including the utilities, the industry, and the general public.

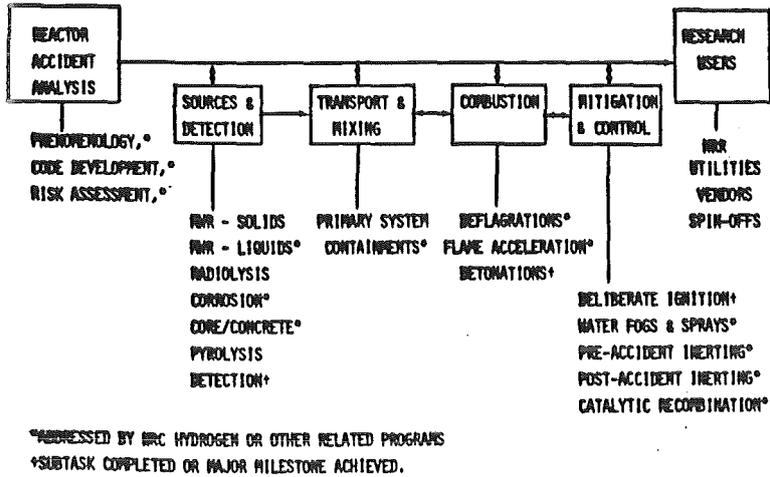


Figure 1. Aspects of the Hydrogen Behavior and Control problem for LWRs.

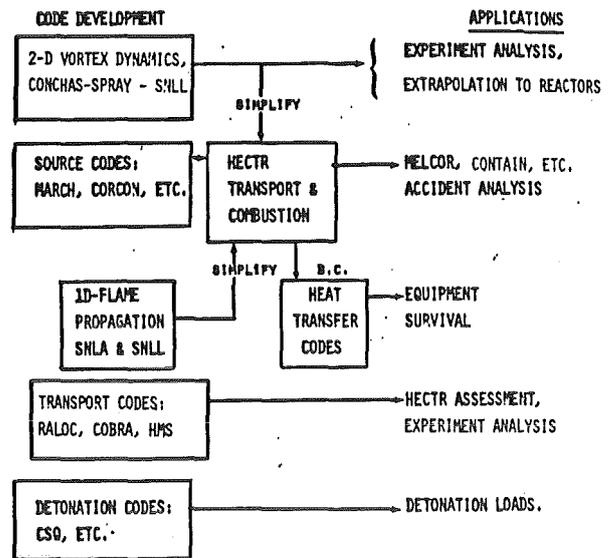


Figure 2. Relationship between the Various Code Development Tasks and their Applications.

HECTR

(HYDROGEN EVENT - CONTAINMENT TRANSIENT RESPONSE)

PURPOSE - CALCULATE TEMPERATURES, PRESSURES, GAS COMPOSITION, AND WALL TEMPERATURES AS A FUNCTION OF TIME IN MULTICOMPARTMENT REACTOR CONTAINMENTS.

EFFECTS INCLUDED IN HECTR

- FLAME INITIATION AND PROPAGATION
- GAS FLOW BETWEEN COMPARTMENTS
- RADIATIVE HEAT TRANSFER
- CONVECTIVE HEAT TRANSFER
- WALL CONDENSATION
- WALL HEAT CONDUCTION
- CONTAINMENT SPRAYS
- INTERCOMPARTMENT FANS
- ICE CONDENSERS

Figure 4. List of the Features Included in the Present Version of HECTR.

Figure 3. The HECTR Computer Code.

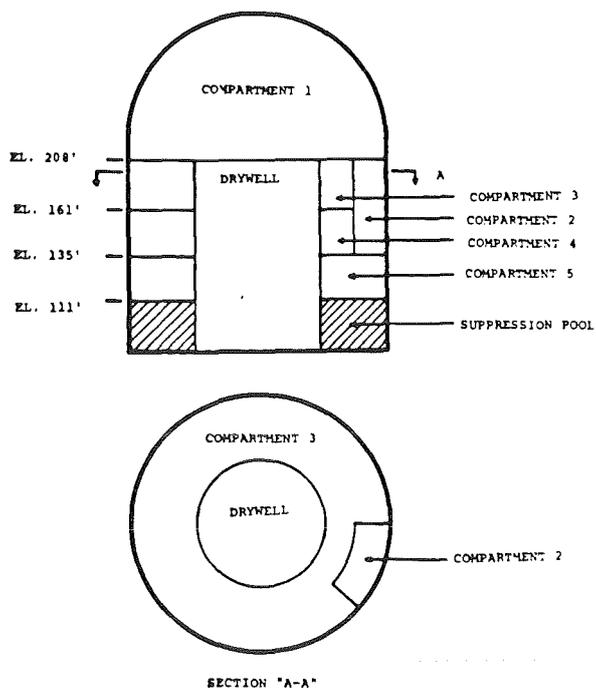


Figure 5. Five-Compartment Model of Grand Gulf used for some of the HECTR Calculations.

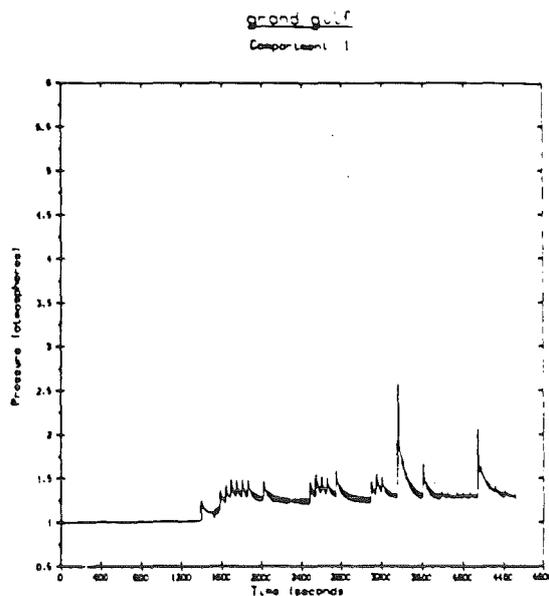


Figure 6. HECTR Calculation of Pressure in Grand Gulf (5-Compartment Model) for One Accident Scenario.

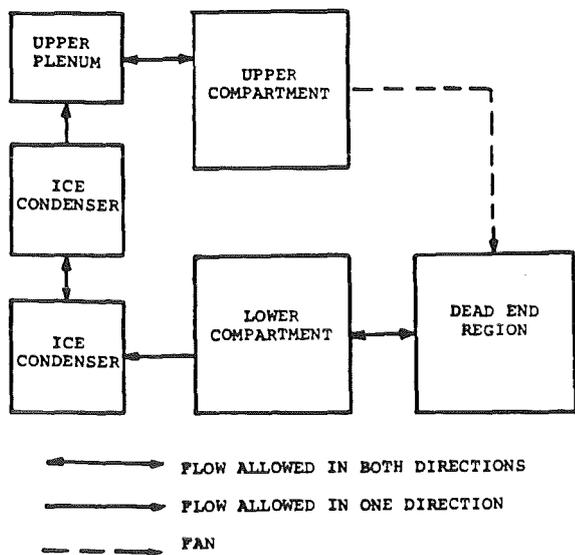


Figure 7. Six-Compartment Model of an Ice-Condenser Plant Used for HECTR Calculations.

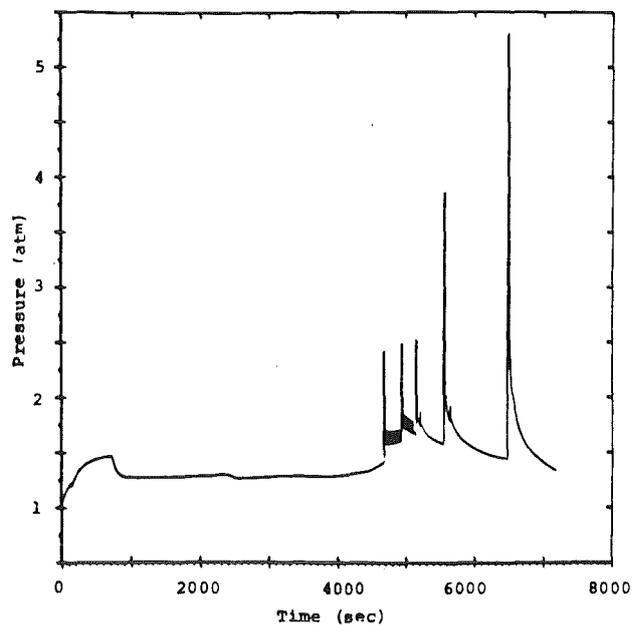


Figure 8. HECTR Calculation of Pressure in an Ice-Condenser Plant (6-Compartment Model).

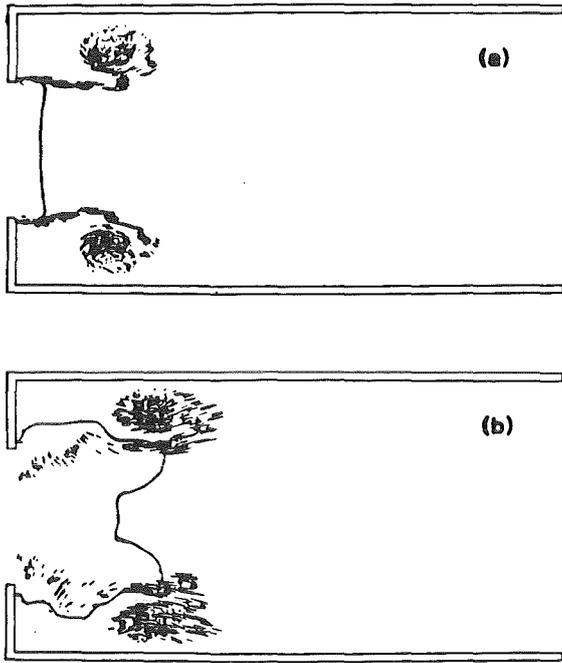


Figure 9. Vortex-Dynamics Calculation of Flame Propagation from a 2-D Orifice Slot.

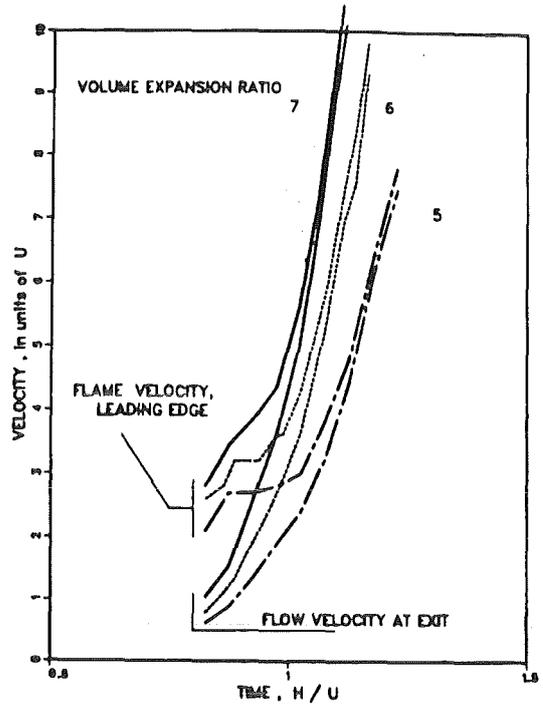


Figure 10. Vortex-Dynamics Calculation of Flame Acceleration due to an Orifice in a Channel.

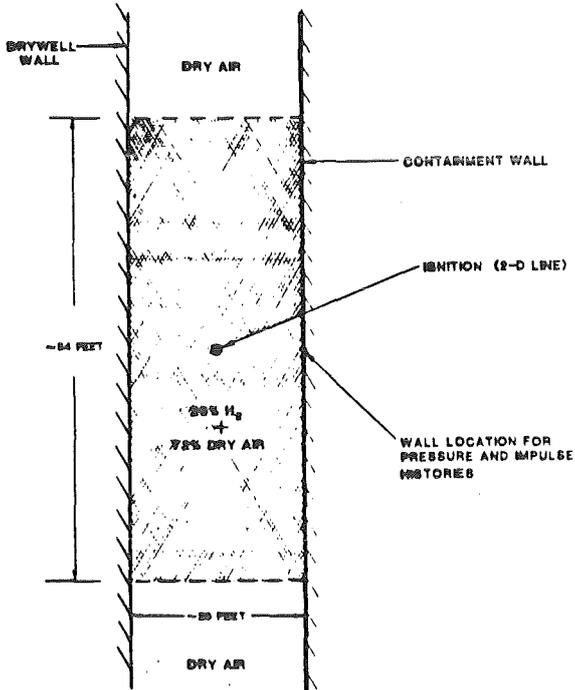


Figure 11. Grand Gulf Wetwell Geometry (2-D) Used for CSQ Detonation Calculation.

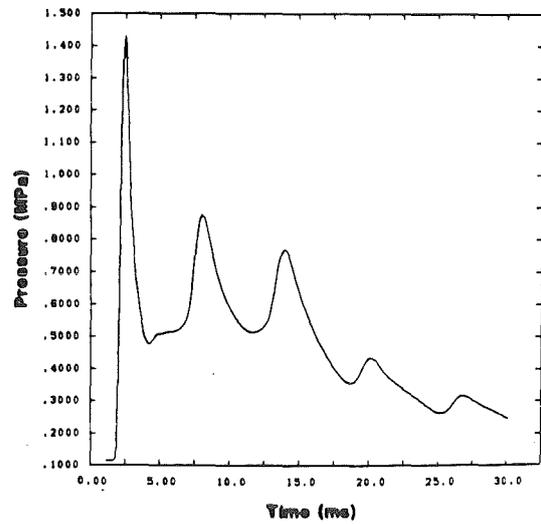


Figure 12. Pressure History Calculated by CSQ Using Geometry Shown in Fig. 11.

OPERATIONAL:

- LABORATORY-SCALE (FOG & FOAM)
- VGES 16-FT TANK
- MCGILL TESTS
- FITS TANK
- STEAM:HYDROGEN JET
- VGES PLASTIC BAG DETONATIONS

OPERATIONAL IN FY83:

- VGES ACCELERATED FLAME FACILITY, "FLAME"
- VGES 18" STEAM:HYDROGEN DETONATION TUBE

PLANNED ACCORDING TO NEED:

- CHARGED DROPLET APPARATUS
- VERY LARGE SCALE TRENCH (MAY NOT BE NEEDED IF EPRI/NTS 52' SPHERE IS ADEQUATE)

Figure 13. Experimental Facilities Available for the Hydrogen Research Effort.

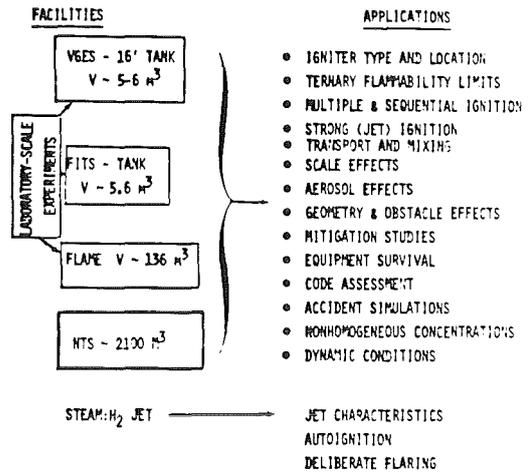


Figure 14. Experimental Facilities for Deflagration Tests.

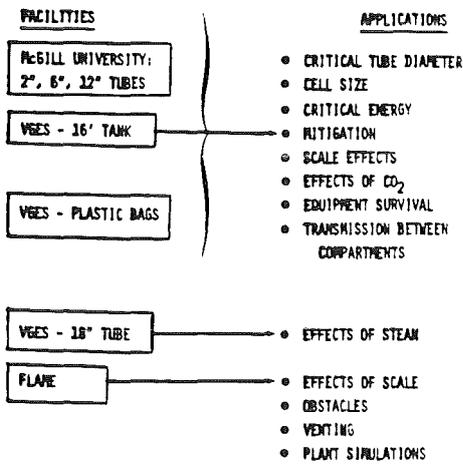


Figure 15. Experimental Facilities for Detonation Tests.

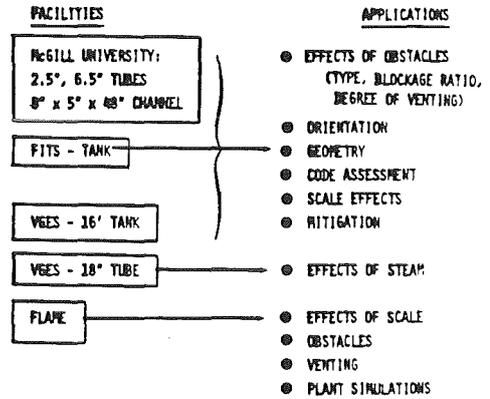


Figure 16. Experimental Facilities for Flame-Acceleration Tests.

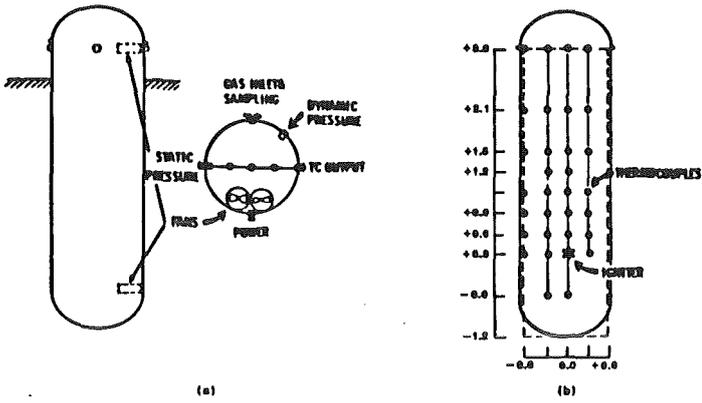


Figure 17. VGES Burn Tank: (a) Layout, (b) Thermocouple Instrumentation.

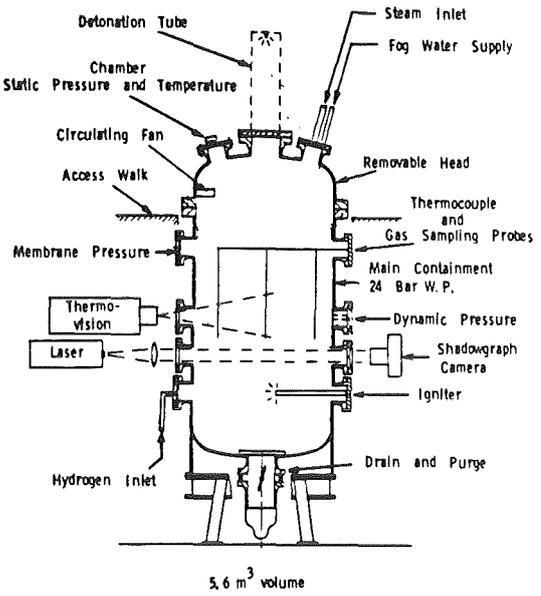


Figure 18. FITS Burn Tank (Modified for Heating to ~100°C).

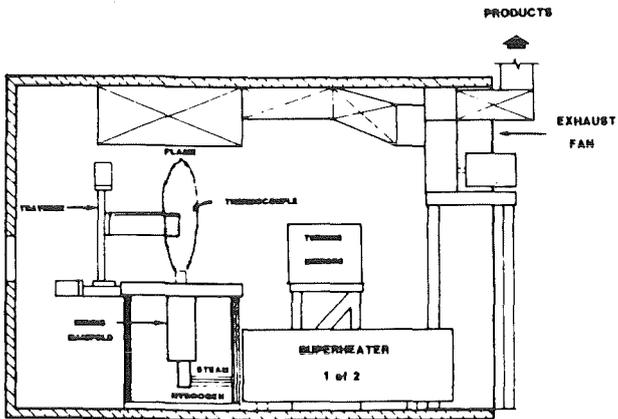


Figure 19. Steam:Hydrogen Jet Facility.

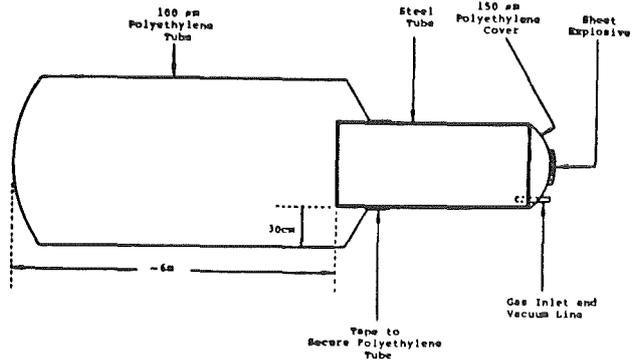


Figure 20. Critical-Tube-Diameter Test Facility.

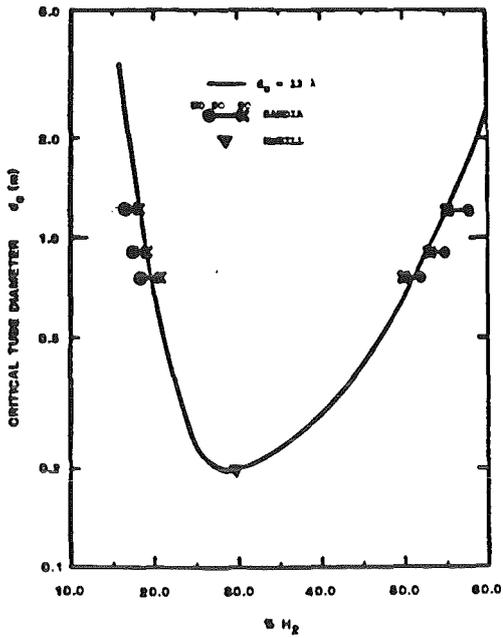


Figure 21. Critical-Tube-Diameter Measurements at Sandia and McGill Compared to the 13λ Correlation.

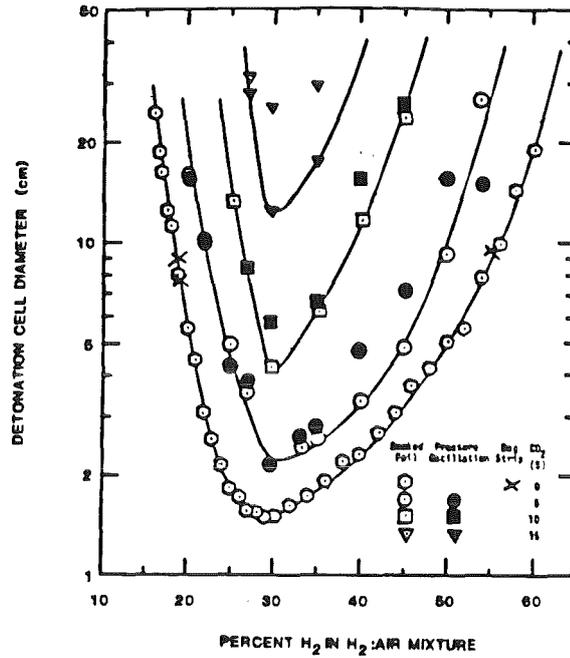


Figure 22. Detonation Cell Diameter Measurements for Various H₂:air:CO₂ Mixtures.

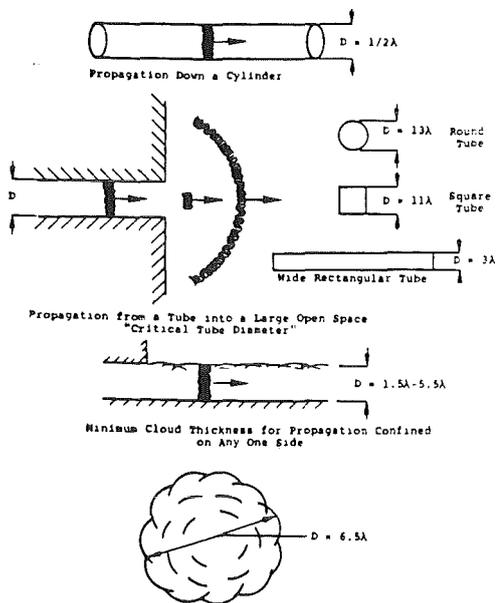


Figure 23. Minimum Dimensions for Propagation of Detonations.

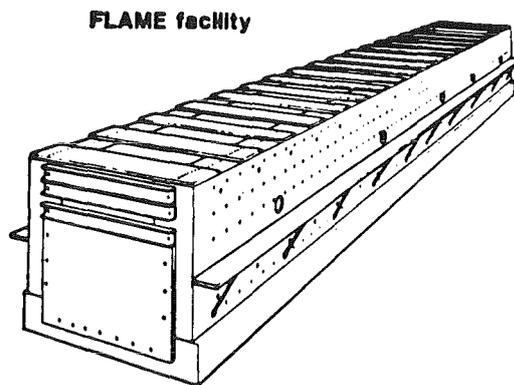


Figure 24. Artist's Drawing of the FLAME Facility (Channel width 6', height 8', length 100').

- HYDROGEN BEHAVIOR (A-1246)
- HYDROGEN COMBUSTION MITIGATIVE AND PREVENTIVE SCHEMES (A-1336)
- HYDROGEN BURN SURVIVAL (A-1270, A-1306)
- COMBUSTIBLE GAS IN CONTAINMENT (A-1255)
- REVIEW OF THE GRAND GULF HYDROGEN IGNITER SYSTEM II (A-1301)

- MOLTEN CORE-CONCRETE INTERACTIONS (A-1019)
- CORE MELT TECHNOLOGY (A-1218)
- MOLTEN CORE-COOLANT INTERACTIONS (A-1030)
- CODE ASSESSMENT AND APPLICATIONS (A-1205)
- SAFETY MARGINS FOR CONTAINMENT (A-1219)
- CONTAINMENT ANALYSIS (A-1198)
- MELCOR (A-1339)
- SASA (A-1258)

- EPRI
- IDCOR
- HCOG

- FOREIGN RESEARCH PROGRAMS AND STUDIES

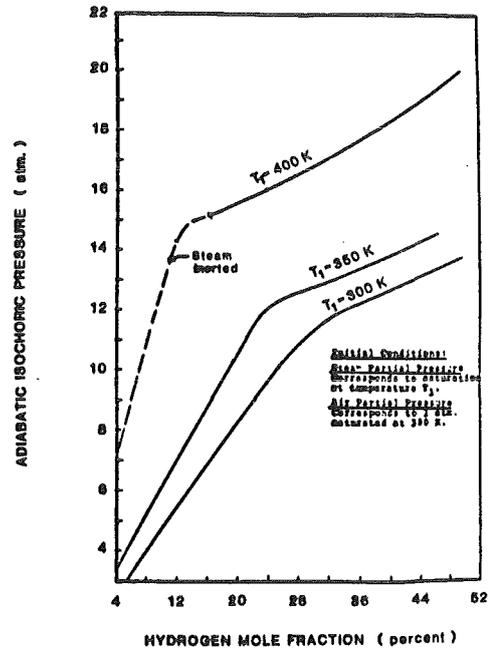
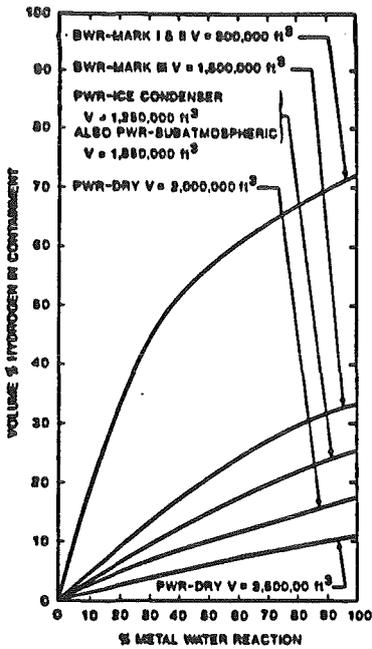
Figure 25. Hydrogen Research Programs at Present.

HYDROGEN COMBUSTION

STATEMENT OF CONCERNS

HYDROGEN COMBUSTION THREAT

- QUASI-STATIC OVERPRESSURIZATION OF CONTAINMENT BUILDING
- DYNAMIC OVERPRESSURIZATION OF LOCAL AREA ON CONTAINMENT WALL
- FAILURE OF INTERNAL SAFETY/CONTROL EQUIPMENT DUE TO OVERPRESSURIZATION OR EXCESSIVE HEATING
- GENERATION OF MISSILES DUE TO LOCAL DETONATION OR ACCELERATED FLAME
 - LOCAL BREACH OF CONTAINMENT WALL
 - DESTRUCTION OF SAFETY/CONTROL EQUIPMENT



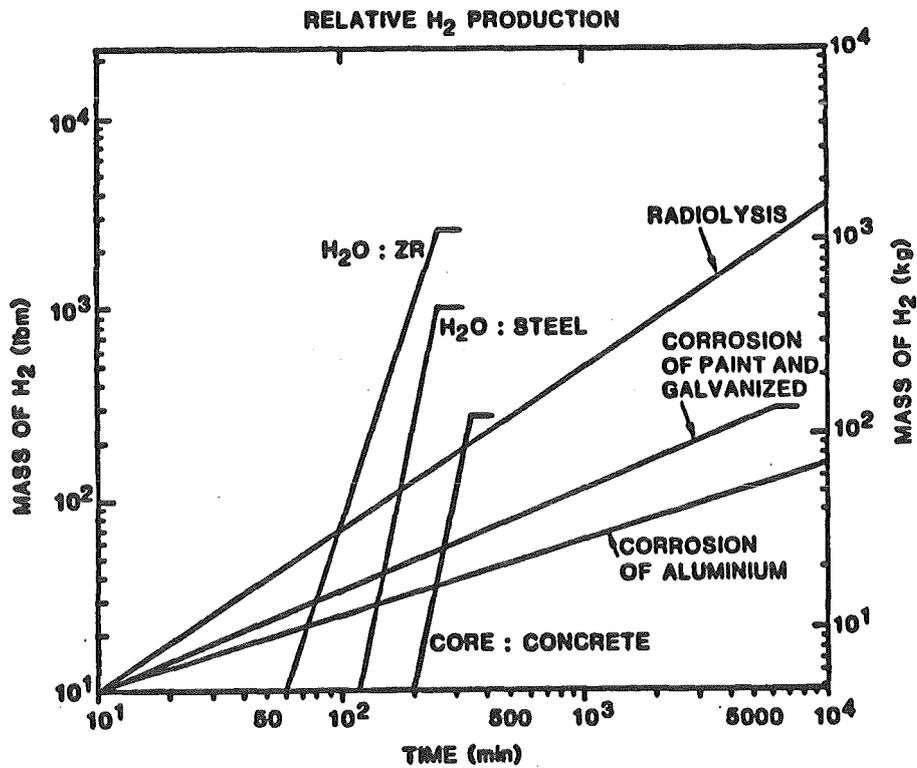
HYDROGEN GENERATION

RAPID SOURCES OF HYDROGEN

- ZIRCONIUM-STEAM REACTION
- STEEL-STEAM REACTION
- MOLTEN CORE-CONCRETE INTERACTION

SLOW SOURCES OF HYDROGEN

- RADIOLYSIS OF WATER
- CORROSION OF ZINC-BASED PAINT AND GALVANIZED STEEL
- CORROSION OF ALUMINIUM



HYDROGEN TRANSPORT

MIXING OF HYDROGEN IN CONTAINMENT

THE TIME REQUIRED FOR MIXING CAN VARY GREATLY DEPENDING ON THE MIXING MECHANISMS PRESENT.

THE MIXING MECHANISMS THAT MAY BE PRESENT ARE

- A) DIFFUSION
- B) NATURAL CONVECTION
- C) FORCED CONVECTION DUE TO FANS, SPRAYS, ETC.

MIXING AND COMBUSTION

1. PREMIXED DEFLAGRATION OR DETONATION

MIXING IS RAPID ENOUGH TO GIVE NEAR HOMOGENEOUS ATMOSPHERE.

2. TURBULENT H₂-AIR-STEAM DIFFUSION FLAME

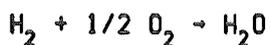
H₂-STEAM JET BURNS ON LEAVING REACTOR COOLANT SYSTEM.

3. STRATIFIED DEFLAGRATION OR DETONATION

THE INTERMEDIATE CASE. SOME MIXING HAS OCCURRED, BUT THE ATMOSPHERE IS NOT UNIFORM IN COMPOSITION.

HYDROGEN COMBUSTION

OVERALL HYDROGEN COMBUSTION



<u>AMOUNT OF HYDROGEN</u>	<u>HEAT RELEASE</u>
KG MOLE	57,798 KCAL
	2.4194 X 10 ⁸ J
LB MOLE	104,036 Btu

COMBUSTION PHENOMENA

DEFLAGRATIONS (USUAL FORM, SUBSONIC)
LAMINAR
TURBULENT

ACCELERATED FLAMES

DETONATIONS (SUPERSONIC)
DYNAMIC AND STATIC LOADS

COMBUSTION OF VERY LEAN HYDROGEN MIXTURES (BELOW THE DOWNWARD PROPAGATION LIMIT)

FOR QUIESCENT ATMOSPHERE,
BURN IS IN "BALLS OF FIRE."
HYDROGEN DIFFUSES INTO BALLS,
GIVING LOCALLY RICHER MIXTURES.

A GREAT DEAL OF HYDROGEN CAN REMAIN
UNBURNED.

IF THIS IS SO, THE PRESSURE RISE
WILL BE LOW.
THIS IS DESIRABLE FOR SAFETY.
WE WOULD LIKE
REPEATED INCOMPLETE BURNS.

FRACTION OF HYDROGEN BURNED IS INCREASED IF:

IGNITION IS NEAR BOTTOM OF CHAMBER.
IGNITION SOURCE IS MAINTAINED ACTIVE.
GEOMETRY IS FAVORABLE FOR
A MORE COMPLETE BURN.
LONG VERTICAL CYLINDER, FOR EXAMPLE.
MOST IMPORTANT, TURBULENCE AND FLUID
MOTIONS ARE PRESENT.

HYDROGEN MITIGATION

PROPOSED HYDROGEN CONTROL MEASURES

PREINERTING (N₂)

POSTINERTING (N₂, CO₂, HALON)

POST-ACCIDENT OXYGEN DEPLETION (FLAMES,
BURNS, TURBINES)

DELIBERATE IGNITION (SPARKS, HOT SURFACES,
TORCHES)

DELIBERATE IGNITION PLUS PRESSURE SUPPRESSION
(FOGS, FOAMS, CO₂)

PARTIAL PREINERTING PLUS DELIBERATE IGNITION
OR POST-ACCIDENT INERTING

CATALYTIC RECOMBINERS/BURNERS

SANDIA HYDROGEN PROGRAM

ANALYSES

- ACCIDENT SCENARIOS, SOURCE TERMS
- TRANSPORT, MIXING, CONCENTRATIONS
- DEFLAGRATION, HEAT TRANSFER
- DETONATION, SHOCK FOCUSING
- FLAME ACCELERATION, TRANSITION TO DETONATION

EXPERIMENTS

- LABORATORY SCALE - FOGS, FOAMS
- INTERMEDIATE SCALE -
H₂ CONCENTRATION, IGNITERS, GAS MOTION,
STEAM, CO₂, N₂, HALONS, OBSTACLES
- STEAM:H₂ JET - AUTOIGNITION,
FLAME STABILITY, FLAMEHOLDERS,
DELIBERATE FLARING
- LARGE SCALE - FLAME ACCELERATION FACILITY,
EQUIPMENT SURVIVABILITY
- MCGILL UNIVERSITY

EPRI RESEARCH ON HYDROGEN COMBUSTION AND CONTROL

L. Thompson
Electric Power Research Institute
Nuclear Safety Analysis Center
3412 Hillview Avenue
Palo Alto, California 94303

ABSTRACT

EPRI is conducting a program to study hydrogen combustion behavior in the LWR containment building environments that could follow severe postulated nuclear accidents. Flammability limits, deflagrations, combustion control methods, equipment survivability, and hydrogen mixing and distribution in hydrogen, air, steam, and water spray environments have been investigated in several projects. Analytic models and computer codes are also being developed and evaluated for combustion behavior and for hydrogen mixing and distribution processes.

1.0 INTRODUCTION

EPRI's research program on hydrogen control in postulated degraded core accidents began in early 1981 with the development of several small and intermediate-scale experimental facilities. The program focused on studies of premixed combustion in potential accident environments, hydrogen mixing and distribution in a compartmentalized geometry, and on the deliberate ignition approach to hydrogen control. Concerns related to nuclear plant licensing prompted an accelerated schedule, and a substantial data base has now been developed. Program activity is currently geared toward preparation of a very large scale combustion facility for the further evaluation and demonstration of hydrogen control methods.

Results of the small and intermediate-scale work to date are very encouraging and indicate that relatively simple means of hydrogen control may be adequate. A brief overview of the program and some results are presented in this paper.

As the generic work enters a new phase, participation has broadened with international support. The completed experimental work was co-funded by the three U.S. PWR ice condenser utilities (Duke, TVA, and AEP). Several foreign organizations are now participants, including EdF, Kansai Electric Company, Ontario Hydro, Swedish State Power Board, and Taiwan Power Company. The NRC Office of Nuclear Regulatory Research has very recently also become a partner in the large scale test project.

2.0 OUTLINE OF PROGRAM

The generic research program is formed by five experimental and two analytic projects, the experimental facilities involving vessels ranging in size from 0.017 to 2100 m³. The projects are related and consist of the following.

- o Hydrogen combustion studies at the Whiteshell Nuclear Reserach Laboratory, Atomic Energy of Canada, Ltd., in Manitoba (combustion behavior and igniter effectiveness in steam environments, using 0.017-m³ and 6-m³ vessels), continuing.
- o Hydrogen control studies by Acurex Corporation at a test site near Livermore, California (simulated accident conditions and deliberate ignition with dynamic hydrogen injection, water spray, water fog, and equipment survivability in a 18-m³ vessel), completed.
- o Hydrogen mixing and distribution studies at the Hanford Engineering Development Laboratory (HEDL) in Richland, Washington (hydrogen-steam injection into a compartmentalized 850-m³ vessel; study of mixing behavior), continuing.
- o Large-scale demonstration at DOE's Nevada Test Site (simulation of accident environments in a 2100-m³ vessel; study of hydrogen control systems and equipment survivability), continuing.
- o Effects of water fog on lower flammability limits at Factory Mutual Research Corporation in Norwood, Massachusetts (bench-scale study of fog effects on flammability limits), completed.
- o Modeling of hydrogen combustion at Factory Mutual, continuing.
- o Calculation of hydrogen distributions at Battelle, Pacific Northwest Laboratory in Richland, Washington, completed.

Figure 1 shows the volume and design pressure characteristics of several of the larger test vessels and provides a comparison with the characteristics of reactor containments.

The nature and extent of each experimental study is indicated in the matrix of Table I. Flammability and ignition limits were determined in the smallest vessels as a function of steam, turbulence, water spray and water fog. Premixed combustion has been studied in three vessels of distinctly different volume. The most complete work was performed in a sphere of 6 m³ volume, complemented by experiments in a larger cylinder and in bench scale. Hydrogen and steam concentrations were varied over a wide range (to 40 and 55 volume percent respectively), and igniter location, temperature, and fan turbulence were parameters. Tests in the largest volume included water fogs, using a fog nozzle evaluated in a bench scale project. Some studies of compartmentalization effects and concentration gradients on hydrogen combustion were included using a pipe-sphere configuration.

Simulations of degraded core accident situations were undertaken in addition to ignition-limit and premixed combustion studies. Gas mixtures were injected into a large volume to study mixing and distribution, and into an intermediate

size volume in order to study combustion and the deliberate ignition concept. Flows in the mixing tests were scaled by the Froude Number for a small-break degraded core accident. The same flows were scaled by volume ratio for the combustion tests. Results of these experiments and the premixed combustion tests have helped form the basis and rationale for selection of a test matrix for the large scale demonstration tests in Nevada.

3.0 PROGRESS AND RECENT RESULTS

Figure 2 summarizes the maximum combustion overpressure observed in tests using a 2.3 meter diameter sphere. The observed pressures for dry mixtures are about 10% lower than the adiabatic combustion pressures for 100°C. The presence of only 20 volume percent water vapor further reduces the peak pressure at stoichiometry by almost 20%, and 30 volume percent water vapor causes a 30% reduction. The highest flame speeds were on the order of 100 m/sec, far below the condition required for a deflagration to detonation transition.

Other experiments in the sphere have examined completeness of combustion for lean hydrogen/air/steam mixtures, the qualitative effects of gratings and fan turbulence, and combustion in a pipe/sphere geometry. During the latter tests large acoustic pressure oscillations were found in the 6 m long, 0.3 m-diameter pipe for dry hydrogen mixtures of more than 20 volume percent. Oscillations were small in the open sphere, and flame speeds quickly decelerated on approaching the pipe end.

Bench scale tests have been conducted to determine ignition limits in steam and flammability limits in water fog. Thermal igniters of the types proposed by some utilities for use in deliberate ignition systems have been employed in order to carefully map ignition limits as a function of steam concentration. Both the General Motors AC-7G diesel engine glow plug, requiring 12 to 14 volts for operation, and a newer hot surface device operable on 110-120 volts was tested. Even with 30 volume percent steam a static mixture of less than 8 volume percent hydrogen will ignite, and the limit is under 6 volume percent hydrogen with fan-turbulence. Glow plug surface temperatures at ignition increased with steam concentration but were always less than 850°C (1560°F) even with 50% steam. Furthermore experiments with fog showed that even a dense fog of small droplets has little effect on flammability.

Larger scale premixed combustion experiments were performed to assess the capability of water fog for mitigating pressures and temperatures. Tests with about 7.5 and 10 volume percent hydrogen in air produced about the same combustion overpressure with or without microfog spray. Spray of about 5 l/min (1.1-1.4 gpm) from 9 nozzles in a cylindrical tank of cross sectional area 3.5 m² (38 ft²) was used. The number-mean diameter drop size was estimated at 10 microns. It appears that the density of droplets fine enough to vaporize and absorb energy during the combustion period (about one second) was too low to have an appreciable effect. In the lean mixture tests with about 7.5 v% hydrogen the fog spray may have increased turbulence, enhancing burn completeness. In all cases ignition took place approximately 20 seconds after the igniter was turned on.

Hydrogen control by deliberate ignition has been studied in several degraded core accident simulations in intermediate scale. Most of the experiments feature continuous injection of a hydrogen-steam source into an 18-m³ cylinder

containing a preenergized glow plug. The vessel was fitted with the standard containment spray nozzle used in many LWRs, as well as with several microfog nozzles, three standard glow plug igniters, a nozzle for premixed hydrogen-steam injection, and a series of 35 flame front detectors.

The dynamic injection tests were intended to simulate the amount of hydrogen released to containment following a small-break degraded core accident. Several parameters were varied in these tests, including the amount of hydrogen and steam flow; the ignition location; presence of water spray, water fog, and fans; and microfog drop size. Pressures are generally lower when steam is injected with the hydrogen and are much lower when water sprays are activated prior to the hydrogen injection.

The effects of ignition location on hydrogen combustion behavior in tests with continuous injection of dry hydrogen can be seen in Figure 3. With the bottom igniter activated hydrogen bypassed the ignition source, building up throughout the volume until a global burn took place at about 450 seconds. The peak overpressure was 293 kPa (28 psi). Use of the central ignition position allowed earlier and frequent intermittent local combustion to take place. The highest single overpressure was only 41 kPa (6 psi). With the top igniter activated, some combustion took place at about 300 seconds as the ignition limit for upward propagation was reached. A volume-average concentration of 4.7 v% hydrogen had been injected up to that time. As hydrogen was further introduced the limit for downward propagation was apparently reached at about 580 seconds and a global burn took place producing an overpressure of 189 kPa (20 psi). Most of the injected hydrogen was consumed in all three cases.

The addition of steam or water spray can have a dramatic mitigating effect on combustion in dynamic hydrogen injection tests. Typical effects can be seen in Figure 4 which shows three cases having an activated central igniter. The top curve is for injection of dry hydrogen, resulting in a number of intermittent local burns which consume most of the hydrogen and produce a maximum pressure of 41 kPa. For the center figure, steam was added to the hydrogen flow in a mass ratio of 60 to 1 (volume ratio of about 7 to 1). The highest combustion overpressure is reduced slightly, however the major effect is to make the combustion somewhat more erratic, taking place over a longer time period. In the lower figure, Test 2.9, both steam and water spray are added. Now the multiple combustion events are much more uniform, and peak combustion overpressures are less than 20 kPa (3 psi).

A series of experiments on equipment survivability has also been completed in this intermediate scale vessel. All items of equipment -- which included a solenoid valve, pressure transmitter, valve operator, limit switch, resistance temperature device, thermocouple, and electrical cable -- operated successfully both during and after exposure to multiple hydrogen burns.

Hydrogen mixing and distribution has been studied in a large 20 m-high, 7.6 m-diameter vessel. The vessel was fitted with a deck, and with provision for some convective flow from the lower to the upper compartment and for forced flow from upper to lower. Hydrogen-steam releases from a small break are simulated, and two nozzle locations were used. Figure 5 shows the vessel configuration. Gas sample, air velocity, and temperature measurement locations are concentrated in the annular lower compartment at locations indicated by the 'star' symbol in the figure.

Four preliminary tests were performed in order to determine the separate and combined effects of natural and forced convection air recirculation. Seven matrix tests were performed with a 10 minute injection of a scaled hydrogen/-steam or helium/steam jet, followed by about one hour of continued measurements. Concentrations were monitored continuously.

Figure 6 shows concentration measurements for the case of a vertical helium/-steam release corresponding to 550 kg/min (1200 lb/min) steam and 9 kg/min (20 lb/min) hydrogen in a small break degraded core accident. The maximum concentration difference observed at any time during the test was about 2.5 volume percent, occurring during the release period. The largest difference decayed to less than 1 volume percent soon after the release ended. In other experiments with horizontal jet sources concentration differences tended to be less.

Predictions of hydrogen distribution have been made with an existing code. TEMPEST is a general hydrothermal code which solves time-dependent turbulent, momentum, and heat transport in three dimensions. In spite of several limitations the current code logic is able to provide good comparisons with Battelle-Frankfurt data on hydrogen mixing and distribution (Figure 7). The code has also been applied to the EPRI mixing tests in connection with a blind 'standard problem' exercise.

Models are being developed and improved in the case of combustion. For lean mixtures the combustion is incomplete, nonadiabatic, and governed by buoyant flame propagation. For rich mixtures combustion is assumed to be complete, adiabatic, and to involve spherical flame propagation.

Calculations with the complete combustion model are compared to test results with hydrogen volumetric concentrations ranging from 8 - 15.1% and steam concentrations from 0 - 25% in Figure 8. Percentage peak pressure deviation is plotted against burning velocity. The deviation is greater for smaller burning velocities, corresponding to low hydrogen concentration (and/or high steam concentration), because the adiabatic assumption is questionable for these slow-burning gas mixtures. For burning velocities greater than 0.45 m/s (approximately 11% dry hydrogen) the deviation is within 8%.

Difficulties of predicting combustion behavior for lean mixture combustion reflect the importance of heat transfer processes and assumed burning velocities. Figure 9 indicates pressure-time signatures for combustion events at Three Mile Island and in a 2.3 m-diameter sphere. Substantially different pressure-decay (and temperature decay) characteristics occur in part due to differences in surface area-to-volume ratio and in the rates of radiative and convective heat losses to surfaces.

The large-scale hydrogen combustion and control demonstration project at the Nevada Test Site will provide data needed for validating existing computer models. Other objectives of the project are

- o verification of the data base from small-scale testing
- o examination of equipment survivability, and

- o testing of the deliberate ignition hydrogen control approach during simulated degraded core accidents.

The Nevada dewar, once used to store liquid hydrogen, has a diameter of 52 feet, a design pressure of 98 psig (600 kPa), and a 1 m annulus containing high grade perlite insulation. The vessel was pressure tested to 75 psig (520 kPa) for 24 hours in December 1981 as one of the initial steps leading to facility activation. Fluid system additions to the facility include:

- o a heated water spray system (16 standard containment nozzles with 910 l/m (240 gpm) total capacity);
- o a boiler to generate 7,700 kg/hr (17,000 lb/hr) steam at 1030 kPa (150 psi);
- o a steam control and measurement system for steam flows from 2.3 to 135 kg/min (5-300 lb/m);
- o a hydrogen delivery manifold for 0.45, 0.91, 1.8, or 3.2 kg/min (1, 2, 4 or 7 lb/min) of H₂ gas;
- o a hydrogen/steam mixing chamber outside the dewar;
- o two mixing fans in the dewar, each 85 m³/min (3000 cfm); and
- o an air compressor with a 17 m³/min (600 cfm) rating.

Figure 10 provides a schematic of the primary systems. Hydrogen supplied from gas cylinders in a 'tube trailer' will enter the dewar through a nozzle at the bottom and will be released at an interior elevation of about 5 ft (1.5m). Steam is released at the same point. Standard Spraco water spray nozzles will be used as well as an array of flame front detectors and up to 12 igniters. Transducers will measure heat flux, pressures, temperatures, gas concentrations, wall strain, and liquid level. Methods for visualization are being investigated. Facility shakedown is expected in December 1982.

The test matrix includes premixed combustion experiments as well as simulations of hydrogen/steam release during degraded core accidents, and has been based on results of the completed small and intermediate scale tests. The source nozzle geometry will be a variable, and equipment survivability testing will be incorporated while concurrently serving other project objectives.

4.0 SUMMARY AND CONCLUSION

Several small and intermediate-scale experimental projects have been completed which have increased confidence that simple hydrogen control systems will be adequate. Deliberate ignition devices have been found effective in various environments of hydrogen, air, steam, water spray, and water fog. The maximum pressures observed in intermediate scale tests of the deliberate ignition concept were less than 2 atmospheres. Hydrogen mixing in a small-break accident simulation was rapid and nearly uniform, and no tendency toward detonation was observed in combustion tests covering a wide range of conditions. Electrical equipment operated successfully during and after multiple combustion events.

Codes for prediction of combustion and mixing behavior require improvements. Data to help benchmark codes and to validate current experience will soon be obtained in a very large scale combustion and control demonstration facility.

Table I
EPRI Hydrogen Combustion and Control Program
Test Parameters

Parameter	Facility					
	FMRC (Fog)	Whiteshell (Combustion)	Acurex (Control)	HEDL (Mixing)	Nevada (Demon.)	
Volume (m ³)	0.018	0.017	6	18	850	2100
Shape	Cyl.	'Sph.'	Sph./Pipe	Cyl.	Cyl.	Sph.
Igniter	Spark, GP ⁽¹⁾	GP	Spark	GP	-	GP
Ignition Limit	X	X	-	-	-	-
Premixed H ₂ /Steam	-	X	X	X	-	X
H ₂ /St. Flow	-	-	-	X	X	X
Water Spray	X	-	-	X	-	X
Water Fog	X	-	-	X	-	-
Initial T	X	-	X	X	X	X
Igniter Loc.	-	-	X	X	-	X
Multiple Ign.	-	-	-	-	-	X
Fan	-	X	X	X	X	X
Compartments	-	-	X	-	X	X
Mixing & Distrib.	-	-	-	-	X	X
Equip. Surviv.	-	-	-	X	-	X

(1) Glow Plug

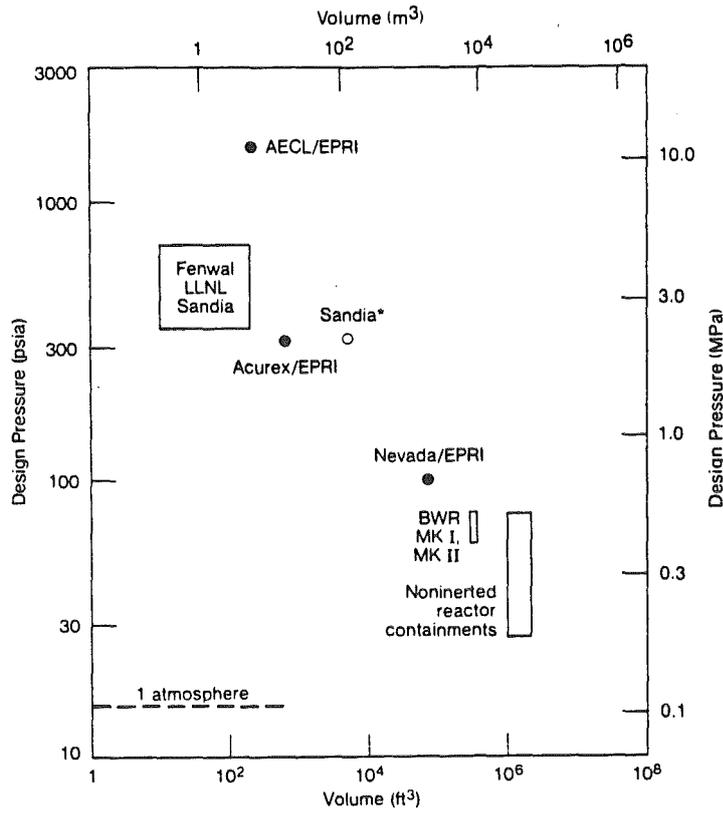


Figure 1--Volume and design pressure characteristics of hydrogen combustion test vessels and containments.

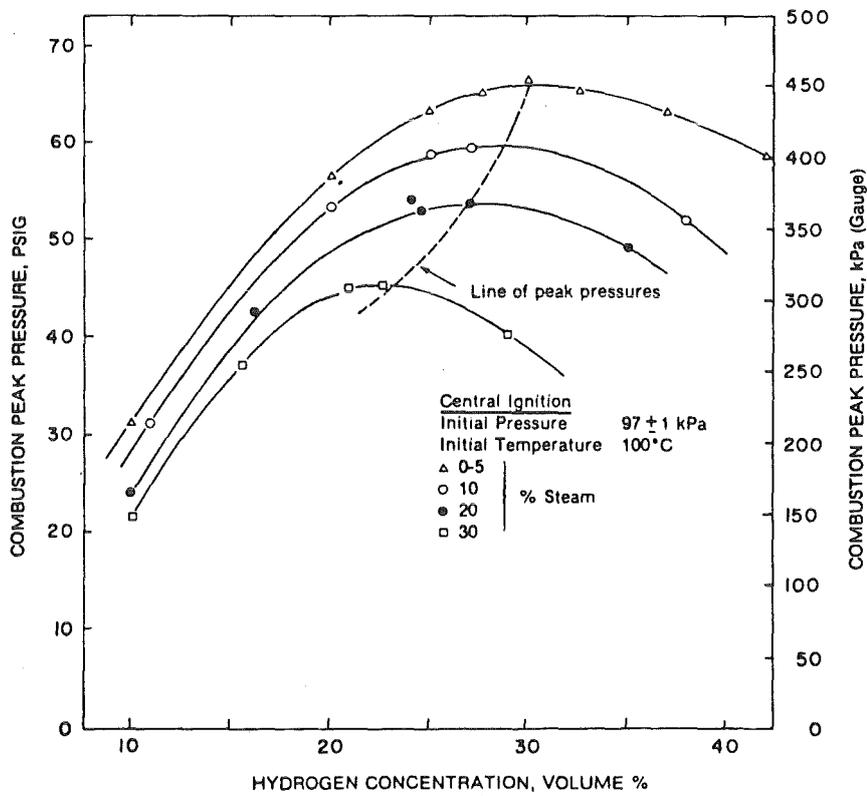


Figure 2--Maximum combustion overpressure as a function of hydrogen and steam concentration in a 2.3 m-diameter sphere.

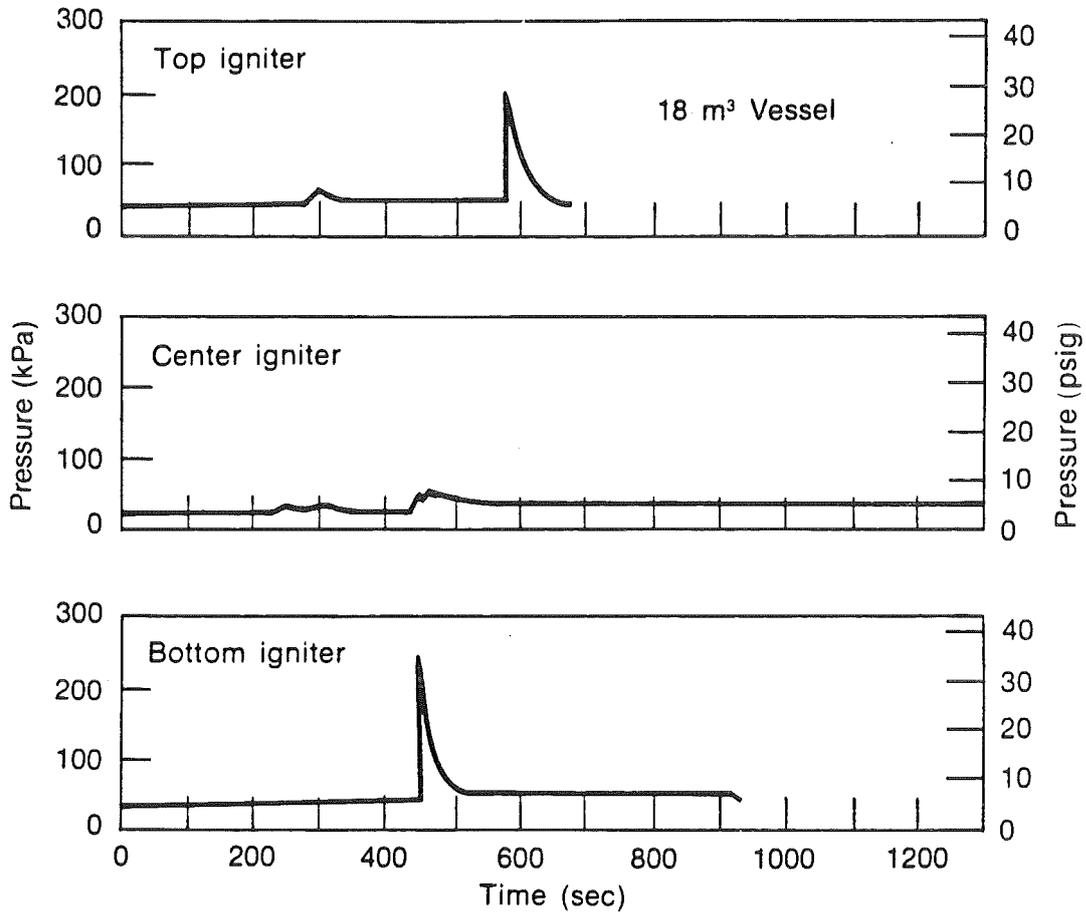


Figure 3--Effect of igniter location on pressure during injection of hydrogen into an 18 m³ cylindrical vessel.

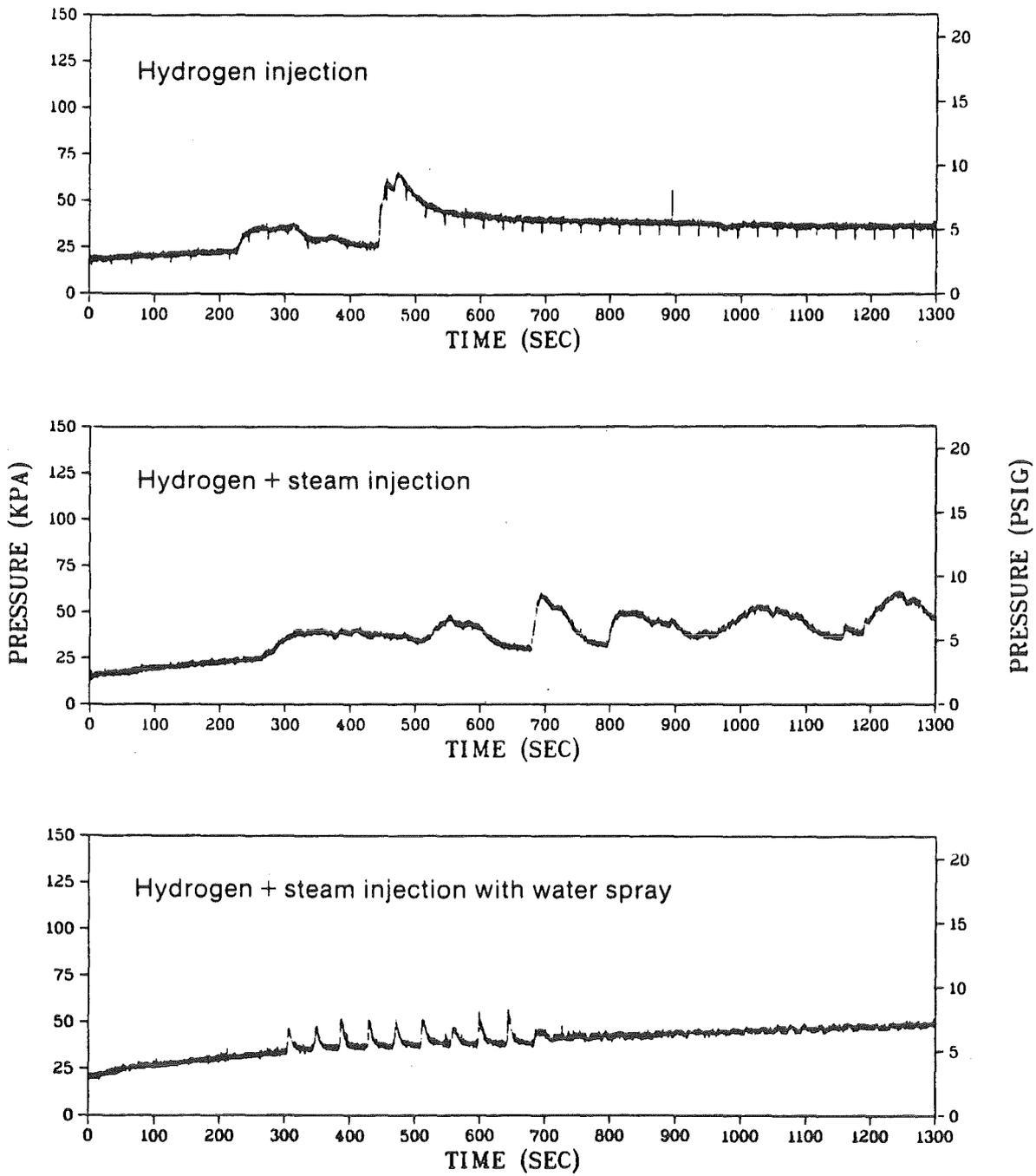


Figure 4--Effect of steam injection and water spray on pressure during continuous injection of hydrogen into a cylindrical 18 m³ vessel.

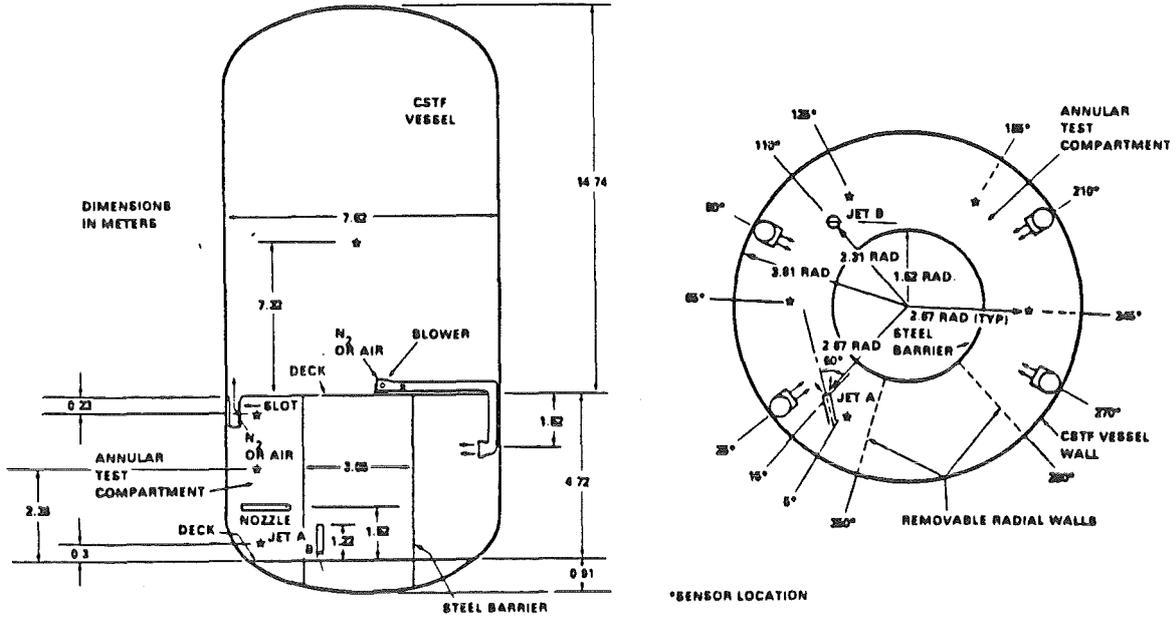


Figure 5--Schematic of 850 m³ vessel used in hydrogen and helium mixing and distribution tests.

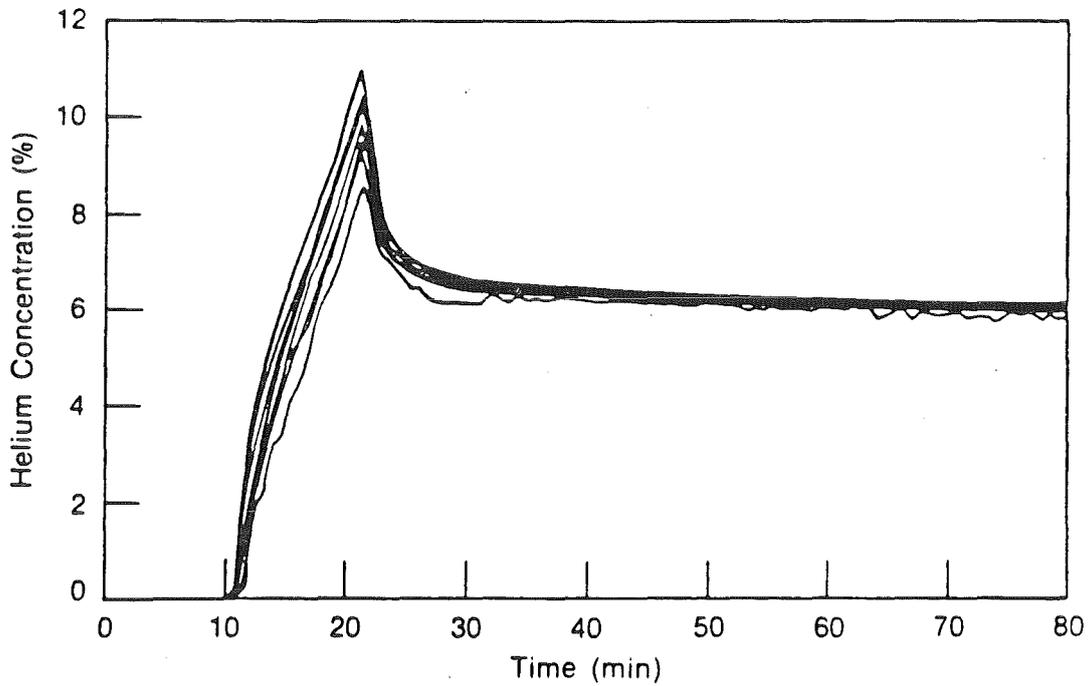


Figure 6--Gas concentrations at several locations during and following injection of a vertical helium/steam jet into the lower compartment of a 850 m³ vessel.

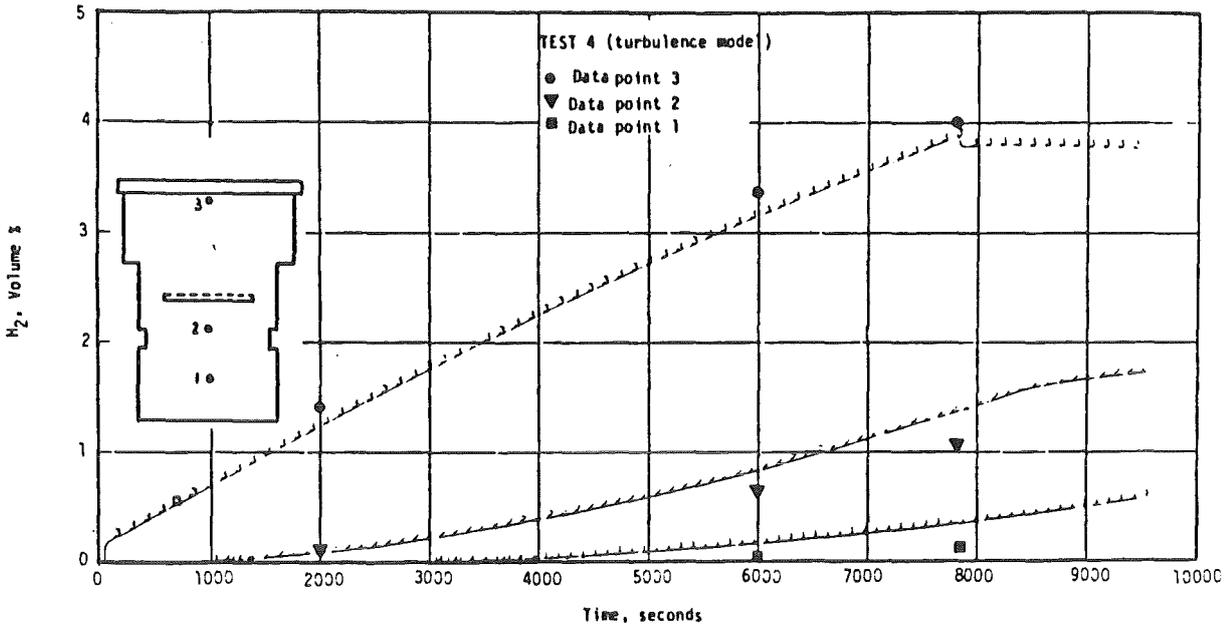


Figure 7--Computer code prediction of Battelle-Frankfurt hydrogen mixing data for an 8000-second experiment.

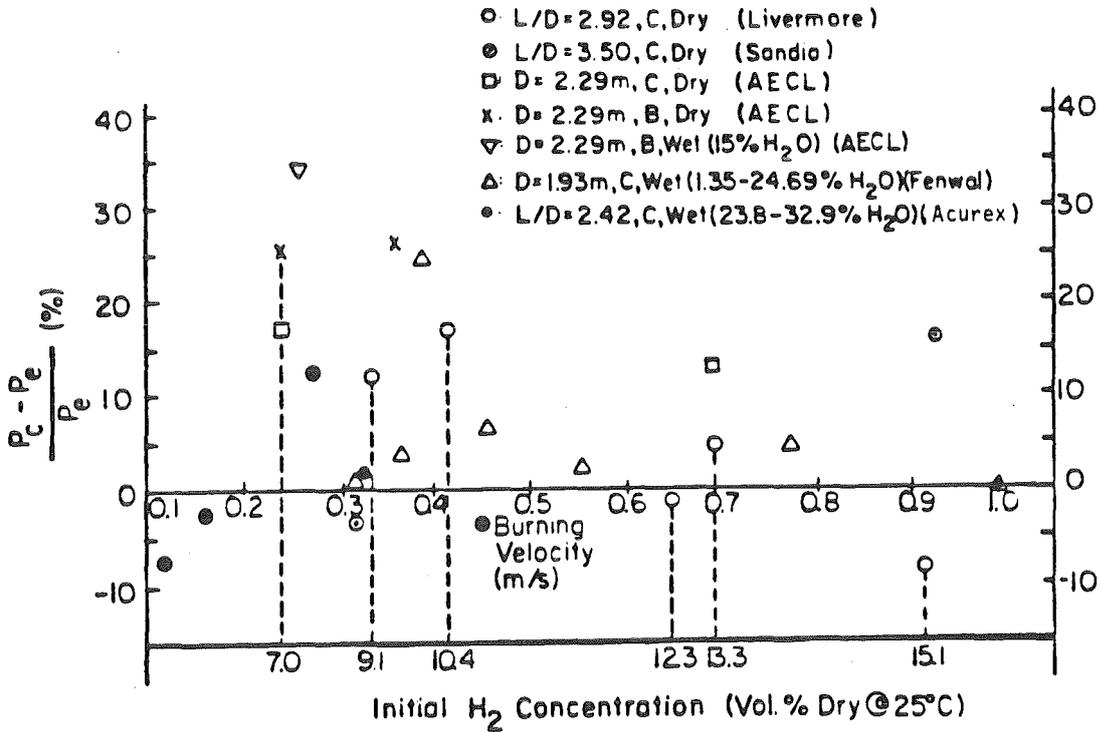


Figure 8--Comparison of calculated and actual pressures during complete combustion tests at several facilities.

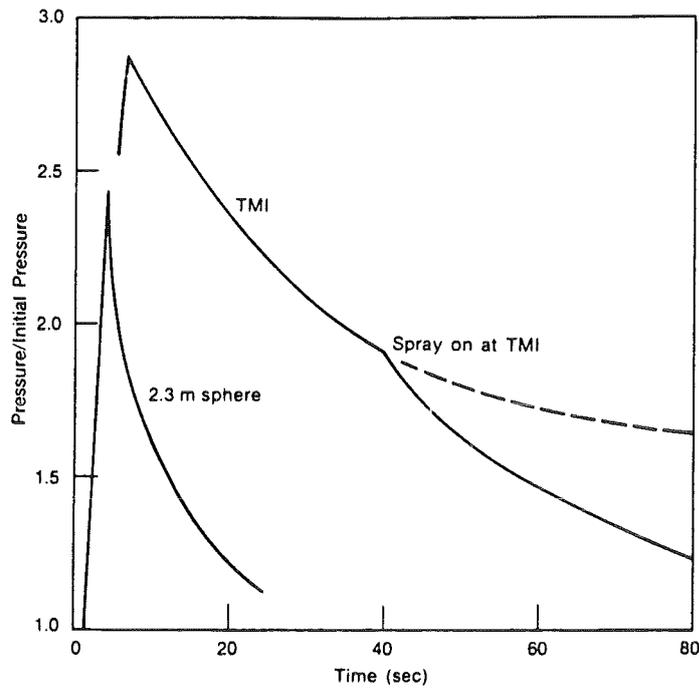


Figure 9--Pressure decay at Three Mile Island and (typical) rate for 2.3 m-diameter sphere.

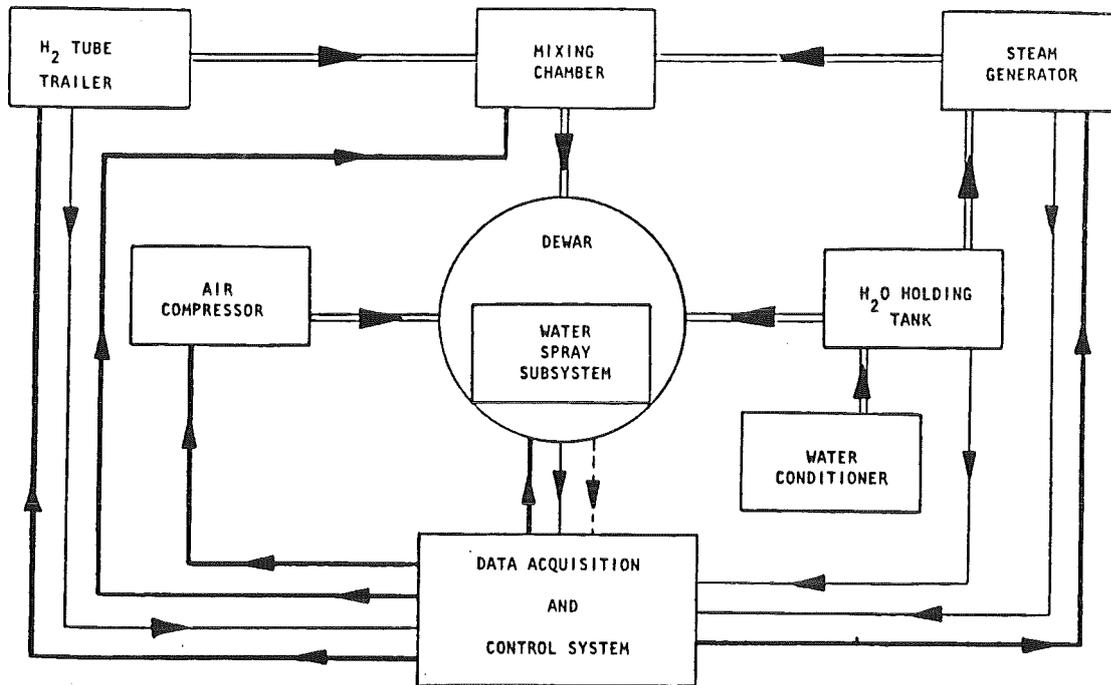


Figure 10--Schematic of principal systems at Nevada Hydrogen Test Facility.

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT
JAHRESKOLLOQUIUM 1982

BEWERTUNG VON RISSEN IN KOMPONENTEN
VON KERNKRAFTWERKEN

D. MUNZ

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
INSTITUT FÜR REAKTORBAUELEMENTE

Assessment of cracks in components of nuclear power plants

D. Munz, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für
Reaktorbauelemente

Cracks in welded components of nuclear power plants cannot be excluded. With the method of fracture mechanics an assessment of postulated cracks or of nondestructive evaluated cracks is possible. Crack growth rate during subcritical crack growth and critical crack size for unstable crack extension can be calculated from the pressure and temperature changes during transients using relevant loading parameters such as the stress intensity factor and material properties. After a description of the general procedure for crack assessment two special problems are treated more in detail, the thermal shock loading and the leak-before-break criterion. Problems for growth of surface cracks under thermal shock are high stress gradients, plastic deformation at the shocked surface and temperature dependence of the material properties. A recently developed method for predicting growth rate and change of the shape of surface cracks under repeated thermal shock loading is mentioned briefly. The main problem for the application of the leak-before-break criterion is again the prediction of the change in shape of the cracks, evaluation of critical crack sizes for local instability and for global instability and leakage areas and leak rates.

1. Einleitung

Komponenten von Kernkraftwerken müssen so ausgelegt werden, daß innerhalb der vorgesehenen Betriebszeit auch bei den größten auftretenden Belastungen kein Versagen auftreten kann. Dies gilt insbesondere für alle sicherheitsrelevanten Bauteile, vor allem für diejenigen des Primärkreislaufs. Dabei muß berücksichtigt werden, daß sich die Werkstoffeigenschaften während des Betriebs verändern können, als Folge der Bestrahlung oder von Gefügeveränderungen, die besonders bei Hochtemperaturbeanspruchung zu erwarten sind.

Da Reaktordruckbehälter, Rohrleitungen, Sicherheitshülle und andere Komponenten aus Einzelteilen geschweißt werden, muß grundsätzlich mit dem Vorhandensein von Schweißrissen gerechnet werden. Darüber hinaus können Ermüdungsrisse als Folge der wechselnden Betriebsbelastungen an hochbeanspruchten Komponenten entstehen, z.B. am Einlaßstutzen des Druckbehälters. Diese Risse können während des Betriebes wachsen und zum Versagen der Komponenten führen. Aufgabe der Bruchmechanik ist es, die Gesetzmäßigkeiten für das Wachsen der Risse zu finden, aus denen dann Kriterien für die Dimensionierung für die zulässigen Fehlergrößen, für die Inspektionsintervalle und für die Lebensdauer der Komponenten folgen.

Die Bruchmechanik hat sich in den letzten Jahren so weit entwickelt- insbesondere durch Arbeiten in den USA und Großbritannien, aber auch durch Beiträge aus anderen Ländern, wie Frankreich, Japan, Schweden und Deutschland-, daß die Bewertungsmaßstäbe für Risse in Kernkraftwerken vorliegen, nach denen beurteilt werden kann, bis zu welcher Größe ein Riß in einer Komponente zulässig ist. Deshalb ist es heute möglich, Risse, die mit den Methoden der zerstörungsfreien Werkstoffprüfung festgestellt werden, gefahrlos in den Komponenten zu belassen, sofern sie klein genug sind. So haben sich z.B. die zuständigen Behörden in Frankreich entschlossen, die an verschiedenen Kernkraftwerken aufgetretenen Unterplattierungsrisse nicht zu

beseitigen, da nach den Berechnungen während der gesamten Betriebszeit nur geringes Rißwachstum auftreten wird.

Die bisherige Vorgehensweise bei der Bewertung von rißbehafteten Bauteilen stützt sich einerseits auf eine Fülle von experimentellen Befunden, andererseits auf theoretische Arbeiten, die zu Modellvorstellungen über das Rißausbreitungsverhalten führten. Je nach Werkstoff- und Belastungsart gibt es dabei quantitativ abgesicherte Berechnungsverfahren oder Näherungsverfahren, die aber so angewandt werden können, daß die Ergebnisse auf der sicheren Seite liegen. Ziel zukünftiger Arbeiten muß es sein

- die bisher bereits im Prinzip vorhandenen Methoden so aufzubereiten, daß sie in der Praxis ohne Schwierigkeiten und mit geringem Rechenaufwand eingesetzt werden können
- die in einigen Bereichen vorliegenden Näherungsverfahren zu verbessern und zu möglichst exakten Verfahren zu entwickeln
- einige prinzipiell noch ungelösten Probleme zumindest in den Zustand einer Näherungslösung überzuführen.

Im folgenden wird die prinzipielle Vorgehensweise der Rißbewertung kurz dargelegt. Dann werden zwei spezielle Probleme, die z. Zt. im Vordergrund des Interesses stehen, etwas ausführlicher behandelt: das Thermoschockproblem und das Leckvor-Bruch-Problem.

2. Generelle Vorgehensweise der Rißbewertung

Ich möchte Ihnen zu Beginn ins Gedächtnis zurückrufen, daß die Bruchmechanik von vereinfachten Modellvorstellungen ausgeht. Ein realer Fehler kann ein kompliziertes dreidimensionales Gebilde sein, ein bruchmechanischer Riß ist dagegen eine abstrahierte Größe, er besitzt eine ebene Geometrie mit scharfem Rand, und er hat die Form einer Ellipse, wenn es ein Innenriß ist und die Form einer Halbellipse, wenn es ein Oberflächenriß ist.

In der Anfangsphase der Rißausbreitung wird ein solcher idealisierter Riß immer schneller wachsen als ein realer Fehler. Hat sich dagegen ein Fehler z.B. durch wechselnde Belastung bereits etwas verlängert, dann kommt er dem Modellriß recht nahe.

Das prinzipielle Verhalten eines Risses ist in Abb. 1 dargestellt. Ein Riß, z.B. ein Schweißriß, habe bei Betriebsbeginn die Tiefe a_i . Im Laufe des Betriebs ist das Bauteil, das diesen Riß enthält, wechselnden Belastungen unterworfen, die durch die Spannungssprünge $\Delta\sigma$ charakterisiert werden. Diese Spannungswechsel führen zu einem stabilen (unterkritischen) Wachsen der Risse. Im Rahmen einer Sicherheitsanalyse müssen neben den Betriebsbelastungen auch nicht vorgesehene Störfallbelastungen betrachtet werden. Die bei einer solchen Störfallbelastung auftretende Maximalspannung σ_{\max} kann zu einem vorzeitigen plötzlichen instabilen Versagen führen, wenn der Riß eine kritische Tiefe a_c erreicht hat. Für eine Ermittlung der Lebensdauer einer Komponente mit Riß müssen daher drei Dinge bekannt sein:

- die Größe, Form und Lage des Ausgangsrisses
- die Gesetzmäßigkeiten des stabilen Rißwachstums (Rißverlängerung Δa pro Lastwechsel als Funktion von $\Delta\sigma$ und von geeigneten Kenngrößen der Werkstoffe)
- der Zusammenhang zwischen der maximal zu erwartenden Spannung σ_{\max} und der kritischen Rißgröße a_c .

Diese Zusammenhänge liefern die Beziehungen der Bruchmechanik. Richtlinien für die Berechnungen sind in Regelwerken festgelegt, z.B.:

- ASME Boiler and Pressure Vessel Code
- Sicherheitstechnische Regel des KTA 3201.2.

Insbesondere der ASME-Code enthält genaue Vorschriften und Gleichungen für die Berechnung zulässiger Rißlängen. Es muß aber darauf hingewiesen werden, daß kein Code angewandt werden sollte, ohne sich zusätzlich Gedanken über die spezielle Problematik zu machen. Einmal hinkt ein Code gegenüber dem aktuellen Stand der Erkenntnisse immer etwas hinterher und zum anderen kann ein Code nur allgemeingültige Richtlinien angeben, nicht aber Antworten auf spezielle Fragestellungen.

Für die Bewertung eines Fehlers stehen als Primärinformation zur Verfügung: Signale der zerstörungsfreien Werkstoffprüfung, Angaben über die Betriebszustände des Kraftwerks und Werkstoffkenngrößen. Die prinzipielle Vorgehensweise der Fehlerbewertung ist in Abb. 2 dargestellt. Zunächst muß ein mit den Methoden der zerstörungsfreien Werkstoffprüfung festgestelltes Fehler-signal in eine Rißgröße überführt und deren Lage, Größe und Form angegeben werden. Dies ist dann der erwähnte idealisierte Ausgangsriß der Bruchmechanik.

Für jeden Betriebswechsel muß für die interessierende Komponente der zeitliche Verlauf des Drucks und der zeitliche und räumliche Verlauf der Temperatur berechnet werden. Im nächsten Schritt sind daraus die Spannungen in Abhängigkeit von Zeit und Ort zu ermitteln. Zusammen mit den eventuell vorhandenen Eigenspannungen ist dann die Beanspruchung des Bauteils bekannt. Die für den Riß relevanten Beanspruchungen sind aber nicht die Spannungen, sondern bruchmechanische Beanspruchungsgrößen, die sich aus dem Verlauf der Spannungen und der Größe und Form des Risses ergeben. Die wichtigste und bekannteste dieser bruchmechanischen Beanspruchungsgrößen ist der Spannungsintensitätsfaktor K .

Um die Reaktion des Werkstoffes auf diese Beanspruchung zu bekommen, müssen geeignete Werkstoffkenngrößen bekannt sein. Diese werden beeinflusst durch die Bestrahlung und durch das umgebende Medium. Aus bruchmechanischer Beanspruchungsgröße und den Werkstoffkenngrößen erhält man schließlich die gesuchte Rißverlängerung pro Lastfall und ist somit in der Lage, die

Rißlänge in Abhängigkeit von der Betriebszeit zu berechnen.

Außerdem kann für jede Störfallbelastung die maximal auftretende Spannung σ_{\max} und mit der gerade vorliegenden Rißlänge die bruchmechanische Beanspruchungsgröße ermittelt werden. Mit den Werkstoffparametern ist es dann möglich zu ermitteln, ob der Riß zu instabilem Versagen Anlaß gibt.

Diese Berechnungen führen somit von einem Anfangsriß der Tiefe a_i zu einem Riß mit der Tiefe a_f am Ende der Betriebsdauer. Wird die kritische Rißtiefe unter Störfallbedingungen mit a_c bezeichnet, so ist ein Fehler dann zulässig, wenn $a_c > S a_f$ ist, wobei S ein Sicherheitsbeiwert in der Größenordnung von 2-10 ist.

Über die prinzipiellen Bewertungs- und Berechnungsverfahren besteht heute unter den Bruchmechanikern Einigkeit. Sie erfolgen international nach den gleichen Prinzipien. Unsicherheiten und Schwierigkeiten bestehen vor allem in folgenden Punkten:

- Formänderung von Oberflächenrissen
- Verhalten bei starken örtlichen und zeitlichen Spannungsgradienten
- Kriterien für lokale Rißinstabilität (Wanddurchdringung)
- Kriterien für globale Rißinstabilität bei zähen Werkstoffen.

Auf diese Punkte wird im folgenden bei der Behandlung von zwei aktuellen Problemen etwas näher eingegangen, beim Thermoschockproblem und beim Leck-vor-Bruch-Problem. Zunächst möchte ich aber einige mehr grundsätzliche Bemerkungen zur Problemlösung bei bruchmechanischen Fragestellungen machen, da es dazu in Deutschland etwas unterschiedliche Vorstellungen gibt.

3. Großversuche zur Simulation des Bauteilverhaltens

Die bisher angewandte Methode bei der Rißbewertung, die auf der im ASME-Code festgelegten Vorgehensweise beruht, läßt Aussagen über Sicherheitsreserven zu. Wegen der angesprochenen im Detail noch ungelösten Probleme müssen dabei eine Reihe von Annahmen und Vereinfachungen gemacht werden. Dies muß immer so geschehen, daß die Ergebnisse auf der sicheren Seite liegen, d.h. die Rißgeschwindigkeit muß zu groß und die kritische Rißlänge zu klein vorausgesagt werden. Dies sollte in allen Fällen dazu führen, daß einige zerstörungsfrei festgestellten Fehler beseitigt werden, die keine Gefahr für die Komponenten bedeuten, daß aber nie der umgekehrte Fall auftritt.

Um die Voraussagemethodik zu verbessern und um verlässliche Aussagen über die Sicherheitsreserven zu bekommen, sind zwei Wege beschritten worden:

- Der eine Weg besteht in der möglichst praxisnahen Simulation von realen Komponenten oder Komponenten die den realen Gegebenheiten nahe kommen. Solche Versuche sind in den letzten Jahren verschiedentlich durchgeführt worden. Die bekanntesten in Deutschland sind die bruchmechanischen Großversuche der MPA Stuttgart und die Thermoschockexperimente am HDR. In den USA sind es die Intermediate Pressure Vessel Tests des Oake Ridge National Laboratory. Solche Versuche haben den Vorteil, daß für die gegebene Komponente direkte Aussagen über das Verhalten unter betriebsähnlichen oder bewußt übertriebenen Beanspruchungsbedingungen möglich sind. Diesem Vorteil stehen aber eine Reihe von Nachteilen gegenüber. Oft ist es nicht möglich, alle Versuchsbedingungen genau genug einzuhalten und zu fixieren. Dies gilt auch für den Werkstoffzustand. Wird dann versucht, diese Versuche mit den gegenwärtigen Vorstellungen und Methoden der Bruchmechanik voraus- oder nachzurechnen, so enthalten diese Rechnungen oft zu viele Größen, die nicht genau genug bekannt sind. Wegen der hohen Kosten solcher Großversuche lassen sich

außerdem immer nur ganz wenige oder nur ein einziger Versuch durchführen. Da die bruchmechanischen Modellvorstellungen in mehreren Einzelschritten durchlaufen werden, ist aus einem einzigen oder nur wenigen Einzelversuchen oft nicht zu entnehmen, welcher Teil der Modellvorstellung zu einer falschen Voraussage führt und verbessert werden muß. Deshalb kann der Erkenntnisgewinn aus Großversuchen für das Verhalten anderer Komponenten oft gering sein.

- Der zweite Weg besteht in bewußt einfach und übersichtlich gehaltenen Versuchsanordnungen, bei denen alle Randbedingungen möglichst gut bekannt sind. Je genauer die Versuchsbedingungen bekannt sind, um so besser lassen sich die Ursachen für Diskrepanzen zwischen theoretischer Voraussage und experimentellem Befund ermitteln und damit die theoretische Modellvorstellung verbessern. Da Experimente in kleinerem Maßstab wesentlich billiger sind, können Versuchsparameter variiert werden und damit neue Modellvorstellungen überprüft werden. Dabei soll unter kleineren Experimenten bereits der Übergang von der einfachen Versuchsprobe zur bauteilähnlichen Kleinprobe verstanden sein. Diese Proben können bereits die wesentlichen Gegebenheiten des Bauteils enthalten. Der Übergang von der bruchmechanischen Normalprobe zur bauteilähnlichen Kleinprobe ist schwieriger als der Übergang von dieser Probe zum realen Bauteil.

In Deutschland wurde in den letzten Jahren oft der erste Weg beschritten. Damit konnten und können qualitativ Sicherheitsreserven bei der Auslegung aufgezeigt werden. Die quantitative Übertragbarkeit auf andere Gegebenheiten ist aber oft nicht möglich. Auf Großversuche kann sicher nicht immer verzichtet werden. Sie müssen aber immer durch genügend gut geplante kleinere Experimente vorbereitet und begleitet werden. Der Großversuch sollte letztlich lediglich die endgültige Bestätigung einer bereits im kleineren Maßstab abgesicherten Theorie sein.

4. Rißausbreitung bei Thermoschockbeanspruchung

Die komplizierteste und am schwierigsten analytisch zu behandelnde Beanspruchung ist die Thermoschockbelastung. Die Gründe dafür sind

- große örtliche Spannungsgradienten
- große zeitliche Spannungsgradienten
- große Spannungen an der Oberfläche, die dort zur Plastifizierung führen können.
- veränderliche Temperatur während der Beanspruchung.

Thermospannungen treten beim An- und Abfahren eines Reaktors und bei Leistungsänderungen auf. Eine besondere Rolle spielte in letzter Zeit die Thermospannung beim Einspeisen von kaltem Wasser (Temperaturschichtungsproblem). Besonders hoch können Thermospannungen bei Störfällen sein, insbesondere beim Kühlmittelverluststörfall mit anschließender Notkühlung. Um das Werkstoffverhalten bei einmalig starkem oder wiederholtem schwächeren Thermoschock zu untersuchen, sind verschiedene Versuche an Behältern durchgeführt worden oder in Planung.

Der größte Versuch ist der Thermoschockversuch am HDR.

Bei diesem Versuch wird der mit Wasser gefüllte Druckbehälter unter Innendruck von 106 bar gesetzt und auf 310°C aufgeheizt. Dann wird ein Bereich am Stutzen A2 (Abb. 3) 45 sec. lang radial-symmetrisch mit kaltem Wasser besprüht. Nach Wiedererwärmung des abgekühlten Bereiches wird der Spritzvorgang wiederholt. Die entstehenden und sich ausbreitenden Risse wurden mit den Methoden der zerstörungsfreien Werkstoffprüfung vermessen. Außerdem werden bruchmechanische Berechnungen über die erwartete Rißverlängerung vorgenommen. Einzelheiten dieses Programms können den PHDR-Statusberichten entnommen werden. An diesem Versuch zeigten sich zwangsläufig besonders deutlich die erwähnten Vor- und Nachteile solcher Großversuche.

Angeregt durch die HDR-Thermoschockversuche wurde in der Arbeitsgruppe Zuverlässigkeit und Schadenskunde am Institut für Reaktorbauelemente des Kernforschungszentrums Karlsruhe ein

kleiner Versuchsstand (Abb. 4) aufgebaut, um das Verhalten von Rissen unter definierten Thermoschockbelastungen zu untersuchen. Parallel dazu wurden Rechenverfahren entwickelt, um die bei diesen Versuchen und auch beim HDR-Versuch auftretenden Rißverlängerungen mit bruchmechanischen Methoden vorauszuberechnen.

Die Versuchsprobe ist eine zylindrische Platte mit einem Durchmesser von 150 mm und einer Dicke von 20 mm. Sie besitzt in der Mitte einen halbelliptischen Oberflächenriß. Die Platte wird in einem Heißluftstrom auf etwa 300°C aufgeheizt, bis eine homogene Temperaturverteilung erreicht ist. Dann wird sie durch einen Wasserstrahl in Plattenmitte in einem kreisförmigen Bereich mit einem Durchmesser von 30 mm gekühlt. Nach einer Spritzzeit von 20-60 sec. wird der Wasserstrahl abgeschaltet und die Platte wieder aufgeheizt. Auf diese Weise ist eine zyklische Belastung möglich. Mit dieser Platte mit Oberflächenriß glauben wir, alle wesentlichen Bedingungen einer realen Struktur simulieren zu können.

Die Berechnung der Rißverlängerung während einer Thermoschockbelastung muß allgemein -und damit auch bei der von uns vorgesehenen Platte- in folgenden Schritten erfolgen:

1. Räumliche und zeitliche Temperaturverteilung. Probleme bereiten dabei die Randbedingungen, insbesondere die Wärmeübergangszahl vom Wasser auf die metallische Struktur.
2. Berechnung der räumlichen und zeitlichen Spannungsverteilung. Probleme treten hier auf, wenn im Schockbereich die Streckgrenze überschritten wird.
3. Berechnung der Spannungsintensitätsfaktoren entlang der Rißfront in Abhängigkeit von der Zeit.
4. Berechnung des lokalen Rißfortschritts entlang der Rißfront.

Als Beispiel für solche Berechnungen sind in den Abb. 5 - 11 Ergebnisse für eine Platte angegeben, die auf der gesamten Oberfläche -also nicht nur im zentralen Bereich wie bei dem geplanten Versuch- geschockt wurde [1]. Diese Berechnungen

sind analytisch möglich und zeigen das prinzipielle Verhalten.

Folgende dimensionslose Größen werden verwendet:

$$\tau = \frac{\chi}{W^2} t, \quad \theta = \frac{T_p - T}{T_p - T_w}, \quad \xi = \frac{x}{W}, \quad B = \frac{hw}{k}$$

mit W = Plattendicke, χ = Wärmediffusionskonstante, T_p = Plattentemperatur vor dem Abschrecken, T_w = Wassertemperatur, h = Wärmeübergangszahl, k = Wärmeleitfähigkeit, x = Abstand von der geschockten Oberfläche.

Abb. 5 und 6 zeigen die Temperaturänderungen gegenüber der Ausgangstemperatur in Abhängigkeit vom Abstand von der Plattenoberfläche und der Zeit. Es zeigt sich dabei deutlich der Einfluß der Wärmeübergangszahl, die in Form der dimensionlosen Biot-Zahl B angegeben ist. Eine der Unsicherheiten bei großen Experimenten, auch beim HDR-Projekt, ist die genaue Definition der Größe des Spritzflecks und des Wärmeübergangs. Bei den geplanten Plattenexperimenten ist es deshalb notwendig, durch einen Vergleich von gemessenen und berechneten Temperaturverläufen die genauen Randbedingungen zu ermitteln.

Die aus dem räumlichen und zeitlichen Temperaturverlauf sich ergebenden Spannungen sind in den Abb. 7 und 8 angegeben. Die Spannungen durchlaufen ein zeitliches Maximum, dessen Höhe und zeitliche Lage sowohl vom Abstand von der Oberfläche der Platte als auch von der Wärmeübergangszahl abhängt.

Im nächsten Schritt werden aus den Spannungen die für die Reißbelastung relevanten Spannungsintensitätsfaktoren K berechnet. Diese bruchmechanische Belastungsgröße beschreibt den Spannungszustand an der Reißspitze und steuert das Reißwachstum. Abb. 9 und 10 zeigen einige Ergebnisse für einen langen Reiß der relativen Tiefe $\alpha_r = a/W$. Entsprechend dem Verlauf der Spannung

ergibt sich auch für K ein zeitliches Maximum.

Entscheidend für die Rißverlängerung ist in erster Linie die Schwingbreite des Spannungsintensitätsfaktors ΔK , die Differenz zwischen dem maximalen Wert K_{\max} und dem minimalen Wert K_{\min} . Vor allem in korrosiver Umgebung kann zusätzlich das Verhältnis $R = K_{\min}/K_{\max}$ die Rißverlängerung beeinflussen. In Abb. 11 ist ΔK gegen die Rißtiefe aufgetragen. Es zeigt sich dabei wieder deutlich der Einfluß der Wärmeübergangszahl. Außerdem geht aus Abb. 11 hervor, daß die Beanspruchung für einen Riß zunächst mit zunehmender Tiefe zunimmt, nach Durchschreiten eines Maximums zu großer Tiefe aber wieder kleiner wird.

Dies waren Ergebnisse, die auf analytischem Wege für die unendlich ausgedehnte Platte mit einem langen Anriß gewonnen wurden. Für die endliche Platte mit zentralem Spritzfleck bzw. für den HDR-Stutzenversuch kann die Temperatur- und Spannungsverteilung mit der Methode der finiten Elemente berechnet werden [2]. Das eigentliche Problem liegt aber in der Berechnung der Spannungsintensitätsfaktoren, vor allem, wenn wir den halb-elliptischen Oberflächenriß betrachten, so wie er in realen Komponenten, beim HDR und auch in der von uns untersuchten Platte auftritt. Auf einen solchen Oberflächenriß (Abb. 12), der sich in der x - y -Ebene befindet, wirken die Spannungen $\sigma_z(x,y)$, die beim lokalen Thermoschock sowohl Gradienten in x - als auch in y -Richtung haben (Abb. 13). Bei allen Oberflächenrissen -und damit bei allen realen Rissen- variiert der Spannungsintensitätsfaktor K entlang der Rißfront und hängt vom Spannungsverlauf $\sigma_z(x,y)$ und von den Rißgrößenparametern a und c ab

$$K = f [\sigma_z(x,y), a, c, \varphi]$$

Für die Rißausbreitung betrachten wir dabei lediglich drei ausgewählte Punkte, den tiefsten Punkt A und die Oberflächenpunkte B und berechnen dort die Rißverlängerungen Δa und Δc . Dazu müssen die zeitlichen Verläufe $K_A(t)$ und $K_B(t)$ und daraus die Schwingbreiten ΔK_A und ΔK_B berechnet werden.

Auf diese Berechnungen soll im folgenden etwas ausführlicher eingegangen werden, einmal, weil dies ein wichtiger Schritt bei der rechnerischen Nachbildung der Rißausbreitung ist und zum anderen, weil man hier gut zeigen kann, wie durch Kombination von analytischen Näherungslösungen und Berechnungen mit der Methode der Finiten Elemente allgemeingültige Lösungen erzielt werden.

Als wir dieses Problem angingen, waren K-Werte für reine Zugbelastungen bekannt, die in der Form

$$K_A^Z = \sigma \sqrt{a} Y_A(a/c, a/W)$$

$$K_B^Z = \sigma \sqrt{a} Y_B(a/c, a/W)$$

dargestellt werden konnten, wobei Y_A bzw. Y_B als Funktion der auf die Wandstärke W bezogenen Rißtiefe und des Achsenverhältnisses a/c in geschlossener Form angegeben war. Aus einer solchen für eine spezielle Belastung (Referenzbelastung) bekannten Lösung kann für eine beliebige Belastung $\sigma(x,y)$ der K-Faktor mit der Methode der Gewichtsfunktionen berechnet werden:

$$K_A = \frac{2E}{(1-\nu^2)K_A^Z \pi c} \int \sigma(x,y) \frac{\partial u(x,y,a,c)}{\partial a} dS$$

Integriert wird über die Rißfläche S . Die Größe u ist die gegenseitige Verschiebung der beiden Rißufer für die Referenzbelastung, d.h. in unserem Fall für die reine Zugbelastung. Das Problem bestand nun darin, dieses Verschiebungsfeld zu ermitteln. Wir bedienten uns dazu einer für ebene Probleme vorgeschlagenen Näherungsmethode von Petroski und Achenbach [3] und erweiterten diese auf das dreidimensionale Rißproblem [4]. Da es sich dabei um ein Näherungsverfahren handelt, waren wir uns der Qualität der Lösung nicht sicher. Deshalb wurde für einige ausgewählte Rißgeometrien das Verschiebungsfeld mit

der Methode der finiten Elemente nachgerechnet. Die Übereinstimmung war befriedigend (Abb. 14).

Wir beschreiten bei unseren bruchmechanischen Berechnungen häufig diesen Weg der näherungsweise analytischen Lösung, die eine Parametervariation leicht zuläßt und somit zu verallgemeinerungsfähigen Lösungen führt. Mit Finite-Element-Berechnungen können dagegen mit erträglichem Aufwand nur Ergebnisse für wenige Geometrien bzw. wenige Belastungszustände erzielt werden. Diese Berechnungen sind aber unbedingt notwendig, um die Qualität der Näherungslösungen festzustellen und um zwischen verschiedenen möglichen Ansätzen zu entscheiden. Es gibt aber auch Fälle, bei denen keine analytische Lösung möglich ist und nur Finite-Element-Berechnungen möglich sind.

Die von uns entwickelte Methode haben wir auf die Ausbreitung der Thermoschockkrisse beim HDR angewandt [5]. Wir gingen bei unseren Berechnungen von den Untersuchungen der zerstörungsfreien Werkstoffprüfung aus, die einen Riß der Tiefe $a = 2$ mm und der Länge $2c = 15$ mm postulierte. Wir haben dann berechnet, wie schnell er bei den durchgeführten Versuchen in die Tiefe wächst und wie sich dabei seine Form verändert.

Die Berechnungen wurden mit einer Spritzfleckbreite von 2 mm durchgeführt. Sie werden z.Zt. revidiert, da es sich herausgestellt hat, daß die tatsächliche Spritzfleckbreite größer ist. Als Beispiel sind in Abb. 15 ΔK_A -Werte in Abhängigkeit von der Rißtiefe angegeben. Es zeigen sich deutliche Unterschiede gegenüber früheren Berechnungen, bei denen lediglich die Spannungsverteilung in Tiefenrichtung berücksichtigt werden konnte. (Es wurde dabei angenommen, daß der für $y = 0$ gültige Verlauf von $\sigma(x)$ auch für $y \neq 0$ gültig ist). Diese Unterschiede in ΔK_A und entsprechende Unterschiede in ΔK_B beeinflussen die Rißgeschwindigkeit und die sich einstellende Rißgeometrie entscheidend (Abb. 16). So wird eine Rißtiefe von 15 mm bei eindimensionaler Spannungsverteilung nach 4647 Zyklen erreicht und die sich einstellende Rißlänge an der

Oberfläche ist $2c = 36$ mm. Unter Zugrundelegung der zwei-dimensionalen Spannungsverteilung wird die gleiche Rißtiefe erst nach 57336 Lastwechseln erreicht, und die sich einstellende Rißlänge beträgt $2c = 20,8$ mm.

Dieses Beispiel zeigt, wie sehr die Voraussagen über die sich einstellende Rißlänge von den Annahmen über die Belastungsbedingungen abhängen und wie exakt eine bruchmechanische Rechnung sein muß, um die Realität richtig zu beschreiben.

Nach Abschluß des HDR-Versuchs wird sich zeigen, wie gut die berechnete Rißverlängerung mit der tatsächlich eingetretenen übereinstimmt.

Auch bei dem bisher geschilderten Rechnungsgang wurden noch Vereinfachungen vorgenommen bzw. vereinfachte Annahmen gemacht. Folgende Parameter können das Rißausbreitungsverhalten zusätzlich beeinflussen:

- zeitlicher Verlauf des Spannungsintensitätsfaktors (zusätzlicher Einfluß zu den zwei wesentlichen Parametern ΔK und R).
- Umgebungsmedium (soll das Verhalten in Luft oder in Wasser bzw. Wasserdampf zugrunde gelegt werden?)
- Temperatur; die Rißausbreitung während des Schocks erfolgt unter veränderlicher Temperatur; da die Werkstoffkenngrößen temperaturabhängig sind, stellt sich die Frage, welche Temperatur zugrunde gelegt werden soll.

Eine noch nicht vollständig gelöste Frage stellt die Plastifizierung an der Oberfläche dar. Vor allem bei überlagerter äußerer Beanspruchung kann es zu wiederholter wechselnder palstischer Verformung und damit zu ständiger Spannungsumlagerung kommen.

Ein anderes wichtiges Problem ist das Verhalten bei starken Thermoschocks, bei denen der Riß sich zunächst instabil ausbreitet, dann aber wegen der abnehmenden Spannungen wieder

zum Stoppen kommt. Sehr vereinfacht ist das Verhalten in Abb. 17 dargestellt. Es ist hier der Spannungsintensitätsfaktor K in Abhängigkeit von der Rißtiefe aufgezeichnet. Außerdem ist der kritische Wert K_{IC} für das Einsetzen instabiler Rißverlängerung angegeben. Ein Riß der größer als a_c ist, wird sich zunächst instabil ausbreiten. Er läuft dann aber in den Bereich abnehmender Belastung und kommt zum Stoppen wenn der werkstoffspezifische Rißstoppwert K_{IC} erreicht ist. K_{Ia} liegt in der Größenordnung von K_{IC} , ist aber etwas kleiner. Dieses einfache Bild wird kompliziert durch folgende Tatsachen:

- die K - a -Kurve verändert sich mit der Temperatur
- K_{IC} und K_{Ia} hängen von der Temperatur ab
- bei zähen Werkstoffen ist die Anwendbarkeit der linear-elastischen Kennwerte K_{IC} und K_{Ia} fraglich und muß ersetzt werden durch Kennwerte der Fließbruchmechanik.

Das Rißstopp-Konzept ist bereits Bestandteil des ASME-Codes. Es ist aber noch nicht einwandfrei abgesichert. Daher ist die Untersuchung des Rißstoppverhaltens bei überlagerter mechanischer und thermischer Belastung eine wichtige Aufgabe in der nächsten Zeit.

5. Leck-vor-Bruch-Verhalten

Das Leck-vor-Bruch-Verhalten spielt in der Reaktorsicherheit eine wichtige Rolle. Man geht davon aus, daß bei druckbeaufschlagten Komponenten zwei unterschiedliche Versagensarten möglich sind:

- Während der Betriebsbelastung tritt ein kleines feststellbares Leck auf. Bevor es zur Ausbildung eines großen Lecks kommt, kann die Anlage abgeschaltet werden. Diese Versagensart wird als Leck-vor-Bruch-Verhalten bezeichnet.
- Es bleibt nicht bei der Bildung eines kleinen Lecks, sondern es kommt zum vollständigen Rohrabriß oder es tritt ein großes Leck auf. Bei diesem als Bruch-vor-Leck-Verhalten

bezeichneten Versagen können unerwünschte Folgen wie Kühlmittelverlust oder Schäden durch das austretende Medium und durch schlagende Rohrleitungen auftreten.

Der Reaktordruckbehälter und die Rohrleitungen des Primärkreislaufs sind so ausgelegt, daß auch bei Störfallbelastungen weder ein Leck noch Bruch auftreten sollte. Alle bei der zerstörungsfreien Prüfung festgestellten Fehler werden beseitigt, wenn während der Betriebszeit die kritische Rißlänge erreicht werden kann. Das Leck-vor-Bruch-Kriterium stellt eine zusätzliche Sicherheitsbarriere dar, falls trotz der getroffenen Maßnahmen wie Qualitätskontrolle der Werkstoffe, zerstörungsfreie Inspektion und bruchmechanische Berechnungen ein unzulässiges Rißwachstum auftritt.

In Deutschland glaubte man bisher sowohl bei Leichtwasserreaktoren als auch beim Schnellen Brüter, daß ein Bruch-vor-Leck-Verhalten nicht ganz auszuschließen ist. Deshalb mußte ein kompletter Rohrabriß (2F-Bruch) in die Sicherheitsüberlegungen einbezogen werden. Dies führte u.a. zum Einbau von Rohrausschlagsicherungen, die ein Ausschlagen der gebrochenen Rohrleitungen und dadurch hervorgerufene Folgeschäden vermeiden sollten. Diese Rohrausschlagsicherungen haben abgesehen von den enormen Kosten den Nachteil, daß sie die Inspizierbarkeit der Rohrleitungen behindern und damit möglicherweise die Schäden erst hervorrufen, deren Folgen sie verhindern sollen. Die Neufassung der RSK-Leitlinien für Druckwasserreaktoren vom 14. Oktober 1981 verlangt für die Hauptkühlmittelleitung nicht mehr diese Rohrausschlagsicherungen, da bezüglich der Reaktionskräfte nicht mehr vom 2F-Bruch sondern vom 0,1 F-Bruch ausgegangen wird. Ein vollständiger Rohrabriß muß aber nach wie vor unterstellt werden bei der Analyse der Kernnotkühlwirksamkeit.

Die Leck-vor-Bruch-Betrachtung spielt auch bei der Sicherheits-hülle eine Rolle. Allerdings treten hier große Drücke nur bei schweren Unfällen wie beim Kernschmelzen auf. Dabei können sich Drücke im Sicherheitsbehälter aufbauen, die über den Auslegungs-

druck von 6 bar hinausgehen. Auch hier spielt die Frage Leck oder Bruch eine große Rolle. Tritt ein Leck genügender Größe auf, so wird ein weiterer Druckanstieg verhindert, und es kommt nicht zum Platzen der gesamten Sicherheitshülle. Beim PNS sind Untersuchungen angelaufen, die sich mit den Fragen des Versagens der Sicherheitshülle befassen. Die Untersuchungen werden auch bruchmechanische Überlegungen zum Leckvor-Bruch-Verhalten umfassen.

Der grundlegende Gedankengang zum Leckvor-Bruch-Verhalten soll anhand von Abb. 18 dargelegt werden. Ausgangspunkt ist ein Oberflächenriß der Tiefe a_i und der Länge $2c_i$. Dieser Riß wächst stabil unter der Einwirkung der Betriebsbelastungen. Wenn er eine kritische Tiefe a_{cL} erreicht hat, tritt plötzliche Wanddurchdringung auf, man spricht von lokaler Instabilität. Der Riß hat dann eine Tiefe $a = t$ und an der Oberfläche die Länge $2c_a$. Beim Leckvor-Bruch-Verhalten wächst der Riß jetzt stabil weiter, sofern die Anlage nicht abgeschaltet wird. Erst wenn eine kritische Länge $2c_G$ erreicht ist, tritt globales Versagen auf, und es bildet sich ein großes Leck aus. Beim Bruchvor-Leck-Verhalten kommt es dagegen nicht zum Rißstoppen nach der Wanddurchdringung, sondern der Riß wächst schnell in Längsrichtung weiter.

Ein wichtiger Schritt bei der Leckvor-Bruch-Analyse ist die Voraussage der Geometrieänderung eines Risses. Bereits bei der Behandlung der Rißausbreitung durch Thermoschockbelastung wurde auf dieses Problem eingegangen. Es sollen hier als Beispiel erfolgreiche Voraussagen bei Biegewechselbelastungen erwähnt werden. An einem austenitischen Stahl wurden die Rißgeometrieänderungen ausgehend von einem elektro-erosiven Anriß verfolgt. Abb. 19 zeigt einen Vergleich von berechneten und experimentellen Ergebnissen. Aufgetragen ist das Verhältnis der Halbachsen a/c gegen die auf die Wandstärke bezogene Rißtiefe. Die Berechnungen erfolgten auf zwei Arten unter Verwendung der lokalen K-Werte an den ausgezeichneten Punkten A und B und unter Verwendung von gemittelten K-Werten. Nähere Einzelheiten der Berechnungen sind [7] zu entnehmen. Aus Abb. 19 kann entnommen werden, daß eine

gute Vorhersage der Rißgeometrieänderung zumindest bei einer reinen Biegebelastung möglich ist.

Ein kritischer Punkt bei der ganzen Leck-vor-Bruch-Analyse ist die Berechnung der kritischen Belastung für das Durchreißen der Wand (lokale Instabilität oder Ligamentinstabilität). Auf dieses Problem konzentriert sich z. Zt. ein wesentlicher Teil der Bruchmechanik-Forschung. Aus Zeitgründen kann auf diesen Punkt nur ganz kurz eingegangen werden. Bei zähen Werkstoffen schnürt sich der verbleibende Restquerschnitt lokal ein, bis es zum plötzlichen Durchriß kommt. Man spricht dann von lokalem plastischem Kollaps. An verschiedenen Stellen laufen experimentelle und theoretische Untersuchungen, um Kriterien für kritische Belastungen in Abhängigkeit von der Rißgeometrie und den Zähigkeitseigenschaften der Werkstoffe zu entwickeln. Als ein wichtiges Hilfsmittel hat sich dabei das sogenannte Failure Assessment Diagram (FAD) erwiesen. Bei den zu diesem Diagramm gehörenden Überlegungen werden zwei Grenzfälle des Versagens betrachtet: Versagen nach den Gesetzmäßigkeiten der linear-elastischen Bruchmechanik und Versagen nach den Bedingungen der plastischen Instabilität. Der reale Versagensvorgang kann um so besser mit der linear-elastischen Bruchmechanik beschrieben werden, je spröder der Werkstoff und je größer das Bauteil ist. Die plastischen Instabilitätsbedingungen beschreiben das Verhalten um so besser, je zäher der Werkstoff ist und je kleiner das Bauteil ist. In dem FAD-Diagramm ist die Spannung bezogen auf die linear-elastisch berechnete Versagensspannung gegen die Spannung bezogen auf die plastische Instabilitätsspannung aufgetragen. Die eingezeichnete Kurve soll die reale Versagenskurve darstellen. Für einen bestimmten Riß und eine bestimmte Belastung ergibt sich ein Punkt in diesem Versagensdiagramm. Liegt er innerhalb der Kurve, so tritt kein Versagen auf, liegt er außerhalb, so ist mit Versagen zu rechnen. Außerdem zeigt dieses Diagramm je nach Lage des Punktes, ob das Versagen eher spröde oder eher duktil verläuft. Wir befassen uns z. Zt. intensiv mit dem rechten Teil des Diagramms, d.h. mit der Erstellung von Kriterien für den plastischen Kollaps von Oberflächenrissen.

Weitere wichtige Punkte bei der Leck-vor-Bruch-Betrachtung, auf die hier nicht eingegangen werden kann, sind die Leckfläche, die sich nach Wanddurchdringung einstellt, die Leckrate, d.h. die pro Zeiteinheit ausströmende Flüssigkeitsmenge und die Leckerkennbarkeit, d.h. die notwendige Leckrate um ein Leck zu erkennen.

Die Darstellung der Ergebnisse erfolgt in einem Leck-vor-Bruch-Diagramm, wie es in Abb. 21 schematisch gezeigt ist. In einem solchen Diagramm ist die auf die Wandstärke bezogene Rißtiefe a/t gegen die Rißlänge aufgetragen. Für eine vorgegebene Spannung kann das Diagramm in die Bereiche "kein Versagen", "Leck" und "Bruch" eingeteilt werden. Unterhalb einer bestimmten Rißlänge tritt entweder kein Versagen oder Leck auf. Bei größeren Rißlängen tritt sofortiger Bruch auf, wenn ein Riß eine genügende Tiefe besitzt.

Eine für Leck-vor-Bruch ausgelegte Komponente wird das in Abb. 21 gezeigte Verhalten zeigen. Die untere Grenzlinie gibt die maximal erwartete Rißgröße an. Die nächste Kurve gibt die Rißgrößenbereiche an, bis zu denen die Risse unter den Betriebsbedingungen wachsen können. Diese Kurve sollte immer im Bereich "kein Versagen" liegen, so daß auch bei jedem denkbaren Störfall nicht einmal ein Leck auftritt. Die mit Pfeilen versehenen Kurven geben den weiteren Verlauf der Rißgeometrieänderung an. Sie sollten, ausgehend vom Bereich "kein Versagen" möglichst weitgehend im Bereich "Leck" enden, so daß auch dann, wenn größere Risse als zulässig vorhanden sind oder Risse schneller als vorgesehen wachsen, immer noch kein totales Versagen auftritt.

6. Abschließende Bemerkungen

Es war in diesem Beitrag nicht möglich, auf alle Probleme der Rißbewertung in gleicher Ausführlichkeit einzugehen. Die Behandlung der Thermoschockrißausbreitung und des "Leck-vor-Bruch-Verhaltens" sollte verdeutlichen, mit welchen Methoden die Bruchmechanik heute die komplizierten Vorgänge der Riß-

ausbreitung behandelt. Diese Methoden müssen aber in den nächsten Jahren weiter verbessert werden.

Es wird in diesem Zusammenhang von Außenstehenden die Frage gestellt: Wenn es auf dem Gebiet der Rißbewertung noch ungelöste Fragen gibt und z.B. das Kernforschungszentrum erst in den letzten Jahren auf diesem Gebiet verstärkt tätig geworden ist, folgt dann daraus nicht, daß z. Zt. noch nicht genügend Kenntnisse auf diesem Gebiet vorhanden sind, um sicherheitsrelevante Komponenten zuverlässig beurteilen zu können? Deshalb soll die bereits eingangs gemachte Bemerkung noch einmal wiederholt werden.

Mit dem heutigen Stand der Erkenntnisse ist man in der Lage zu beurteilen, welche Risse in einem Bauteil gefahrlos belassen werden können. Es ist dazu allerdings notwendig, daß sich die Bruchmechaniker der neuesten Methoden bedienen. Die Aufgabe der Zukunft ist es, dort wo man bisher mit groben Näherungen konservativ vorgehen muß, zu einer besseren Einsicht in das reale Verhalten zu kommen, um die vorhandenen Sicherheitsreserven quantitativ angeben zu können. Dies kann zu einem Abbau zu hoher Sicherheitsreserven, zu einer Reduzierung der Kosten und zu einer Vereinfachung der Konstruktion führen. Der erwähnte Wegfall der Rohrausschlagsicherungen ist dafür ein gutes Beispiel.

Literatur

- [1] H. Zschoch, "Berechnung der Spannungsintensitätsfaktoren für einen durchgehenden Außenriß in der Platte und im Halbraum unter Thermoschockbeanspruchung;" Studienarbeit am Institut für Zuverlässigkeit und Schadenskunde im Maschinenbau, Universität Karlsruhe, 1982.
- [2] H. Stamm, private Mitteilung (1982)

- /3/ H.J. Petroski, J.D. Achenbach, "Computation of the Weight Function from a Stress Intensity Factor", Engineering Fracture Mechanics 10, 257-266.
- /4/ C. Mattheck, P. Morawietz, D. Munz, "Stress Intensity Factor of Semi-elliptical Surface Cracks in Plates Exposed to Stress Gradients", erscheint in International Fracture Mechanics.
- /5/ F.Görner, C. Mattheck, D. Munz, H. Stamm, Unveröffentlichter Bericht (1982)
- /6/ J.G. Blauel, L. Hodulak, U. Brosamer, "Rißwachstumsanalyse im HDR-Stutzen A2", Bericht V18/81 des Fraunhofer Instituts für Werkstoffmechanik.
- /7/ F. Görner, C. Mattheck, D. Munz, "Change in Geometry of Surface Cracks During Alternating Tension and Bending", erscheint in Zeitschrift für Werkstofftechnik.

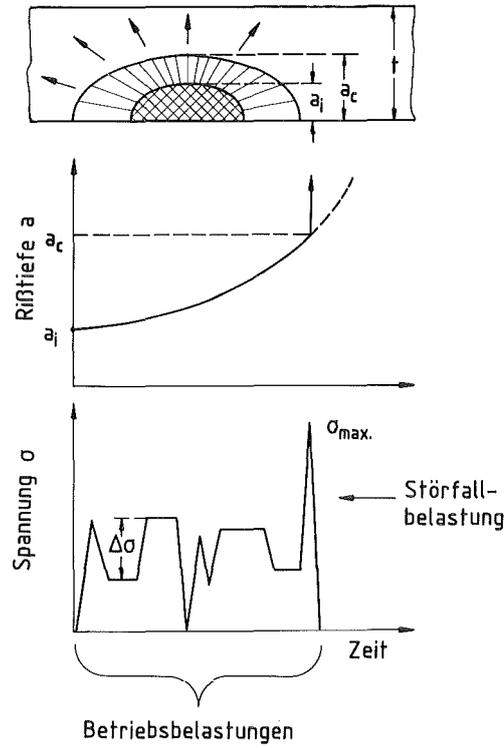


Abb. 1: Stabile und instabile Ausbreitung eines Risses

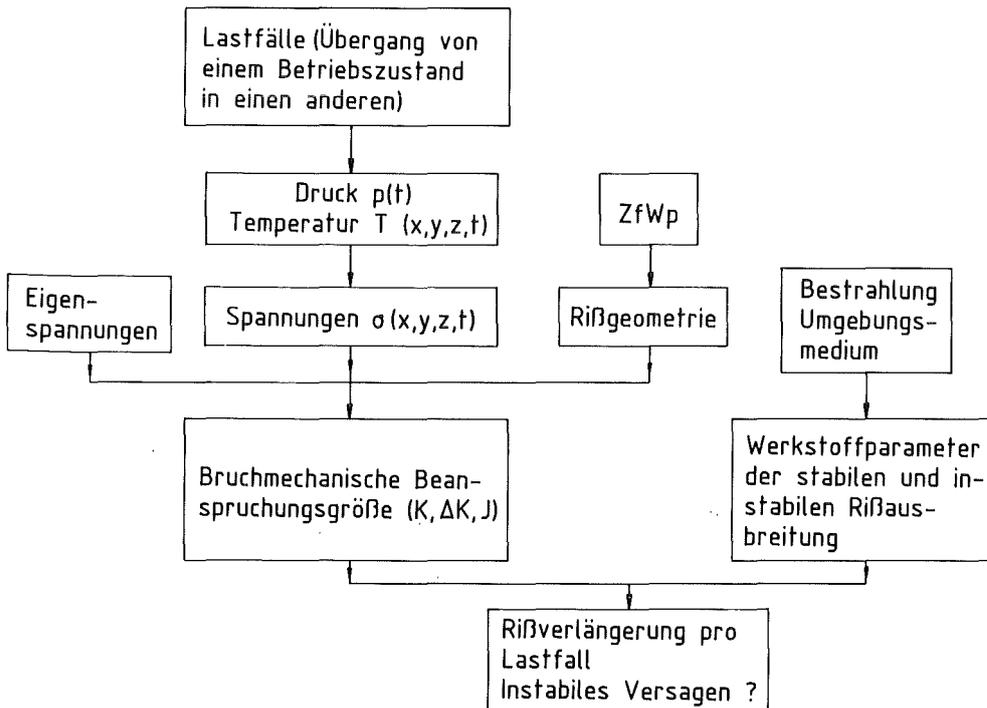


Abb. 2: Einzelschritte bei der Rißbewertung

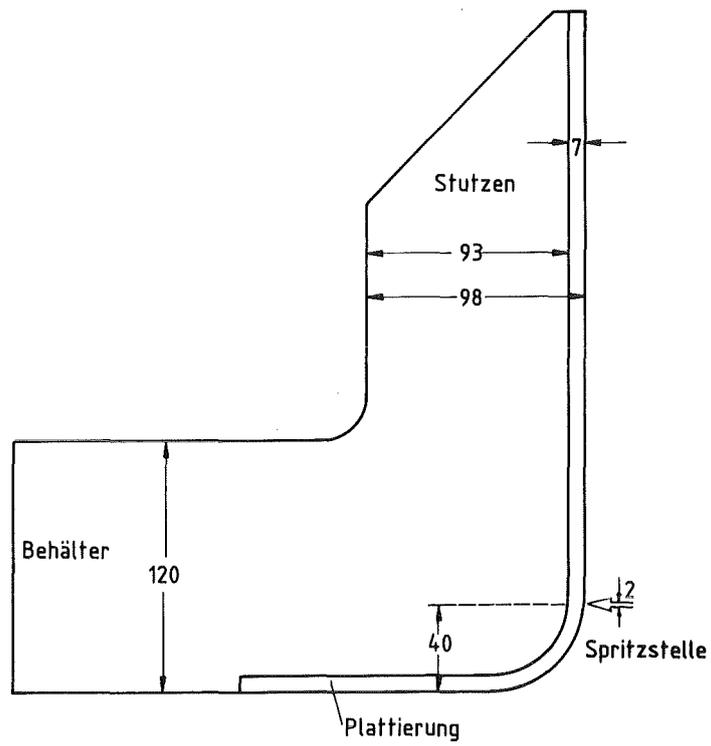


Abb. 3: HDR-Stutzen A2 mit Spritzstelle

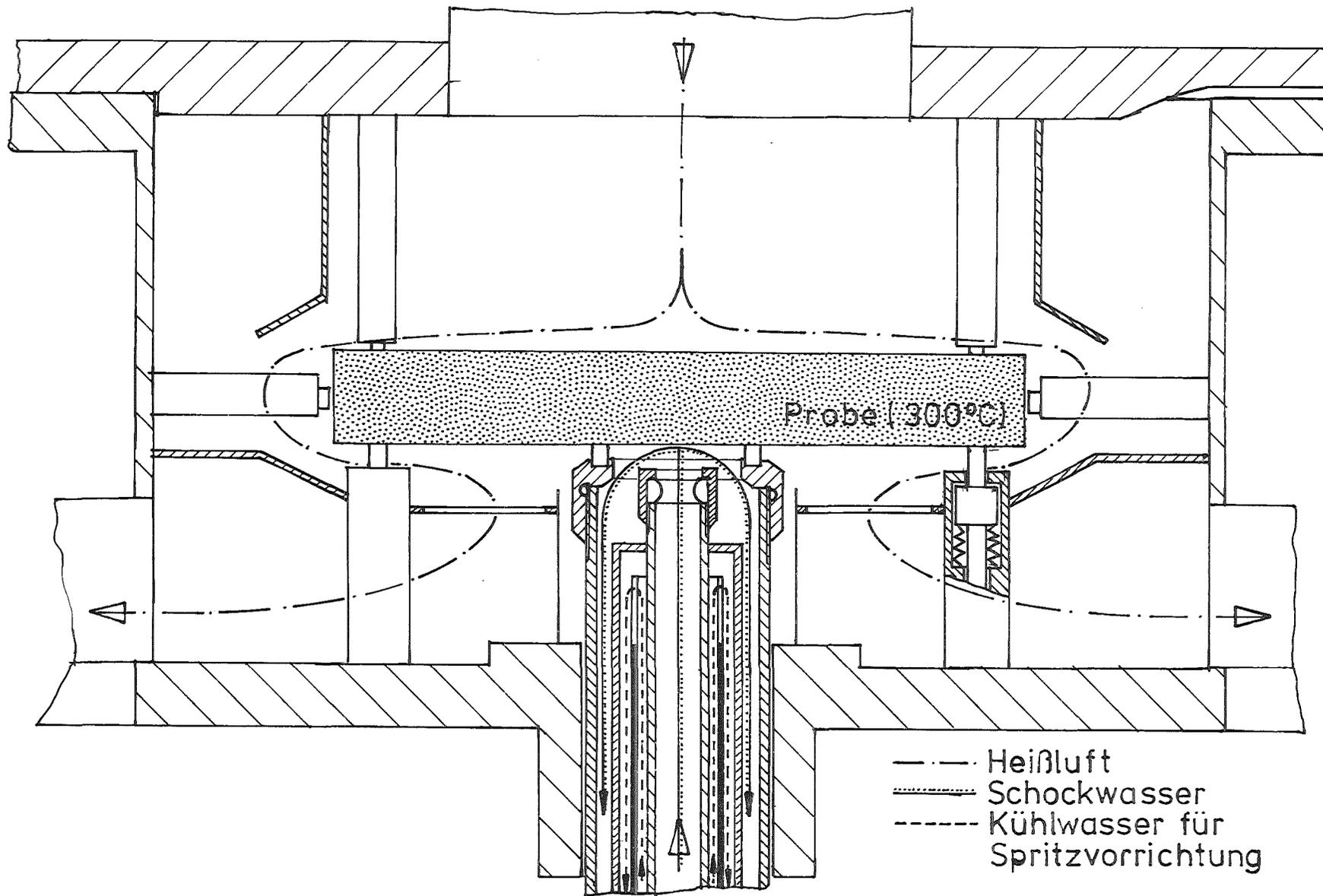


Abb. 4: Thermoschockprüfanlage

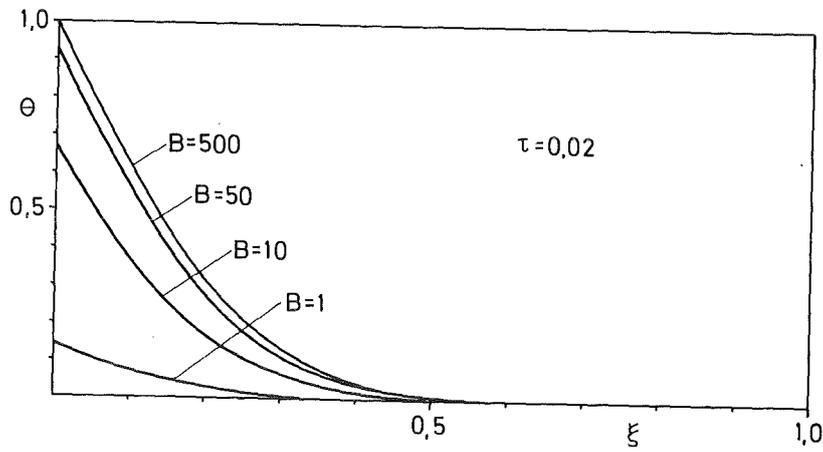


Abb. 5: Temperaturverlauf in der Platte für verschiedene Biot-Zahlen

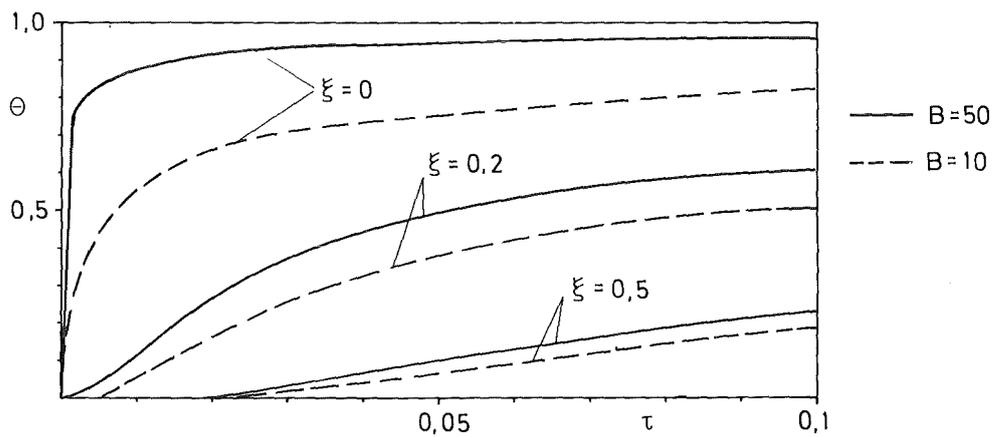


Abb. 6: Temperatur in Abhängigkeit von der Zeit für verschiedene Abstände von der Oberfläche

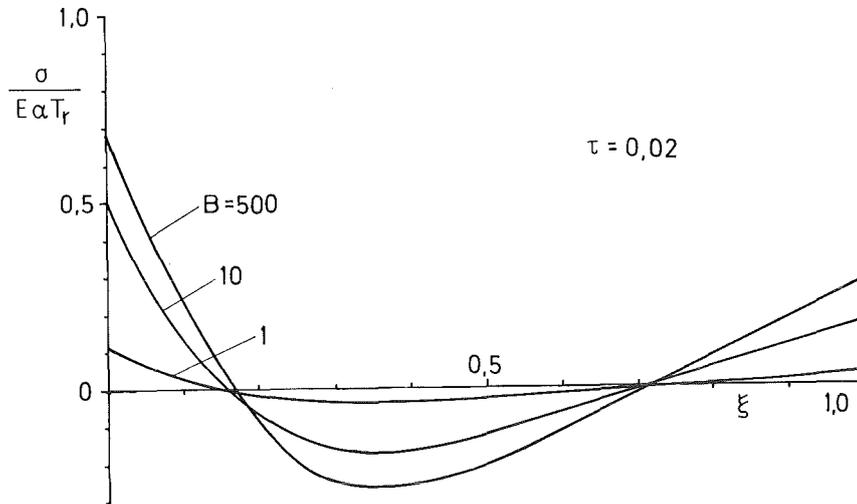


Abb. 7: Spannungsverteilung in der Platte für verschiedene Biot-Zahlen ($T_r = T_p - T_w$)

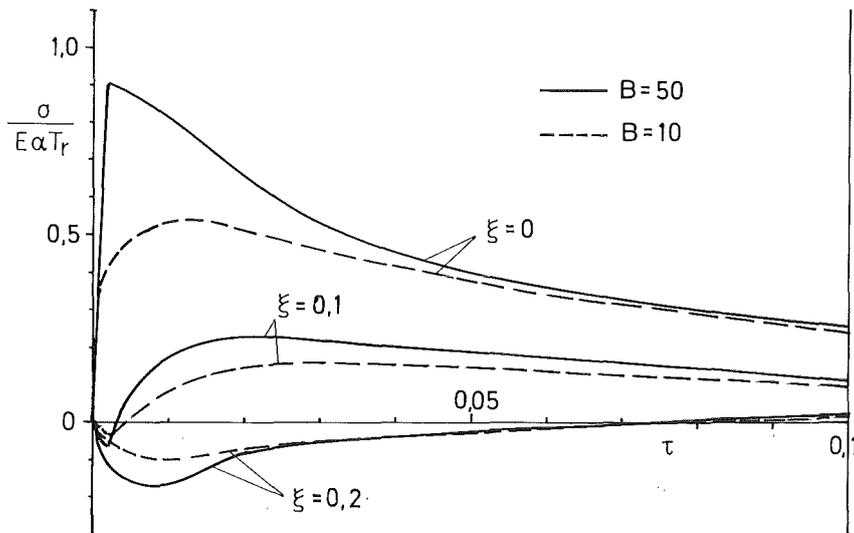


Abb. 8: Spannung in Abhängigkeit von der Zeit für verschiedene Abstände von der Oberfläche

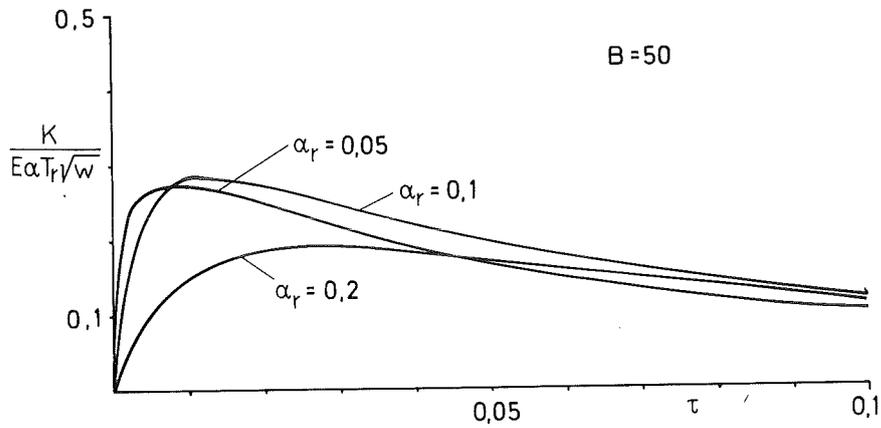


Abb. 9: Zeitlicher Verlauf des Spannungsintensitätsfaktors für verschiedene Rißtiefen ($\alpha_r = a/W$)

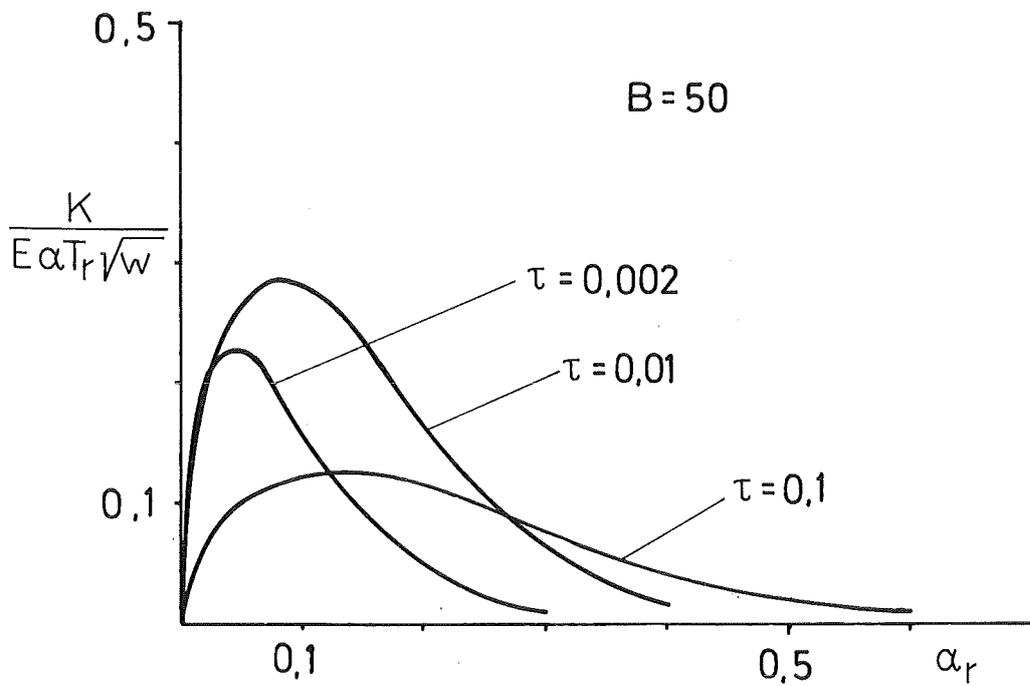


Abb. 10: Spannungsintensitätsfaktor in Abhängigkeit von der Rißtiefe $\alpha_r = a/W$ für verschiedene Zeiten

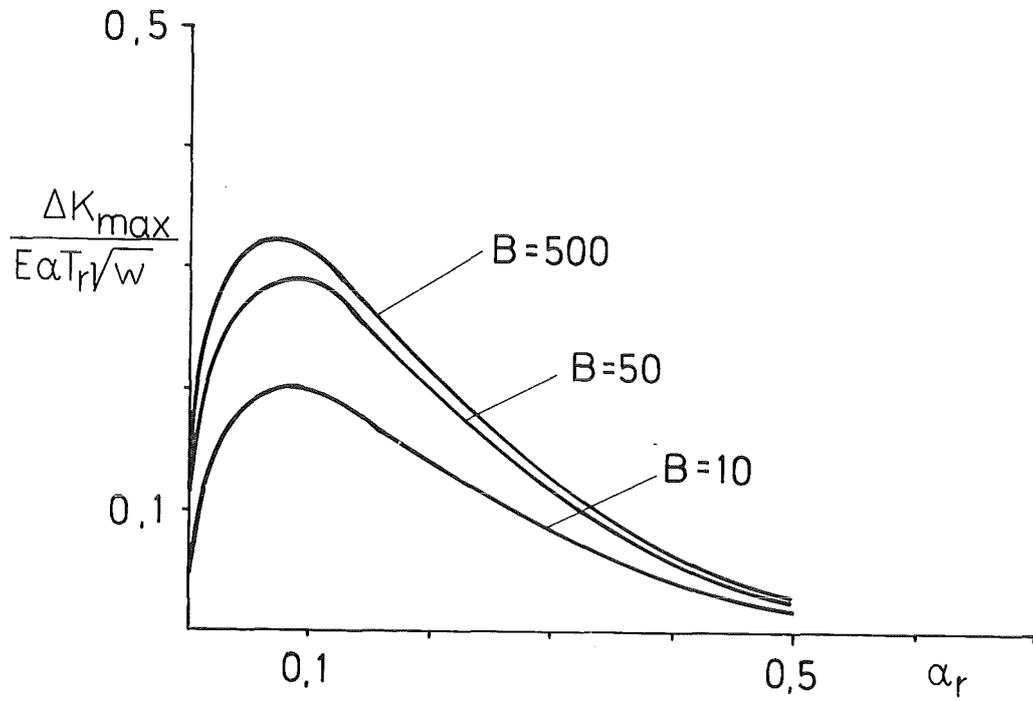


Abb. 11: ΔK in Abhängigkeit von der Rißtiefe $\alpha_r = a/W$ für verschiedene Biot-Zahlen

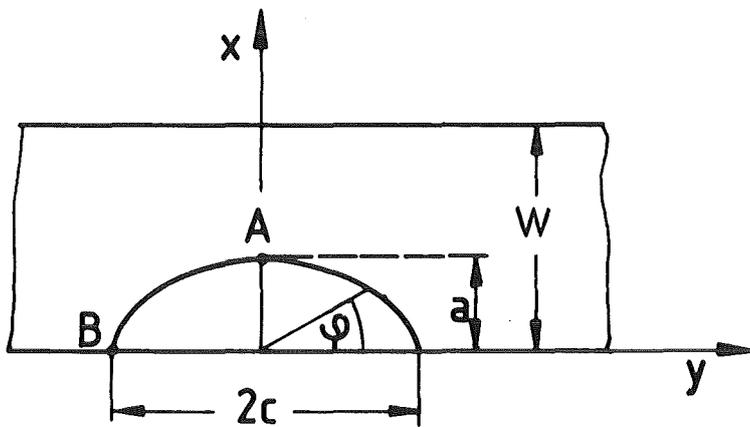


Abb. 12: Oberflächenriß

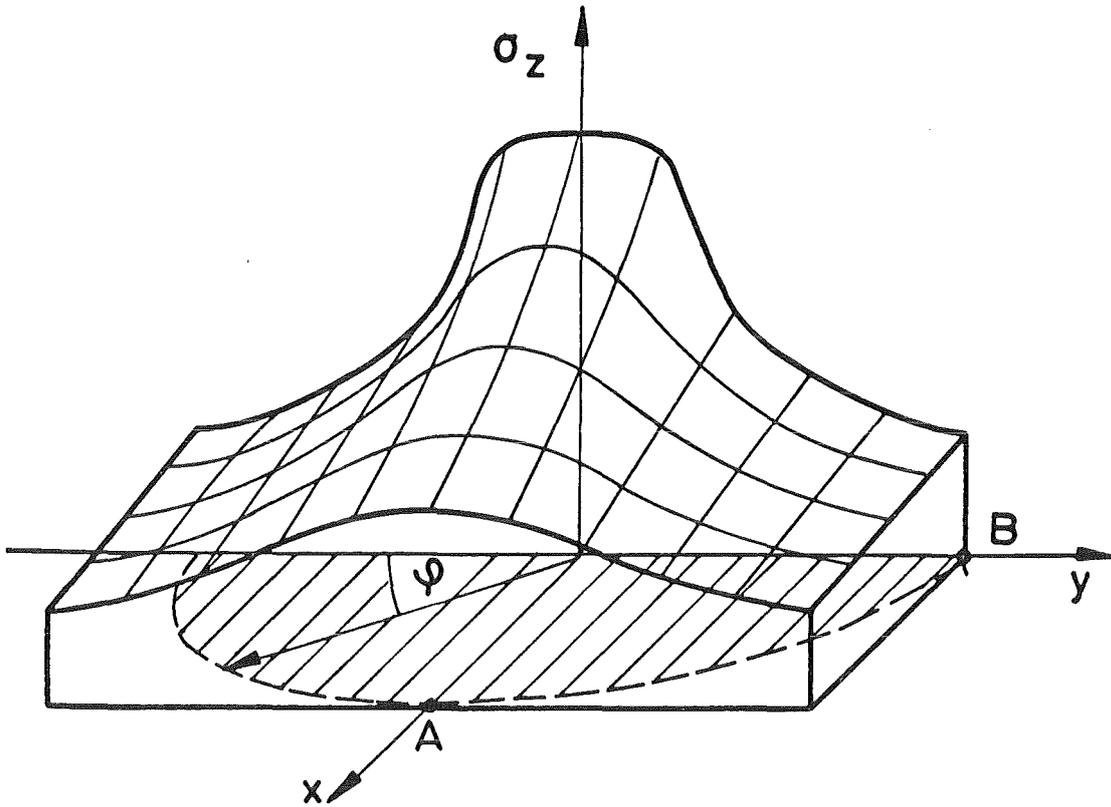


Abb. 13: Spannungsverlauf beim lokalen Thermoschock

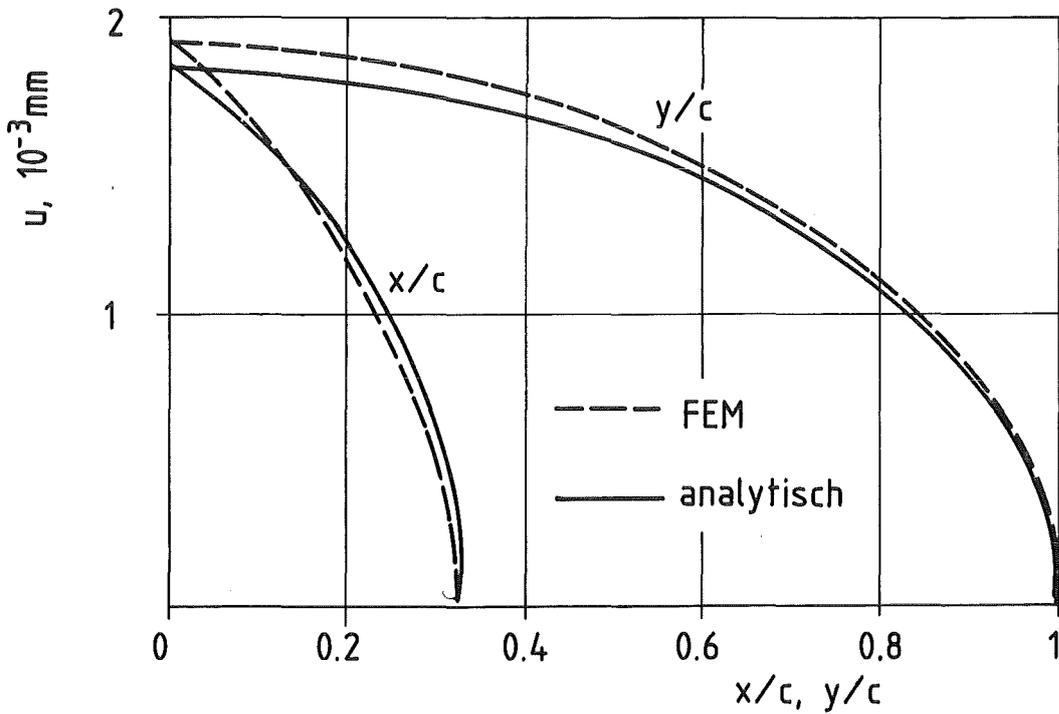


Abb. 14: Rißöffnung eines halbelliptischen Oberflächenrisses entlang der Halbachsen (Vergleich FEM und näherungsweise analytische Lösung)

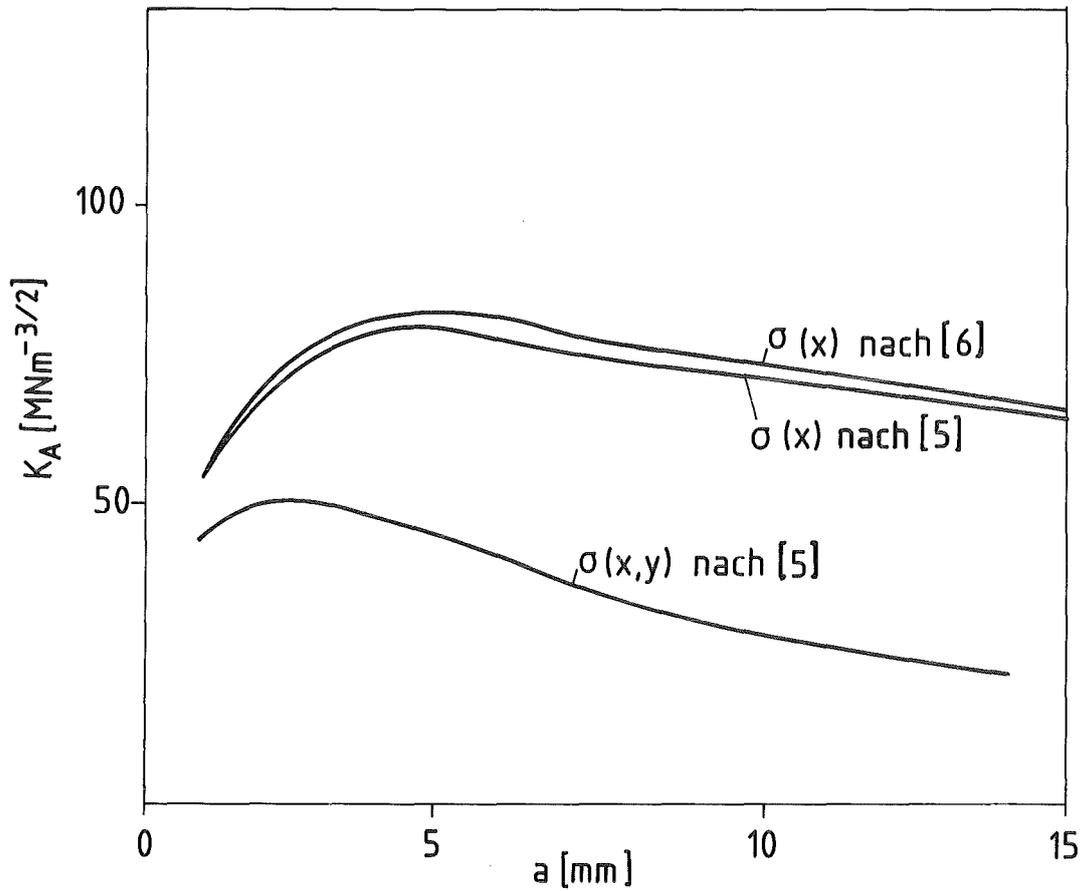


Abb. 15: Spannungsintensitätsfaktor an der tiefsten Stelle eines Oberflächenrisses bei Thermoschockbelastung am HDR

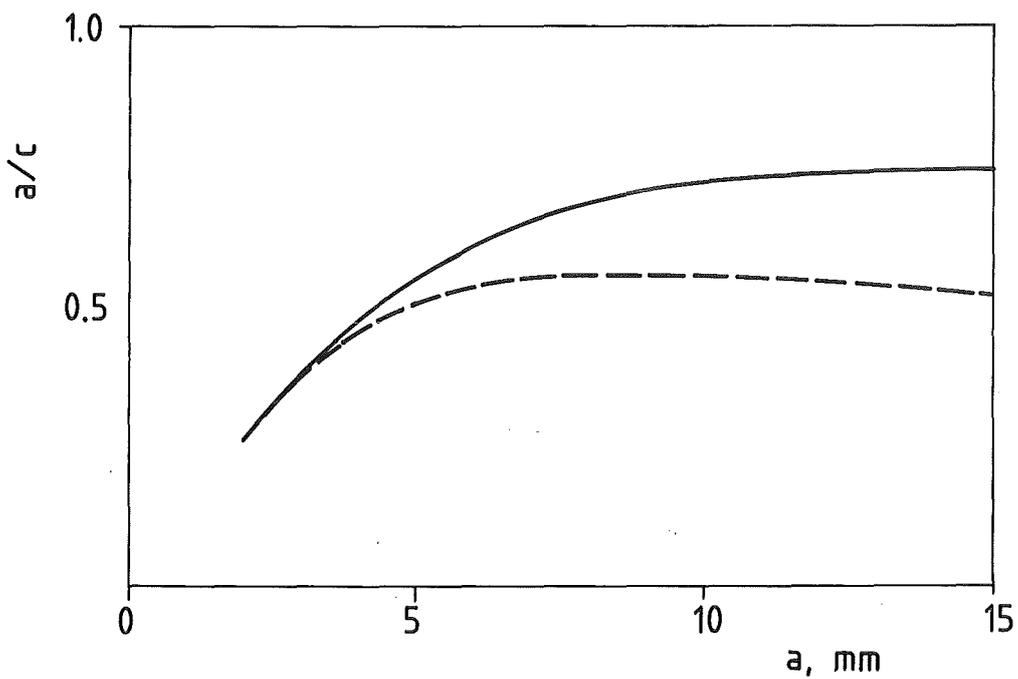


Abb. 16: Rißgeometrieänderung beim HDR-Oberflächenriß mit eindimensionaler (gestrichelt) und mit zweidimensionaler (ausgezogen) Spannungsverteilung

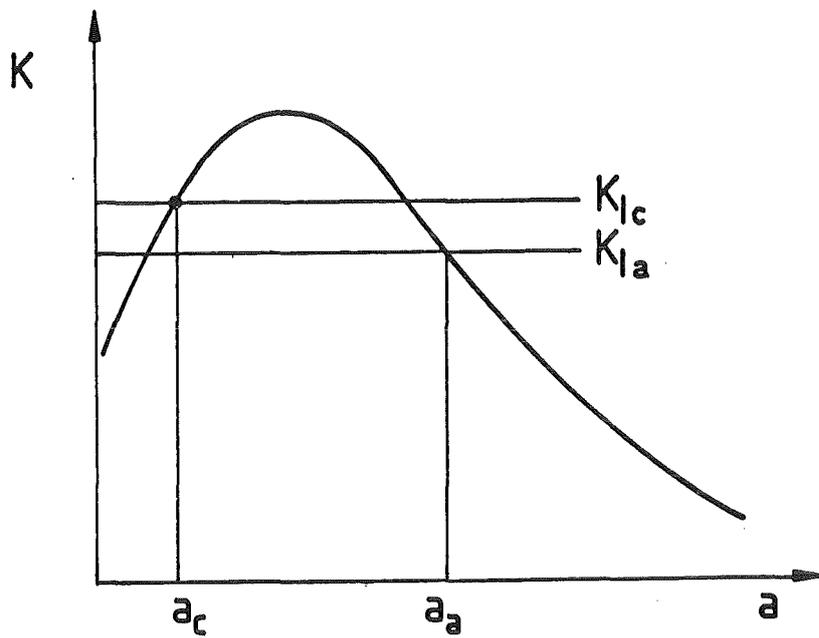


Abb. 17: Rißstoppverhalten beim Thermoschock

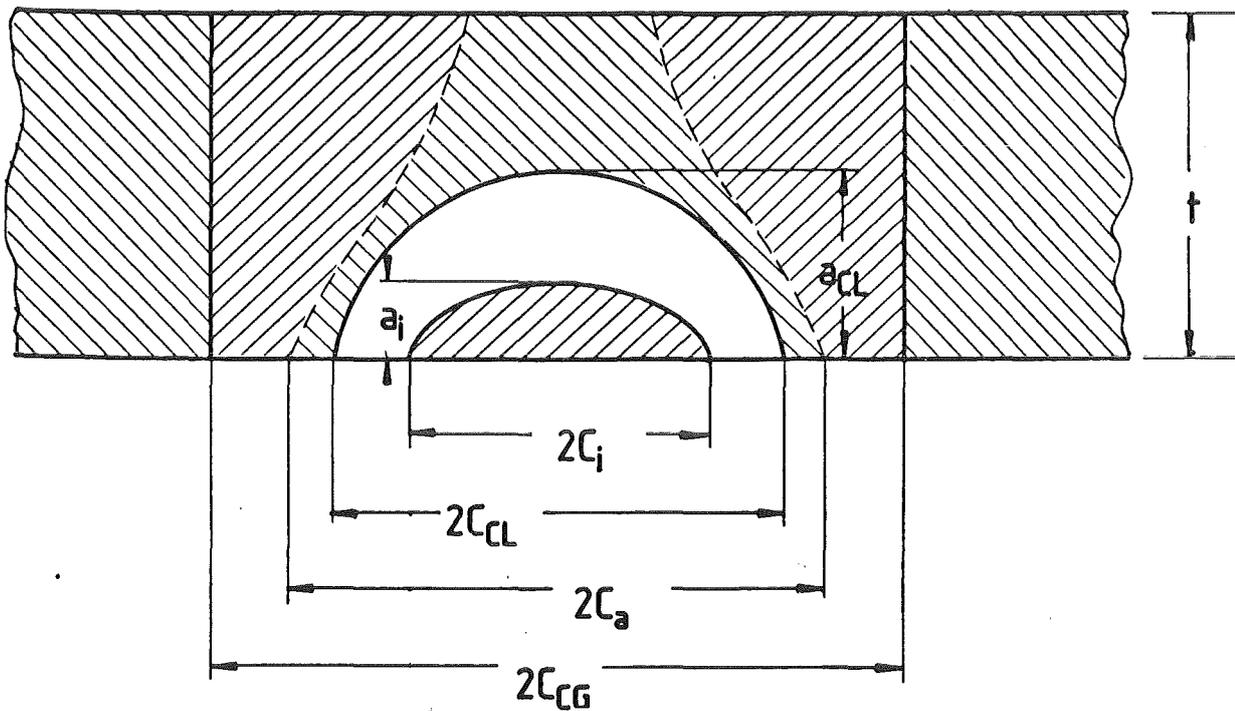


Abb. 18: Verschiedene Stadien der Rißausbreitung

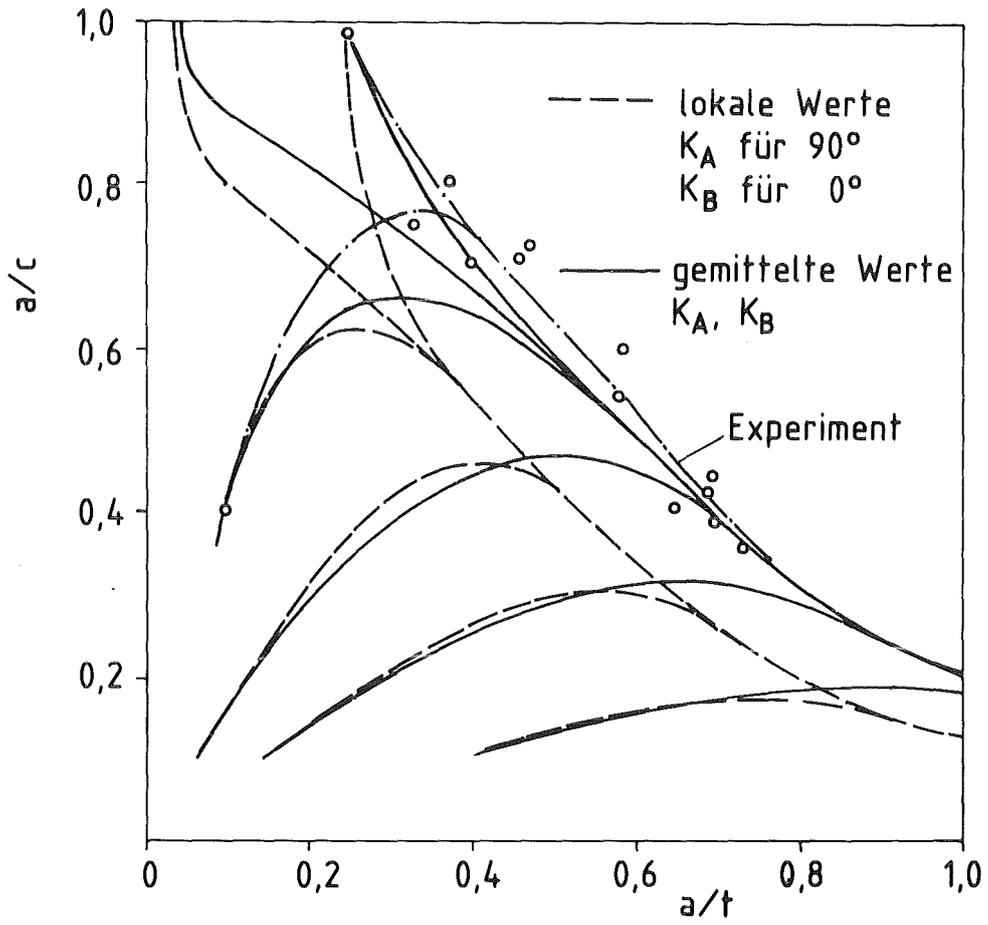
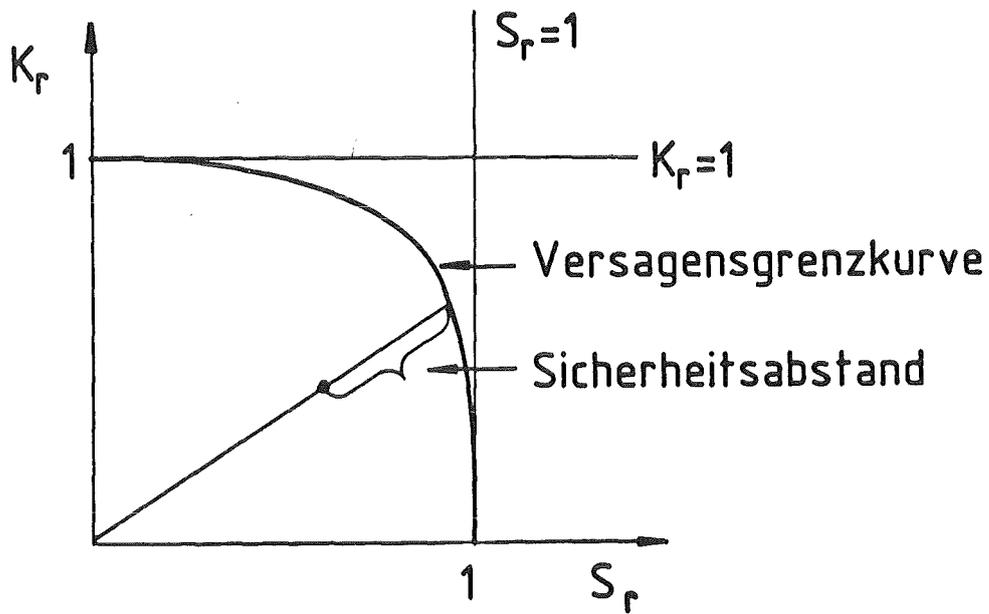


Abb. 19: Vergleich von berechneten und experimentell ermittelten Rißgeometrieänderungen bei Biegebelastung



$$K_r = \frac{\text{reale Versagensspannung}}{\text{Versagensspannung nach LEBM}}$$

$$S_r = \frac{\text{reale Versagensspannung}}{\text{Versagensspannung nach plast. Instabilität}}$$

Abb. 20: Failure-Assessment-Diagramm

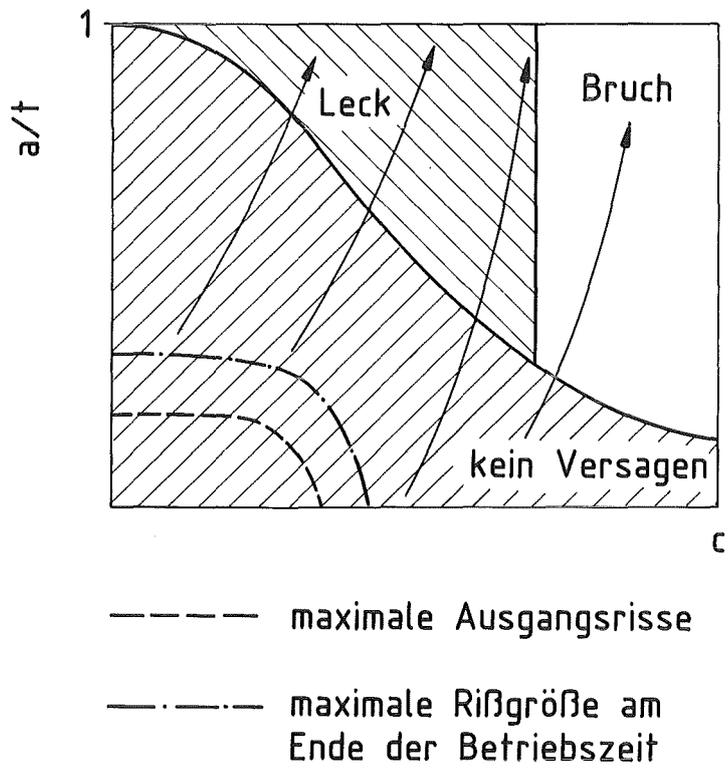


Abb. 21: Leck-vor-Bruch-Diagramm

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

JAHRESKOLLOQUIUM 1982

CHEMISCHE WECHSELWIRKUNGEN ZWISCHEN UO_2 UND
ZIRCALOY-4 IM TEMPERATURBEREICH VON 1000 BIS 2000°C

W. DIENST

P. HOFMANN

D. KERWIN-PECK ⁺⁾

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
INSTITUT FÜR MATERIAL- UND FESTKÖRPERFORSCHUNG

⁺⁾ DEL. VON EG&G, IDAHO

Chemische Wechselwirkungen zwischen UO_2 und Zircaloy-4 im Temperaturbereich von 1000 bis 2000°C

W.Dienst, P.Hofmann, D.Kerwin-Peck

Zusammenfassung

Es wurden die chemischen Wechselwirkungen von UO_2 mit festem und flüssigem Zircaloy im Temperaturbereich zwischen 1000 und 2000°C unter Schutzgas untersucht. Die Festkörperreaktionsexperimente erfolgten mit kurzen LWR-Brennstababschnitten unter äußeren Überdrücken von 1 bis 80 bar. Die Glühzeiten variierten zwischen 60 und 9000 s. Die Reaktionsexperimente mit flüssigem Zircaloy erfolgten in UO_2 -Tiegeln zwischen 1800 und 2000°C. Außerdem wurde das Benetzungsverhalten von flüssigem Zircaloy gegenüber UO_2 untersucht.

Die chemischen Wechselwirkungen unterhalb des Schmelzpunktes von Zircaloy hängen entscheidend vom Festkörperkontakt zwischen Brennstoff und Hüllmaterial ab. Bei guten Kontaktverhältnissen wird das UO_2 durch das Zircaloy unter Bildung von α -Zr(O) und Uran reduziert. Das Uran reagiert mit dem Zirkonium unter Bildung einer (U,Zr)-Legierung, die zwischen zwei α -Zr(O)-Schichten angeordnet ist. Die UO_2 /Zircaloy-Reaktionsrate genügt einem parabolischen Zeitgesetz. Der geschwindigkeitsbestimmende Schritt der Reaktion ist die Diffusion von Sauerstoff in das Zircaloy. Das Wachstum der verschiedenen Reaktionszonen ist in einem Arrhenius-Diagramm darstellbar.

Das Reaktionsverhalten von flüssigem Zircaloy gegenüber UO_2 hängt von dem Benetzungsverhalten ab. Eine sauerstoffhaltige Zircaloy-Schmelze benetzt das UO_2 besser als eine sauerstoffarme. Das geschmolzene Zircaloy reagiert mit dem UO_2 unter Bildung einer homogenen (U,Zr,O)-Schmelze. Mit zunehmendem Sauerstoffgehalt in der Schmelze scheiden sich feste $(U,Zr)O_{2-x}$ -Partikel aus. Die maximal lösbare UO_2 -Menge in der Zircaloy-Schmelze hängt vom Anfangssauerstoffgehalt ab; je größer die Sauerstoffkonzentration desto kleiner ist die lösbare UO_2 -Menge.

Die technische Bedeutung dieser out-of-pile UO_2 /Zircaloy-Reaktions- experimente liegt in dem Nachweis, daß das Zircaloy-Hüllmaterial durch UO_2 -Brennstoff gleich schnell oxidiert werden kann wie durch Wasserdampf, und daß das UO_2 durch Reaktionen mit geschmolzenem Zircaloy weit unterhalb seines Schmelzpunktes "verflüssigt" werden kann. Dadurch ist auch mit einer erhöhten Freigabe an Spaltgas und flüchtigen Spaltprodukten zu rechnen.

Chemical Interactions between UO_2 and Zircaloy-4 from 1000 to 2000°C

Summary

The chemical interaction between solid and liquid Zircaloy-4 and solid UO_2 was examined in the temperature region 1000 to 2000°C in argon. The solid/solid reaction experiments were performed with short LWR fuel rod sections, with an external overpressure of 1 to 80 bar. The annealing times varied between 60 and 9000 s. The reaction experiments with liquid zircaloy were performed in UO_2 crucibles between 1800 and 2000°C. In addition, the wetting behavior between liquid zircaloy and UO_2 was also examined.

The extent of the chemical interaction below the melting point of zircaloy depends decisively on the solid/solid contact between fuel and cladding. If good contact exists, zircaloy reduces UO_2 to form oxygen-stabilized $\alpha\text{-Zr(O)}$ and metallic uranium. The uranium reacts with zirconium to form a (U,Zr) alloy which lies between two $\alpha\text{-Zr(O)}$ layers. The UO_2 /Zircaloy-4 reaction obeys a parabolic rate law. The rate determining step in the reaction is the diffusion of oxygen into zircaloy. The growth of the different reaction zones can be represented in an Arrhenius diagram.

The extent of the reaction between liquid zircaloy and UO_2 depends on the wetting behavior. A zircaloy melt rich in oxygen wets UO_2 better than a melt poor in oxygen. Molten zircaloy containing little or no oxygen reacts with UO_2 to form a homogeneous (U,Zr,O) melt. As the oxygen content of the melt increases, solid $(\text{U,Zr})\text{O}_{2-x}$ particles

precipitate. The maximum amount of UO_2 which can be dissolved in molten zircaloy depends on the initial oxygen content of the melt. That is, the higher the oxygen concentration, the smaller the amount of UO_2 which can be dissolved.

The technical significance of these out-of-pile UO_2 /zircaloy reaction experiments is that zircaloy cladding can be oxidized by UO_2 fuel as quickly as by steam, and that UO_2 , far below its melting point, can be "liquefied" by molten zircaloy. As a consequence, release of fission gas and volatile fission products is enhanced.

Chemische Wechselwirkungen zwischen UO_2 und Zircaloy-4 im Temperaturbereich von 1000 bis 2000°C

1. Einleitung

Die Untersuchungen des PNS zum Brennstabverhalten wurden zum größten Teil im Jahr 1973 begonnen. Sie waren, wie das gesamte deutsche Reaktorsicherheitsforschungsprogramm, zunächst schwerpunktmäßig auf Kühlmittelverluststörfälle ausgerichtet und decken einen Temperaturbereich bis etwa 1200°C und Haltezeiten bis etwa fünf Minuten ab.

Mit diesen Untersuchungen sollte der Nachweis geführt werden, daß auch bei schweren Kühlmittelverluststörfällen die Kühlbarkeit des Reaktorkerns trotz plastischer Verformung und Versprödung der Hüllrohre gewährleistet ist und die Spaltproduktfreisetzung aus defekten Brennstäben innerhalb zulässiger Grenzen bleibt.

Kühlmittelverluststörfälle gehören auch in heutigen Sicherheitsanalysen zu den wichtigsten Auslegungsstörfällen. Darüber hinaus werden aber in zunehmendem Umfang auch andere Störfälle wie kleine Lecks und spezielle Transienten untersucht, da diese nach den deutschen und amerikanischen Risikostudien aufgrund ihrer relativ hohen Eintrittswahrscheinlichkeit einen wesentlichen Beitrag zum Gesamtrisiko von Leichtwasserreaktoren liefern können. Wird bei solchen Störfällen der zeitliche Ausfall eines der angeforderten Sicherheitssysteme unterstellt, so kann es zu einer unzulässigen Überhitzung der Brennelemente und schweren Kernschäden (Severe Fuel Damage) kommen, ohne daß der Störfall zwangsläufig zu einem unkontrollierten Kernschmelzenunfall eskaliert. Ziel der Arbeiten des PNS ist es daher, die wichtigsten physikalischen und chemischen Phänomene des Brennelementsverhaltens auch jenseits der derzeit gültigen Auslegungsgrenzen im Vorfeld des Kernschmelzens zu untersuchen. Außerdem sollen die Möglichkeiten der vorhandenen Sicherheitssysteme ausgelotet werden, eine Hochtemperaturtransiente vor dem Übergang in einen unkontrollierten Kernschmelzenunfall abzufangen.

Die Arbeiten konzentrieren sich in erster Linie auf relativ langsame Transienten, die von Betriebsbedingungen bis zur Schmelztemperatur

der Zircaloy-Hüllrohre und bis zur Bildung schmelzflüssiger Phasen zwischen Hüllrohre und Brennstoff führen. Von besonderer Bedeutung ist dabei das Reaktionsverhalten zwischen UO_2 und Zircaloy-4 sowohl im festen als auch im flüssigen Zustand, über das im folgenden berichtet wird.

In den USA wurden in den vergangenen Jahren, neben Experimenten zum Kühlmittelverluststörfall, sogenannte Power Cooling Mismatch (PCM) Experimente in der Power Burst Facility (PBF) in Idaho durchgeführt /1/. Bei diesem Störfalltyp wird ein Ungleichgewichtszustand zwischen der Wärmeerzeugung und Wärmeabfuhr im Reaktorcore angenommen. Der Kühlmitteldruck bleibt dabei nahezu unverändert. Durch lokales Filmsieden auf der Hüllrohroberfläche können Temperaturen bis etwa 1500°C erreicht werden. Unter diesen Bedingungen kommt es zu einem Kollabieren des Hüllmaterials auf den Brennstoff. Die chemischen Wechselwirkungen sowohl mit dem Brennstoff als auch mit dem Kühlwasser führen zu einer Versprödung der Zircaloy-Hülle, und es kann zur teilweisen Fragmentierung der Brennstäbe kommen. Parallel zu den PCM-in-pile Experimenten in der PBF wurden umfangreiche UO_2 /Zircaloy-Reaktionsexperimente im Kernforschungszentrum Karlsruhe im Rahmen des Projektes Nukleare Sicherheit durchgeführt /2/. Eine ähnliche Arbeitsaufteilung erfolgt bei den sogenannten Severe Fuel Damage-Experimenten, bei denen der Schmelzpunkt des Zircaloy-Hüllmaterials überschritten wird.

2. Problemstellung

Bei einem Störfall, der bis zum Schmelzen der Brennstäbe führt, können folgende Reaktionen mit steigender Temperatur ablaufen: plastische Verformung und Bersten bzw. Kollabieren des Hüllrohres, Oxidation und Versprödung des Hüllmaterials, Schmelzen des metallischen Zircaloy oder der sauerstoffstabilisierten $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Phase, Bildung eines $\alpha\text{-Zr(O)}/\text{ZrO}_2$ -Eutektikums, eutektische und monotektische Reaktionen zwischen $\alpha\text{-Zr(O)}$ und UO_2 , Wechselwirkungen zwischen geschmolzenem Zircaloy und festem Brennstoff mit Zerfall und Auflösung von UO_2 , Schmelzen von UO_2 .

Um die tatsächlich ablaufenden chemischen Wechselwirkungen zwischen UO_2 und Zircaloy zu ermitteln, wurden umfangreiche Laborexperimente im Temperaturbereich zwischen 1000 und 2000 $^{\circ}\text{C}$ unter Schutzgas durchgeführt. Versuchsziel war, die entstehenden Reaktionsprodukte zu charakterisieren sowie die Reaktionskinetik zu untersuchen. Außerdem sollte festgestellt werden, was die Ursachen für die in Vorversuchen beobachtete plötzliche UO_2 -Disintegration durch flüssiges Zircaloy weit unterhalb des UO_2 -Schmelzpunktes sind. In diesem Zusammenhang wurde auch die Benetzung von UO_2 durch geschmolzenes Zircaloy-4 untersucht.

3. Versuchsdurchführung

3.1 Experimente unterhalb des Schmelzpunktes von Zircaloy-4 (<1720 $^{\circ}\text{C}$)

Die Untersuchung der UO_2 /Zircaloy-Festkörperreaktionen erfolgte an ca. 10 cm langen LWR-Brennstababschnitten. In die Zircaloy-Hüllrohre (10,72 x 0,72 mm) wurden hochdichte stöchiometrische UO_2 -Pellets eingefüllt und unter 1 bar Helium gasdicht verschweißt. Die Proben wurden in der Hochdruck/Hochtemperatur-Versuchsanlage MONA (Abb.1, 2) in Argon induktiv aufgeheizt. Nach dem Erreichen der gewünschten Versuchstemperatur kann ein Gasdruck zwischen 1 und 200 bar in der Probenkammer eingestellt werden. Die meisten Versuche wurden bei einem äußeren Überdruck von 40 bar gefahren. Die Temperaturmessung erfolgte mit einem Pyrometer ($\pm 25^{\circ}\text{C}$). Die Glühtemperaturen variierten zwischen 1000 und 1700 $^{\circ}\text{C}$, die Glühzeiten zwischen 60 und 9000 s.

3.2 Experimente oberhalb des Schmelzpunktes von Zircaloy (>1720 $^{\circ}\text{C}$)

Die Experimente erfolgten in einem Mittelfrequenz-Induktionsofen zwischen 1800 und 2000 $^{\circ}\text{C}$ unter Schutzgas. Das Zircaloy wurde in UO_2 -Tiegeln geschmolzen, die z.T. noch UO_2 -Kugeln und UO_2 -Pellets unterschiedlicher Korngröße enthielten. Die UO_2 -Tiegel befanden sich in einem W-Tiegel, der als Suszeptor diente. Die Temperaturen wurden mit einem

Pyrometer gemessen ($\pm 50^{\circ}\text{C}$). Die Experimente wurden nach unterschiedlichen Versuchszeiten abgebrochen, um das Ausmaß der chemischen Wechselwirkungen zwischen UO_2 und Zircaloy festzustellen und die Reaktionsprodukte zu identifizieren.

3.3 Benetzungsexperimente

Die Benetzung von UO_2 durch flüssiges Zircaloy wurde in einer speziellen Apparatur nach der Methode des liegenden Tropfens untersucht /3, 5/. Das zu schmelzende Material wurde auf die zu benetzende Unterlage in Form eines kleinen Zylinders aufgebracht. Als Heizquelle diente ein Hochfrequenzgenerator mit einem waagrecht angeordneten Wolfram- oder Graphitrohr als Suszeptor, der sich in einem Quarzrohr befand (Abb.3). Die Proben selbst werden mittels Wärmestrahlung aufgeheizt. Die Temperaturmessung erfolgte mit einem Pyrometer ($\pm 50^{\circ}\text{C}$). Während des Versuchs konnte der Schmelztropfen beobachtet und photographiert werden. Dadurch war es möglich, die Änderung des Benetzungswinkels in Abhängigkeit von der Zeit zu bestimmen. Neben dem Benetzungsverhalten zwischen UO_2 und Zircaloy wurden auch noch andere Systeme untersucht ($\text{UO}_2/\alpha\text{-Zr(O)}$, UO_2/U , Zry/U , $\alpha\text{-Zr(O)/U}$).

3.4 Untersuchungsmethoden

Alle Versuchsproben wurden durch lichtmikroskopische Metallographie untersucht. Darüber hinaus wurde ein Teil der Proben mit dem Rasterelektronenmikroskop sowie der Elektronenstrahl-Mikrosonde untersucht. Die Sauerstoffgehalte in den verschiedenen Reaktionszonen wurden mittels Auger-Elektronen-Spektralanalyse ermittelt.

4. Versuchsergebnisse

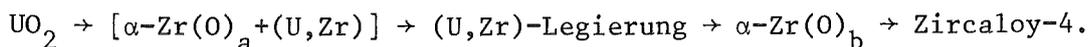
UO_2 und Zircaloy sind miteinander nicht thermodynamisch stabil. Es werden deshalb, besonders bei hohen Temperaturen, chemische Wechselwirkungen erwartet. Bei normalen Reaktorbetriebstemperaturen ist die Reaktionsgeschwindigkeit so klein, daß die UO_2/Zry -Wechselwirkungen

toleriert werden können. Bei hohen Temperaturen wird das UO_2 durch das Zircaloy unter Bildung von sauerstoffstabilisiertem $\alpha\text{-Zr(O)}$ zu metallischem Uran reduziert. Das Uran reagiert z.T. mit dem Zirkonium unter Bildung einer (U,Zr)-Legierung, die - je nach Zr-Gehalt - ab ca. 1150°C flüssig ist /2,4/.

4.1 UO_2 /Zircaloy-Reaktionen im festen Zustand

Das Ausmaß der chemischen Wechselwirkungen zwischen UO_2 und Zircaloy hängt entscheidend davon ab, ob ein Festkörperkontakt zwischen beiden Materialien existiert oder nicht. Beim Fehlen eines Festkörperkontaktes wird Sauerstoff vom UO_2 zum Zircaloy nur über die Gasphase transportiert, die resultierenden Reaktionen sind vernachlässigbar. Bis 1500°C wurden deshalb ohne äußeren Überdruck an den untersuchten Brennstababschnitten keine UO_2 /Zircaloy-Wechselwirkungen beobachtet. Oberhalb 1500°C kommt es, auch ohne äußeren Überdruck, stets zu lokalen Festkörperkontakten, da sich der Brennstoff thermisch stärker ausdehnt als das Hüllmaterial und dadurch der anfängliche Spalt verschwindet.

Unter einem äußeren Überdruck kollabiert das Hüllmaterial auf den Brennstoff, wodurch ein sehr guter Festkörperkontakt hergestellt wird. Die chemischen Wechselwirkungen sind unter diesen Bedingungen am Umfang der Proben und auch in axialer Richtung sehr gleichmäßig (Abb.4). Das durch die Reduktion des UO_2 entstandene Uran diffundiert und/oder penetriert in die $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Phase, um mit Zirkonium zu reagieren. Dadurch bildet sich im $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Bereich eine metallische (U,Zr)-Legierung, die zunächst als zusammenhängende Reaktionsproduktschicht parallel zur UO_2 /Zircaloy-Phasengrenze vorliegt. Es zeigen sich daher, vom UO_2 ausgehend, folgende Phasen:



Diese Phasen sind in Abb.4 deutlich zu erkennen und sind in Abb.5 schematisch dargestellt.

Die entstehende (U,Zr)-Legierung kann oberhalb 1150°C flüssig sein

und wird dann, infolge des äußeren Überdruckes, in Leervolumina wie z.B. Dishingohlräume gedrückt (Abb.6). Durch die Sauerstoffaufnahme des Hüllmaterials versprödet dieses bei hohen Temperaturen sehr schnell, und beim Abkühlen der Proben entstehen infolge mechanischer Spannungen eine Vielzahl von Rissen (Abb.6). Bereits geringe Kräfte auf die oxidierten LWR-Brennstababschnitte führen deshalb zu ihrer Fragmentierung.

Während die (U,Zr)-Legierung im α -Zr(O)-Bereich zunächst eine geschlossene Reaktionszone bildet, löst sich diese bei großen Sauerstoffgehalten im α -Zr(O) auf. Es bilden sich dadurch kleinere und größere (U,Zr)-Kavernen im α -Zr(O)-Gefüge (Abb.7). Der Zr-Gehalt in der (U,Zr)-Legierung nimmt i.a. mit zunehmendem Sauerstoffgehalt in der umgebenden α -Zr(O)-Matrix ab.

Rasterelektronenmikroskopische Untersuchungen an der UO_2 /Zircaloy-Phasengrenze lassen deutlich die starke Bildung von Uran an den UO_2 -Korngrenzen erkennen (Abb.8). Dadurch wird der UO_2 -Kornverband z.T. vollständig zerstört, was von besonderer Bedeutung ist, wenn der Schmelzpunkt von α -Zr(O) erreicht wird. Diese UO_2 -Bereiche werden dann sofort in der Schmelze dispergiert und anschließend chemisch aufgelöst. Metallisches Uran kann man über den gesamten UO_2 -Pelletquerschnitt verteilt beobachten (Abb.9). Genauere Untersuchungen lassen jedoch erkennen, daß der Gehalt metallischen Urans im UO_2 -Gefüge zur UO_2 /Zircaloy-Phasengrenze hin zunimmt (Abb.9). Während der größte Teil des Urans sich beim Abkühlen des unterstöchiometrischen UO_2 bildet (Zerfall des UO_{2-x} in $\text{U}_{2.00} + \text{U}$), entsteht ein Teil während des Glühexperimentes infolge Reduktion des UO_2 .

Das Hauptziel der Experimente war, die UO_2 /Zircaloy-Reaktionskinetik zu beschreiben. Es wurde deshalb die Dicke der einzelnen Reaktionszonen in Abhängigkeit von der Temperatur und Zeit bestimmt. Die sauerstoffstabilisierten α -Zr(O)-Phasen sind nur mit polarisiertem Licht gut zu erkennen (Abb.10), das daher zur mikroskopischen Ausmessung der Reaktionszonen verwendet wurde. Abb.11 zeigt die Schichtdicken aufgetragen über \sqrt{t} . Die Reaktionen verlaufen nach einem parabolischen Zeitgesetz. Erreicht die α -Zr(O)_b-Phase die Hüllrohräußenoberfläche,

so kann sie nicht mehr zunehmen, obwohl der Sauerstoffgehalt in der Phase noch ansteigt. Für eine Arrheniusdarstellung der Schichtwachstumskonstanten (\bar{x}^2/t) wird nur der parabolische Teil der Kurven berücksichtigt. Die Ergebnisse sind in Abb.12 dargestellt.

Experimente bei unterschiedlichem äußerem Überdruck ($p_a = 1$ bis 80 bar) haben ergeben, daß die Reaktionskinetik zwischen UO_2 und Zircaloy oberhalb etwa 10 bar unabhängig vom Festkörperkontaktdruck ist.

Die Ergebnisse von Auger-Elektronenspektroskopie-Untersuchungen sind in Abb.13 dargestellt. Es ist der Sauerstoffgehalt im oxidierten Zircaloy sowie in der (U,Zr)-Legierung aufgetragen. Man erkennt, daß mit zunehmender Reaktionszeit der Sauerstoffgradient verschwindet, und daß die (U,Zr)-Legierung in das α -Zr(O)-Gefüge wandert. Ab einem bestimmten Sauerstoffgehalt im α -Zr(O) oder beim Verschwinden des Sauerstoffgradienten geht die Schichtstruktur der (U,Zr)-Legierung verloren. Es bilden sich unter diesen Bedingungen, wie bereits erwähnt, (U,Zr)-Kavernen im α -Zr(O). Der maximale Sauerstoffgehalt der im α -Zr(O) erreicht wird beträgt etwa 6 Gew.-%. Der Sauerstoffgehalt in der (U,Zr)-Legierung liegt unterhalb 0,5 Gew.-%.

4.2 Wechselwirkungen von geschmolzenem Zircaloy mit festem UO_2

Die UO_2 -Tiegelexperimente mit geschmolzenem Zircaloy und UO_2 -Kugeln bzw. UO_2 -Pellets mit unterschiedlichen Korngrößen ergaben keinen Hinweis für eine rein physikalische Einwirkung des Zircaloy entlang der UO_2 -Korngrenzen. Das flüssige Zircaloy penetriert in das UO_2 nur entlang von Rissen (Abb.14). Das UO_2 wird durch das Zircaloy reduziert. Es entsteht bei niedrigen Sauerstoffgehalten eine homogene (U,Zr,O)-Schmelze. Während der Abkühlung zersetzt sich die Schmelze in sauerstoffstabilisiertes α -Zr(O) und in eine (U,Zr)-Legierung mit hohem Urangehalt. Beide Phasen sind metallisch und sind daher erst nach leichter Oxidation der (U,Zr)-Legierung zu erkennen und zu unterscheiden (Abb.14).

Mit zunehmendem Sauerstoffgehalt in der Schmelze, d.h. mit zunehmender Reaktionszeit, nimmt die Löslichkeit für Uran ab. Es kommt daher ab einem bestimmten Sauerstoffgehalt, der von der Temperatur abhängt, zum Ausscheiden fester $(U,Zr)O_2$ -Partikel aus der Schmelze. Es bildet sich ein Flüssig/fest-Phasengemisch, das sich bis zu großen $(U,Zr)O_2$ -Gehalten wie eine Schmelze verhält /5/. Anhand der z.T. dendritischen Struktur der $(U,Zr)O_2$ -Partikel in der erstarrten Schmelze kann man grob abschätzen, welcher Teil der Partikel während der Reaktionsglühung und welcher Teil bei der Abkühlung entstand.

Die Experimente mit UO_2 -Kugeln lassen sehr gut erkennen, wie durch die Bildung von metallischem Uran im Gefügebinnen das UO_2 von der Oberfläche ausgehend zerfällt (Abb.15). Die UO_2 -Partikel, die deutlich kleiner sind als die UO_2 -Korngröße, werden rasch unter Bildung der bereits erwähnten (U,Zr,O) -Schmelze aufgelöst.

Die Experimente mit UO_2 -Tiegeln, die nur geschmolzenes Zircaloy enthielten, zeigten das folgende makroskopische Reaktionsverhalten. Unmittelbar nach dem vollständigen Schmelzen des Zircaloy bildet sich ein großer Tropfen, der den Tiegelboden schlecht benetzt (Abb.16). Mit zunehmender Reaktionszeit verbessert sich das Benetzungsverhalten der Schmelze gegenüber dem UO_2 infolge chemischer Wechselwirkungen. Die Schmelze kriecht sogar an den Tiegelwänden hoch und dringt in UO_2 -Risse ein. Nach einer bestimmten Reaktionszeit kommt es zu einem plötzlichen Zerfall des UO_2 -Tiegelbodens (Abb.16). Das UO_2 wird in der Schmelze dispergiert und anschließend chemisch aufgelöst.

Die chemische Zusammensetzung der Schmelze ändert sich infolge der Reaktion mit dem UO_2 kontinuierlich. Zunächst bildet sich eine homogene (U,Zr,O) -Schmelze. Mit zunehmendem Sauerstoffgehalt scheiden sich dann $(U,Zr)O_2$ -Partikel aus (Abb.17). Das thermodynamisch stabile Endprodukt der UO_2 /Zircaloy-Wechselwirkungen ist bei ca. $2000^\circ C$ ein fester $(U,Zr)O_{2-x}$ -Mischkristall. D.h. die Schmelze erstarrt infolge überwiegender Sauerstoffaufnahme aus dem UO_2 nach einiger Zeit wieder.

4.3 Benetzungsverhalten zwischen geschmolzenem Zircaloy und festem UO_2

Da das Ausmaß der UO_2 /Zry-Wechselwirkungen auch von dem Benetzungsverhalten abhängt, wurde die Benetzung von festem UO_2 durch flüssiges Zircaloy untersucht. Das Benetzungsverhalten bei etwa $1900^\circ C$ in Abhängigkeit von der Zeit ist in Abb. 18 dargestellt. Man spricht von schlechter Benetzung, wenn der Benetzungswinkel größer 90° ist, und von guter Benetzung bei Winkeln kleiner 90° (Abb. 19). Demnach benetzt sauerstoffarmes Zircaloy das UO_2 schlecht (Abb. 18, Pos. 2). Mit zunehmender Kontaktzeit verbessert sich das Benetzungsverhalten. Die Ursache ist in der Sauerstoffaufnahme der Schmelze infolge chemischer Wechselwirkung mit dem UO_2 zu suchen. Die chemische Zusammensetzung der Schmelze ändert sich kontinuierlich, schließlich werden auch Oxid-Partikel in der Schmelze ausgeschieden, die zu der rauhen Oberflächenkontur des Tropfens führen (Abb. 18, Pos. 7 und 8). Der Sauerstoffgehalt der Schmelze in Abhängigkeit von der Zeit ist in /5/ angegeben.

Die quantitativen Ergebnisse von zwei Benetzungsversuchen bei 1800 und $1920^\circ C$ sind in Abb. 20 dargestellt. Man erkennt deutlich, wie durch die Sauerstoffaufnahme das Benetzungsverhalten verbessert wird. Der Übergang entspricht einer Sauerstoffkonzentration von etwa 1 Gew.-%. Man erkennt außerdem, wie sich mit zunehmender Temperatur das Benetzungsverhalten verbessert.

Wird anstelle von sauerstoffarmem Zircaloy sauerstoffhaltiges α -Zr(O) genommen, so ist die Benetzung des UO_2 durch die (Zr,O)-Schmelze von Anfang an sehr gut (Abb. 20).

Aus Abb. 18 kann man auch entnehmen, daß sich mit zunehmender Benetzung die Kontaktfläche Schmelze/ UO_2 vergrößert. Die Vergrößerung beträgt hier etwa den Faktor 4.

Die Bestimmung der Oberflächen- und Grenzflächenenergien ist in /5/ dokumentiert. Die anderen untersuchten Systeme UO_2/U , Zry/U und α -Zr(O)/U dienen dazu, die Gesamtgrenzflächenenergie des UO_2 /Zircaloy-Reaktionssystems zu bestimmen /7/. Es konnte dadurch gezeigt wer-

den, daß die beobachtete Phasenordnung energetisch günstiger ist als jede andere denkbare Phasenreihenfolge. Die Phasenreihenfolge konnte auch durch Phasendiagramm-Betrachtungen erklärt werden /2,8/.

5. Diskussion

Die Oxidation des festen Zircaloy-4 durch UO_2 erfolgt bis zum Schmelzpunkt des Hüllmaterials nach einem parabolischen Zeitgesetz. Es ist daher möglich, die UO_2 /Zircaloy-Reaktionen quantitativ zu beschreiben. Die analytischen Beziehungen der parabolischen Geschwindigkeitskonstanten (x^2/t) für das Wachstum der verschiedenen Reaktionsschichten sind in Abb.12 wiedergegeben. Zur Beschreibung des Brennstabverhaltens bei hohen Temperaturen ist von primärem Interesse nicht die Dicke der Gesamtreaktionszone, sondern derjenigen Zone des Hüllrohres, die durch die Sauerstoffaufnahme chemisch beträchtlich verändert wird, d.h. versprödet. Um diese Dicke angeben zu können, ist es wichtig zu wissen, wo die ursprüngliche UO_2 /Zircaloy-Phasengrenze liegt. Sogenannte Marker-Experimente mit dünnen Wolframdrähten und -blechen an der UO_2 /Zircaloy-Phasengrenze ergaben, daß diese der $\alpha\text{-Zr(O)}_a$ /(U,Zr)-Phasengrenze entspricht /2/. Die Dicke der Reaktionszone III (Abb.5, 12) wurde daher korrigiert, d.h. von der Reaktionszone III wurde die Reaktionszone I ($\alpha\text{-Zr(O)}_a$) abgezogen. Das Ergebnis ist in Abb.12 ebenfalls graphisch dargestellt, unter Angabe der analytischen Beziehung für den Einsatz in Rechenprogrammen [$x^2/t = 0,44 \exp(-42900/RT)$].

Die parabolischen Geschwindigkeitskonstanten (x^2/t) für das Wachstum der drei Reaktionsschichten (Abb.12) sind eigentlich nur für die sauerstoffstabilisierten Phasen $\alpha\text{-Zr(O)}_a$ und $\alpha\text{-Zr(O)}_b$ sinnvoll, wenn auch die Schichtdicke der (U,Zr)-Legierung in großen Temperatur- und Zeitbereichen ebenfalls nach einem parabolischen Zeitgesetz zu wachsen scheint. Die Abnahme der relativen (U,Zr)-Schichtdicke zwischen 1000 und 1400°C und die nachfolgende Zunahme bei höheren Temperaturen (Abb.12) kann wie folgt erklärt werden. Oberhalb etwa 1150°C ist die (U,Zr)-Phase schichtförmig und flüssig und wird daher durch den äußeren Überdruck z.T. in Brennstabhohlräume (UO_2 -Dishingvolumen) ge-

preßt. Die (U,Zr)-Schicht wächst daher nicht entsprechend dem UO_2 /Zircaloy-Reaktionsumsatz. Oberhalb 1400°C bilden sich bereits nach kurzer Glühzeit (U,Zr)-Kavernen im $\alpha\text{-Zr(O)}_b$, wodurch die flüssige (U,Zr)-Phase nicht mehr entweichen kann.

Der geschwindigkeitsbestimmende Schritt bei der UO_2 /Zircaloy-Reaktion ist die Sauerstoffdiffusion in das Zircaloy. Dies wird durch die gute Übereinstimmung der Aktivierungsenergie für die Zircaloy-Oxidation durch UO_2 und durch Wasserdampf bestätigt. So beträgt die Aktivierungsenergie der Zircaloy/ UO_2 -Reaktion für das Wachstum der $\alpha\text{-Zr(O)}_b$ -Schicht ca. 42900 cal/Mol und bei der Zircaloy/Wasserdampf-Reaktion für das Wachstum der $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Schicht ca. 43600 cal/Mol und für das Wachstum der $[\text{ZrO}_2 + \alpha\text{-Zr(O)}]$ -Doppelschicht ca. 44000 cal/Mol /9/.

Während der Abkühlung der UO_2 /Zircaloy-Reaktionsproben (10 cm lange Brennstababschnitte) und bei der nachfolgenden Handhabung kann es infolge Versprödung der Zircaloy-Hülle durch die stattgefundene $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Bildung zum Auseinanderbrechen kommen. Legt man die Versprödungskriterien ^{+) von Chung und Kassner /10/ zugrunde, so stimmen die entsprechenden Erwartungen gut mit den eigenen Beobachtungen überein. Die kritischen Sauerstoffgehalte in der Zircaloy-Hülle, oberhalb deren es zu einer Fragmentierung der Brennstababschnitte kommt, werden durch Reaktion mit dem UO_2 unter isothermen Bedingungen bei 1400°C nach ca. 53 min, bei 1500°C nach 26 min, bei 1600°C nach ca. 10 min und bei 1700°C nach ca. 4,3 min erreicht.}

Da die Innenoxidation der Zircaloy-Hülle durch den Brennstoff etwa genau so schnell erfolgt wie die Außenoxidation durch den Wasserdampf im LWR-Kühlsystem, und da beide Reaktionen einem parabolischen Zeit-

^{+) Das Zircaloy-Hüllmaterial ist dann versprödet, wenn die Dicke der β -Phase mit einem Sauerstoffgehalt $\leq 0,9$ Gew.-% kleiner als 0,1 mm ist /10/.}

gesetz gehorchen, erfolgt die Versprödung des Hüllmaterials bei beidseitiger Oxidation um den Faktor 4 schneller, als bei Vernachlässigung der Innenoxidation erwartet würde.

Ein Teil des UO_2 kann durch die Reaktionen mit dem Zircaloy vollständig aufgelöst werden. Das hat zur Folge, daß in entsprechend überhitzten LWR-Brennstäben das in diesem Brennstoffanteil befindliche Spaltgas sowie die flüchtigen Spaltprodukte (z.B. Jod) vollständig freigesetzt werden und u.U. aus dem Brennstab entweichen können.

Ist die Zircaloy-Hülle geschmolzen, so ist für intensive Wechselwirkungen mit dem UO_2 -Brennstoff das Benetzungsverhalten von Bedeutung. Sauerstoffarmes Zircaloy benetzt das UO_2 nur sehr schlecht. Das hat zur Folge, daß die chemischen Wechselwirkungen zwischen der Schmelze und dem festen UO_2 zunächst nur gering sind. Durch Sauerstoffaufnahme der Zircaloy-Schmelze nimmt die Benetzung und damit auch die Kontaktfläche zwischen der Zircaloy-Schmelze und dem UO_2 -Brennstoff stark zu. Dadurch wird die Reaktionsrate der Hüllschmelze mit dem Brennstoff erhöht und ihre Ablaufgeschwindigkeit am Brennstab vermindert. Diese kann durch Ausscheidung von Oxidpartikeln bei hohem Sauerstoffgehalt weiter reduziert werden. Letztlich kann die Schmelze durch Sauerstoffaufnahme unter Bildung eines $(U,Zr)O_2$ -Mischkristalls vollständig erstarrten. Weitere mögliche Gründe für die Erstarrung der Zircaloy-Schmelze sind das Aufbrauchen der Schmelze unter Zurücklassung eines rasch oxidierten Oberflächenfilms sowie trivialerweise die Temperaturabnahme beim Herunterlaufen am Brennstoff infolge eines axialen Temperaturgradienten. Die sauerstoffhaltige, gut benetzende Schmelze wird auch in UO_2 -Risse eindringen und dort reagieren, wodurch der spezifische Reaktionsumsatz stark erhöht wird. Diese Phänomene wurden alle bei Abschmelzexperimenten von LWR-Brennstabsimulatoren beobachtet /11/.

Mit zunehmendem Sauerstoffgehalt in der Zircaloy-Schmelze nimmt allerdings die Lösungstendenz für UO_2 ab. Die maximale Löslichkeit von UO_2 in flüssigem Zircaloy in Abhängigkeit von der Temperatur und vom anfänglichen Sauerstoffgehalt der Schmelze muß noch experimentell bestimmt werden.

Alle Experimente wurden hier unter Schutzgas durchgeführt. Unter oxidierenden Bedingungen nimmt die Zircaloy-Hülle auch Sauerstoff aus der Umgebung auf. Die chemischen Wechselwirkungen zwischen Zircaloy und UO_2 werden deshalb nicht mehr das gleiche Ausmaß zeigen. Bei einem hypothetischen schweren Reaktorstörfall kann jedoch im oberen Corebereich ebenfalls eine nichtoxidierende Umgebung vorliegen. Denn bei sehr hohen Brennstabtemperaturen wird der in den unteren Corebereich eintretende Wasserdampf dort bereits vollständig mit den Zircaloy-Hüllrohren unter Bildung von Wasserstoff reagieren.

Die bei den Tiegelexperimenten beobachtete plötzliche Auflösung des UO_2 nach einer bestimmten Reaktionszeit bei ca. $2000^\circ C$ (Abb. 16) kann wie folgt erklärt werden. Das UO_2 wird infolge Sauerstoffabgabe an das geschmolzene Zircaloy zu unterstöchiometrischem UO_{2-x} reduziert. Nach Unterschreiten der unteren UO_{2-x}/U -Phasengrenze bildet sich in dem bis dahin einphasigen UO_{2-x} metallisches Uran, bevorzugt an den Korngrenzen. Das Uran ist flüssig. Wird ein bestimmter Anteil dieses Urans im UO_{2-x} -Gefüge überschritten, so kommt es zu einer Disintegration des Gefüges (Abb. 21). Die Brennstoffpartikel werden dann aufgrund ihrer großen spezifischen Oberfläche schnell aufgelöst. Der Brennstoff wird durch diesen Vorgang bereits weit unterhalb seines Schmelzpunktes "verflüssigt". Welche Mengen an UO_2 davon erfaßt werden können, hängt von der Schmelzmenge, dem anfänglichen Sauerstoffgehalt der Zircaloy-Schmelze und der Temperatur ab. Zunächst bildet sich eine homogene (U,Zr,O)-Schmelze, aus der mit zunehmendem Sauerstoffgehalt $(U,Zr)O_{2-x}$ -Partikel ausgeschieden werden.

Bei den Experimenten mit flüssigen Phasen muß man beachten, daß große Unterschiede zwischen den nachträglichen Beobachtungen bei Raumtemperatur und den Zuständen während der Reaktionsglühungen auftreten können. So zerfällt die (U,Zr,O)-Schmelze bei der Abkühlung in α -Zr(O) und eine (U,Zr)-Phase. Die $(U,Zr)O_{2-x}$ -Partikel zerfallen in $(U,Zr)O_{2,00}$ und ebenfalls eine (U,Zr)-Phase. Unter Gleichgewichtsbedingungen müßte das $(U,Zr)O_2$ noch weiter zerfallen. Dies wurde hier jedoch nicht beobachtet. Obwohl man bei den Reaktionsexperimenten i.a. keine Gleichgewichtszustände erwarten kann, stimmen die übrigen beobachteten Phasen mit den Phasendiagrammen gut überein /5/.

6. Zusammenfassung und Schlußfolgerungen

- Zircaloy reduziert UO_2 unter Bildung von sauerstoffstabilisiertem $\alpha\text{-Zr(O)}$ und Uran. Das Uran reagiert mit dem Zirkonium unter Bildung einer (U,Zr)-Legierung, die bei geringen Zr-Gehalten oberhalb 1150°C flüssig ist. Die Reduktion des UO_2 durch festes Zircaloy erfolgt nur bei starkem Festkörperkontakt.
- Die beobachtete Phasenreihenfolge
$$\text{UO}_2 \rightarrow [\alpha\text{-Zr(O)}_a + (\text{U,Zr})] \rightarrow (\text{U,Zr})\text{-Legierung} \rightarrow \alpha\text{-Zr(O)}_b \rightarrow \text{Zircaloy}$$
ist für alle Temperaturen und Glühzeiten gleich.
- Die UO_2 /Zircaloy-Reaktionen verlaufen nach einem parabolischen Zeitgesetz. Der geschwindigkeitsbestimmende Schritt ist die Sauerstoffdiffusion in das Zircaloy.
- Die Oxidationsgeschwindigkeit der Zircaloy-Hülle durch den UO_2 -Brennstoff, d.h. das Wachstum der $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Phase entspricht nahezu der Oxidationsgeschwindigkeit durch Wasserdampf.
- Der maximale Sauerstoffgehalt im $\alpha\text{-Zr(O)}$ beträgt etwa 6 Gew.-%. Durch die große Sauerstoffaufnahme versprödet das Zircaloy. Während der Abkühlung oder bei der Handhabung zerbrechen die Versuchsproben sehr leicht.
- Die Intensität des chemischen Angriffs von UO_2 durch geschmolzenes Zircaloy hängt von dem Benetzungsverhalten der Schmelze ab. Mit zunehmendem Sauerstoffgehalt in der Zircaloy-Schmelze verbessert sich das Benetzungsverhalten gegenüber dem UO_2 . Gleichzeitig vergrößert sich die Kontaktfläche Zircaloy/ UO_2 .
- Flüssiges Zircaloy reduziert das UO_2 unter Bildung einer homogenen (U,Zr,O)-Schmelze. Mit zunehmender Reaktionszeit, d.h. ansteigendem Sauerstoffgehalt in der Schmelze scheiden sich $(\text{U,Zr})\text{O}_{2-x}$ -Partikel aus, und es entsteht ein Flüssig/fest-Phasengemisch. Dieses Phasengemisch hat bis zu hohen $(\text{U,Zr})\text{O}_{2-x}$ -Konzentrationen einen flüssigen Charakter.

- Beim Einwirken von flüssigem Zircaloy auf UO_2 bei ca. $2000^{\circ}C$ kann es nach einer bestimmten Zeit zu einem plötzlichen Zerfall des festen UO_2 kommen. Das UO_2 wird dadurch weit unterhalb seines Schmelzpunktes "verflüssigt". Die Ursache ist die Bildung von flüssigem Uran an den Korngrenzen von UO_{2-x} .
- Die technische Bedeutung dieser out-of-pile UO_2 /Zircaloy-Reaktionsexperimente liegt vor allem in den folgenden Erkenntnissen im Hinblick auf hypothetische schwere LWR-Störfälle: Das Zircaloy-Hüllmaterial kann durch UO_2 -Brennstoff gleich schnell oxidiert werden wie durch Wasserdampf, so daß die erforderliche Zeit bis zur Hüllmaterialverbrödung stark reduziert wird (etwa um den Faktor 4). Der UO_2 -Brennstoff kann durch abschmelzendes Zircaloy-Hüllmaterial bereits etwa $800^{\circ}C$ unterhalb seines Schmelzpunktes "verflüssigt" werden. Dadurch ist auch mit einer erhöhten Freigabe an Spaltgas und flüchtigen Spaltprodukten zu rechnen.

7. Literatur

- /1/ P.Haas et al.:
Response of unirradiated and irradiated PWR fuel rods tested under PCM conditions,
Nucl.Safety, 19, (1978) 440
- /2/ P.Hofmann, C. Politis:
The kinetics of the UO_2 /zircaloy reactions at high temperatures,
J. Nucl.Mater., 87 (1979) 375
- /3/ P.Nikolopoulos:
Bestimmung von Grenzflächenenergien für Oxid-Metall-Kombinationen
KfK 2038 (1974)
- /4/ P.Hofmann, D.Kerwin:
Preliminary results of UO_2 /Zircaloy-4 experiments under Severe Fuel Damage conditions,
IAEA Specialists' Meeting on "Water Reactor Fuel Element Performance Computer Modeling", Preston, England, March 14 - 19 (1982)
- /5/ P.Hofmann, D. Kerwin-Peck, P.Nikolopoulos:
Physical and chemical phenomena associated with the dissolution of solid UO_2 by molten Zircaloy-4,
6th International Conference on "Zirconium in the Nuclear Industry", Vancouver, Canada, 28 Juni - 1 July (1982)

- /6/ P.Hofmann et al.:
Mechanisches und chemisches Verhalten von Zircaloy-4-Hüllrohren
und UO₂-Brennstoff bei hohen Temperaturen,
PNS-Jahresbericht 1981, KfK 3250 (1982) Seite 4200/165
- /7/ P.Hofmann, D.Kerwin-Peck, P.Nikolopoulos:
Bestimmung der Grenzflächenenergien in dem Diffusionssystem U-Zr-O,
J.Nucl.Mater., demnächst
- /8/ D.R.Olander:
The UO₂/Zircaloy chemical interaction,
J.Nucl.Mater., demnächst
- /9/ S.Leistikow, G.Schanz, H.v.Berg,
Kinetik und Morphologie der isothermen Dampf-Oxidation von Zircaloy-4 bei 700 - 1300 °C,
KfK 2587 (1978)
- /10/ H.M.Chung, T.F.Kassner,
Embrittlement criteria for zircaloy fuel cladding applicable to
accident situation in LWRs,
NUREG/CR-1344, ANL-79-48 (1980)
- /11/ S.Hagen, P.Hofmann, H.Malauscek, C.Politis, A.Skokan
Phenomena and material behavior during meltdown of PWR fuel rods.
OECD/NEA Specialists Meeting on "The Behavior of LWR Fuel Elements
under Accident Conditions",
Spätind, Norwegen (1976)

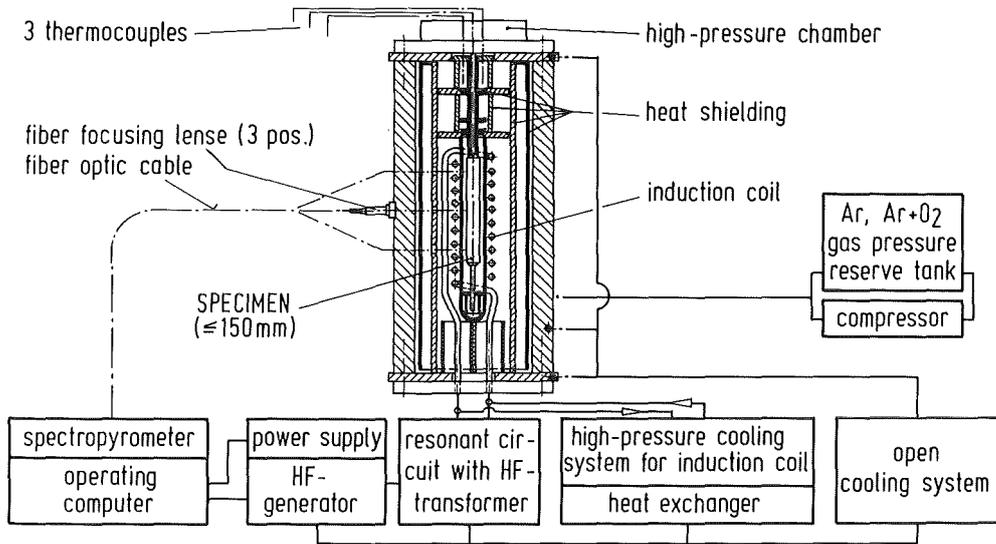


Abb. 1: Skizze der Hochtemperatur-Hochdruck-Versuchsanlage MONA. Maximale Temperatur ca. 2000°C, maximaler Druck 200 bar.

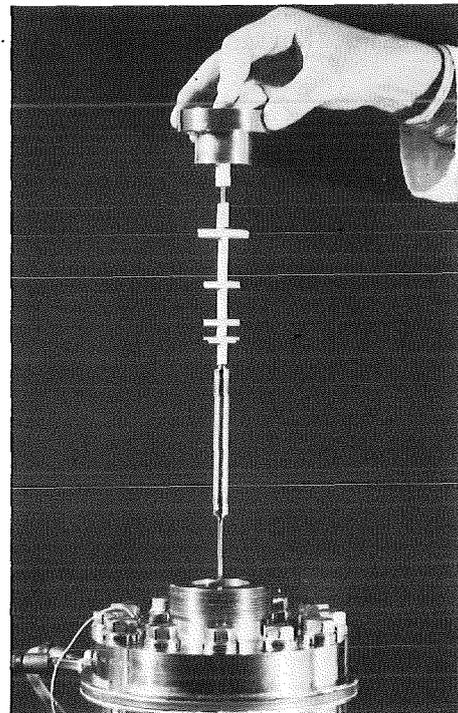
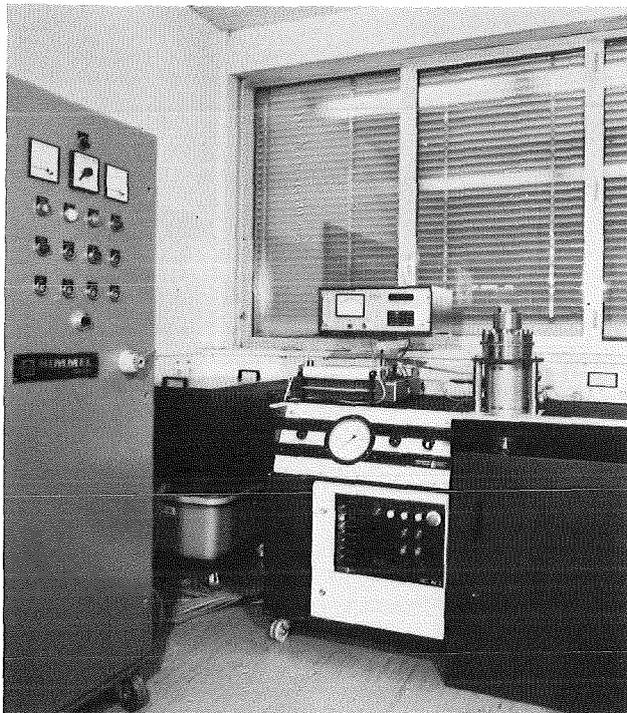


Abb. 2: Versuchsanlage MONA mit Hochfrequenzgenerator und Kühlsystem für Induktionsspule (links). Versuchsprobe mit Abschirmkeramik vor dem Einbau in den Autoklaven (rechts).

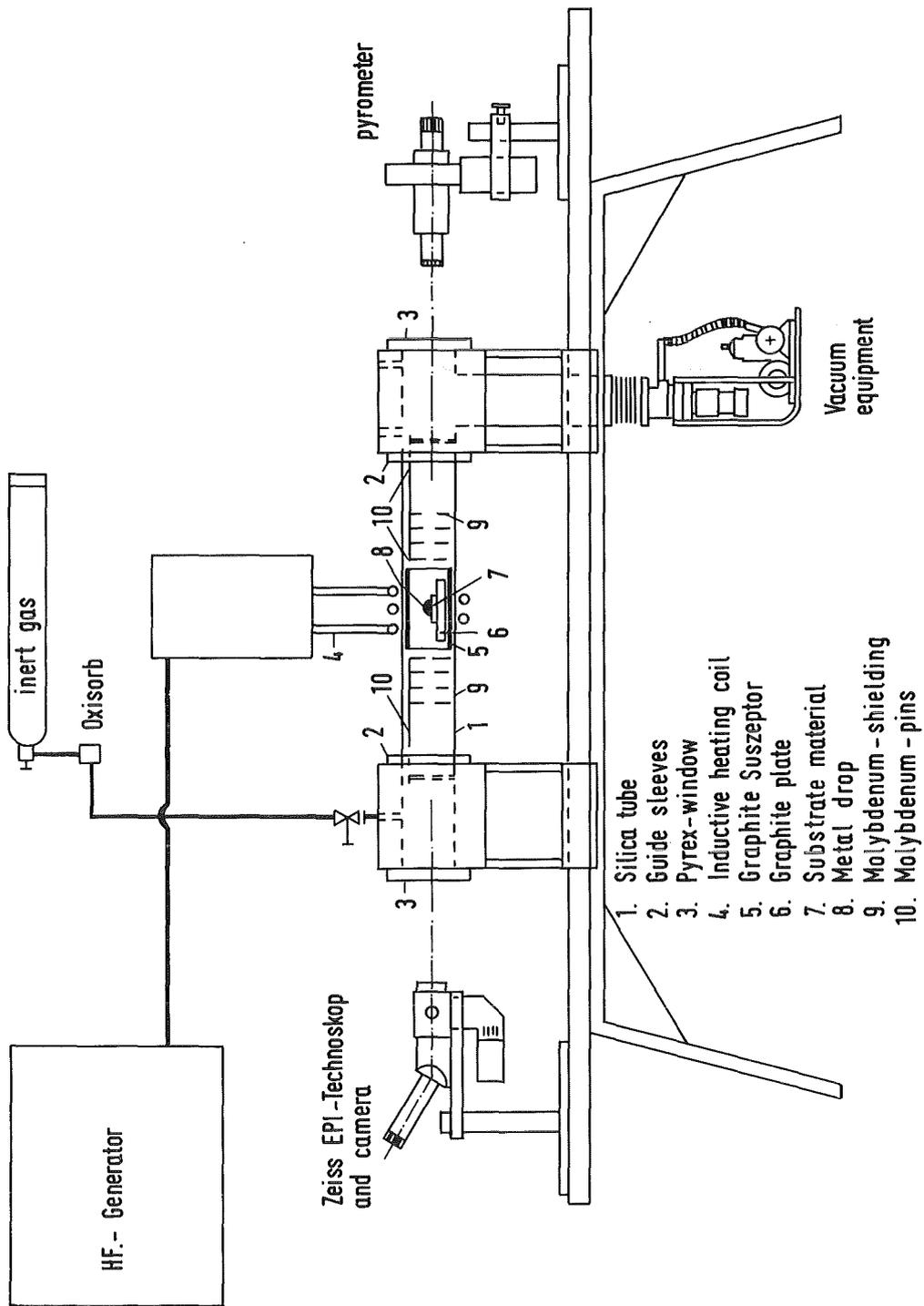


Abb. 3: Versuchsanordnung zur Bestimmung des Benetzungswinkels zwischen geschmolzenem Zircaloy und UO_2

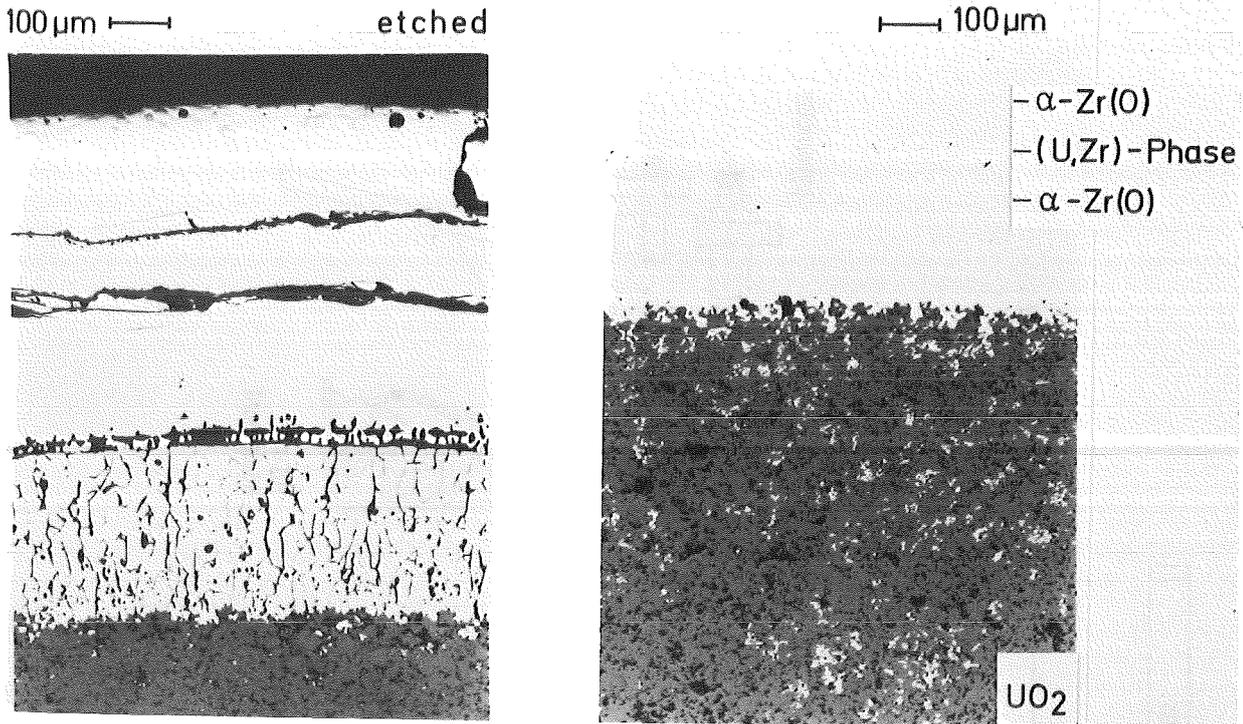


Abb. 4: Chemische Wechselwirkungen zwischen UO_2 und Zircaloy-4 nach Glühung bei $1400^\circ C$ für 1800 s ($\Delta p \approx 70$ bar). Man erkennt deutlich die Ausbildung der verschiedenen Reaktionszonen, die alle metallischen Charakter haben. Außerdem ist metallisches Uran im gesamten UO_2 -Querschnitt festzustellen.

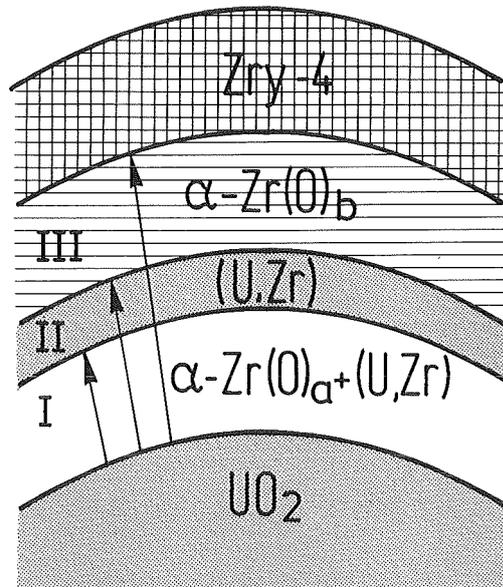


Abb. 5: Schematische Darstellung der UO_2 /Zircaloy-Reaktionszonen. Die (U,Zr)-Legierung ist zwischen zwei $\alpha-Zr(O)$ -Phasen angeordnet. Die $\alpha-Zr(O)_a$ -Phase enthält, im Gegensatz zur $\alpha-Zr(O)_b$ -Phase, noch Uran-Einschlüsse.

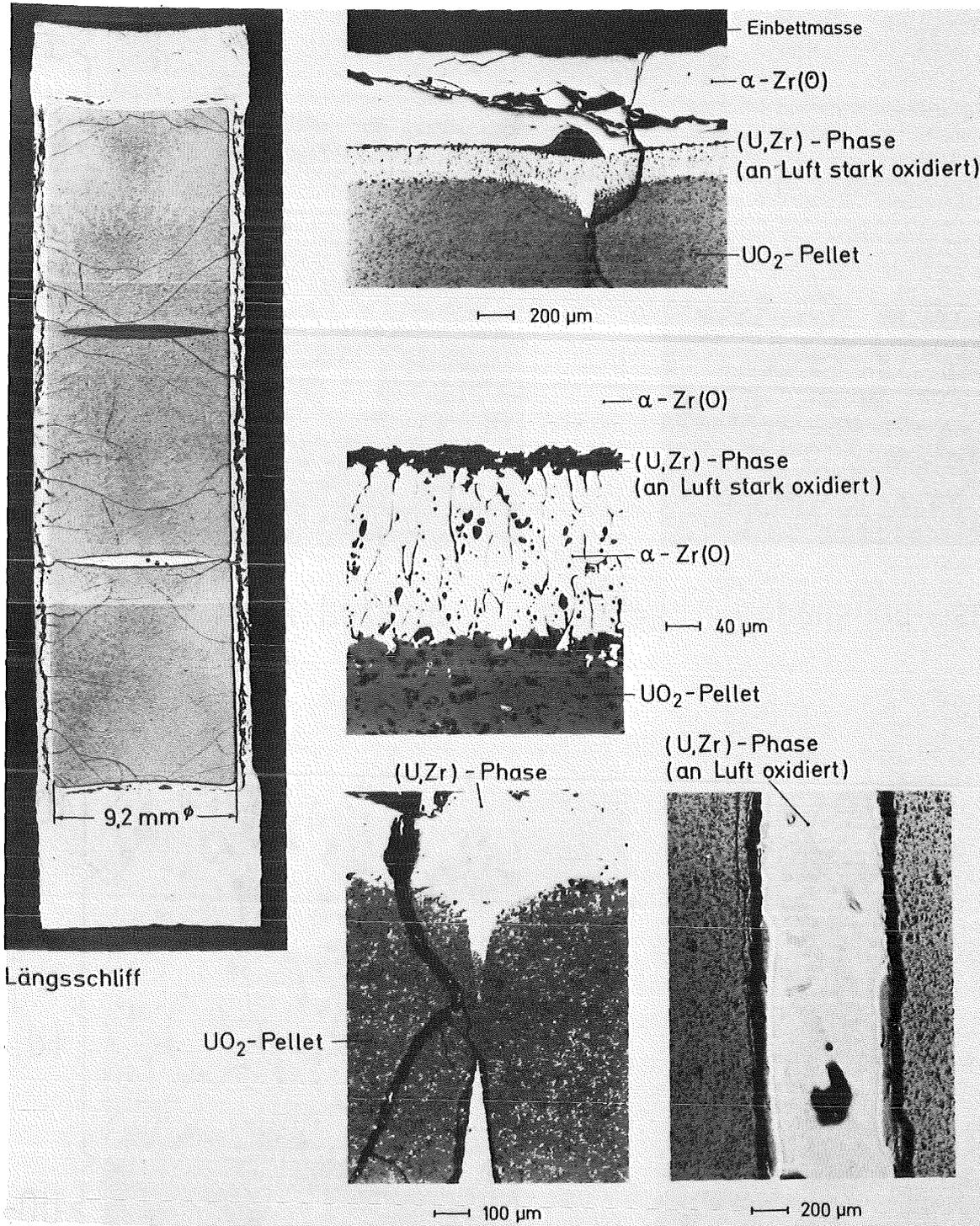


Abb. 6: Chemische Wechselwirkungen zwischen UO_2 und Zircaloy nach Reaktionsglühung bei 1400°C für 1800 s (der Differenzdruck zwischen Umgebungsdruck und Probeninnendruck betrug ca. 70 bar). Es bildet sich eine flüssige Phase, die in die Dishinghohlräume der UO_2 -Pellets eindringt. Das Zircaloy ist durch die Sauerstoffaufnahme aus dem UO_2 total versprödet.

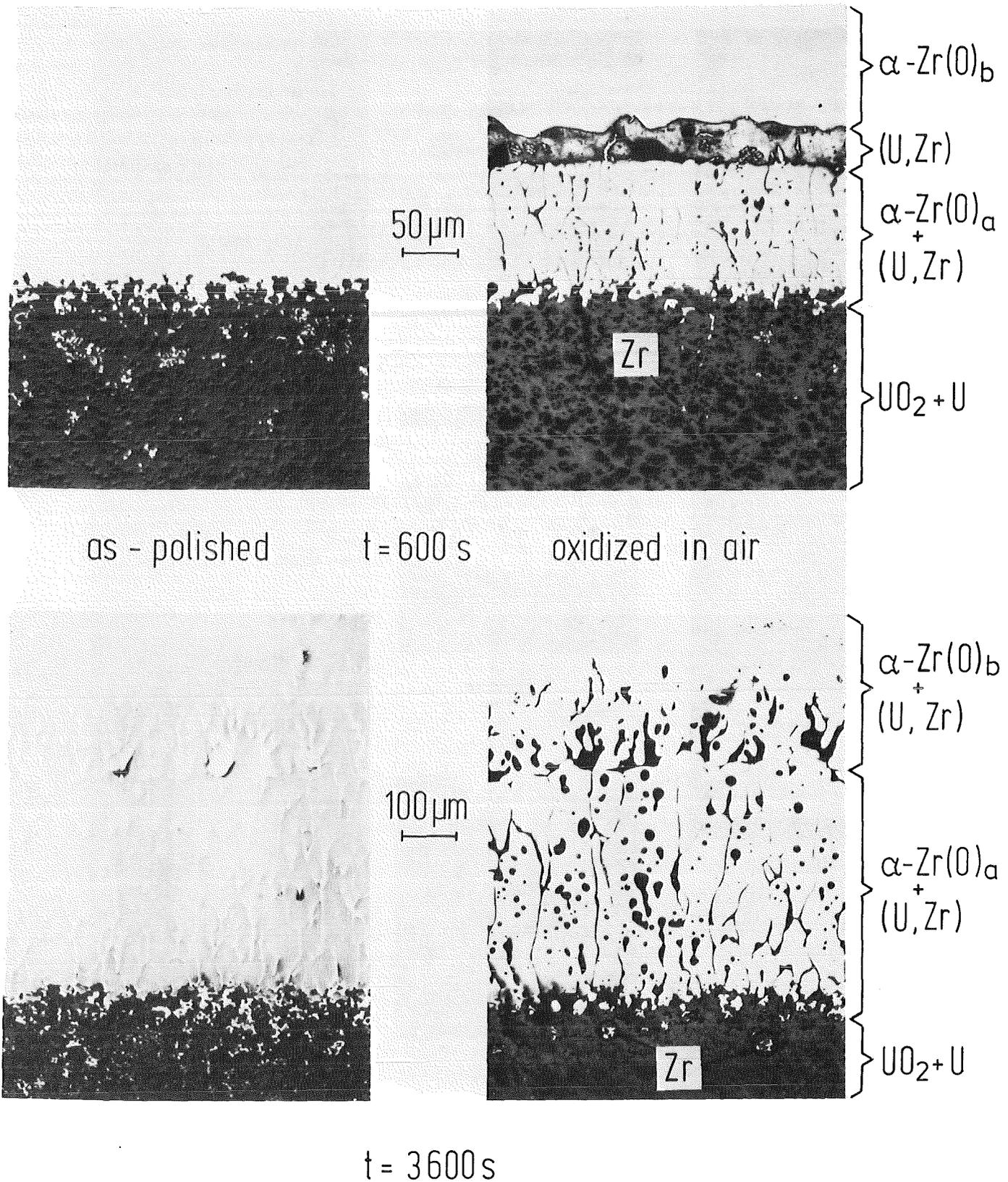
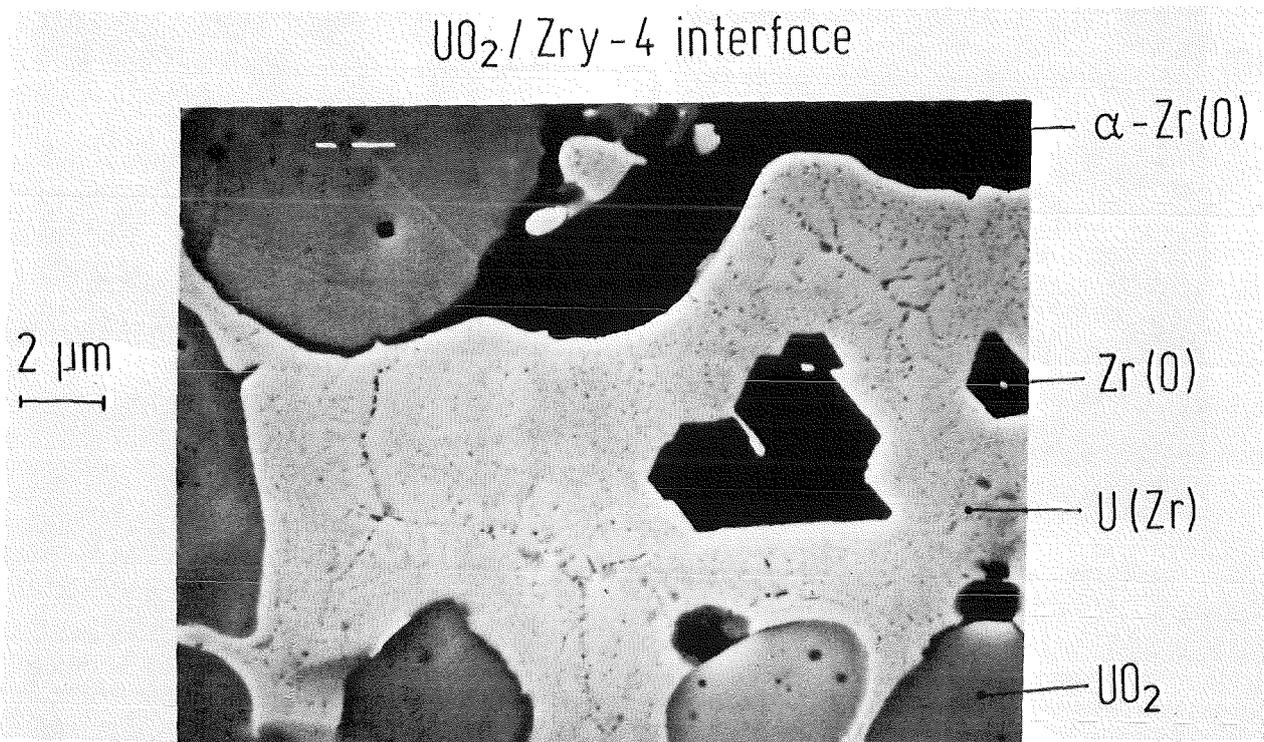
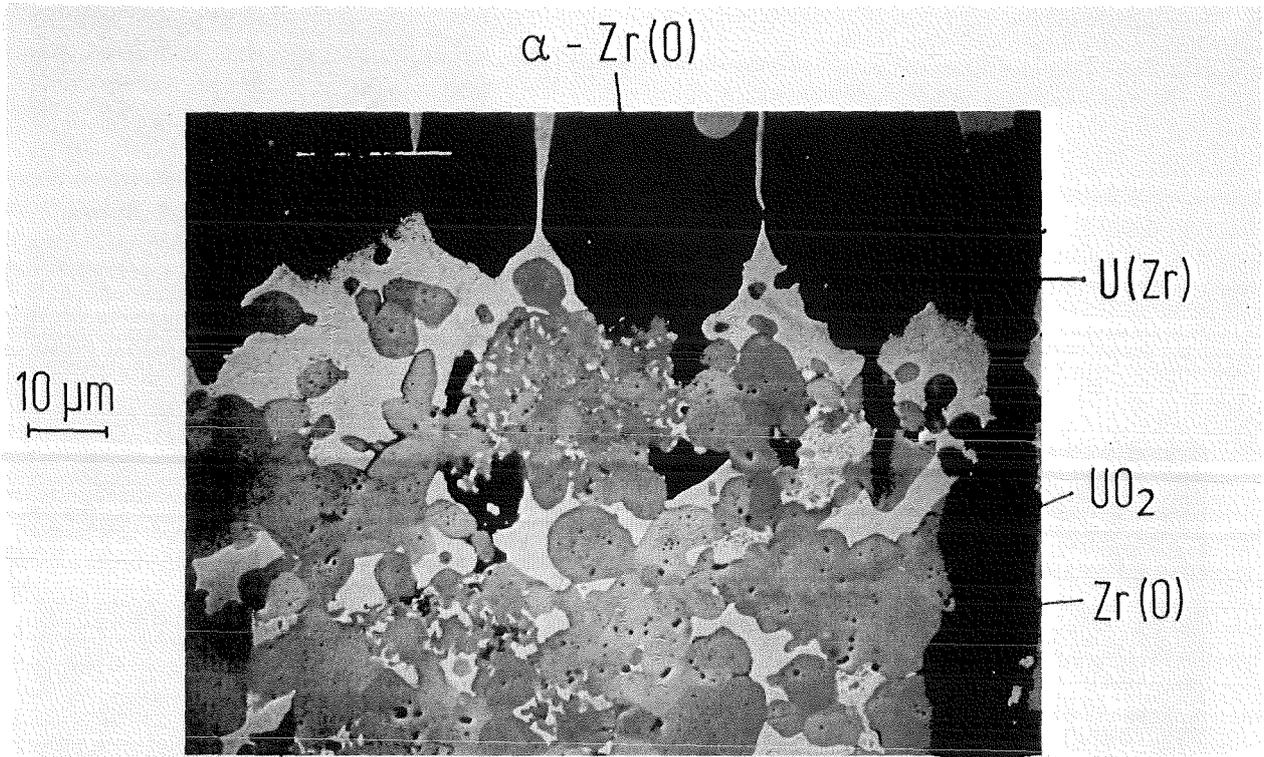


Abb. 7: UO_2 /Zircaloy-Wechselwirkungen bei 1600°C nach 600 und 3600 s Glühzeit ($\Delta p \approx 40$ bar). Veränderung der (U,Zr)-Reaktionsschicht mit zunehmender Glühzeit, d.h. steigendem Sauerstoffgehalt im $\alpha\text{-Zr(O)}$.



detail of the interface

Abb. 8: UO_2 /Zircaloy-Phasengrenze nach Glühung bei 1700°C für 3600 s. Durch die Bildung von metallischem Uran kommt es zu einer Zerstörung des UO_2 -Kornverbandes (REM-Bild).

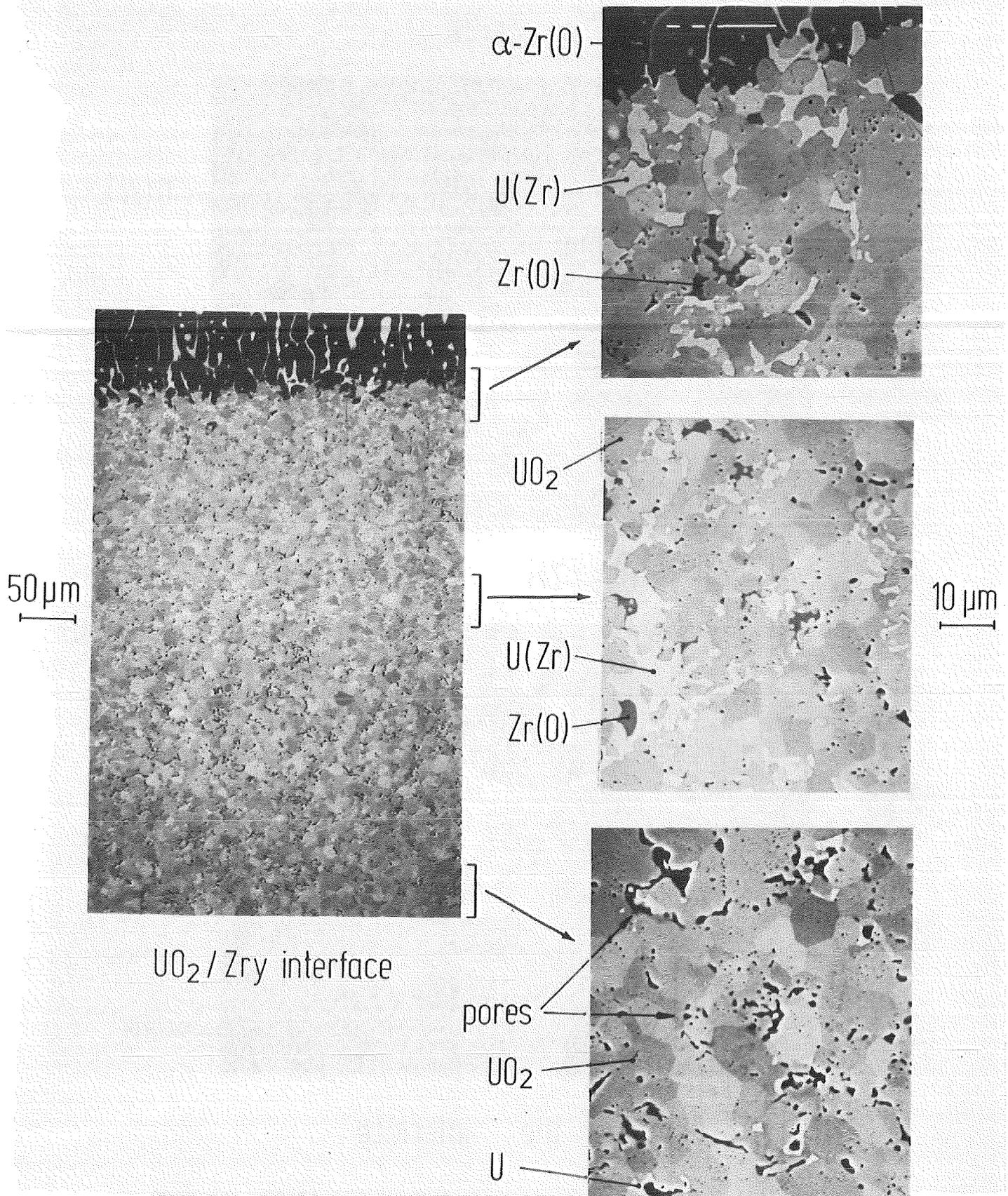


Abb. 9: Uran- und Zirkoniumverteilung im UO_2 nach Glühung bei 1700°C für 600 s. Der Anteil metallischen Urans nimmt von der UO_2 -Zircaloy-Phasengrenze zum Pelletzentrum hin ab (REM-Bilder).

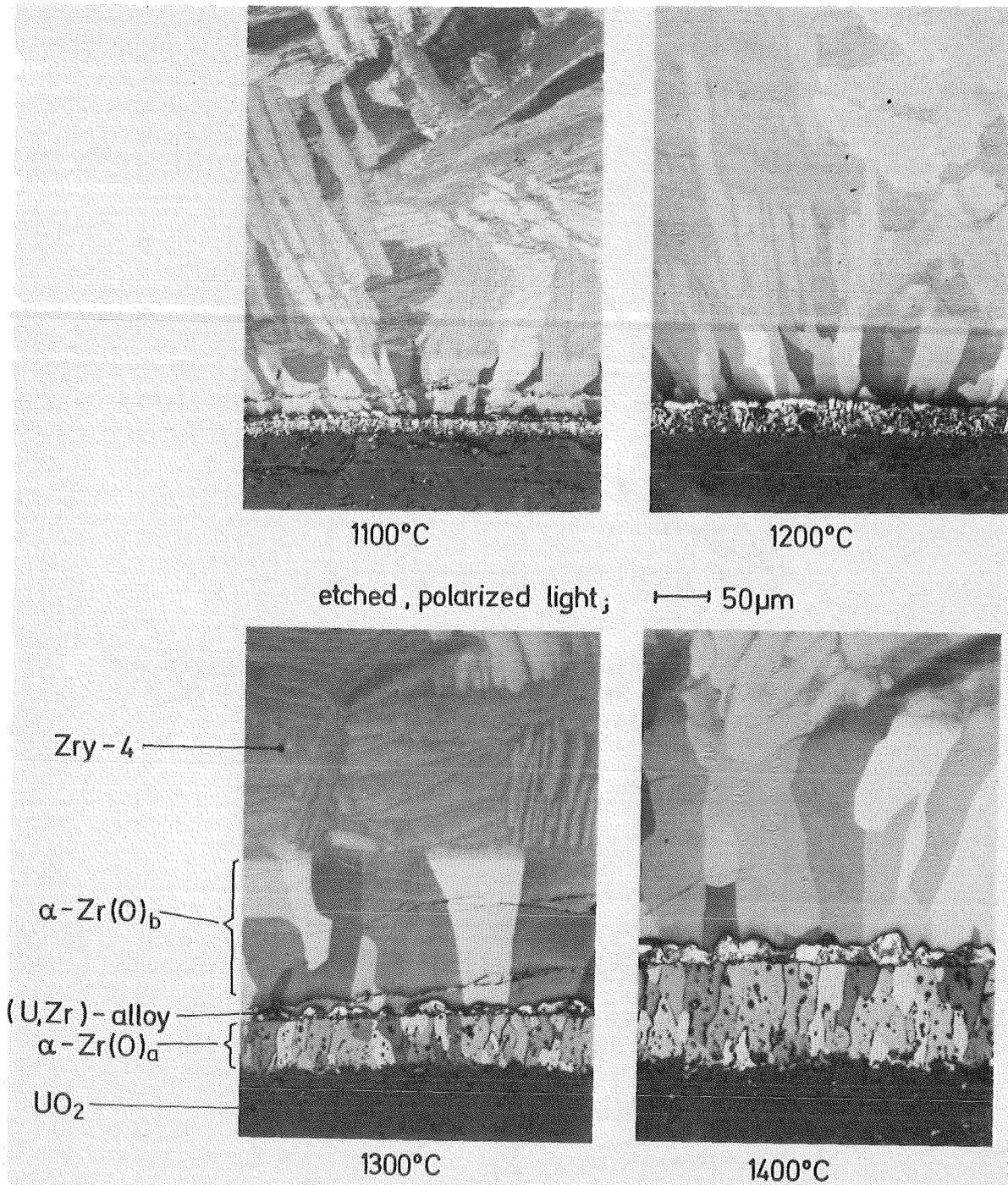


Abb.10: Dicke der verschiedenen UO₂-Zircaloy-Reaktionszonen in Abhängigkeit von der Temperatur für eine Glühzeit von 600 s. Die Dicke der α -Zr(O)_B-Phase ist im polarisierten Licht gut zu erkennen.

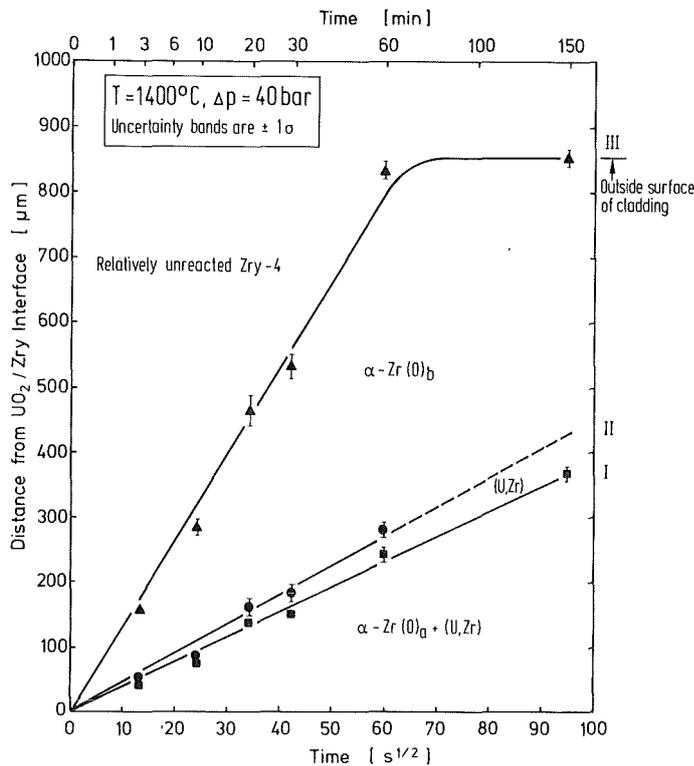


Abb.11: Dicke der UO_2 -Zircaloy-Reaktionszonen in Abhängigkeit von \sqrt{t} bei $1400^\circ C$. Die Wechselwirkungen verlaufen bis ca. 3600 s nach einem parabolischen Zeitgesetz.

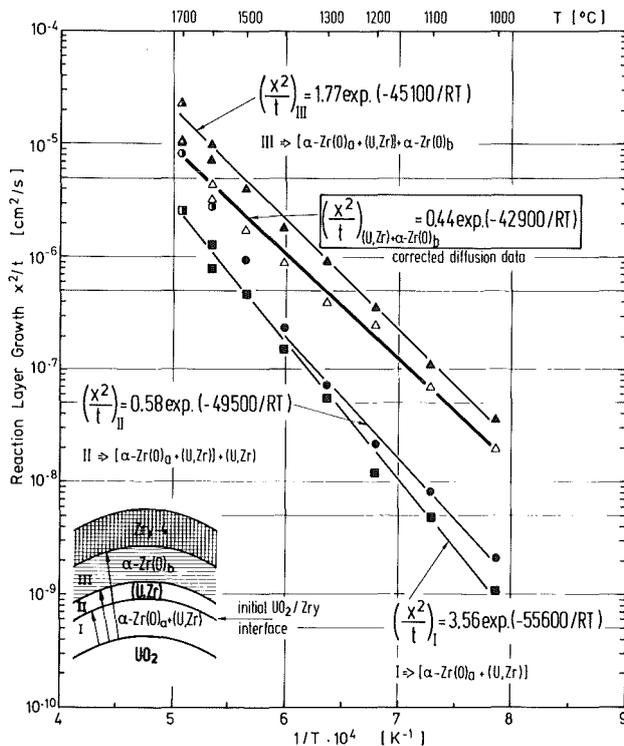


Abb.12: Wachstum der $UO_2/Zircaloy$ -Reaktionszonen in Abhängigkeit von der reziproken Temperatur. Die Dicke der Gesamtreaktionszone III wurde bezüglich der ursprünglichen $UO_2/Zircaloy$ -Phasengrenze korrigiert.

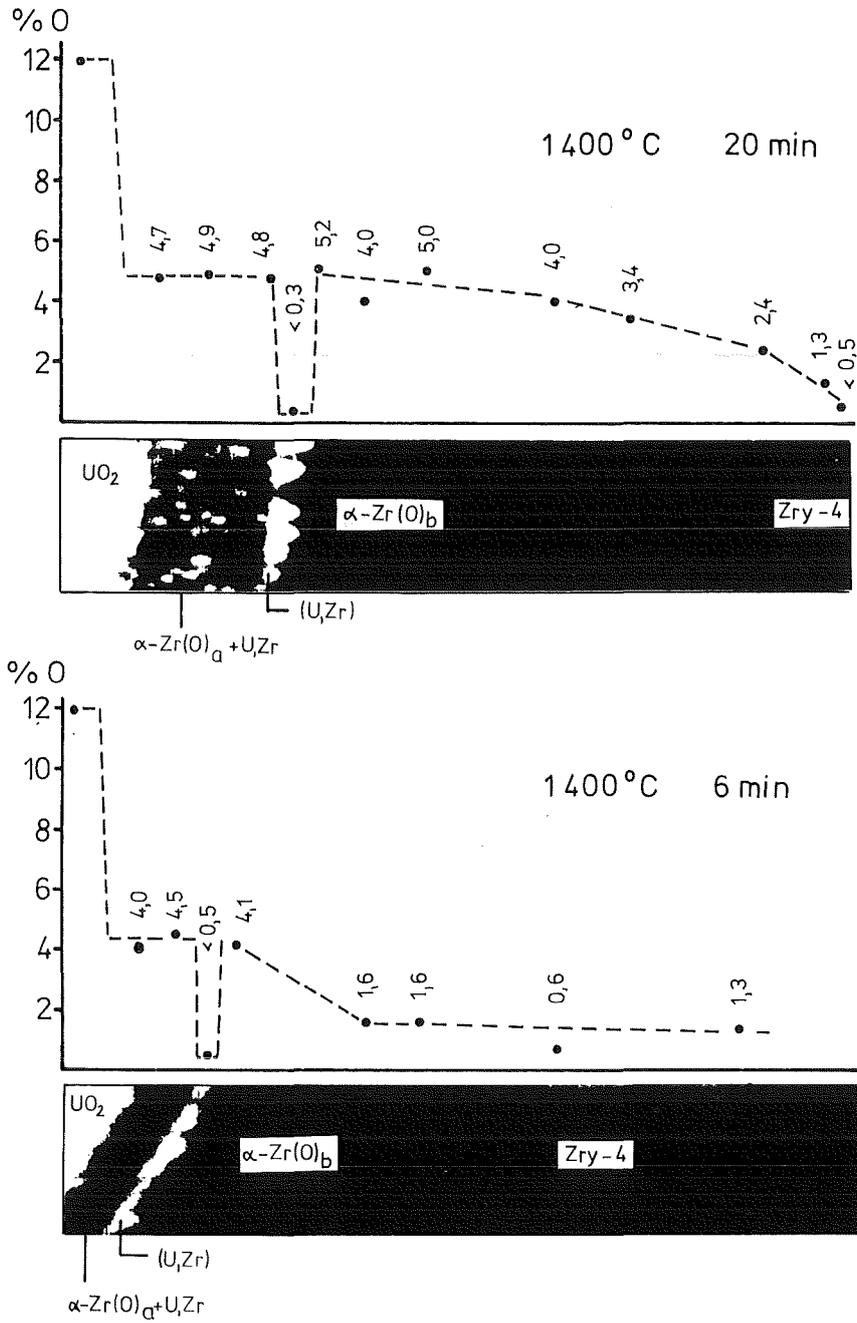


Abb.13: Radiale Sauerstoffkonzentrationsprofile und Uranverteilungsbilder über den Zircaloy-4 Hüllrohrquerschnitt von UO_2 /Zircaloy-Versuchsproben nach der Glühung bei $1400^\circ C$ für verschiedene Reaktionszeiten (Angaben der Sauerstoffkonzentration in Gew.-%).

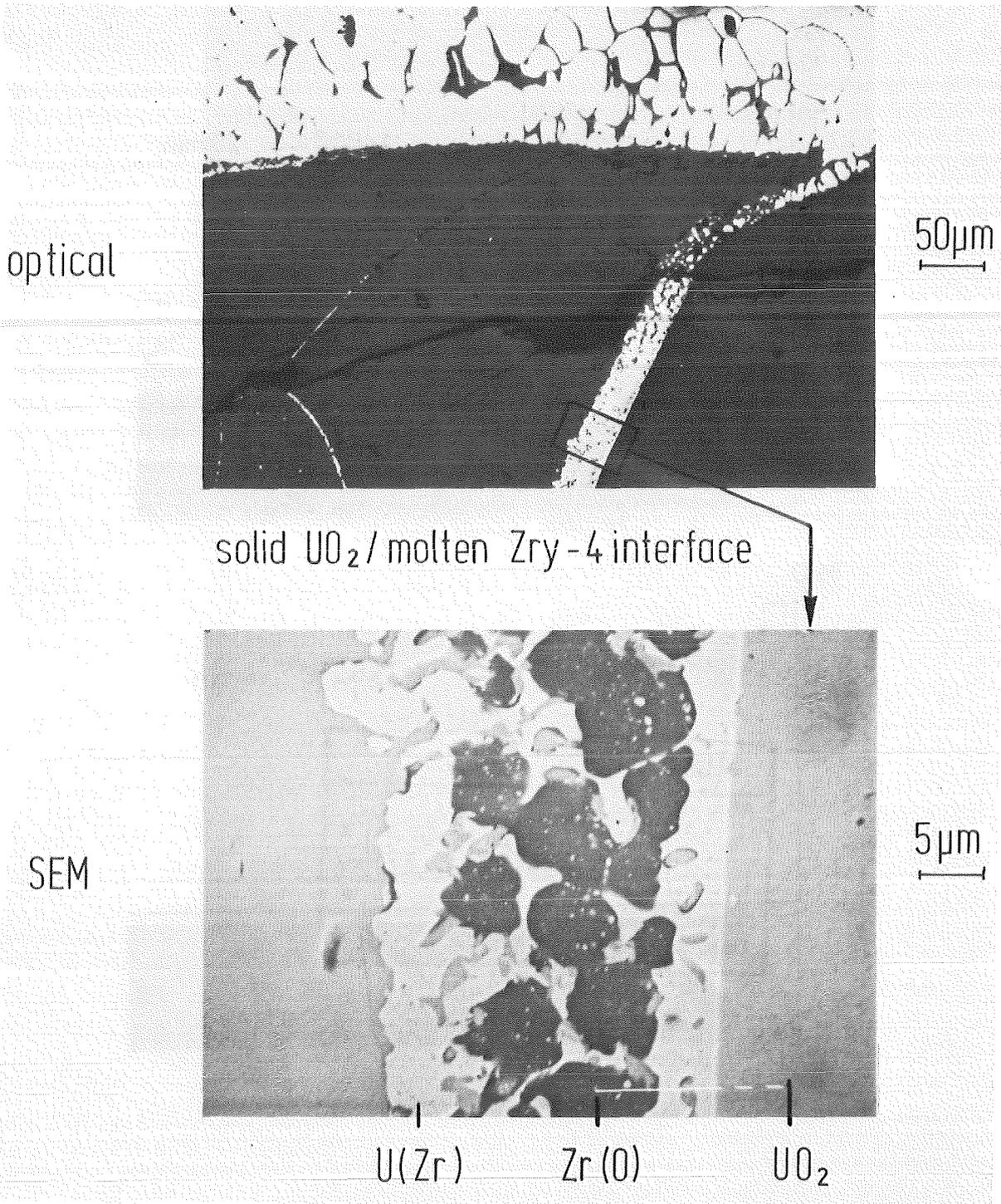


Abb.14: Chemische Wechselwirkungen zwischen geschmolzenem Zircaloy und UO_2 bei ca. $1800^{\circ}C$ nach 200 s (nach Schmelzbeginn). Das Zircaloy penetriert nur entlang von Rissen. Es bildet sich eine homogene (U,Zr,O)-Schmelze, die beim Abkühlen in α -Zr(O) und eine (U,Zr)-Legierung zerfällt (REM-Bilder).

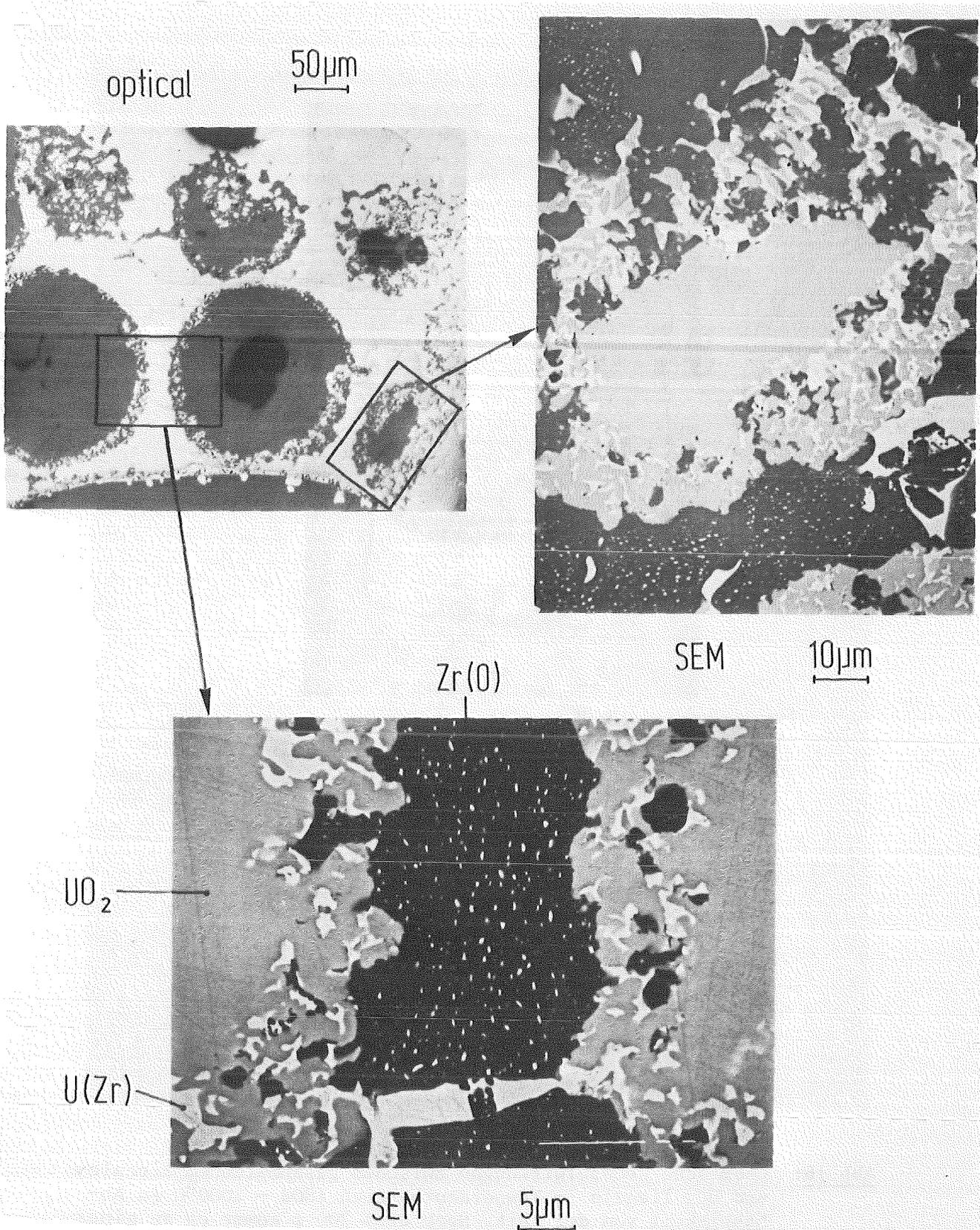


Abb. 15: Chemische Wechselwirkungen zwischen flüssigem Zircaloy und UO_2 -Kugeln bei ca. 1800°C nach 200 s (nach Schmelzbeginn). Im UO_2 bildet sich metallisches Uran, das zum Zerfall des Brennstoffes führt. Die UO_2 -Partikel dispergieren in der Schmelze und werden chemisch aufgelöst (REM-Bilder).

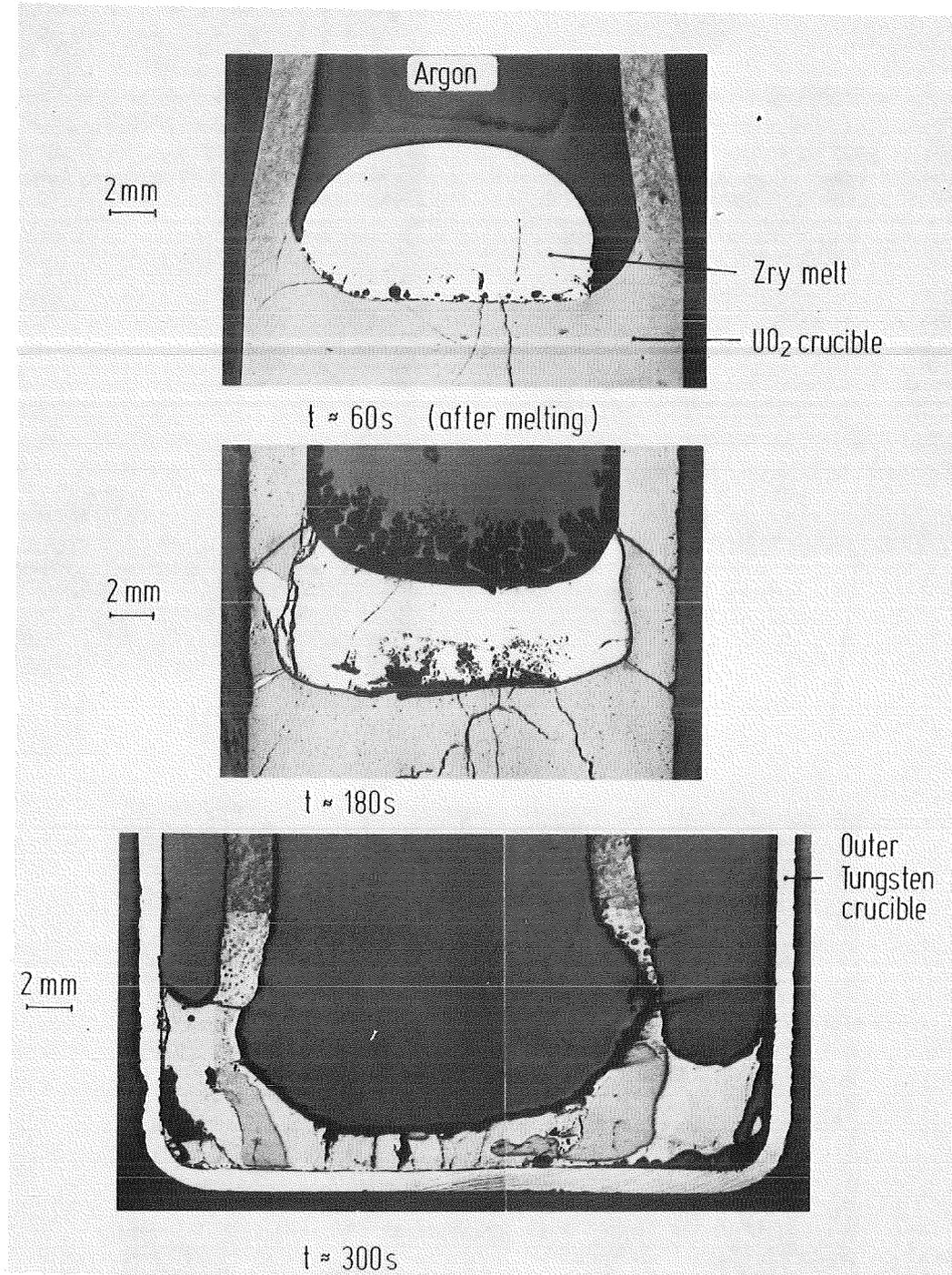


Abb.16: Chemische Wechselwirkungen zwischen geschmolzenem Zircaloy und UO₂-Tiegeln im Temperaturbereich 1800 - 2000°C in Abhängigkeit von der Zeit. Nach etwa 300 s kommt es zu einer plötzlichen Disintegration des UO₂-Tiegelbodens.

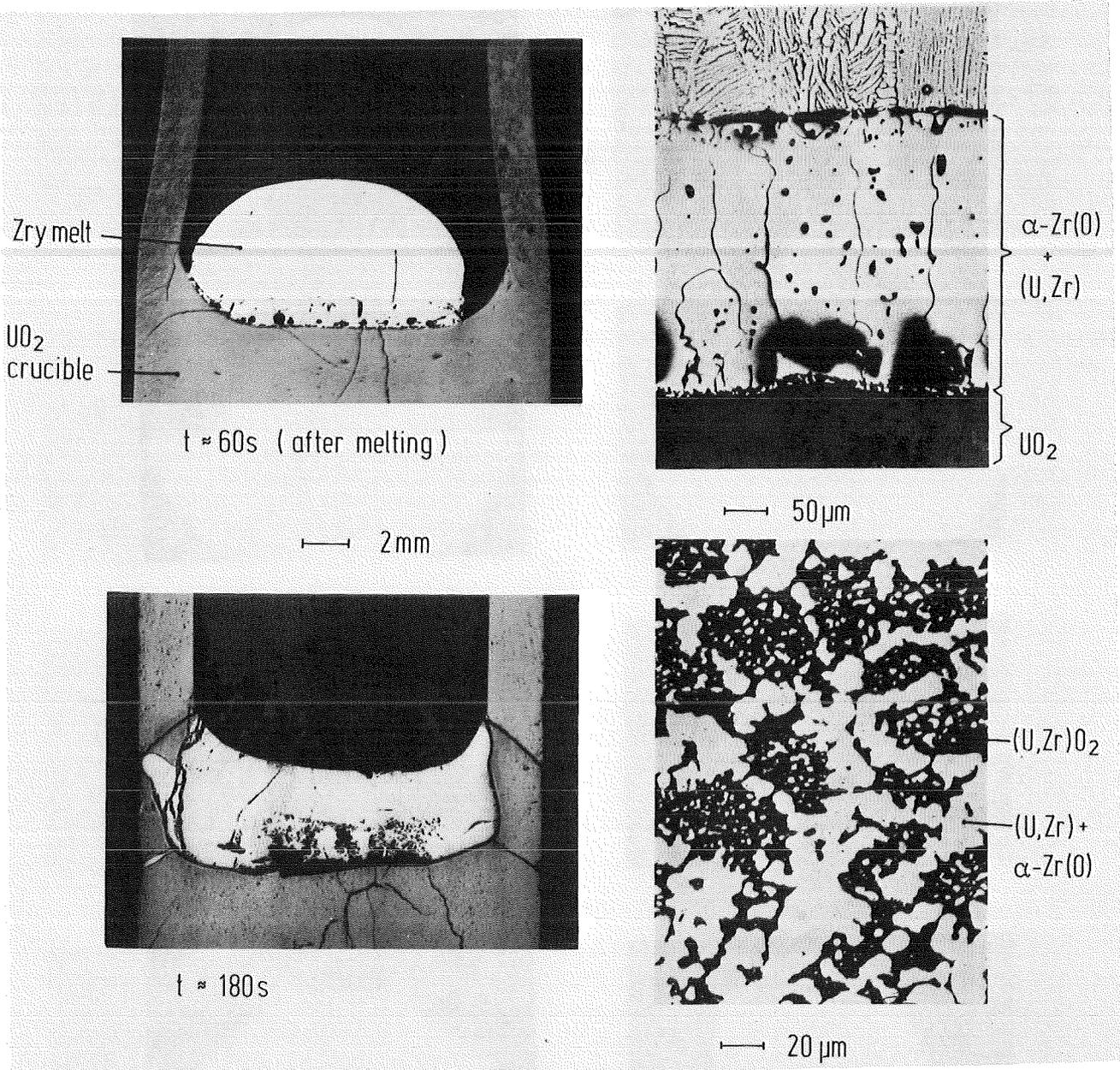


Abb.17: UO₂/Zircaloy-Wechselwirkungen bei 1800 - 2000°C. Zunächst bildet sich eine homogene (U,Zr,O)-Schmelze in der sich mit zunehmendem Sauerstoffgehalt, d.h. zunehmender Reaktionszeit, feste (U,Zr)O₂-Partikel ausscheiden.

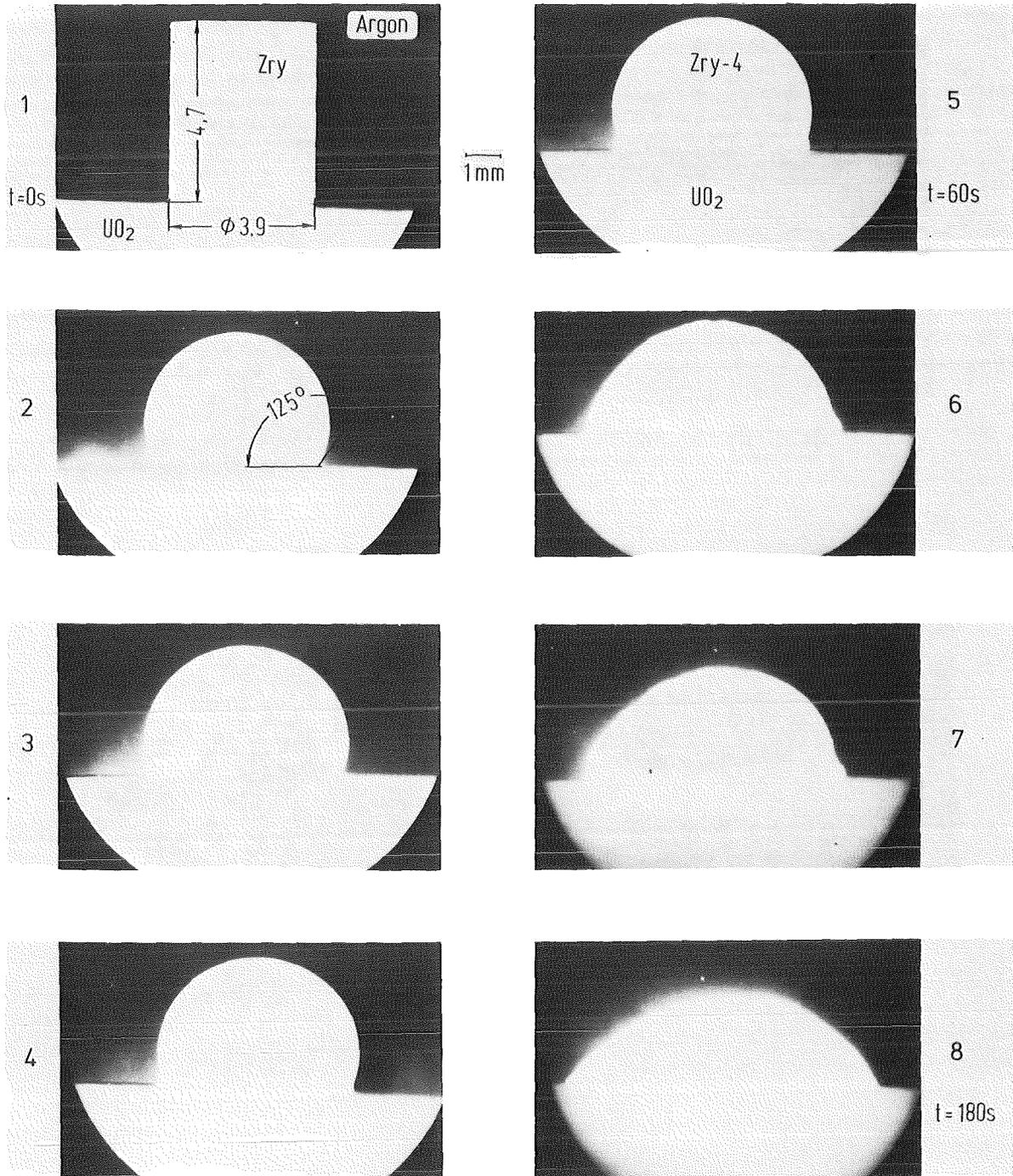


Abb.18: Benetzungsverhalten von Zircaloy-4 gegenüber UO₂ bei ca. 1900°C in Abhängigkeit von der Zeit. Mit zunehmender Reaktionszeit, verbessert sich das Benetzungsverhalten.

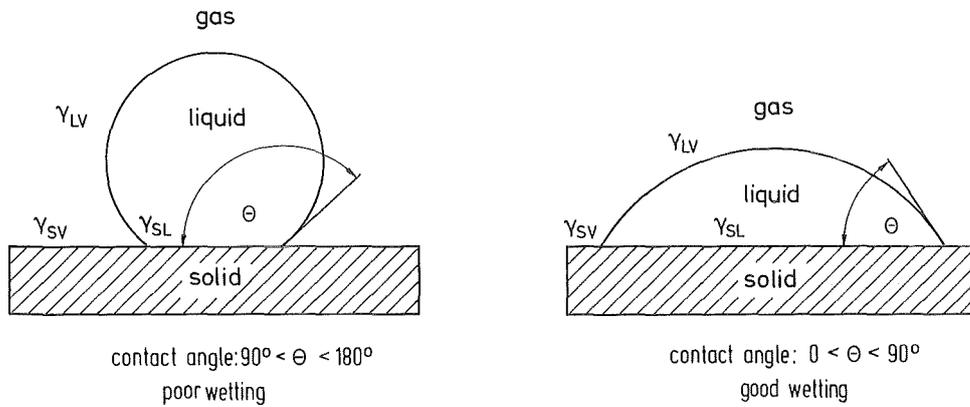
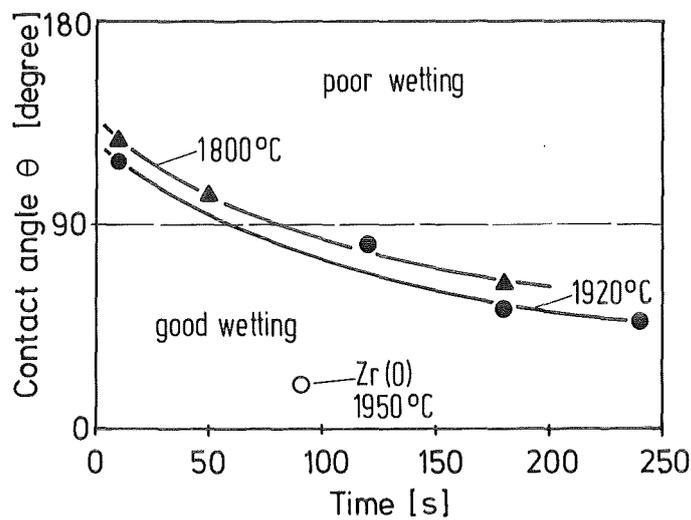


Abb.19: Schematische Darstellung der Grenzflächenenergien und Oberflächenenergien sowie des Benetzungswinkels für einen flüssigen Tropfen auf einer festen Oberfläche für schlechte und gute Benetzungsverhältnisse.



system : UO_2 / Zry , atmosphere : Ar

Abb.20: Benetzungswinkel zwischen flüssigem Zircaloy und UO_2 in Abhängigkeit von der Zeit für 1800 und 1920°C. Mit zunehmender Zeit nimmt die Benetzung infolge Sauerstoffaufnahme der Schmelze zu.

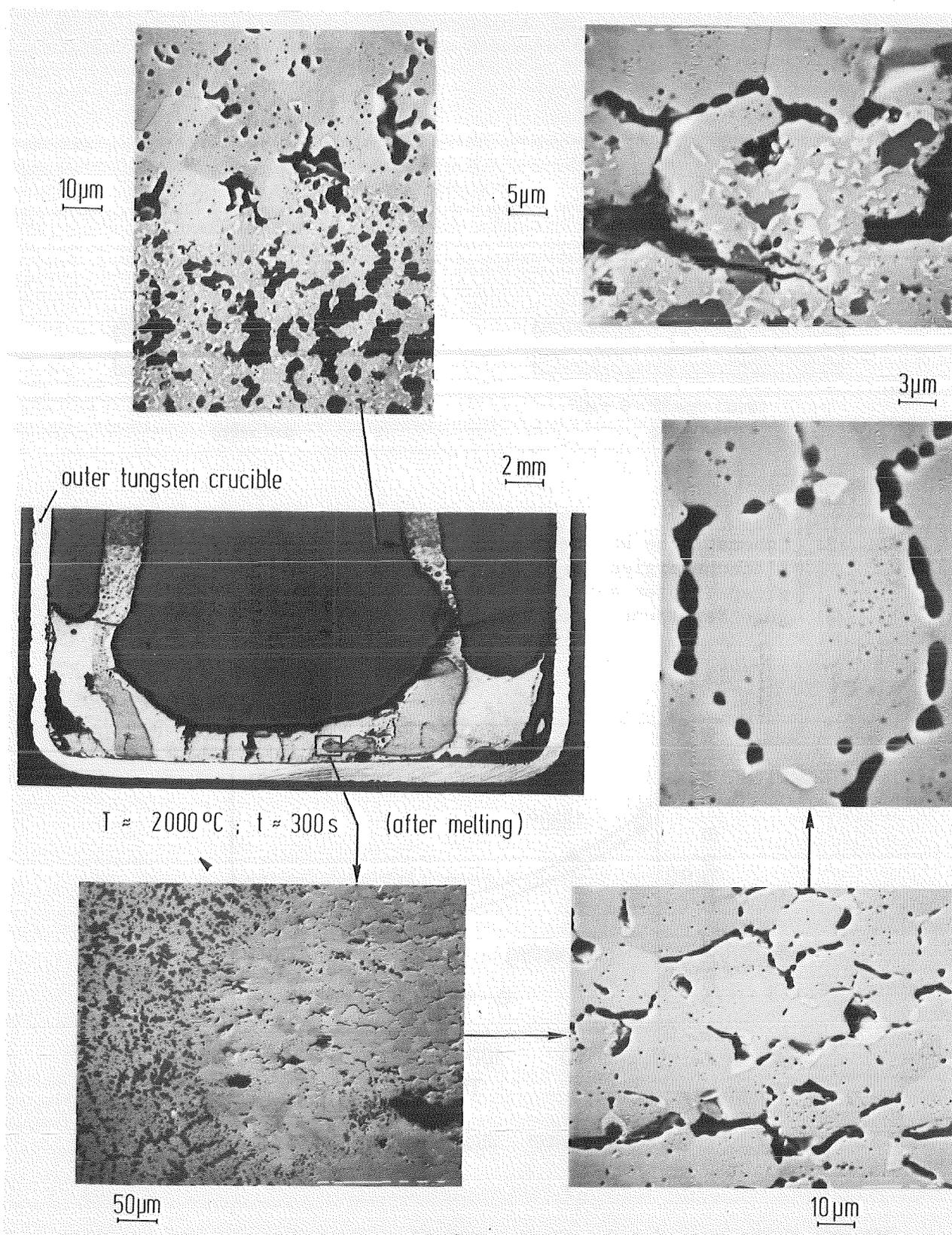


Abb.21: UO_2 /Zircaloy-Wechselwirkungen bei $1800 - 2000^\circ\text{C}$ nach ca. 300 s. Es kommt durch die Bildung von flüssigem Uran an den UO_2 -Korngrenzen bei einem bestimmten Anteil metallischen Urans zu einer plötzlichen Disintegration des UO_2 .

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT
JAHRESKOLLOQUIUM 1982

UNTERSUCHUNG DER WECHSELWIRKUNG EINER KERNSCHMELZE
MIT BETON IN DER BETA-VERSUCHSANLAGE

H. ALSMEYER
M. PEEHS
D. PERINIC

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
INSTITUT FÜR REAKTORBAUELEMENTE
HAUPTABTEILUNG INGENIEURTECHNIK

KRAFTWERK UNION AG, ERLANGEN

Investigation in the BETA-Test Facility into the Interaction between a Core Melt and Concrete

H. Alsmeyer, M. Peehs, D. Perinic

Summary

The BETA-test facility is an induction heated melt facility to study the interaction of a core melt with the concrete basement of a LWR. The melt initially generated by a thermite chemical reaction consists of up to 300 kg metallic phase (Fe, Ni, Cr) and 300 kg oxidic phase (mainly Al_2O_3). The experiments in BETA beginning in 1984 will investigate the different temperature levels of core concrete interaction. The measurements concentrate on heat transfer to concrete, melt front velocity and cavity shape in the concrete, long time behavior of concrete under thermal load, solidification processes in the melt, and gas release and composition after chemical reaction with the melt. The aim of the facility is to verify computer codes describing the core concrete interaction in the 4th phase of a core melt down accident.

1. Einleitung

In den PNS-Kolloquien der vergangenen Jahre wurden bereits in kurzer Form die Arbeiten zur Erstellung der BETA-Anlage erwähnt. Diese Versuchsanlage soll der Untersuchung der Wechselwirkung einer heißen Schmelze mit Beton dienen und ist damit ein wichtiger Bestandteil der Untersuchungen zur 4. Phase des Kernschmelzenunfalles /1/. Die Erstellung der BETA-Anlage hat solche Fortschritte gemacht, daß wir die Gelegenheit gerne wahrnehmen, an dieser Stelle über den aktuellen Stand der Arbeiten sowie über die Zielsetzung und geplante Experimente zu berichten.

Dazu sind zunächst die Anfangsbedingungen für die Wechselwirkung der Kernschmelze mit Beton anzugeben und die wesentlichen physikalisch-chemischen Abläufe zu erläutern.

2. Die vierte Phase des Kernschmelzenunfalls

Der Ablauf des Kernschmelzenunfalls, unabhängig, ob Hoch- oder Niederdruckpfad, führt dazu, daß 2 bis 4 1/2 Stunden nach Unfallbeginn die Schmelzenmassen den Reaktordruckbehälter durchdringen und mit dem Betonfundament in Kontakt treten. Es ergibt sich dann die in Abb. 1 dargestellte Ausgangssituation. In der Betonkaverne befinden sich in der oberen, leichteren Schicht 160 t Oxidschmelze, im wesentlichen bestehend aus UO_2 , ZrO_2 und Cr_2O_3 mit einer Anfangstemperatur von $2400\text{ }^{\circ}C$. Die schwerere metallische Phase, bestehend aus 70 t Fe, Cr und Ni, bildet die untere Schicht. In beiden Phasen sind Spaltprodukte gelöst, so daß die Schmelze durch Nachwärme beheizt wird.

Die Betonkaverne unterhalb des RDB hat einen Durchmesser von 6 m, die Dicke des Betonfundaments beträgt an dieser Stelle 5 bis 7 m. Die Beaufschlagung des Beton durch die Hochtemperaturkernschmelze hat eine thermische Zersetzung des Beton zur Folge, wobei als primäre gasförmige Zersetzungsprodukte Wasserdampf und CO_2 entstehen (Abb. 2). Die Freisetzung der Gase erfolgt bei verschiedenen Temperaturen im Bereich zwischen 120 und $900\text{ }^{\circ}C$, abhängig von den verschiedenen physikalischen und chemischen Bindungszuständen, in denen Wasser und CO_2 im Beton vorliegen.

Als flüssige Produkte der Betonersetzung entstehen Silikatschmelzen, deren Eigenschaften durch die bei deutschen Reaktorbetonen verwendeten silikatischen Zuschlagsstoffe bestimmt sind. Das Er-schmelzen der nicht-flüchtigen Bestandteile erfolgt im wesentlichen im Temperaturbereich 1300 - 1450 °C.

Die Betonersetzung in der Hochtemperaturphase der Kernschmelze ist experimentell gut abgesichert und theoretisch beschrieben /2/, /3/, wobei auch die Vorexperimente zur BETA-Anlage unser Verständnis für das Betonverhalten wesentlich erweitert haben. So kann es heute als gesichert gelten, daß das Abplatzen größerer Bereiche aus dem Beton (Spallation), verursacht durch thermisch-mechanischen Spannungsaufbau, in dem hier betrachteten Fall keine Rolle spielt.

Die gasförmigen Produkte aus dem Beton können mit der Metall-schmelze unter Bildung von freiem Wasserstoff und CO reagieren und nach Austritt aus der Schmelze mit der Containmentatmosphäre verbrennen. Zur Bewertung der Containmentgefährdung durch H₂-Verbrennung oder Deflagration, die Zielsetzung anderer F+E-Vorhaben ist, ist der zeitliche Verlauf der Gasfreisetzung von großer Bedeutung.

Die flüssigen Produkte des Beton lösen sich in der Oxidphase der Kernschmelze. Hierdurch verändert sich die stoffliche Zusammen-setzung der Schmelze. Insbesondere werden Dichte, Zähigkeit und Erstarrungstemperatur so verändert, daß langfristig der Silikatgehalt die Eigenschaften der Schmelze bestimmt. Entsprechend dem Lösungsprozeß verringert sich die Leistungsdichte der Nachwärme in der Oxidphase /4/. Gleichzeitig findet eine Umverteilung der Spalt-produkte zwischen Metall- und Oxidphase statt /5/.

Die Betonersetzung ist ein stark endothermer Vorgang; bei Auflö-sung des Beton wird also der Schmelze sehr viel Wärme entzogen, so daß sich die Kernschmelze schnell abkühlt.

An dieser Stelle muß auf den großen Wasseranteil des Beton ver-wiesen werden. Je Volumeneinheit zerstörten Betons werden bis zu 1000 Einheiten Wasserdampf freigesetzt. Diese starke Gasfrei-

setzung bestimmt bei flüssigen Schmelzen den Wärmeübergang an der Kontaktfläche der Schmelze zum Beton einerseits. Andererseits sorgt sie durch die starke Rührwirkung der die Schmelze durchströmenden Gasblasen für eine gleichförmige Temperatur in der Schmelze; lediglich lokal können sich an einzelnen Grenzflächen Temperaturgrenzschichten ausbilden.

Im Hinblick auf die Bedeutung der Kernschmelze-Beton-Wechselwirkung bei einem hypothetischen Kernschmelzenunfall interessiert vor allem, welche Mechanismen zum Versagen des Containments führen können /6/. Die wesentliche Gefährdung liegt im Überdruckversagen des Sicherheitsbehälters. Die aus dem Beton freigesetzten Gase sowie die ab einem gewissen Zeitpunkt zu erwartende Verdampfung des Sumpfwassers führen im Laufe einiger Tage zum Druckanstieg im Sicherheitsbehälter bis zum Versagensdruck von 9 bar. Nach heutigen Rechnungen tritt dies nach 4 bis 5 Tagen auf. Auf die wesentliche Rolle des Versagenszeitpunkts im Hinblick auf Aerosolabscheidung und Freisetzungsrates radioaktiver Spaltprodukte kann an dieser Stelle nur hingewiesen werden /7/.

Es ist heute bekannt, daß die Metallphase bereits nach einigen Stunden zu erstarren beginnt /8/ und daß damit die Eindringgeschwindigkeit der Schmelze wesentlich verlangsamt wird. Daraus folgt, daß die Durchdringung des mehr als 5 m dicken Betonfundaments erst sehr viel später als das Überdruckversagen eintritt, wobei die Frage noch offen ist, ob nicht tatsächlich die Schmelze im Betonfundament voll erstarrt und gehalten wird.

Diese für die Risikobewertung der Leichtwasserreaktoren sehr wichtigen Aussagen können nur durch ein sorgfältig abgestimmtes Vorgehen von experimentellen und theoretischen Untersuchungen gewonnen werden. In den letzten Jahren sind zu diesem Zweck mehrere Rechen-codes entwickelt worden; diese modellieren die Energie- und Stoffströme bei der Wechselwirkung Kernschmelze/Beton, die Ausbildung der Schmelzfront im Beton, die Erstarrungsvorgänge in der Schmelze und das Betonverhalten. Von deutscher Seite sind die Programmsysteme WECHSL (KfK) /8/ und KAVERN (KWU) zu nennen. Das entsprechende amerikanische Programm CORCON wird von SANDIA entwickelt. Diese Codes

haben heute bereits einen so hohen Stand erreicht, daß wesentliche Aussagen über die 4. Phase des Kernschmelzenunfalls gemacht werden können.

Aufgabe der Versuchsanlage BETA ist es, eine Verifizierung der Rechenprogramme für den Gesamtablauf der Schmelze/Beton-Wechselwirkung zu ermöglichen. In diesem Sinne erlauben die verschiedenen vorgesehenen Experimente in der BETA-Anlage eine notwendige und nach heutiger Einschätzung und Möglichkeit vollständige Überprüfung der Rechenprogramme bei einem vertretbaren Maßstabsfaktor.

3. Beschreibung der Versuchsanlage BETA

3.1 Anforderung und Auslegungskriterien

Die BETA-Anlage ist als Schmelzanlage konzipiert, in der eine genügend große Schmelze zur Simulation der inneren Wärmequellen nachbeheizt werden kann. Zur Erläuterung der Auslegungskriterien und der Ziele der verschiedenen BETA-Experimente sei ein typischer Verlauf der Kernschmelzen-Temperatur über der Zeit in der 4. Phase herangezogen, wie er nach neueren WECHSL-Rechnungen zu erwarten ist (Abb. 3). Demzufolge nimmt die Temperatur der Kernschmelze in den ersten Stunden nach Eintreten der Wechselwirkung schnell ab; dies ist gekoppelt mit schnellem Aufschmelzen des Beton sowie der damit verbundenen hohen Gasfreisetzung aus dem Beton. Danach bleiben die Temperaturen über lange Zeiträume in der Nähe der Erstarrungstemperaturen.

Wir teilen daher die Wechselwirkung in eine Hoch- und Niedertemperaturphase, deren Charakteristika in Abb. 4 zusammengestellt sind. Die Hochtemperaturphase, von 2400 °C bis vor Erstarrungsbeginn, ist gekennzeichnet durch die hohe Eindringgeschwindigkeit der Schmelze- mit maximal 3 cm/min zu Beginn der Wechselwirkung-, durch einen sehr effektiven Wärmeübergang und damit verbundene schnelle Abnahme der Schmelzbadtemperatur. Die hohe Gasfreisetzung aus dem Beton geht mit der chemischen Reaktion der Gase in der Metallschmelze einher. Demgegenüber weist die Niedertemperaturphase bei Temperaturen um die Erstarrungstemperatur eine deutlich niedrigere Eindringgeschwindigkeit auf. Wegen der Existenz von Krusten oder vollerstarrter Schmelzen liegt sie zu Beginn bei typisch 2 cm/h. Die Wärmeströme stellen sich so ein, daß nahezu

Gleichgewicht zwischen Nachwärmeleistung und abgeführter Leistung besteht. Die Gasfreisetzung aus dem Beton ist reduziert, die chemische Reaktion der Gase mit dem Metall ist gehemmt.

Wegen der sehr vielfältigen und unterschiedlichen Effekte in den verschiedenen Temperaturbereichen ist es nicht sinnvoll, den Gesamtablauf der Schmelze-Beton-Wechselwirkung in einem einzigen BETA-Experiment mit gleitender Temperatur zu untersuchen, wobei gezwungenermaßen eine zeitliche Komprimierung des simulierten Unfalls erfolgen müßte. Stattdessen ist vorgesehen, jeweils verschiedene charakteristische Phasen der Wechselwirkung bei vorgegebener, annähernd konstanter Temperatur zu untersuchen, also den Gesamtablauf in quasi-stationäre Einzelschritte zu zerlegen. Diese Experimentführung hat den Vorteil, daß die wichtigen Phänomene deutlicher zu Tage treten und daß die Zeitskalen im Simulationsexperiment der tatsächlichen Unfallsituation nahekommen. Dabei ist es notwendig, die Schmelze während des Versuches so zu beheizen, daß die Temperaturen und Wärmeströme, wie sie für den jeweiligen simulierten Zustand charakteristisch sind, eingestellt und aufrecht erhalten werden. Die Temperaturen und Wärmeströme, die Eindringgeschwindigkeit der Schmelze und der größte Teil der Folgereaktionen im BETA-Experiment sind also 1:1-Simulationen des Kernschmelzenunfalls, was für die Aussagekraft der Experimente von großer Bedeutung ist.

Abb. 5 gibt einen Überblick über die Auslegungsdaten der Versuchsanlage, denen die folgenden Kriterien zu Grunde liegen:

1. Der Tiegel wird aus silikatischem Reaktorbeton erstellt und muß das Reaktorfundament hinreichend gut simulieren. Der Anfangsdurchmesser der Schmelze - entsprechend dem Innendurchmesser des Tiegels - beträgt 380 mm. Er ist so gewählt, daß Gasfreisetzung und Wärmeübergang an der Grundfläche zwischen Schmelze und Beton durch die Tiegelwände nicht in unzulässiger Weise beeinflußt werden. Als Kriterium hierfür gilt, daß der Durchmesser etwa das Fünffache des Abstandes der Gasblasen am Tiegelboden betragen muß. Abb. 5a zeigt einen solchen Tiegel, wie er in einem der Vorexperimente erprobt wurde. Der Tiegel wurde aufgeschnitten, linke und rechte Hälfte enthalten jeweils am Boden der Kaverne die Metallphase, darüber die Oxidphase. Da im Vorexperiment eine Nachbeheizung der Schmelze nicht er-

folgt, die Schmelze also sehr schnell abkühlt, beträgt die Erosion des Betons nur wenige Zentimeter in axiale und radiale Richtung. Im BETA-Experiment mit Beheizung der Schmelze wird die Versuchsdauer durch die maximal mögliche radiale Erosion des Tiegels bestimmt, die bei 800 mm Durchmesser liegt. Die Außenabmessungen des Tiegels sind 110 cm Durchmesser bei 3 m Höhe.

2. Die Schmelze in BETA besteht aus Metall- und Oxidphase, wobei die Zusammensetzung der Metallphase im Hinblick auf Fe-Cr- und Ni-Anteil dem Reaktorfall entspricht. Jedoch besteht die Oxidphase aus Al_2O_3 , das sich vor allem bezüglich seiner Dichte vom Kernschmelzenfall unterscheidet. Die Übertragung auf den Reaktorfall wird durch zwei Tatsachen gesichert: 1. Die Rechenprogramme berücksichtigen die unterschiedlichen Stoffwerte in der Oxidphase durch physikalisch abgesicherte Modellierung. 2. Die Eigenschaften der Oxidphase im Kernschmelzenfall und im BETA-Experiment nähern sich durch die Zumischung der Betonbestandteile und Metalloxide zunehmend an. - Die Massen der Metall- und Oxidanteile sind mit je 300 kg so gewählt, daß typische Höhen erzielt werden.

Die Schmelze wird durch eine Eisen-Thermit-Reaktion außerhalb des Betontiegels erzeugt und dann in den Tiegel eingegossen. Durch die Thermitreaktion kann die benötigte hohe Anfangstemperatur der Schmelze erzielt werden. Die Beheizung der Schmelze dient zur Aufrechterhaltung des charakteristischen Temperaturniveaus im BETA-Experiment.

3. Als Heizverfahren wurde die induktive Beheizung der Schmelze ausgewählt und erprobt. Dabei liegen allerdings die Wärmequellen, im Unterschied zum Kernschmelzenfall, allein in der Metallphase. Der Wärmeübergang zwischen beheizter Metallschicht und darüberliegender Oxidschicht ist aber in Folge der starken Rührwirkung der Gasblasen so hoch, daß die Temperatur der Oxidphase im Hochtemperaturbereich nur geringfügig unterhalb der Metalltemperatur liegt, so daß auch die Oxid-Beton-Wechselwirkung untersucht werden kann. Die zu verifizierenden Rechenprogramme können die geänderte Wärmequellenverteilung berücksichtigen. Zur Aufrechterhaltung der Schmelzbadtemperatur von 2000 °C wird in die Schmelze eine Leistung von 1.7 MW eingekoppelt.

Wegen der relativ schlechten Ankopplung der Metallschmelze, bedingt durch den großen Abstand und die ungünstige Geometrie, beträgt die Ausgangsleistung des Induktors 8,4 MW. Die Arbeitsfrequenz ist 1 kHz. Die Induktorspule umschließt den Betontiegel von außen.

4. Die Versuchszeit ist begrenzt durch die radiale Erosion des Betons. Sie beträgt etwa 7 Minuten bei maximaler Schmelzbadtemperatur, etwa 30 Minuten bei Temperaturen unmittelbar vor Erstarrungsbeginn und erhöht sich auf mehrere Stunden bei erstarrten oder teilerstarrten Schmelzen. Diese Versuchszeiten reichen in jedem Falle aus, um den angestrebten quasi-stationären Versuchsablauf zu erzielen.

3.2 Anlagenkonzept

Abb. 6 zeigt eine Darstellung der Versuchsanlage, wie sie zur Zeit im Bau ist. Sie besteht aus den wesentlichen Baugruppen Betontiegel mit Schmelze, Abdeckhaube des Tiegels mit angeschlossener Abgasstrecke, Induktionsspule und elektrische Leistungsversorgung. Oberhalb des Betontiegels sind der Thermitreaktionstiegel und ein Behälter mit Tauchsonden zur Temperaturbestimmung und Probennahme aus der Schmelze angeordnet.

Der Betontiegel steht auf einem Transportwagen, so daß er mit Hilfe einer Hubeinrichtung von unten in die Induktionsspule eingefahren werden kann. Der Tiegel wird durch ein pneumatisches System gegen die Tiegelhaube gedrückt, so daß alle Gase über Abdeckhaube und Abgasrohr erfaßt werden. Durch verschiedene Öffnungen in der Haube können Meß- und Beobachtungssysteme eingebracht werden.

Die Schmelze wird in der Regel in dem Reaktionsbehälter oberhalb des Betontiegels durch Thermitreaktionen erzeugt. Durch eine steuerbare Abgieß- und Wägeeinrichtung ist es möglich, den Abguß so zu wählen, daß nur Metall, nur Oxid oder eine Mischung beider Phasen in den Betontiegel eingegossen wird.

Der Induktor besteht aus 13 zweiwindigen, wassergekühlten Einzelinduktoren, die parallel und gleichsinnig gewickelt sind. Um die Ausbreitung des Induktionsstrefeldes in die Umgebung zu verhindern, wurde um den Induktor ein Kupferabschirmbehälter gebaut.

Der Schwingkreis der Anlage besteht aus der Induktionsspule und einer Kondensatorenbatterie, die mit 9 m Höhe und 11 m Breite die größte der Welt ist. In den Stromschienen zum Induktor fließen bis zu 160 000 Ampère. Alle elektrischen Bauteile sind wassergekühlt.

3.3 Nachweis der Durchführbarkeit

Die Anforderungen an die Induktionsheizung überschreiten die in der Technik heute üblichen Größenordnungen erheblich, so daß technologisches Neuland betreten werden mußte. Die Leistungsdichte liegt, bezogen auf die Mantelfläche des Schmelzbades, bei maximal 340 W/cm^2 . Vor Planung der Anlage mußte daher in Voruntersuchungen die Einsatzfähigkeit der Induktionsheizung überprüft werden. Diese Untersuchungen konzentrierten sich auf 2 Schwerpunkte:

1. Nachweis, daß die benötigten Leistungen in die Schmelze eingekoppelt werden können.
2. Nachweis, daß die Störungen durch das Magnetfeld das Versuchsziel nicht gefährden.

In einer Reihe von Vorversuchen, in denen die Leistungsdichte 1:1 und die Geometrie im Maßstab 1:2 nachgebildet wurden, konnten diese Fragen positiv beantwortet werden.

Ein weiterer Schwerpunkt bisheriger Arbeiten lag bei der Entwicklung geeigneter Betontiegel. Diese werden nach den Spezifikationen von Biblis B gefertigt. Als Bewehrung des Beton kann wegen der Ankopplung an das Induktionsfeld kein Stahl verwendet werden. Als geeignet erwies sich Glasfasergewebe, daß in mehreren Lagen den Tiegel außen umschließt. Abb. 6a zeigt, wie das Glasgewebe in die Tiegelschalung eingebracht wird, bevor der Beton vergossen wird. Ein Vorteil der äußeren Bewehrung ist, daß der gesamte Tiegelquerschnitt homogen mit Beton ausgefüllt ist. Mit dieser Bewehrung wurden mehrere Vorversuche bis zu Schmelzmassen von max. 600 kg erfolgreich durchgeführt.

Abb. 7 zeigt einen dieser Versuche zur Erprobung der Tiegeltechnologie und der Meß- und Experimentiertechnik. Dieser Versuch, in

BETA-Größe und mit den entsprechenden Schmelzmassen, ist natürlich wegen des Fehlens der Nachbeheizung stark instationär, so daß die Beton-Wechselwirkung weniger als 10 Minuten dauert /9/. Die hier gezeigte Versuchsphase ist für die Vorgänge bei Schmelzbadtemperaturen unter 2000 °C charakteristisch und läßt die Verbrennung von Wasserstoff oberhalb des Tiegel erkennen.

4. Instrumentierung der BETA-Experimente

Die experimentelle Meßtechnik erfaßt die Parameter des Schmelzbades, des Betontiegels, der Abgase und Aerosole sowie peripherer Meßeinrichtungen (Abb. 8). Die Instrumentierung erfolgt im Hinblick auf die Notwendigkeiten der Codeverifizierung, geht aber zum Teil an die Grenzen heutiger Meßverfahren. Alle Meßdaten werden zentral über den gesamten Versuchszeitraum erfaßt und, soweit während des Experiments benötigt, in der Schaltwarte angezeigt.

4.1 Schmelzbad

Die Temperatur des Schmelzbades wird durch Eintauchthermoelemente bestimmt. Diese sind aus W/Re und sind bis zur Versagenstemperatur von 2300 °C einsetzbar. Da sie mit der Schmelze nur kurzzeitig verträglich sind - für die Dauer einiger Sekunden - werden mehrere Sonden nacheinander aus einem Karussell-Magazin im Abstand von 50 sec oder länger in die Schmelze eingetaucht. Dabei können an einer Meßlanze jeweils 2 Thermoelemente angebracht werden, um die Badtemperatur z.B. gleichzeitig in Metall- und Oxidphase zu registrieren. Die Funktionsfähigkeit der Tauchsondentechnik wurde in Vorversuchen erprobt.

Anstatt Thermoelementen können an die Meßlanzen Materialprobensammler angebaut werden, die Metall- bzw. Oxidschmelzenproben während des Experimentes ziehen können.

Die Oberflächentemperatur der Schmelze wird mit zwei Pyrometersystemen gemessen, die nach dem Quotientenverfahren bzw. nach dem Teilstrahlungsverfahren arbeiten. Die Schmelzbadoberfläche wird

außerdem mit Fernseh- und Filmkameras überwacht. Diese Beobachtung ist wichtig vor allem im Hinblick auf Badbewegung, Krustenbildung an der Oberfläche und zur Beurteilung des Gasanteils in der Schmelze.

Die in das Schmelzbad eingespeiste Induktionsleistung wird kontinuierlich gemessen. Die Messung basiert auf der Tatsache, daß bei annähernd konstanten Schwingkreisverlusten ein deutlicher Sprung des Induktionsstroms beim Füllen des Versuchstiegels mit der Schmelze erfolgt. Dieser Sprung der Spulenleistung entspricht der netto eingespeisten Induktionsleistung.

4.2 Betontiegel

Die Messungen im Betontiegel dienen der Erfassung der Temperatur- und Feuchteverteilung im Beton. Gleichzeitig wird durch das Versagen von Thermoelementen durch die Annäherung der Schmelzfront die jeweilige Position der Schmelze und damit die Fortschrittsgeschwindigkeit ermittelt.

Die Meßfühler werden hierzu mit Hilfe von Quarzstäben an vorgesehene axiale und radiale Positionen gebracht, bevor die Tiegelform mit Beton verfüllt wird. Im BETA-Experiment kann die Zahl der Thermoelemente, je nach erwartetem Versuchsablauf, 50 oder mehr betragen.

Als Beispiel für die Erprobung der Temperaturmessung zeigt Abb. 9, wie aus dem Versagenszeitpunkt der aufschmelzenden Thermoelemente in verschiedener Tiefe die Schmelzfrontgeschwindigkeit gewonnen werden kann /10/. Aufgetragen ist die gemessene Temperatur über der Zeit an verschiedenen Thermoelement-Positionen. Der schnelle Anstieg der Temperatur ist in diesen Experimenten für den schmelzenahen Bereich charakteristisch. Die Streuung der Signale ist dabei den Inhomogenitäten des Betons, z.B. durch unterschiedlich große Zuschlagsteine, zuzuschreiben. Die Schmelzfrontgeschwindigkeit folgt aus der Position des Thermoelements und dem Zeitpunkt, an dem die 1400 °C-Linie überschritten wird, und ist trotz der Streuung mit hinreichender Genauigkeit bestimmbar.

4.3 Gas- und Aerosolmessung

Die aus der Schmelzbadoberfläche austretenden Gase werden in der Abgasstrecke der BETA-Anlage auf Druck, Temperatur, Zusammensetzung und Massenströme hin analysiert. Besonders wichtig ist die Gasanalyse, die einerseits kontinuierlich während des Versuchs, aber auch an Proben, die beim Versuch gezogen werden, erfolgt.

Ein Beispiel für den erfolgreichen Test der On-line-Analyse zeigt Abb. 10. Hier ist der zeitliche Verlauf der verschiedenen austretenden Gase wiedergegeben, wie er im Vorexperiment M 102 in BETA-Größe, ohne Nachbeheizung, gemessen wurde. Man erkennt die dominierende Freisetzung von H_2 über den Zeitraum der heftigen Schmelze-Beton-Wechselwirkung von etwa 6 Minuten, nach diesem Zeitraum, einhergehend mit der Erstarrung der Schmelze, nur noch geringe Gasfreisetzung. Weiterhin werden nachgewiesen, N_2 , das vor allem am Thermitpulver gebunden war, sowie in geringerem Maße CO , CO_2 und H_2O .

Der konstante Ar-Strom entsteht durch die Einspeisung von Spülgas für verschiedene Meßsonden. Diese Auswertung zeigt, daß durch Bezug aller Meßsignale auf das zeitlich konstante Ar-Signal die quantitative Bestimmung der Gasströme allein durch das Massenspektrometer gelingt.

Die aus der Schmelze freigesetzten Aerosole werden im Abgasrohr kontinuierlich durch optische Verfahren auf ihre Konzentration hin untersucht. Auch hierfür ist die Meßtechnik erfolgreich erprobt.

4.4 Periphere Meßsysteme und Nachuntersuchungen

Weitere Meßsysteme erfassen u. a. Eingießtemperatur und Masse der Schmelze. Nach dem Versuch werden die Tiegel geschnitten und materialkundlich untersucht.

Der Stand der in den BETA-Vorexperimenten erprobten Meßtechnik läßt erwarten, daß die Messungen an der BETA-Anlage mit hoher Zuverlässigkeit durchgeführt werden können.

5. Vorgesehene Experimente und Zeitplanung

Die Definition der Experimente in der BETA-Anlage orientiert sich an den Anforderungen der Codeentwicklung. Ziel ist dabei, die Experimente so auszuführen, daß alle wesentlichen Prozesse erfaßt werden und eine Verifizierung der Codes erfolgen kann. Wir erwarten, daß die Codeentwicklung bis zu Beginn der Versuche so weit fortgeschritten ist, daß weitgehend eine Vorausrechnung der BETA-Experimente erfolgen kann.

Einen Überblick über die vorgesehenen Experimente zeigt Abb. 11. Die Versuchsmatrix ist dabei so gewählt, daß mit einer geringen Zahl von Experimenten - es sind hier 9 Versuche angeführt - eine Untersuchung aller wesentlichen Phänomene erfolgt.

Die Hochtemperaturphase der Schmelze-Beton-Wechselwirkung, charakterisiert durch das Vorliegen vollständig flüssiger Schmelzen, wird durch 5 Experimente auf verschiedenem Temperaturniveau abgedeckt. Dabei reichen die Temperaturen der Schmelzen von über 2000 °C bis etwa 1500 °C vor Einsetzen der Erstarrung. Die Schwerpunkte dieser Experimente liegen bei Wärmeübergang und Eindringgeschwindigkeit der flüssigen Schmelze in axialer und radialer Richtung, und bei Freisetzung und Zusammensetzung der Gase. Natürlich sind alle Experimente so instrumentiert, daß auch die übrigen interessierenden Größen wie Aerosolfreisetzung und Materialverhalten erfaßt werden.

Bei der Untersuchung der Niedertemperaturphase steht das Verhalten der erstarrenden Schmelze im Vordergrund. Hier interessiert vor allem das Langzeitverhalten des Systems, ebenfalls im Hinblick auf Wärmeübergang und Materialverhalten auf der Seite der Schmelze und des Betons. Da Metall- und Oxidphase unterschiedliches Erstarrungsverhalten und -Temperaturen aufweisen, werden in den Niedertemperaturexperimenten ebenfalls Zusammensetzung und Temperaturen der Schmelzen variiert.

Für die Durchführung dieser Versuchsmatrix veranschlagen wir einen Zeitraum von 1 1/2 Jahren. Bei Beginn der Versuchsreihe Anfang 1984 in der BETA-Anlage sollten die Experimente, wie auch die parallel

vorgesehene Verifikation der Rechencodes, in der 2. Hälfte 1985 abgeschlossen sein.

Der Zeitplan der Anlagenerstellung stellt sich folgendermaßen dar: Die Anlage BETA wurde Ende 1980 in Auftrag gegeben. Das Anlagengebäude wurde bis August 1982 planmäßig erstellt. Z.Zt. ist die Montage der Hilfsanlagen im Gange. Die Inbetriebnahmeversuche werden ab August 1983 durchgeführt, so daß der Beginn des Experimentierbetriebes Anfang 1984 erfolgt.

6. Schlußbemerkungen

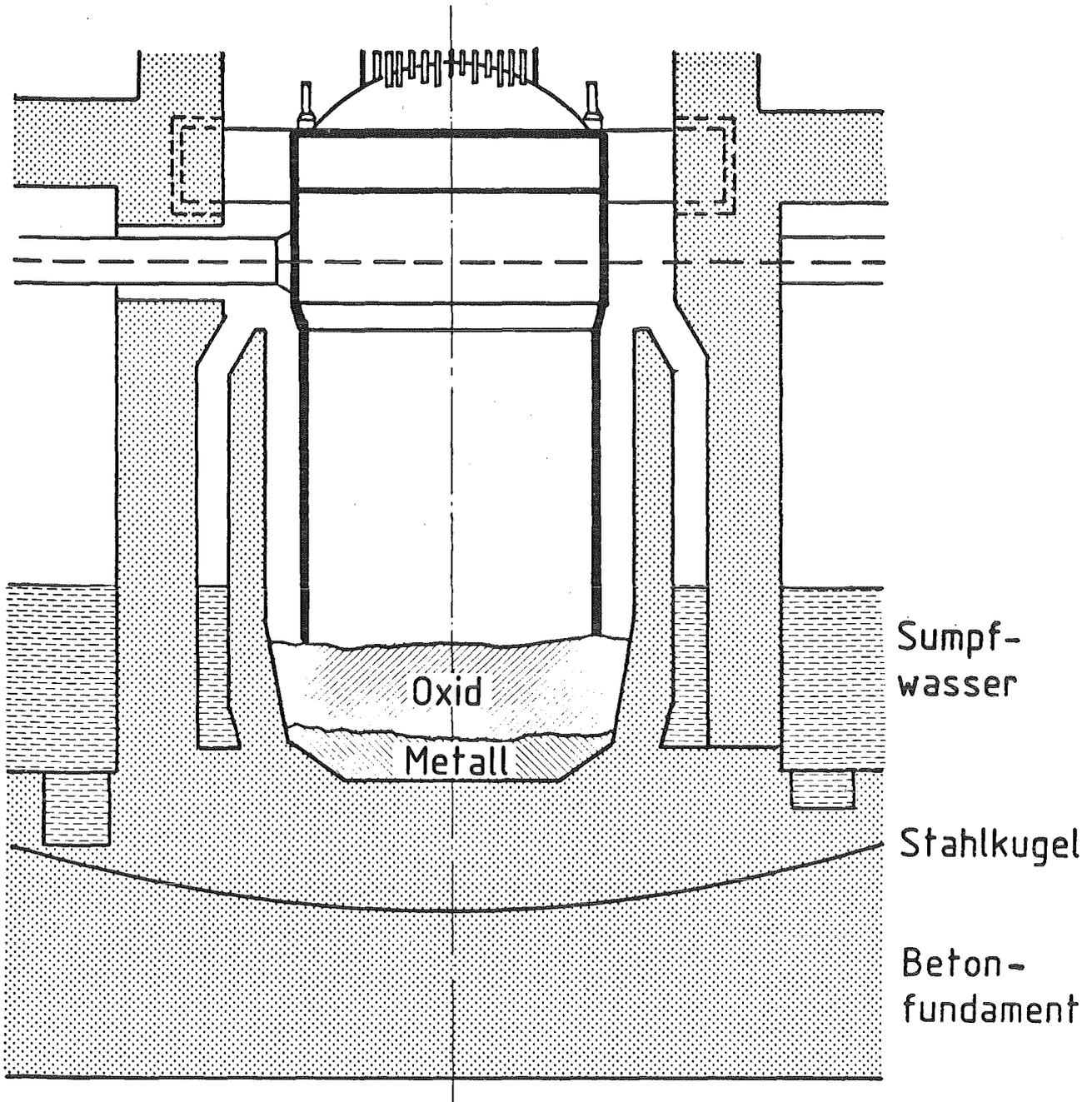
Beim hypothetischen Kernschmelzenunfall sind im wesentlichen drei risikorelevante Fragestellungen zu unterscheiden. Diese betreffen die Chemie der Spaltprodukte, die Aktivitätsfreisetzung durch Aerosolaustrag und das Verhalten des Reaktorfundamentes. Dieser dritte Fragenkomplex zur Schmelze-Beton-Wechselwirkung wird sowohl theoretisch - durch Entwicklung von Rechencodes - als auch experimentell untersucht. Die Experimente in BETA dienen vorrangig der Verifizierung von Rechencodes in einem solchen Maßstab, daß die Übertragung des Schmelzeverhaltens, der Gasfreisetzung und der Ausbildung der Schmelzkaverne auf Reaktordimensionen ermöglicht wird.

Die BETA-Anlage ist von Größe und experimenteller Ausstattung her einzigartig in der Welt. Bei Durchführung und Bewertung der Experimente in der nahen Zukunft sind international anerkannte Forschungseinrichtungen - auch aus dem Ausland - beteiligt, so daß von den Ergebnissen hohe Zuverlässigkeit und Akzeptanz erwartet werden darf. Damit erscheint es möglich und wünschenswert, die Untersuchungen des Kernschmelzenunfalls, von denen die hier erwähnten Arbeiten einen wesentlichen Teil darstellen, in der 2. Hälfte 1985 zu einem erfolgreichen Ende zu führen.

Literaturverzeichnis

- /1/ Hosemann, J.P. et al.:
Unveröffentlichter Bericht (1979)
- /2/ Peehs, M., Skokan, A., Reimann, M.,:
"The Behavior of Concrete in Contact with Molten Corium
in the Case of a Hypothetical Core Melt Accident";
Nuclear Technology 46 (1979)2, p. 192 - 198.
- /3/ Höpfl, R., Peehs, M.,:
"Kalorische Größen von Reaktorbeton unter dem Aspekt des
hypothetischen Kernschmelzenunfalles";
Jahrestagung Kerntechnik, Mannheim (1982). Tagungsband
Seite 319 ff.
- /4/ Peehs, M., Hassmann, K.,:
"Oxidation of Core Materials and H₂-Production During the
Interaction of Molten Corium with the Concrete in the Case
of a Hypothetical LWR-Core Melt Accident";
Internat. Symp. Thermodynamics of Nuclear Materials,
Jülich (1979)
- /5/ Reimann, M.,:
Unveröffentlichter Bericht (1981)
- /6/ Bundesminister für Forschung und Technologie (Auftraggeber),
"Deutsche Risikostudie Kernkraftwerke";
Verlag TÜV Rheinland, Köln (1979)
- /7/ Hosemann, J.P.,:
"Wechselwirkung mit der Containment-Struktur und
Spaltproduktfreisetzung beim Kernschmelzen";
Vortrag Jahrestagung Kerntechnik '82, Mannheim,
(Sonderheft des Deutschen Atomforums Atw. e.V;
Atomwirtschaft-Atomtechnik 27 (1982) 10,
S. 516/522

- /8/ Reimann, M., Murfin, W.B.:
"The WECHSL Code: A Computer Program for the Interaction
of a Core Melt with Concrete"; KfK 2890, (1981)
- /9/ Lukitsch, H., Kammerer B., Mack, A., Perinic, D.,
Unveröffentlichter Bericht (1981)
- /10/ Hagen, S.,
Unveröffentlichter Bericht (1981)



Oxid: $116\text{t UO}_2 + 51\text{t ZrO}_2 + 3,5\text{t Cr}_2\text{O}_3 = 160,5\text{t}$

Metall: $53\text{t Fe} + 11\text{t Cr} + 6,5\text{t Ni} = 70,5\text{t}$

Anfangstemperatur der Schmelze 2400°C

KfK

Ausgangssituation der Wechselwirkung einer
Kernschmelze mit dem Reaktorbeton

	Spezies	Freisetzungs-/ Schmelztemperatur	Folgereaktionen
gasförmige Produkte	H ₂ O, CO ₂	120 - 900°C	chem. Reaktion mit metallischer Phase, H ₂ -, CO - Bildung
flüssige Produkte	SiO ₂ , CaO, Al ₂ O ₃	1300 - 1450°C	Lösung in Oxidphase



Zersetzung von silikatischem Beton

ABB. 2

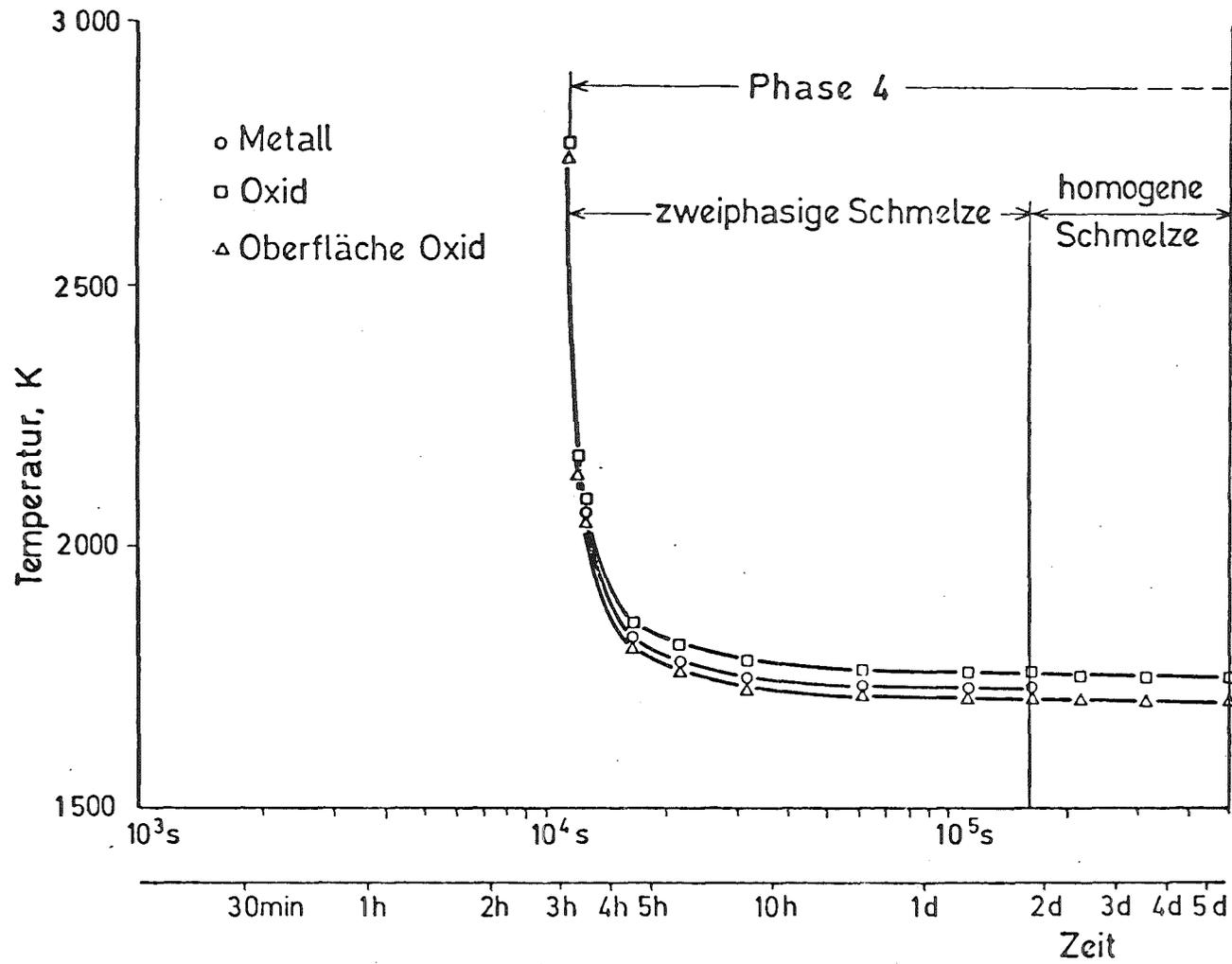


ABB. 3

Schmelzbadtemperaturen nach WECHSEL - Rechnungen

Hochtemperatur - Phase (2400°C - 1500°C)

hohe Eindringgeschwindigkeit der Schmelze (maximal 3 cm/min), effektiver Wärmeübergang durch Rührwirkung der Gasblasen, schnelle Abnahme der Schmelzbadtemperaturen, hohe Gasfreisetzung, chemische Reaktion der Gase mit Metallschmelze.

Niedertemperatur - Phase ($t \approx 1500^\circ\text{C}$)

Krustenbildung in der Schmelze an der Grenzfläche zum Beton bzw. Erstarrung der einzelnen Phasen, typische Eindringgeschwindigkeit $< 2 \text{ cm/h}$, Gleichgewicht zwischen Nachzerfallswärme und abgeführter Wärme (Strahlung, Leitung, Aufschmelzen), geringe Gasfreisetzung, chemische Reaktion der Gase mit Metallphase gehemmt.

1. Betontiegel

Deutscher Reaktorbeton (Silikatbeton mit 4 Gew% H₂O)

Innendurchmesser des Tiegels
zu Versuchsbeginn 380 mm
zu Versuchsende ≈ 800 mm

Außendurchmesser des Tiegels 1100 mm ϕ x2800 mm Höhe

2. Schmelze

Metallschmelze (Fe, Ni, Cr) 300 kg

Oxidschmelze (Al₂O₃ + SiO₂) 300 kg

Erzeugung der Hochtemperaturschmelze durch
Thermitreaktion ($t_{\max} = 2400^{\circ}\text{C}$)

3. Beheizung

Induktive Beheizung der Metallphase $t=2000^{\circ}\text{C} \div 1400^{\circ}\text{C}$

Maximale induzierte Leistung 1,7 MW

Gesamtleistung 8,4 MW

Arbeitsfrequenz 1 kHz

Induktorspannung / -strom 3 kV, 160 kA

Induktionspule, wassergekühlt 1250 mm ϕ i, 1200 mm Höhe

4. Versuchszeiten

Begrenzt durch die radiale Erosion des Beton

bei maximaler Leistung ($t \approx 2000^{\circ}\text{C}$) 7 min

bei Temperaturen dicht oberhalb der Erstarrung 30 min

bei erstarrter / teilerstarrter Schmelze einige Stunden



ABB. 5

Auslegung der BETA - Versuchsanlage

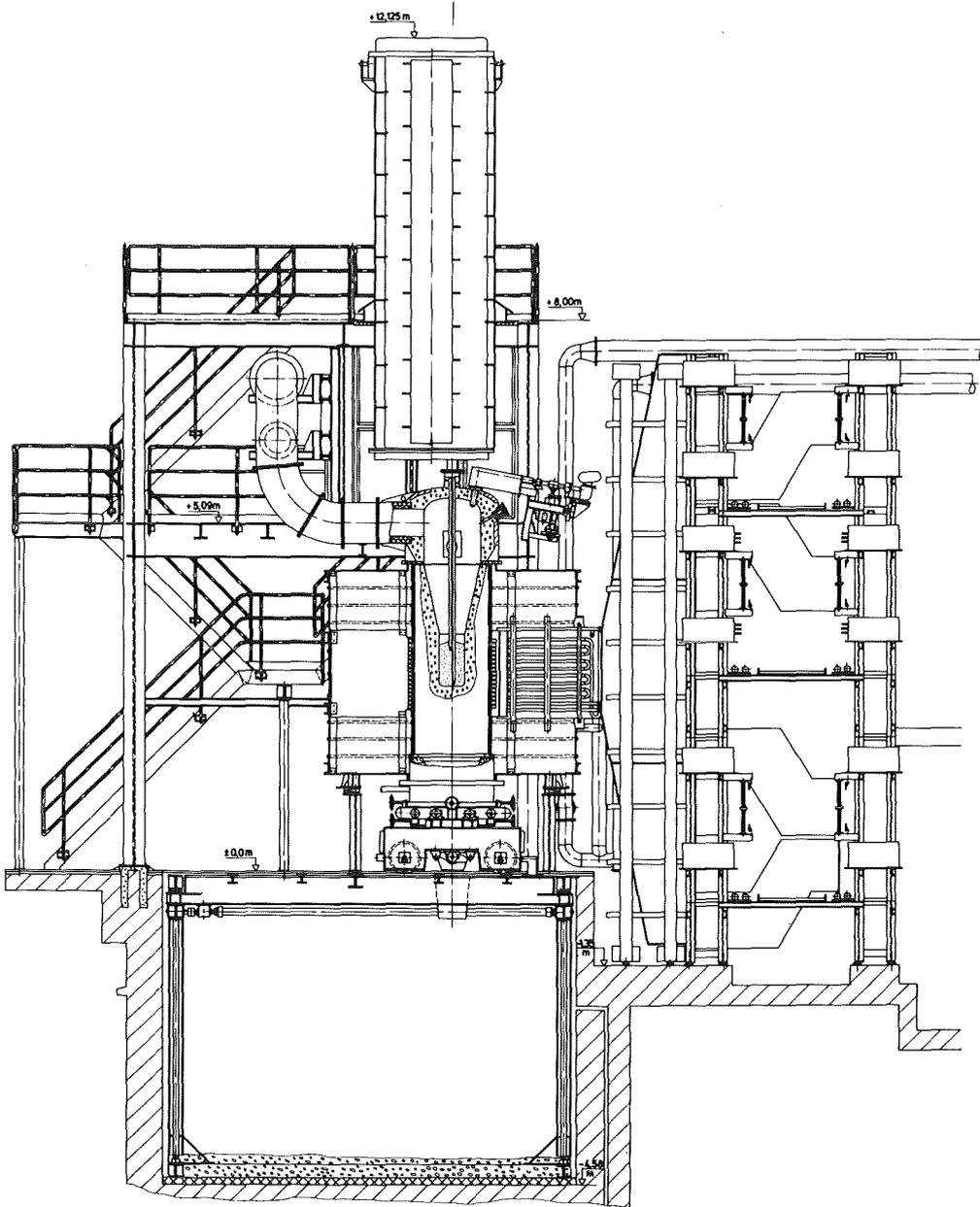


KfK

IT 1981
06.01.12

SCHNITT EINES TIEGELS IN BETA-GRÖSSE
(VOREXPERIMENT M 101)

ABB. 5 A



IT 06.01.12

BETA - Schmelzanlage

Abb. 6



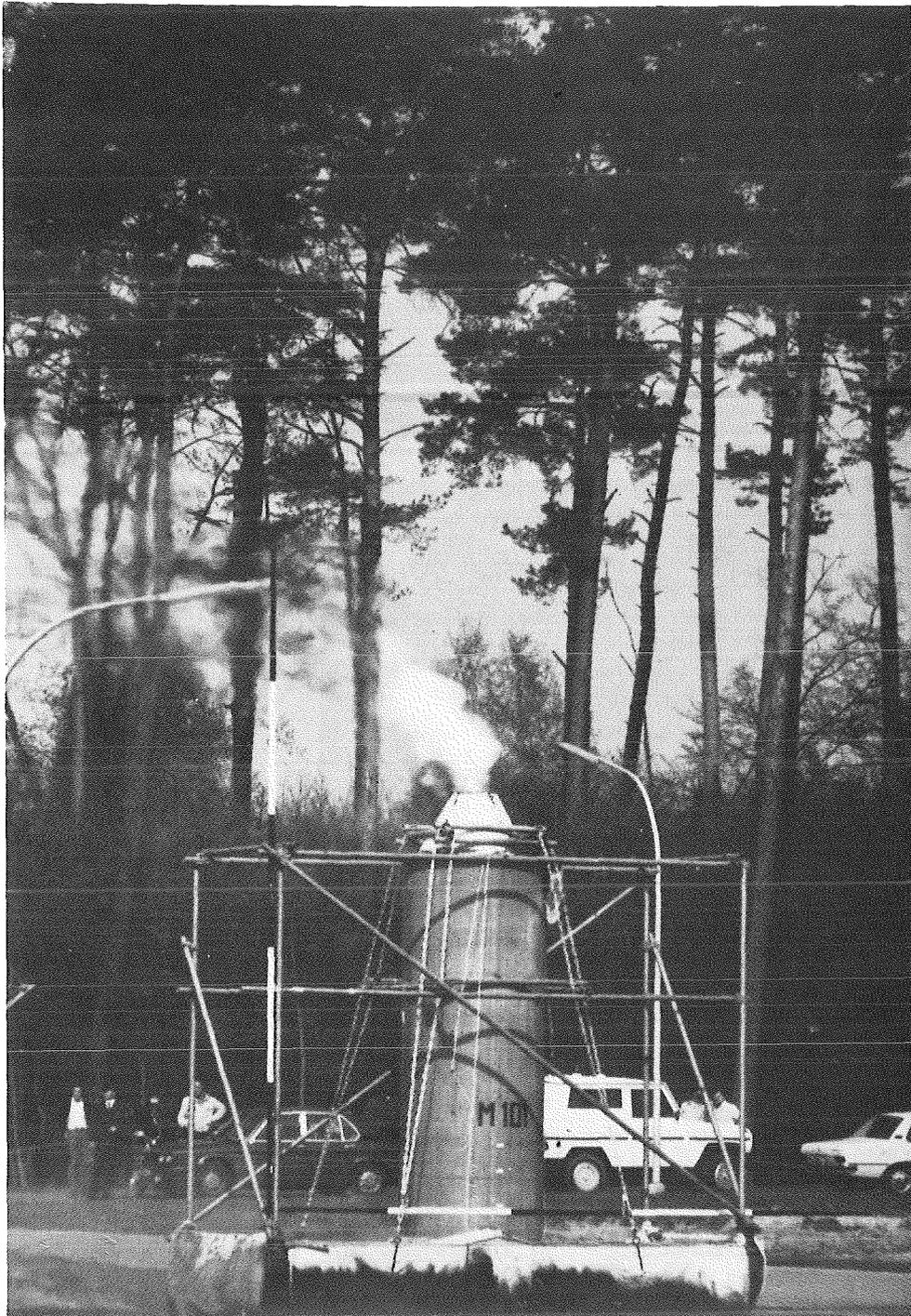
BETA-VORVERSUCHE

Versuch M101, Herstellung der Glasfaser-Mantelbewehrung

KfK

IT 1981
06.01.12

ABB. 6 A



KTK

IT 1981
06.01.12

BETA-VORVERSUCHE

Versuch M101, rd. 3 min nach Zündung

Abb. 7

PERIPHERY SYSTEMS

**THERMITE MASS GAUGES
THERMITE JET PYROMETER**

MOLTEN POOL

**MATERIAL SAMPLING AND THERMOCOUPLES
MOVIE AND TV CAMERAS
INFRARED PYROMETER
RATIO PYROMETER**

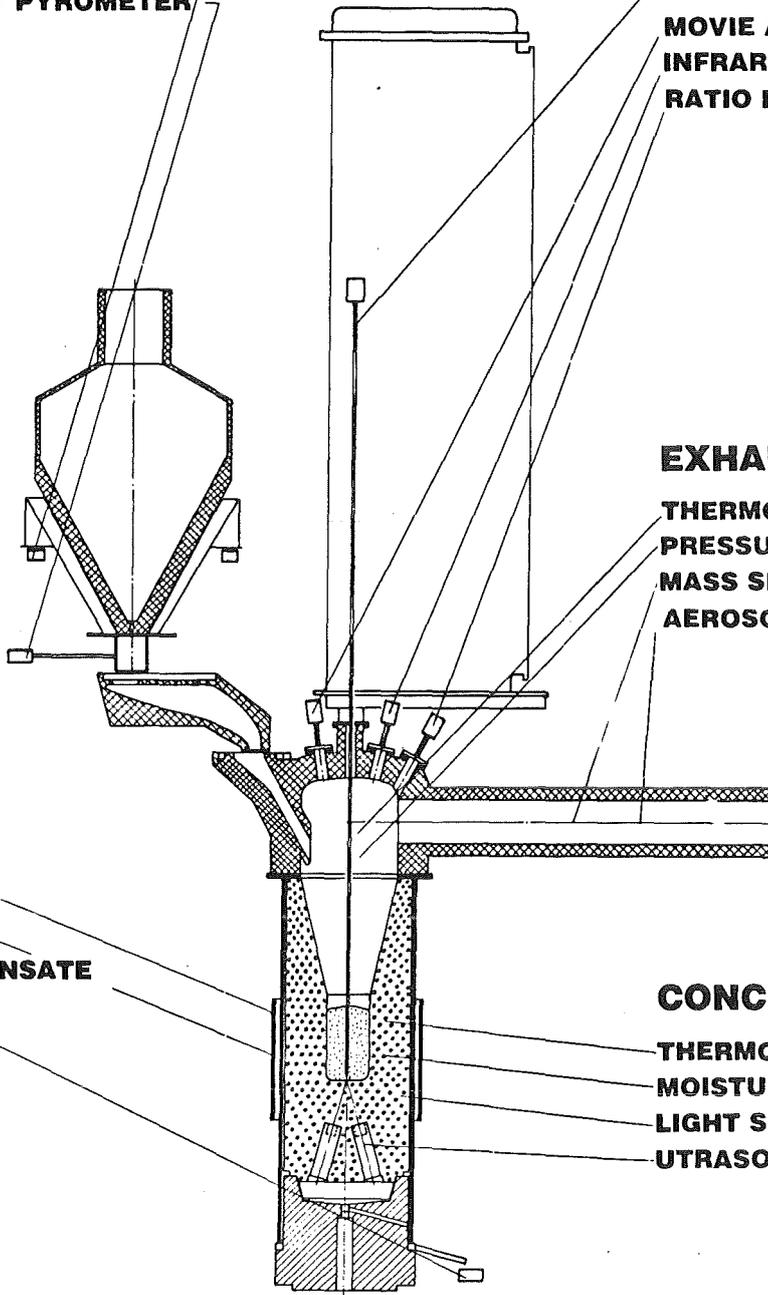
EXHAUST GAS

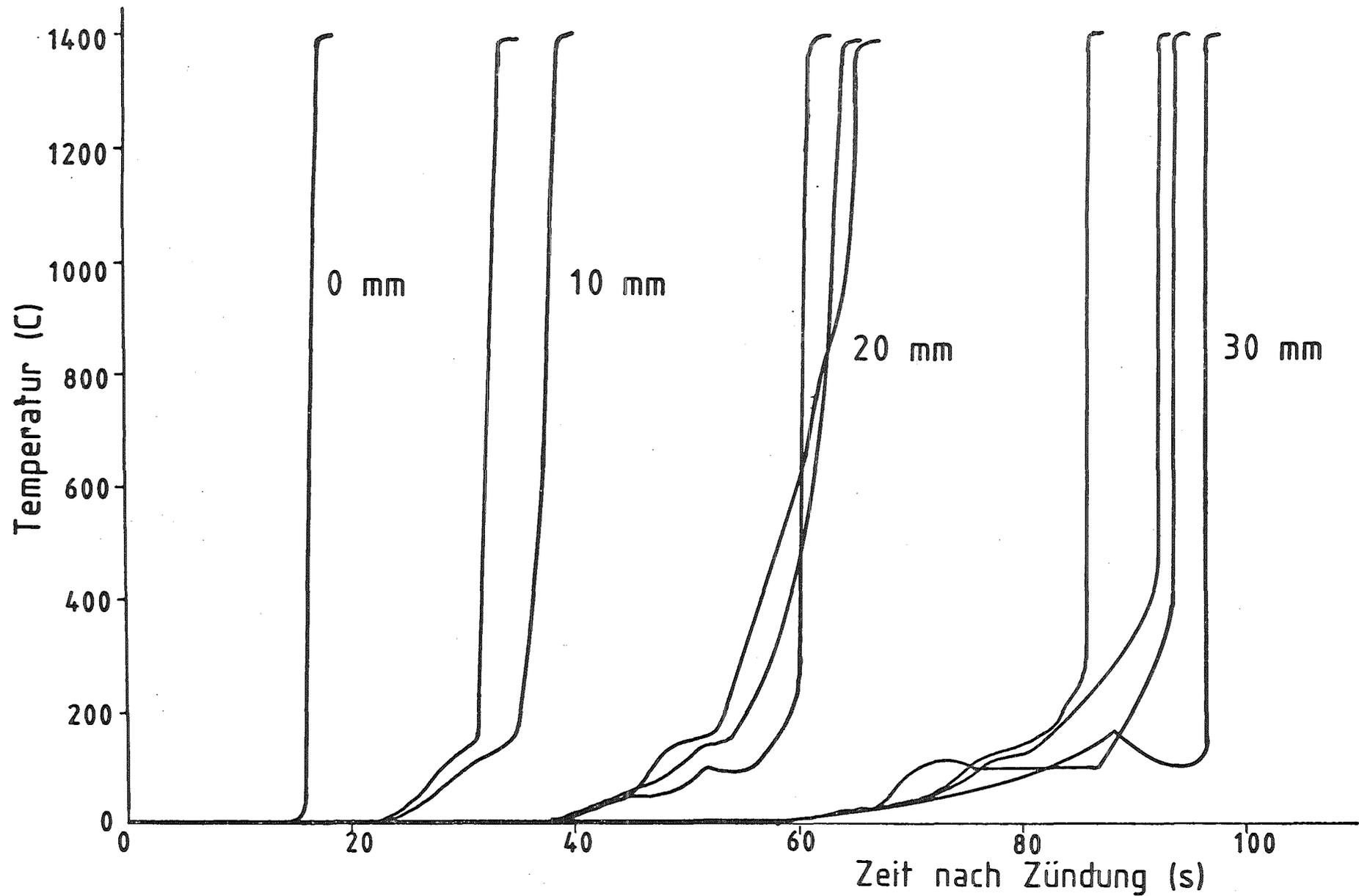
**THERMOCOUPLES
PRESSURES TRANSDUCERS
MASS SPECTROSCOPE
AEROSOL DETECTOR**

**INPUT POWER
HEAT LOSSES
WATER CONDENSATE
BALANCE**

CONCRETE CRUCIBLE

**THERMOCOUPLES
MOISTURE DETECTORS
LIGHT SENSORS
ULTRASONIC TRANSDUCERS**





Temperaturverlauf im aufschmelzenden Beton in verschiedenen Abständen vom Kavernenboden

Kraftwerk Union

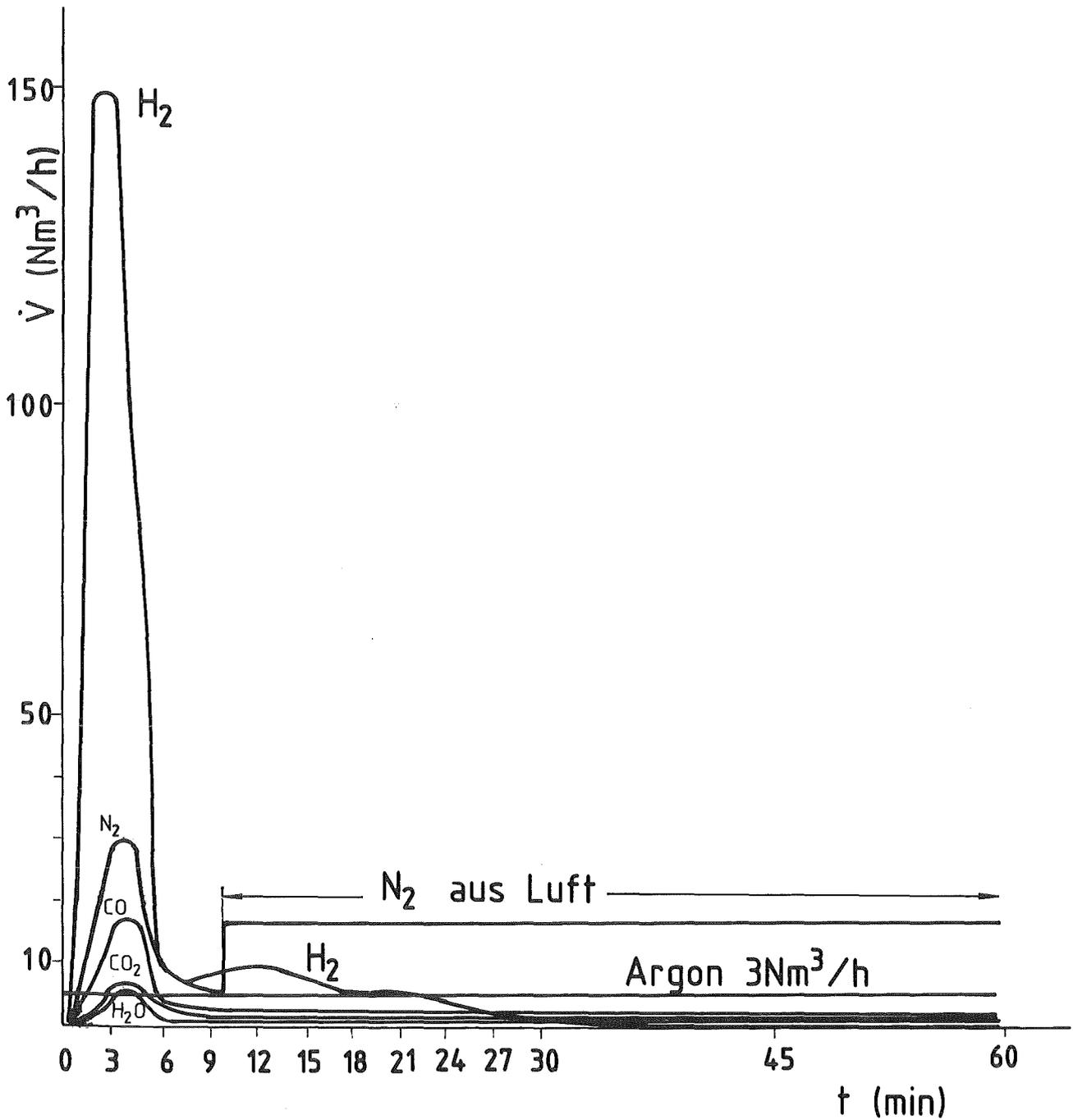


ABB. 10

VOLUMENSTRÖME H₂, CO, CO₂, H₂O BEI WECHSELWIRKUNG SCHMELZE/BETON BEIM 600 KG SCHMELZVERSUCH M 102 ALS FUNKTION DER ZEIT

HOCHTEMPERATURPHASE

H 1	300 KG STAHL	1700 °C	WARMEÜBERGANG UND EINDRINGGESCHWINDIGKEIT
H 2	300 KG STAHL + 300 KG AL ₂ O ₃	1700 °C	DER SCHMELZE IN BETON, GASFREISETZUNG UND
H 3	300 KG STAHL + 300 KG AL ₂ O ₃	> 2000 °C	CHEMISCHE REAKTIONEN, VOIDANTEIL, THERMI-
H 4	300 KG STAHL + 300 KG AL ₂ O ₃	> 2000 °C	SCHES STRAHLUNG VON DER SCHMELZBADOBER-
H 5	300 KG STAHL	1500 °C	FLACHE, AEROSOLFREISETZUNG

NIEDERTEMPERATURPHASE

N 1	300 KG STAHL (ANFANGS FLÜSSIG)	1400 °C	ERSTARRUNGSVORGÄNGE METALLISCHER UND
N 2	300 KG STAHL (FESTER ZYLINDER)	1400 °C	OXIDISCHER SCHMELZE AUF BETON, WARME-
N 3	300 KG AL ₂ O ₃ + x KG SiO ₂ + 100 KG STAHL (FLÜSSIG)	1600 °C	ÜBERGANG, BETONVERHALTEN UND GASFREI-
N 4	300 KG AL ₂ O ₃ + x KG SiO ₂ + 100 KG EISEN (FESTER ZYLINDER)	1500 °C	SETZUNG BEI ERSTARRTER SCHMELZE ÜBER LANGE ZEITRÄUME



PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT
JAHRESKOLLOQUIUM 1982

ZUM VERHALTEN VON SCHWEBSTOFFFILTERN
UNTER HOHER DIFFERENZDRUCKBELASTUNG

V. RÜDINGER
J. WILHELM

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

LABORATORIUM FÜR AEROSOLPHYSIK UND FILTERTECHNIK

Diese Arbeiten wurden vom Bundesminister des Innern unter der
Vorhabensnummer SR 148 gefördert.

Zum Verhalten von Schwebstofffiltern unter hoher Differenzdruckbelastung

Kurzfassung

Verschiedene Störfälle führen zum Druckaufbau in Raumbereichen, die über Filteranlagen entlüftet werden. Als Folge treten hohe Volumenströme und damit auch hohe Differenzdrucke über Filterelemente auf. Das Verhalten von Schwebstofffiltern unter solchen Beanspruchungen wurde, zunächst unter den günstigen Randbedingungen von niedriger Temperatur und niedriger Luftfeuchte, experimentell untersucht.

Die getesteten handelsüblichen Schwebstofffilter wurden je nach Bauart bereits bei Differenzdrücken zwischen 4 und 20 kPa beschädigt. Die niedrigen Werte wurden mit Metallrahmenfiltern für erhöhte Temperaturen erhalten, die als potentielle Störfallfilter gelten können. Bei Vorbelastung mit Polystyrol-latex-aerosolen wurden um maximal 40 % niedrigere Versagensdifferenzdrucke gemessen. Ausgehend von den Untersuchungen der Schadensmechanismen wurden erste Modifikationen erprobt, die zu einer Verbesserung der Holzrahmenfilter auf 24 kPa führten.

Die Druckverlustcharakteristik der Filter wurde ebenfalls untersucht, da sie sicherheitsrelevant ist. Der Vergleich der Resultate mit der Theorie zeigte, daß die Druckverlustkennlinien durch konstruktive Maßnahmen verbessert werden können und dadurch die inhärente Sicherheit der Filterelemente erhöht werden kann.

Da bei Störfällen auch kombinierte Beanspruchungen durch erhöhten Differenzdruck, hohe relative Feuchte und erhöhte Temperatur zu erwarten sind, müssen die Filterelemente auch unter solchen Bedingungen geprüft werden. Zu diesem Zweck baut KfK die Filterprüfanlage BORA, deren Auslegung erläutert wird.

On the response of HEPA filters to high differential pressures

Abstract

High differential pressures across HEPA filters may occur in different accident situations. Therefore the response of HEPA filters to such challenges was investigated.

The results obtained showed that under the favorable conditions of ambient temperature and low relative humidity commercial filters fail between 4 and about 20 kPa. The lower values are obtained with metal frame filters, usually being considered as potential filters for accident conditions. With dust loading the break pressures measured were reduced, by up to 40 %. Failure mechanisms were investigated and subsequent first modifications of the filter pack and paper tensile strength led to an increase to 24 kPa of the structural integrity of filters with wooden frames.

Since the filter flow resistance characteristic is also safety relevant, this property was investigated too. Comparison with theory revealed that with improved filter design the resistance curves could be shifted towards lower values, thus reducing high differential pressures and the risk of failure.

Since combined challenges of high differential pressure high humidity and elevated temperatures may occur in accidents, HEPA filter response to such operating conditions needs to be studied. In order to be able to do so KfK will build up the closed loop test facility BORA. The specifications and the design are described.

1. Einleitung

Der Sicherheitsbehälter und die Betonhülle des Ringraumes bilden bei deutschen LWR-Kernkraftwerken die beiden äußersten Spaltproduktbarrieren ¹⁾. Sie müssen auch dann noch funktionstüchtig bleiben, wenn die übrigen Barrieren versagt haben, sonst können, je nach Ereignisablauf erhebliche Umgebungskontaminationen eintreten. Verschiedene Lüftungsanlagen sind Teile dieser äußersten Barrieren.

Bei Ereignissen im Rahmen der Auslegungsstörfälle ist es ihre Aufgabe, die Spaltproduktrückhaltung auch unter solchen Betriebsbedingungen zu gewährleisten, die stark von denen des bestimmungsgemäßen Betriebes abweichen können. Der Entwurf einer Leitlinie zu § 28.3 der Strahlenschutzverordnung setzt dabei die Wirksamkeit der Filtersysteme voraus und legt Mindestwerte für die Abscheidegrade fest, die bei der Auslegung der Anlage zu verwirklichen sind. Betrachtet man Ereignisse jenseits der Auslegungsstörfälle, so erscheint es möglich mittels geeigneter Filtersysteme die Auswirkungen auf die Umgebung um Größenordnungen zu reduzieren, wenn die aus dem Sicherheitsbehälter und den Ringräumen eines Reaktors abgegebene luftgetragene Aktivität weitgehend in entsprechenden Filterelementen abgeschieden werden kann.

Diese Beispiele zeigen die große sicherheitstechnische Bedeutung der Lüftungsanlagen von Kernkraftwerken. Kernstück dieser Anlagen sind die Iodisorptionsfilter und die Schwebstofffilterelemente, die die eigentliche Grenze zwischen möglicherweise stark kontaminiertem Bereich und der Umgebung bilden. Das größte Gefährdungspotential resultiert bei Störfällen aus dem I-131, das sowohl gas- als auch partikelförmig auftreten kann. Bei Unfällen kommt neben den leichtflüchtigen auch den schwerflüchtigen Spaltprodukten eine erhöhte Bedeutung zu.

2. Die Beanspruchung von Schwebstofffiltern durch hohen Differenzdruck

Die Beanspruchungen, denen die Schwebstofffilter ausgesetzt sein können, werden durch den jeweiligen Störfall und dessen Verlauf bestimmt. Mangels verlässlicher Daten sind nur grobe Abschätzungen über diejenigen Betriebs-

bedingungen möglich, denen die Filterelemente am Einbauort innerhalb der Lüftungsanlage im Störfall ausgesetzt sein können.

Mit erhöhten Temperaturen ist bei Brüchen Kühlmittelführender Leitungen mit den damit verbundenen hohen Enthalpieströmen des kondensierenden Dampfes zu rechnen. Dabei werden, solange Kondensation auftritt, aus thermodynamischen Gründen Werte von 100 °C kaum überschritten.

Durch Wärmeabgabe des Sicherheitsbehälters sind Lufttemperaturen im Ringraum > 100 °C möglich. Hinzu können Temperaturerhöhungen auf Grund der frei werdenden Zerfallswärme der in den Schwebstofffiltern abgeschiedenen Spalt- und Aktivierungsprodukte auftreten. Die relative Feuchte der zu filternden Luft wird bei Brüchen Kühlmittelführender Leitungen hoch sein; selbst kondensierende Feuchte kann auftreten.

Zusätzlich zu diesen Beanspruchungen sind erhebliche mechanische Belastungen der Schwebstofffilter als Folge der über die Filter auftretenden erhöhten Differenzdrucke zu erwarten.

Solche Differenzdruckbelastungen können im Falle eines Tornado auftreten, der in den Vereinigten Staaten Auslegungsstörfall ist. Als maximaler Unterdruck am Einlaß eines Lüftungssystems oder am Kamin werden für einen sogenannten "Region I Tornado" ³⁾ 20,7 kPa postuliert. Die Auswirkungen eines Tornado auf Lüftungssysteme und ihre Komponenten wurden von Gregory et al. untersucht ^{4, 5)}. Ihre Analysen zeigen, daß der Differenzdruck innerhalb des Lüftungssystems erheblich abgeschwächt wird, so daß die wirkliche Belastung der Filterelemente am Einbauort, als Folge einer solchen Einwirkung von außen niedriger sein wird.

Die folgenden Beispiele zeigen, daß die Filterstrecken von LWR-Kernkraftwerken auch durch interne Ereignisse erheblichen Differenzdrücken ausgesetzt sein können. Bei einem Störfall wird der Ringraum über die Lüftungsanlage der Ringraumabsaugung, die eigentliche Störfallfilteranlage, entlüftet (s. Bild 1). Als Folge des Bruches einer Nachkühlleitung kann sich im Ringraum ein Überdruck zwischen 4 kPa und 10 kPa aufbauen. Die zu erwartenden Temperaturen werden relativ niedrig sein, aber die relative Feuchte der zu filternden Luft kann 100 % übersteigen.

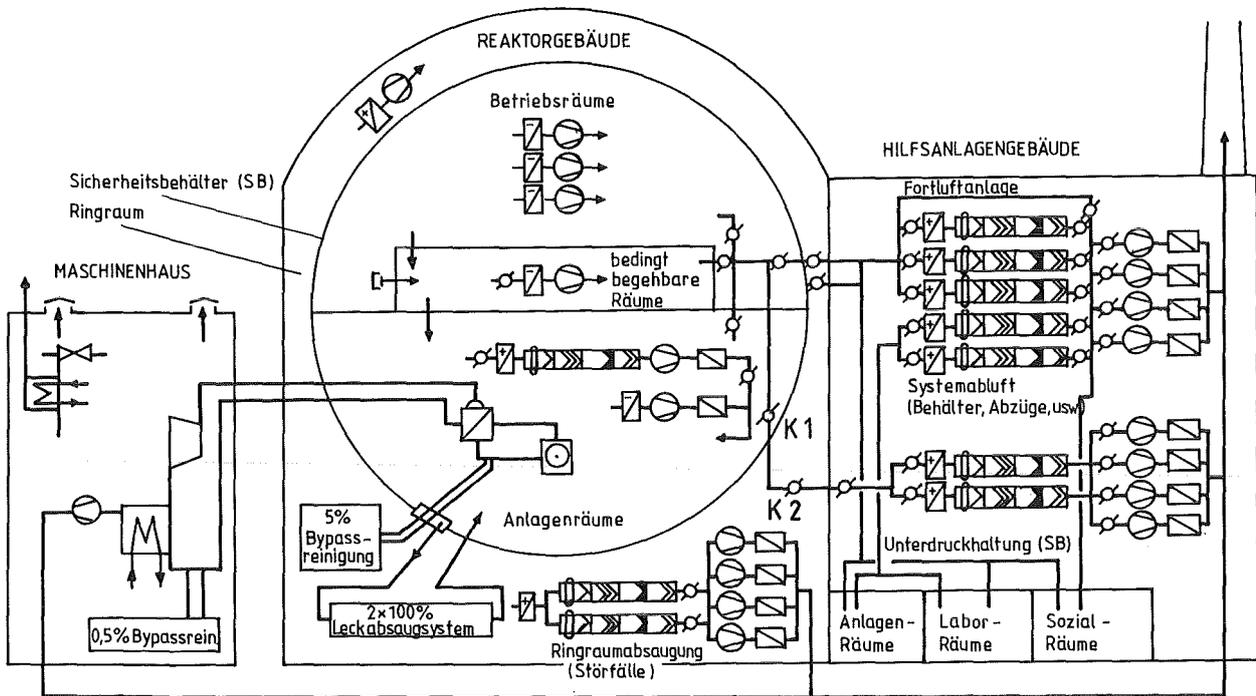


Abb. 1: Lüftungsschema eines modernen deutschen DWR-Kernkraftwerkes

Das zweite Beispiel bezieht sich auf den hypothetischen Fall des Versagens des Sicherheitsbehälterabschlusses bei einem Kühlmittelverluststörfall. Diese Versagensart wird auch in Falle der Freisetzungskategorie FK 2 der deutschen Risikostudio postuliert. Es wird angenommen, daß die beiden Lüftungsklappen K 1 und K 2 versagen. Man kann davon ausgehen, daß der relativ leichtgebauten Lüftungskanal, der den Ringraum durchquert, unter der nun erfolgenden Einwirkung des rasch ansteigenden Sicherheitsbehälterdruckes versagen wird. Damit existiert ein 300 mm großes Leck im Sicherheitsbehälter, durch das feuchte Luft in den Ringraum strömt. Auf der anderen Seite kann Luft aus dem Ringraum über die Filteranlagen der Unterdruckhaltung und der Ringraumabsaugung wieder entweichen. Der resultierende Druck im Ringraum wurde mit dem COCMEL-Code errechnet. Sein Verlauf ist in Bild 2 wiedergegeben. Nach etwa 300 Sekunden wird ein maximaler Überdruck im Ringraum von 60 kPa erreicht, der die genannten Filterstrecken belastet. Die Temperatur wird auf 75 °C ansteigen und die relative Feuchte wird 100 % oder mehr betragen.

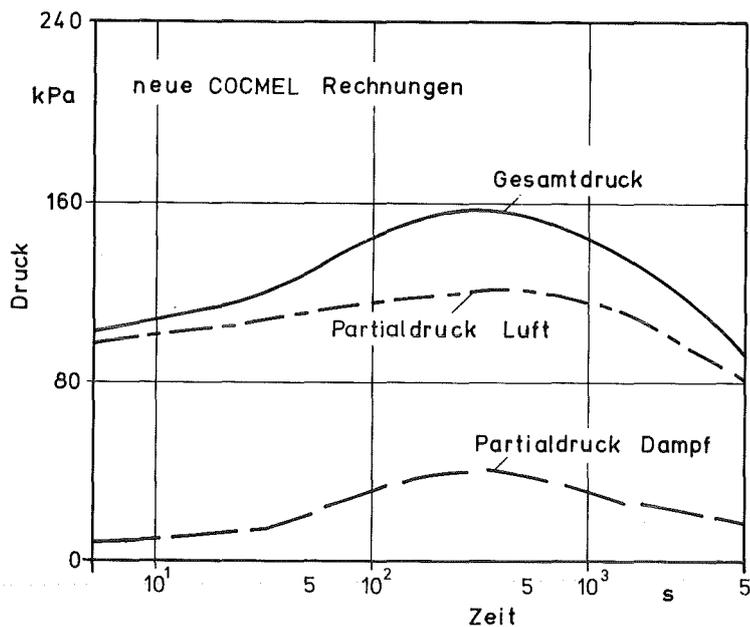


Abb. 2: Drucke im Ringraum bei einem Kühlmittelverluststörfall und einem 300 mm-Leck im Sicherheitsbehälter

Es muß also damit gerechnet werden, daß die Schwebstofffilter bei Störfällen erheblichen mechanischen Belastungen in Folge hoher Differenzdrucke ausgesetzt sind. Darüber hinaus können gleichzeitig zusätzliche Beanspruchungen durch hohe Luftfeuchte und hohe Temperatur auftreten.

Es ist nicht gesichert, daß die derzeit verfügbaren Schwebstofffilter den Beanspruchungen der Auslegungsstörfälle standhalten wurden, denn sie versagen vielfach bereits im Normalbetrieb. Es wurde deshalb damit begonnen, das Verhalten von Schwebstofffiltern unter hoher Differenzdruckbelastung zu untersuchen. Über die bisher erarbeiteten Ergebnisse und die bereits möglichen Schlußfolgerungen soll in folgenden ebenso berichtet werden wie über die geplanten weiteren Arbeiten.

3. Experimentelles

3.1. Versuchsanlage

Die einzige zur Zeit existierende Versuchsanlage, zur Beaufschlagung von Schwebstofffiltern mit hohen Volumenströmen, und damit verbunden, zur Erzeugung von hohen Differenzdrucken über die Filterelemente wird vom Los Alamos National Laboratory (LANL) betrieben. Diese Anlage konnte für bisher zwei umfangreiche Versuchsprogramme genutzt werden.

Es handelt sich um eine blow-down-Anlage, deren schematischer Aufbau mit den wichtigsten Komponenten in Bild 3 wiedergegeben ist. Sie besteht im Prinzip aus zwei großen Tanks zur Speicherung von Preßluft, einer 30 m^3 großen Vorfilterkammer, in der der Luftstrom mit Schwebstofffiltern gereinigt wird, und einem Testkanal, an dessen Ende das zu testende Filter montiert ist. Der Testkanal ist etwa 6 m lang. Sein Querschnitt von $610 \times 610\text{ mm}$ entspricht den Abmessungen des Standardfilterelementes.

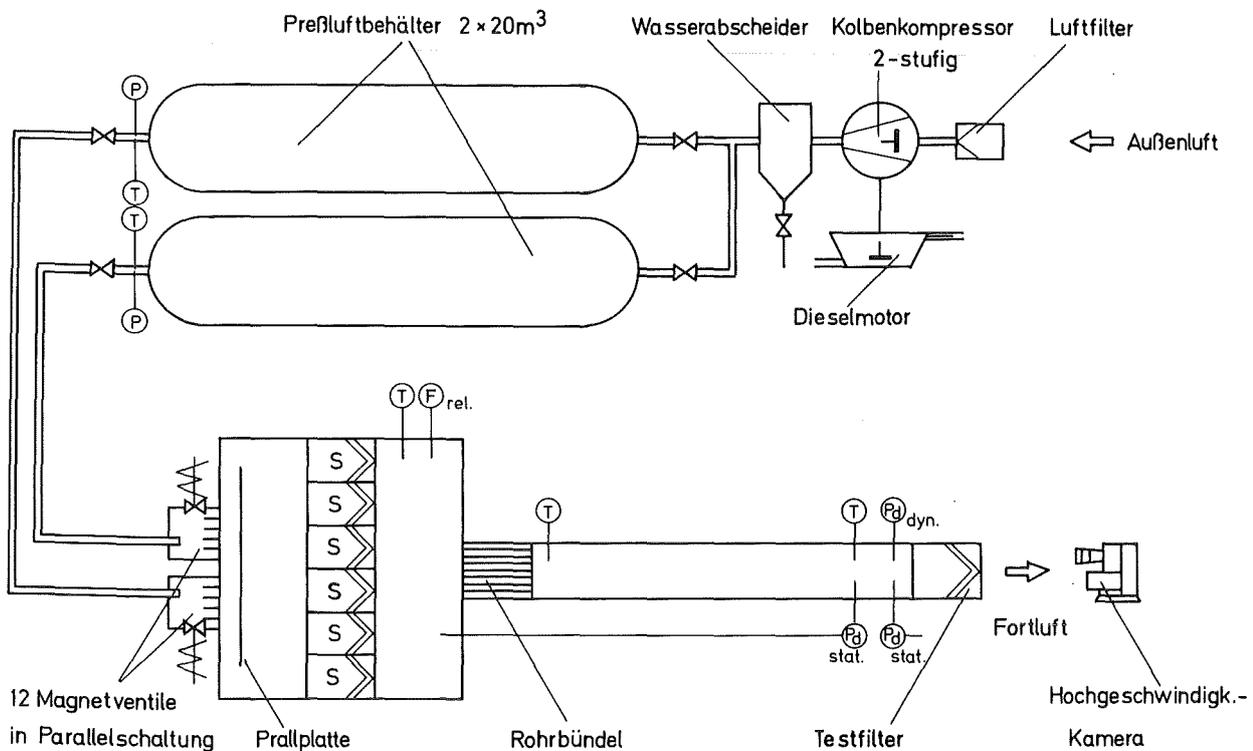


Abb. 3: Schema der Anlage des LANL zur Prüfung der mechanischen Belastbarkeit von Schwebstofffiltern.

Die Anströmgeschwindigkeit und damit auch der Differenzdruck am Filter wird mit Hilfe der 12 parallel geschalteten Magnetventile gesteuert. Sie dienen weiterhin zur Einstellung der Druckrampe am Filter. Weitere Einzelheiten sind z.B. den Ref. 7. und 8 zu entnehmen.

3.2. Prüfung der Differenzdruckbelastbarkeit

Ein Ziel dieser Untersuchungen war es, die Belastbarkeit der Schwebstofffilter gegenüber erhöhtem Differenzdruck zu ermitteln. Die Belastbarkeit ist im Rahmen dieser Tests als derjenige Differenzdruck definiert, bei dem die erste sichtbare Beschädigung eintritt. Das Verhalten des Testfilters bei der zunehmenden Belastung durch ansteigenden Differenzdruck wird mit Hilfe einer Hochgeschwindigkeitskamera registriert. Die Analyse der Zeitlupenfilme erlaubt die Ermittlung des Zeitpunktes des Schadens Eintritts. Zusammen mit den Schreiberdiagrammen des Differenzdruckes wird die Schadensbelastung bestimmt.

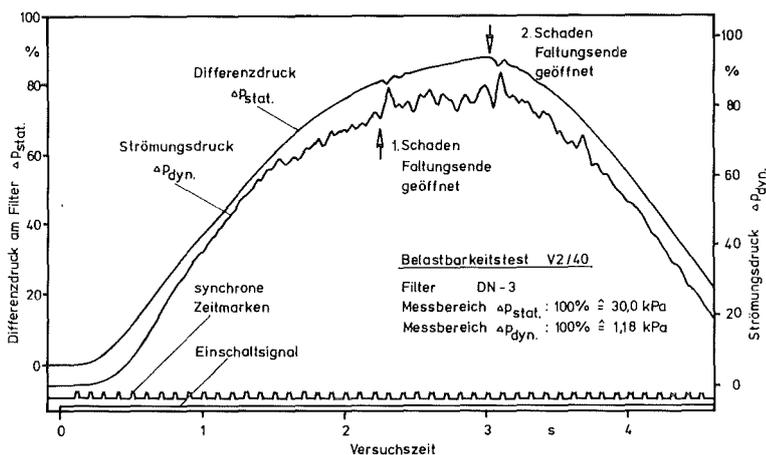


Abb. 4: Schreiberdiagramm mit dem Verlauf von Differenzdruck und Strömungsdruck eines typischen Tests zur Differenzdruckbelastbarkeit

In Bild 4 ist die Aufzeichnung des zeitlichen Verlaufes des Differenzdruckes am Filter und des Strömungsdruckes wiedergegeben. Die Druckrampe am Filter wird auf etwa 15 kPa s^{-1} eingeregelt. Synchron zu den Zeitmarken im Diagramm wird ein Lichtpunkt auf dem Film erzeugt, um die exakte Korrelation zwischen der Schreiberaufzeichnung und dem Zeitlupenfilm zu ermöglichen. Üblicherweise dauert ein Test nur wenige Sekunden. Zu jeder Prüfung wird ein neues Filterelement eingesetzt. Pro Filtertyp werden mindestens drei Exemplare getestet.

3.3. Untersuchung der Druckverlustcharakteristik

Die Druckverlustkennlinie der unterschiedlichen Filtertypen muß u.a. aus versuchstechnischen Gründen bekannt sein, um die Steilheit des Anstieges des Differenzdruckes am Filter einstellen zu können. Darüber hinaus werden die Druckverlustkennlinien für Rechencodes benötigt, die zur Beschreibung des Verhaltens von Lüftungsanlagen bei Störfällen wie z.B. der Code TVENT⁴⁾ entwickelt werden. Schließlich ist der Verlauf der Druckverlustkurve in Hinsicht auf einen eventuellen Schaden von Wichtigkeit, denn die mechanische Belastung bei einem gegebenen Luftvolumenstrom wird umso höher sein, je höher der Filterwiderstand, d.h. der Differenzdruck, ist.

Die Druckverlustkennlinien wurden ebenfalls mit Hilfe der blow-down-Anlage des LANL ermittelt, wobei man den Volumenstrom jeweils stufenweise steigert, nachdem ein konstanter Betriebspunkt erreicht ist. Der Ablauf eines typischen Versuches ist Bild 5 zu entnehmen, in dem die Verläufe von Differenzdruck am Filter und dem Strömungsdruck aufgezeichnet sind. Aus dem Strömungsdruck wird die mittlere Strömungsgeschwindigkeit, unter Zugrundelegung des gemessenen Geschwindigkeitsprofils am Einbauort des Pitot-Rohres, errechnet.

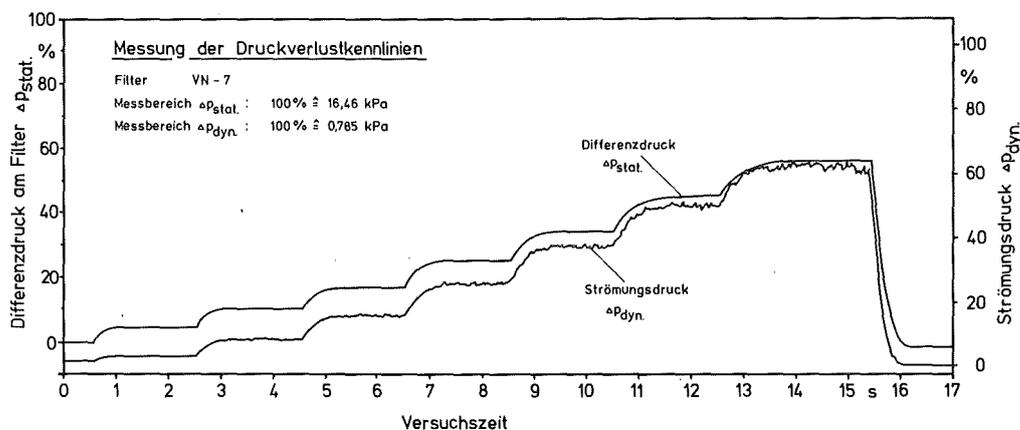


Abb. 5: Messung der Druckverlustkurve; Verlauf des Differenzdruckes und des Strömungsdruckes bei einem typischen Test.

3.4. Filtervorbeladung mit Polystyrol-latex Aerosolen

Schwebstofffilter werden im praktischen Einsatz zunehmend mit Staub beladen, bis sie, bei Erreichen eines Druckverlustes von üblicherweise 1000 Pa bei Nennvolumenstrom, ausgetauscht werden. Es ist nicht auszuschließen, daß sich die Beladung der Filterelemente auf ihre Belastbarkeit auswirkt. Deshalb wurde der Einfluß der Beladung mit geprüft.

Die Beladung erfolgte mit Polystyrol-latex-Teilchen von etwa $0,3\mu\text{m}$ aerodynamischem Durchmesser in einem separaten Filterkanal. Das Aerosol wird durch Zerstäuben einer wässrigen Suspension im Kanal erzeugt. Nach Verdampfen der Wassertröpfchen auf dem Weg zum Filter verbleiben nur noch die Latexteilchen, die im Filterpapier abgeschieden werden.

Bei den vorliegenden Versuchen wurde die Latex-Suspension mit gegenüber dem Vorfahren in Ref. 8 erheblich gesteigerten Durchsatz zerstäubt. Als Folge davon war die Verdunstung des Wassers nicht vollständig, so daß das Filtermedium noch von Suspensionströpfchen erreicht wurde. Von dort verdunstet dann die Restfeuchte. In Bild 6 ist eine REM-Aufnahme einer so beladenen Filterpapierprobe wiedergegeben, die ausgetrocknete Tröpfchen zeigt, die die Faser umschließen. Als weitere Folge dieser Art der Vorbeladung ist eine besonders starke Fixierung der Teilchen in der Glasfasermatrix anzunehmen, was für die durchzuführenden Belastbarkeitstests und Druckverlustmessungen von Vorteil ist.

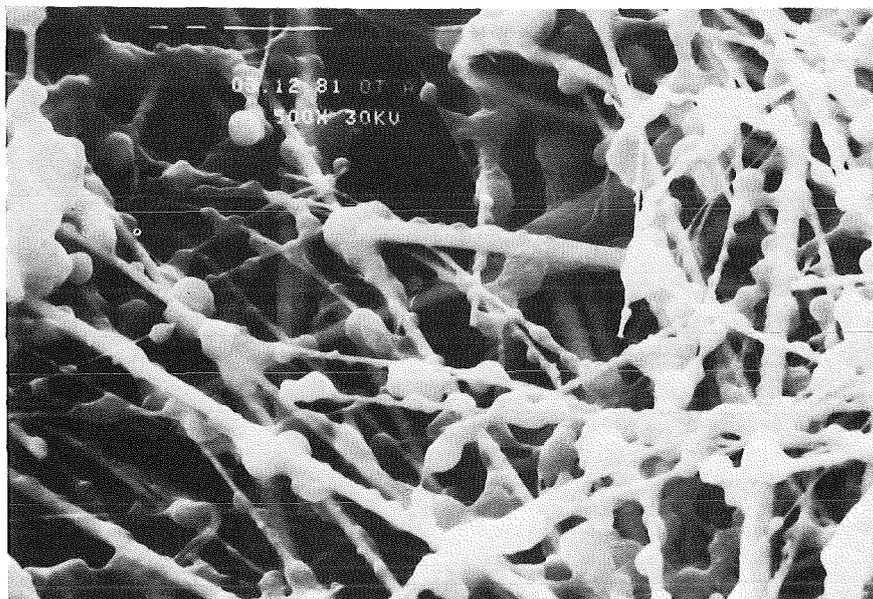


Abb. 6: REM-Aufnahme einer Filterpapierprobe, vorbeladen mit Polystyrol-latex-Teilchen

3.5. Testfilter

Ein wesentliches Ziel der ersten Versuchsphase war es, den aktuellen technischen Stand hinsichtlich der Belastbarkeit durch erhöhten Differenzdruck zu ermitteln. Deshalb wurden die Testfilter aus dem Angebot der wichtigsten Hersteller in Europa und den U.S.A. entsprechend ausgewählt.

Es wurden 12 Typen handelsüblicher Filterelemente getestet, deren Nennvolumenstrom 1700 bzw. 1800 m³/h betrug, mit Ausnahme des Typs DV mit 3000 m³/h. Sie können in drei Gruppen unterteilt werden:

- konventionell (tief) gefaltete Filterelemente mit Holzrahmen und Kunststoffvergußmasse für den Einsatz unterhalb 120 °C
- konventionell (tief) gefaltete Filterelemente mit Metallrahmen und wärmebeständiger Fixierung des Packs für den Einsatz bis 250 °C
- Filter in sog. V-Bauweise mit Holzrahmen und Kunststoffvergußmasse für den Einsatz unterhalb 120 °C.

Zusätzlich wurden 6 Typen von Schwebstofffiltern getestet, bei denen einfache Modifikationen vorgenommen worden waren. Ihre konstruktiven Details werden in Abschnitt 4 erläutert.

4. Belastbarkeit von Schwebstofffiltern

4.1. Ergebnisse der Belastbarkeitstests handelsüblicher Schwebstofffilter

Die Testergebnisse für die neuen unbeladenen Filterelemente sind in Tabelle I zusammengefaßt. Bei den angegebenen Belastbarkeiten handelt es sich um Mittelwerte aus 3 bis 5 Wiederholungen. Die Standardabweichungen der Testergebnisse lagen zwischen 3 % und 11 %, was die außerordentlich gute Reproduzierbarkeit der Experimente belegt. Lediglich bei zwei Filtertypen trat jeweils ein stark abweichender Meßwert auf. Größere Streuungen im Bereich von 12 % bis 21 % wurden über einen Beobachtungszeitraum von zwei Jahren mit einer größeren Zahl von Testwiederholungen, mit 4 Typen, von Ricketts⁹⁾ erhalten. Da für jeden Test ein neues Filter zum Einsatz kommt, beinhaltet die Standardabweichung sowohl die Streuungen der Versuchsdurchführung als auch die Streuungen der Filtereigenschaften aus der Produktion.

Diese Zahlen zeigen also auch, daß die Schwebstofffilter mit niedriger Streuung ihrer mechanischen Belastbarkeit hergestellt werden können, was von Wichtigkeit hinsichtlich der Sicherheitsmarge ist, die der Hersteller zur Erfüllung einer Spezifikation dem Sollwert hinzuzuschlagen hat.

Tabelle I: Belastbarkeit handelsüblicher Schwebstofffilterelemente gegenüber erhöhtem Differenzdruck, Filtergröße 610 x 610 x 292 mm.

Filterbauart		Typ	Nenn-Volumenstrom m^3h^{-1}	Zahl der Tests	Schadensbelastung kPa	Standardabweichung %
Faltung	Rahmen					
konventionell	Holz	DH	1 700	5	11,6	9
		VN	1 700	3	13,9	7
		S3	1 800	3	17,4	28
		DN	1 800	3	22,5	9
konventionell	Metall	C1	1 700	4	4,2	11
		VM	1 700	4	7,0	8
		AM	1 700	4	8,4	6
		C2	1 700	3	9,3	6
		DM	1 700	6	10,5	3
V-Faltung	Holz	L	1 700	3	5,9	5
		DR	1 700	5	5,9	6
		DV	3 000	3	11,1	30

Als der i.a. am höchsten belastbare Filtertyp erwies sich das konventionell gefaltete Schwebstofffilter mit einer Kunststoffvergußmasse. Bei dem Filtertyp DN dieser Gruppe handelt es sich bereits um eine Modifikation des Filtertyps DH. Durch diese Modifikation wurde eine Verbesserung auf den bereits recht hohen Wert von 22,5 kPa erzielt. Der Einsatzbereich dieser Filterbauweise ist jedoch auf maximal 120 °C begrenzt. Die Metallrahmenfilter, die aufgrund der verwendeten Materialien für den Einsatz bei hohen Temperaturen ausgelegt sind, und deshalb als potentielle Störfallfilter

gelten können, besitzen jedoch den Nachteil relativ niedriger Belastbarkeit. Die Filter in der V-Bauweise versagen ebenfalls bereits bei relativ niedrigem Differenzdruck. In Hinsicht auf die Belastbarkeit gegenüber erhöhtem Differenzdruck scheint die V-Bauweise der konventionellen Faltung unterlegen zu sein.

In Tabelle II werden die Schadensdifferenzdrucke der unbeladenen und beladenen Filter miteinander verglichen. Auch die Belastbarkeit vorbeladener Filter wurde anhand von 3 bis 4 Tests pro Filtertyp ermittelt. In einem Fall blieb die Belastbarkeit unbeeinflusst. In den übrigen Fällen wurde eine Reduktion der Belastbarkeit um maximal 40 % beobachtet. Die Analyse der Zeitlupenfilme läßt jedoch vermuten, daß diese Verminderung der Belastbarkeit nur teilweise auf den Einfluß der Beladung zurückzuführen sein dürfte. Ein anderer Anteil kann dadurch verursacht werden, daß bei vorbeladenen Filtern der erste Schaden manchmal erst anhand der Freisetzung einer Staubwolke feststellbar ist, während er ohne Vorbeladung nicht erkennbar geblieben wäre. Dies dürfte insbesondere für den Filtertyp DV zutreffen, der in V-Bauweise hergestellt ist, dessen einzelnen Faltenpacks sehr eng zusammen stehen und deshalb schwer zu beobachten sind.

Tabelle II: Einfluß der Filtervorbeladung auf die Belastbarkeit gegenüber erhöhtem Differenzdruck, Filtergröße 610 x 610 x 292 mm, Beladung mit Polystyrollatex auf $\Delta p \approx 1000$ Pa bei Nennvolumenstrom.

Filterbauart		Filtertyp	Belastbarkeit		Verminderung %
Faltung	Rahmen		unbeladen kPa	vorbeladen kPa	
konv.	Holz	DN	22,5	22,5	0
konv.	Metall	AM	8,4	8,0	5
		VM	7,0	6,2	11
		DM	10,5	7,7	27
V-Form	Holz	DV	11,1	6,7	40

Die Testergebnisse zeigen, daß die derzeit handelsüblichen Schwebstofffilter bereits bei relativ niedrigen Differenzdrucken versagen. Dieser Befund stimmt mit denjenigen Resultaten überein, die Gregory und Mitarbeiter⁷⁻⁹⁾ publiziert haben. Auch Untersuchungen zum Verhalten von Schwebstofffiltern gegenüber Druckwellen erbrachten Belastbarkeitswerte, die sich in der gleichen Größenordnung bewegten. Wenn man als Belastungsgröße den Spitzenwert der Druckwelle wählt, so erhält man im Mittel um 50 % höhere Werte¹⁰⁻¹³⁾. Weiterhin berichtete eine größere Zahl von Autoren über Beschädigungen von Schwebstofffilterelementen, die ebenfalls bei relativ niedrigem Differenzdruck auftraten^{14-22, 27)}. Diese Beobachtungen wurden im Rahmen verschiedener Untersuchungen insbesondere zum Feuchteeinfluß gemacht.

Außerdem stützen andere Arbeiten den Befund, daß die Filter in der sog. V-Bauweise besonders früh versagen^{11, 19, 21)}. Hier gibt es eine Ausnahme, im Falle eines Filters der Firma LUWA mit einem Nennvolumenstrom von 3000 m³/h das neuerdings von Gregory und Smith¹⁰⁾ geprüft wurde. Es ist nicht klar ob der hohe Wert von 15,9 kPa auf die Probleme bei der Erkennung des Schadenseintritts bei diesem Filtertyp zurückzuführen ist.

Gregory¹⁰⁾ bestätigte neuerdings, daß die Filtervorbeladung zu einer Verminderung der Belastbarkeit führt. Eine Unterscheidung zwischen der effektiven Auswirkung der Beladung und dem Anteil der aus der besseren Schadenserkenntnis resultiert, ist bisher noch nicht möglich. Es ist ferner noch nicht bekannt, auf welchem Weg die Belastbarkeit durch die Vorbeladung vermindert wird.

4.2. Analyse der Schadensformen und Schadensverläufe

Die Analyse der Zeitlupenfilme erlaubt nicht nur die Ermittlung des Zeitpunktes des Schadenseintritts und damit des Schadensdifferenzdruckes, sie liefert darüber hinaus eine Fülle von Informationen zu den Schadensformen und Schadensverläufen. Diese Informationen geben wertvolle Hinweise auf die Schadensmechanismen und schaffen die Grundlage für eine erfolgreiche Filterertüchtigung durch die Industrie. Im folgenden werden die drei wichtigsten Versagensarten diskutiert.

Schwebstofffilter für den Einsatz bei Temperaturen bis etwa 120 °C werden i.a. mit Holzrahmen aus Sperrholz oder Preßspan hergestellt. In Ausnahmefällen werden jedoch auch solche Filterelemente mit Metallrahmen angeboten. Charakteristisch für beide Versionen ist die Verwendung einer Kunststoffvergußmasse zur Befestigung des Filterpapierpacks im Rahmen. Die derzeit verfügbaren Vergußmassen begrenzen die Einsatztemperaturen auf maximal 120 °C. Im Gegensatz hierzu müssen bei den Metallrahmenfiltern für hohe Temperaturen andere Wege zur wärmebeständigen Befestigung des Packs im Rahmen besprochen werden. In aller Regel wird dabei das vorgefertigte Pack in den Rahmen eingesetzt und die Hohlräume zwischen Pack und Rahmen werden mit Glaswolle ausgestopft. Deshalb wird das Pack vorwiegend durch Reibungskräfte gehalten. Sobald diese, infolge des angestiegenen Differenzdruckes, überschritten werden, wird das praktisch unbeschädigte Pack aus dem Gehäuse herausgeschoben. Als Beispiel ist ein leeres Gehäuse eines getesteten Filterelementes in Abb. 7 wiedergegeben.

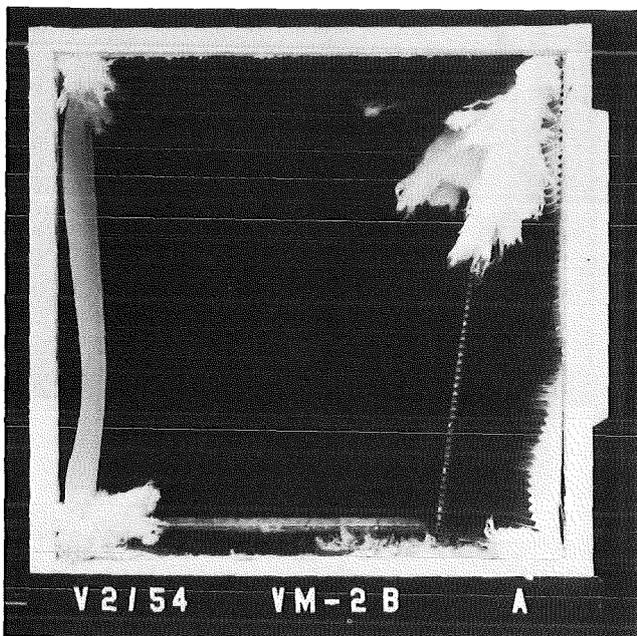


Abb. 7: Typischer Schaden eines Metallrahmenfilters für hohe Temperatur

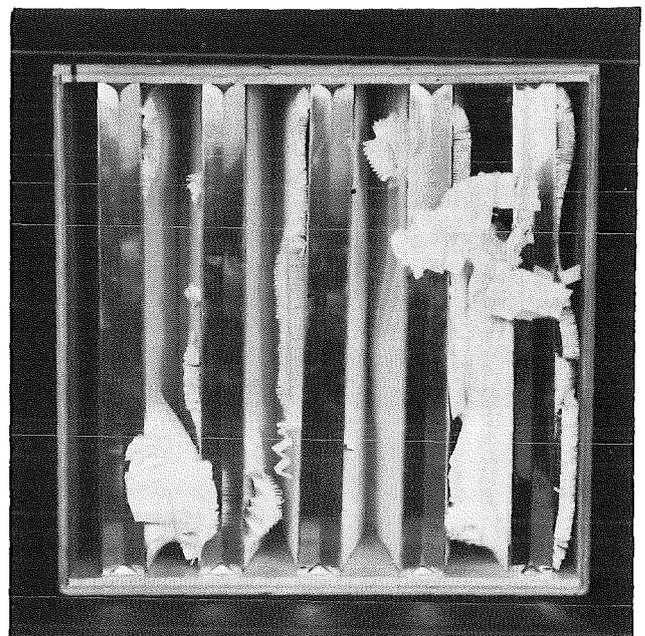


Abb. 8: Typische Schadensform eines Filters in V-Bauweise

Die Filter der V-Bauweise versagen dadurch, daß eines der Packs an den senkrechten Stegen, an denen sie vergossen sind, abscheren. Das Filterelement in Bild 8 veranschaulicht diese Schadensform, die von anderen Autoren^{10,19,21)} teils in anderem Zusammenhang beobachtet wurden. In diesem Fall war zwar die Befestigung der Einzelpackes im Rahmen relativ stabil, die Belastbarkeit der kleinen Packs war jedoch unzureichend. Dieses Verhalten kann auf der Grundlage der von Anderson¹³⁾ publizierten Ergebnisse erklärt werden. Der Autor zeigte, daß die Festigkeit des Packs mit abnehmender Tiefe der Faltung abnimmt. Diese Beobachtung wurde von Burchsted²³⁾ bestätigt. Da die Faltungstiefe der kleinen Packs der Filter in V-Bauweise nur etwa 1/12 bis 1/6 der Faltungstiefe der konventionellen Bauweise ausmacht, war eine verminderte Belastbarkeit zu erwarten.

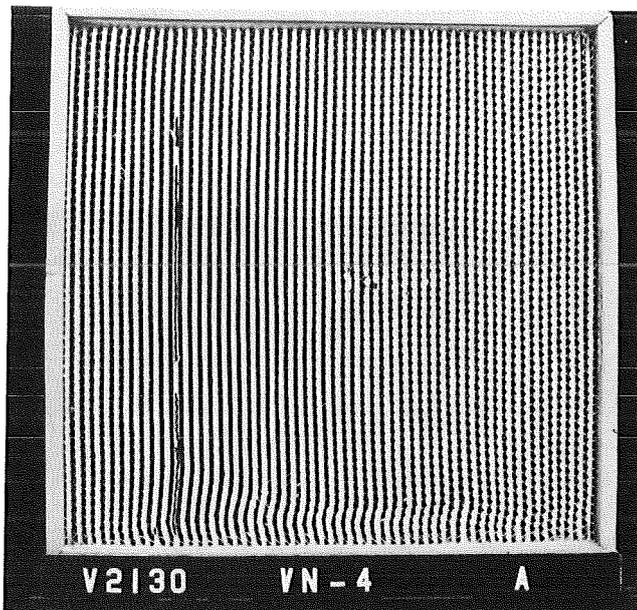


Abb. 9: Typischer erster Schaden bei einem Holzrahmenfilter in konventioneller Faltung

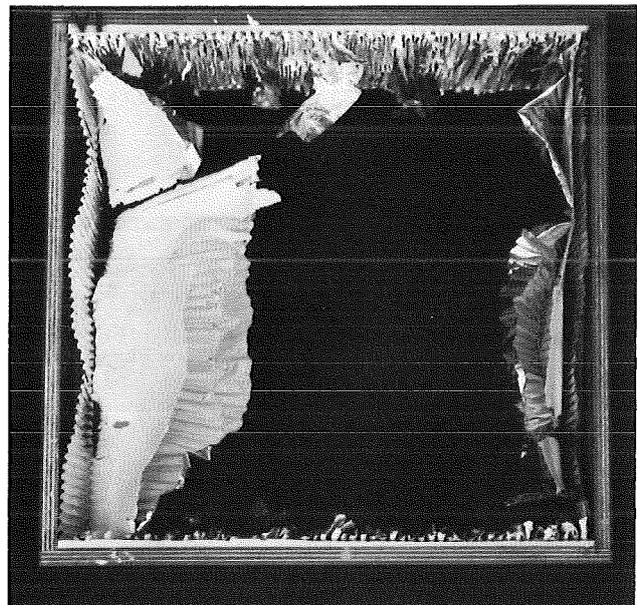


Abb. 10: Vollständig zerstörtes Holzrahmenfilter in konventioneller Faltung

Die Zeitlupenfilme zeigen, daß bei den konventionell gefalteten Schwebstofffiltern mit Kunststoffvergußmasse das Herausreißen von Filterpapierstückchen aus einzelnen Faltungsenden auf der Abströmseite als typische Schadensform auftritt (siehe Bild 9). Bei Wiederholungsversuchen mit einem

Filtertyp beobachtete Gregory²⁴⁾, daß in 8 von 11 Tests die Falten un- mittelbar neben den senkrechten Seiten des Rahmens zuerst beschädigt wurden. Gestützt auf diese Messungen, die eigenen Untersuchungen sowie auf die von Ricketts publizierte Ergebnisse⁹⁾ kann man feststellen, daß bei dieser Filterbauweise der erste Schaden in einem Faltungsende auf der Reinluft- seite auftritt und weiter, daß die Falten der seitlichen Randbereiche be- sonders gefährdet sind.

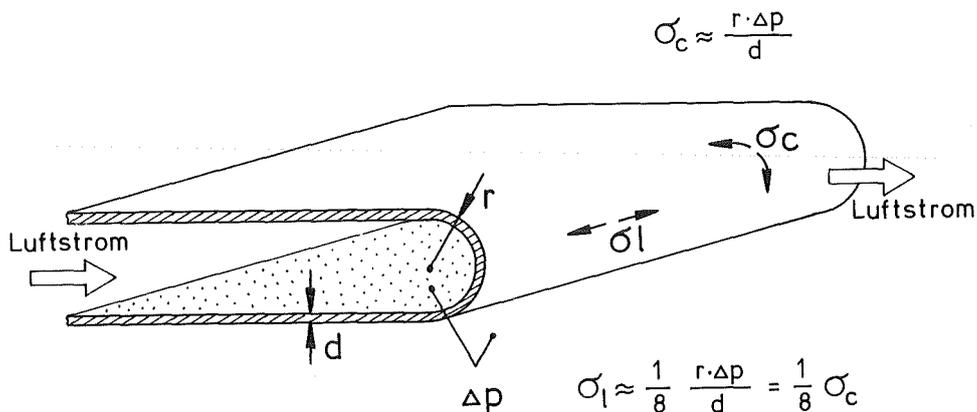


Abb. 11: Zugspannungen in den Faltungsenden eines durchströmten Filters

Aus den Zeitlupenfilmen ist weiterhin zu entnehmen, daß sich die ver- sagenden Falten zunächst aufblähen. Die dabei im Filterpapier auftretenden Zugspannungen werden in Bild 11 erläutert. Die Zugspannung in Umfangsrich- tung σ_u beträgt näherungsweise

$$\sigma_u \approx \Delta p \cdot \frac{r}{d}$$

wobei r der Radius der Falte ist, d die Dicke des Filtermediums und Δp der Differenzdruck. Infolge des Aufblähens wächst der Radius der Falte und da- mit auch die Zugspannung σ_u im Filterpapier so lange bis die Zugfestigkeit überschritten wird und der Schaden eintritt. Die Tatsache, daß die Zugspan- nung in Längsrichtung σ_L

$$\sigma_L \approx \frac{1}{8} \cdot \Delta p \cdot \frac{r}{d} \approx \frac{1}{8} \sigma_u$$

nur etwa ein Achtel der Spannung in Umfangsrichtung beträgt, erklärt, weshalb keine Querrisse einzelner Falten aufgetreten sind. Querrisse über das ganze Pack wurden dann beobachtet, wenn sich, mangels ausreichender Fixierung im Rahmen, das ganze Pack in Strömungsrichtung ausbeulte.

Offensichtlich ist auch die Zugfestigkeit des Filterpapiers von großer Bedeutung für die Belastbarkeit von Schwebstofffiltern gegenüber erhöhtem Differenzdruck. Eine gute Korrelation zwischen beiden Größen wurde von Ricketts⁹⁾ festgestellt. Die nähere Untersuchung der beschädigten Faltungsenden ergab, daß die Schäden üblicherweise an den Faltkanten aufgetreten sind (siehe Abb. 12 und 13).

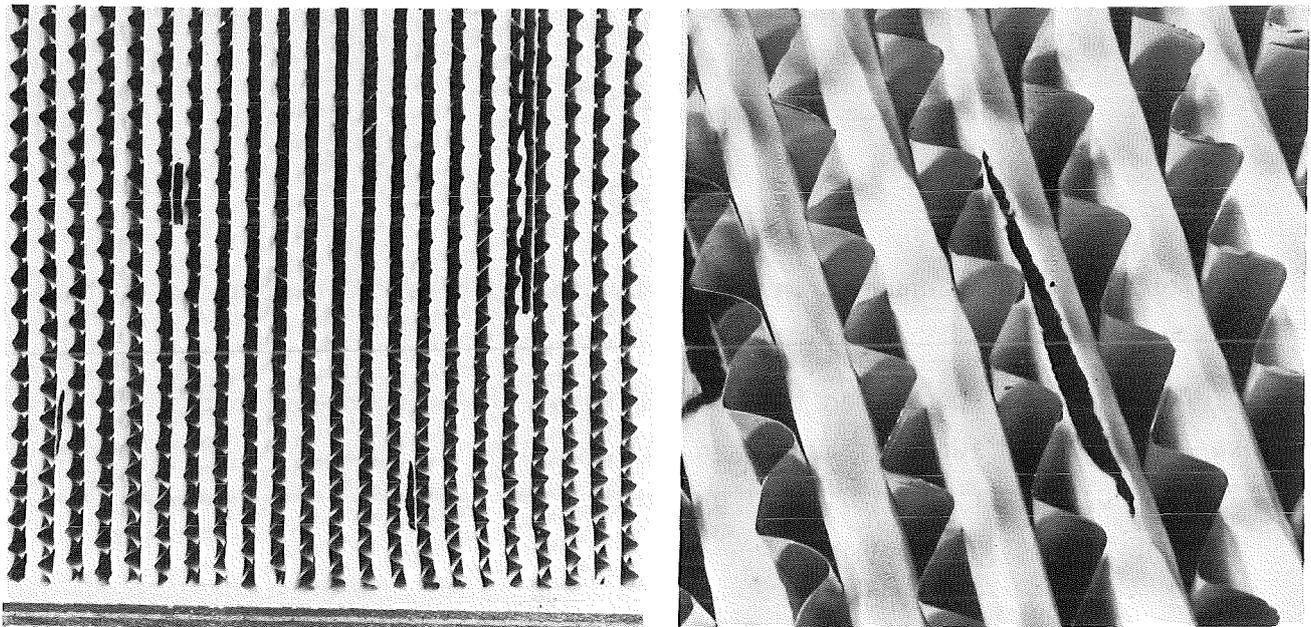


Abb. 12, 13: Beschädigte Faltungsenden konventionell gefalteter Schwebstofffilter

Dieser Befund weist darauf hin, daß die Zugfestigkeit des Filterpapiers längs dieser Kanten vermindert ist. Die Rasterelektronenmikroskopische Analyse zeigte nun, daß das Filterpapier stellenweise in den Faltkanten vorgeschädigt ist, was wahrscheinlich beim Faltungsvorgang im Laufe der Filterherstellung geschieht. Eine entsprechende Stelle zeigt die REM-Aufnahme in Bild 14.

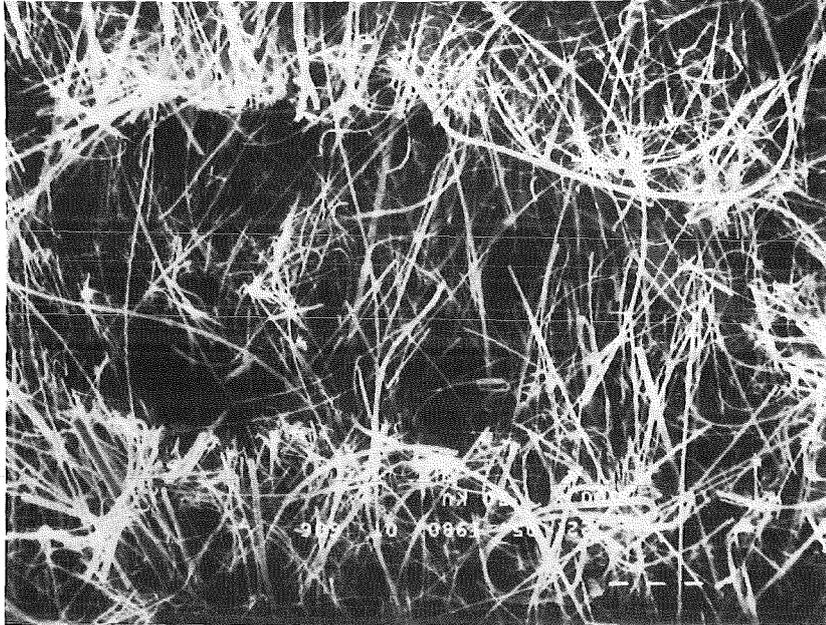


Abb. 14: REM-Aufnahme eines in der Faltkante vorbeschädigten Filterpapiers

Wenn der Differenzdruck am Filter über die Schadensbelastung hinaus weiter ansteigt, nimmt die Zahl der beschädigten Falten und das Ausmaß des Schadens zu. Wenn schließlich der Differenzdruck erheblich gesteigert wird, dann werden auch die Filter in konventioneller Faltung mit Kunststoffvergußmasse total zerstört. Ein entsprechendes Beispiel zeigt Bild 10.

Die Ergebnisse der Analyse von Schadensformen und Schadensverläufen können mit der Feststellung zusammengefaßt werden, daß es insbesondere drei Schwachstellen sind, die die Belastbarkeit gegenüber erhöhten Differenzdruck auf dem derzeitigen Niveau halten:

- die Befestigung des Faltenpacks im Rahmen (bei den Filtern für erhöhte Temperaturen)
- die Stabilität des Faltenpacks
- die Zugfestigkeit des Filterpapiers.

Verbesserungen in diesen Punkten scheinen im Hinblick auf Störfallbedingungen erforderlich.

4.3. Untersuchung modifizierter Filterelemente

Auf der Grundlage der bisher erarbeiteten Ergebnisse wurden verschiedene modifizierte Prototypen hergestellt und ihre Belastbarkeit mit dem Ziel getestet, einerseits die Vorstellungen über die Schadensmechanismen zu verifizieren und andererseits Wege zur Verbesserung der Schwebstofffilter aufzuzeigen. Ausgangsversion war ein konventionell gefaltetes Filter mit Holzrahmen und Kunststoffvergußmasse, eine Version, bei der die Fixierung des Packs im Rahmen gut gelöst ist. Die Modifikationen betrafen einerseits die Stabilität des Faltenpacks und andererseits die Festigkeit des Filterpapiers. Die Details sind in Tabelle III zusammen mit den erzielten Belastbarkeiten aufgelistet. Bei den angegebenen Versagensdifferenzdrucken handelt es sich wiederum jeweils um Mittelwerte aus vier bis fünf Wiederholungen. Eine Ausnahme bildet lediglich der Typ S 1 von dem lediglich ein Exemplar zur Verfügung stand.

Bei manchen Tests war der maximal erreichte Differenzdruck nicht ausreichend um einen Schaden zu verursachen. In diesen Fällen (Typ S4 und S7) wurde der Mittelwert mit der maximal erreichten Belastung gebildet. Das bisher beste Ergebnis wurde mit einer Kombination von Langfaserfilterpapier erhöhter Zugfestigkeit und einem U-förmig gefalteten Vliesstreifen, der in die Faltungsenden zwischen die Aluminiumabstandshalter und das Filterpapier eingelegt wird, erreicht. Diese Lösung war bereits von White und Smith ²⁵⁾ vorgeschlagen worden. Ein Filter dieses Typs blieb selbst bei einem Differenzdruck von 27,6 kPa unbeschädigt. Ein Verlust an Abscheideleistung erlitt dieses Filter beim Belastbarkeitstest nicht. Fast ebenso gute Ergebnisse wurden mit den Filtern des Typs S7 erzielt, wobei zwei Exemplare bei 25,6 kPa bzw. 26,5 kPa unbeschädigt bleiben. Für die Filter S5 und S6 war eine Verbesserung der Belastbarkeit gegenüber dem vergleichbaren Modell DN erwartet worden. Den Ergebnissen von Anderson ¹³⁾ zu Folge hätte dies die Reduktion der freien Anströmfläche um Faktor 2 bewirken sollen. Wegen Fehler in der Fertigung war die Überprüfung dieses Parameters nicht möglich.

Ein besonderes Schwebstofffilter war aus einer Serie von Edelstahlfasermatten hergestellt worden, wobei jede zwischen kräftigen Edlestahlgittern, die mit einem Stegkreuz gestützt wurden, eingespannt waren ²⁶⁾.

Tabelle III: Belastbarkeit modifizierter Schwebstofffilterelemente, Filtergröße 610 x 610 x 292 mm

Filtertyp	Nennvolumenstrom $\text{m}^3 \text{h}^{-1}$	Charakterisierung	Schadensbelastung kPa
DH	1 700	Ausgangstyp	11,6
DN	1 800	Glasfasergewebeeinlage in Faltungsenden	22,5
S4	1 800	Langfaserpapier mit Glasfasergewebeeinlage	24,0 ¹⁾ (27,6 ¹⁾)
S5	1 600	Längssteg in Filter- mitte mit Glasfaser- gewebeeinlage	18,0 ²⁾
S6	1 600	Quersteg in Filter- mitte mit Glasfaser- gewebeeinlage	17,0 ²⁾
S7	1 700	Glasfaserschutzvlies voll mitgefaltet	23,1 ³⁾ (26,5 ³⁾)
S1	≈ 50	Metallfasermattenfilter mit beidseitigem Stütz- drahtnetz und Verstär- kungsstegen	>28,2

- 1) Ein Filterelement blieb bei dem max. Differenzdruck von 27,6 kPa unbeschädigt.
- 2) Filter wiesen Fertigungsmängel auf.
- 3) Zwei Filterelemente blieben bei dem max. Differenzdruck von 25,6 und 26,5 kPa unbeschädigt.

Dieses Filter, das bis zu Temperaturen von 500 °C einsetzbar sein dürfte, blieb bei dem höchsten mit der Anlage des LANL realisierbaren Differenzdruck von 28 kPa unbeschädigt. Als Folge der Beanspruchung durch den hohen Differenzdruck wurde eine geringe Verminderung des Abscheidegrades im Bereich des Auslegungsvolumenstromes festgestellt.

Die Untersuchungen mit den modifizierten Schwebstofffiltern zeigten, daß bereits einfache Maßnahmen ausreichen, um die Belastbarkeit der Niedertemperaturversion, bei der die Fixierung des Faltenpacks im Rahmen gut gelöst ist, nennenswert zu verbessern.

5. Die Druckverlustkennlinien von Schwebstofffiltern bei hohen Volumenströmen

5.1. Druckverlust neuer unbeladener Filterelemente

Der Verlauf der Druckverlustkennlinie ergibt, welcher Differenzdruck am Filter herrscht, und somit welche mechanische Belastung das Filter bei einer bestimmten Strömungsgeschwindigkeit beansprucht. Aus diesem Grund ist der Verlauf des Druckverlustes eng mit einem möglichen Schaden verknüpft und ebenfalls sicherheitsrelevant. Dieses ist der wesentliche Grund zur näheren Untersuchung dieser Eigenschaft von Schwebstofffiltern. Daneben ist die Kenntnis des Druckverlustes erforderlich zum richtigen Fahren des blow-down-Prüfstandes und ferner als Eingangsdaten für Rechencodes.

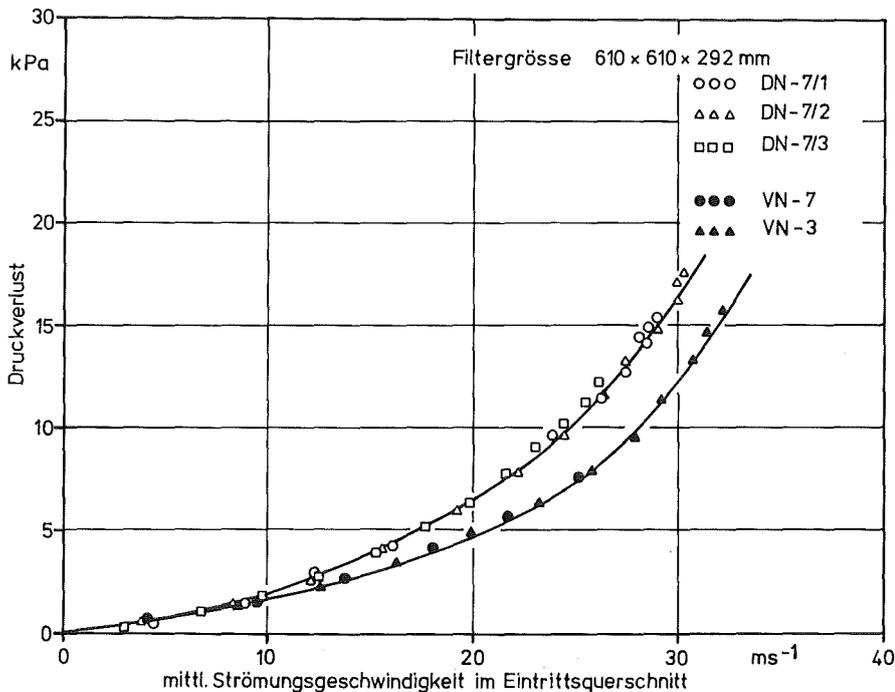


Abb. 15: Wiederholbarkeit der Messungen der Druckverlustkennlinien

Bild 15 zeigt typische Kennlinien von konventionell gefalteten Schwebstofffiltern. Vom Typ DN wurde ein Filter in dreifacher Wiederholung geprüft, während vom Typ VN die Kennlinien von zwei Exemplaren je einfach ermittelt wurden. Die geringen Streuungen der Meßwerte belegen die ausgezeichnete Wiederholbarkeit dieser Messungen. Aus diesem Grund und der Übersichtlichkeit halber wurde bei den beiden folgenden Diagrammen auf die Darstellung der einzelnen Meßpunkte verzichtet.

In Bild 16 sind die Kennlinien aller geprüften neuen, unbeladenen Filterelemente zusammengefaßt. Man kann sie nach drei Gruppen ordnen: die konventionell gefalteten Filter, die Filter in V-Bauweise sowie das Metallfaserfilter. Es zeigt sich, daß die Filter in V-Bauweise den konventionell gefalteten Filtern auch hinsichtlich der Druckverlustcharakteristik unterlegen sind, denn es tritt im Bereich der Anströmgeschwindigkeiten von 12 bis 15 ms^{-1} ein steiler Anstieg des Differenzdruckes und der Belastung auf. Unter den drei Filtern dieser Bauart befand sich auch ein Typ (DV) mit einem Nennvolumenstrom von $3000 \text{ m}^3/\text{h}$. Bei hohen Anströmgeschwindigkeiten verhielt sich dieser Filtertyp nicht besser als diejenigen mit einem Nennvolumenstrom von $1700 \text{ m}^3/\text{h}$. Die Filter der Versionen S5 und S6 waren mit Längs- bzw. Querstegen ausgestattet, die den freien Querschnitt reduzieren und somit die höheren Druckverlustwerte verursachen.

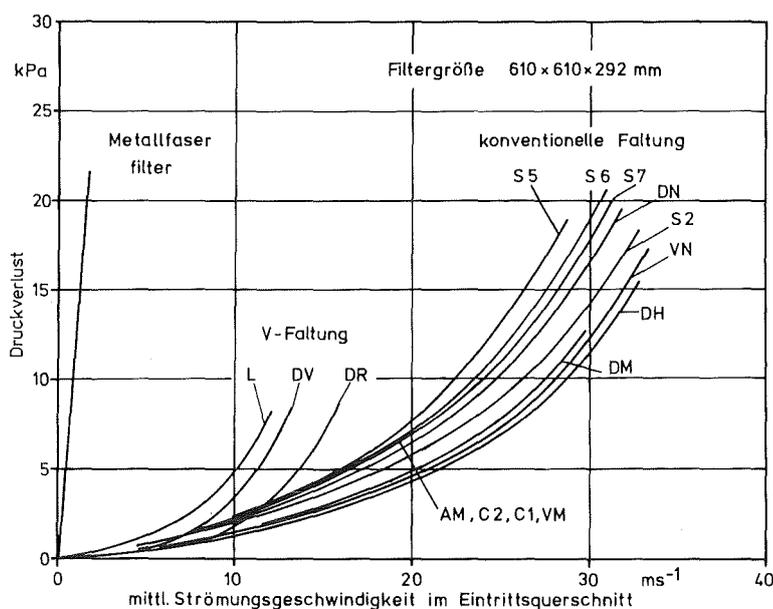


Abb. 16: Druckverlustkennlinien von unbeladenen Schwebstofffiltern der Standardgröße 610 x 610 x 292 mm.

Die Kennlinien der 10 bisher getesteten Filtertypen in konventioneller Faltung dürften die derzeit handelsüblichen Filter der konventionellen Faltung repräsentieren. Der Typ S2 beschreibt etwa die mittlere Kurve die mit der folgenden Größengleichung approximiert werden kann:

$$\Delta p = 0,026 v + 0,014 v^2$$

mit Δp als der Differenz des statischen Druckes am Filter in kPa und der mittleren Anströmgeschwindigkeit in ms^{-1} . Diese Kurve wird als gute Näherung betrachtet, die zur Verwendung in Rechencodes geeignet ist.

5.2. Druckverlust neuer vorbeladener Filterelemente

Von den in konventioneller Bauweise hergestellten Filtern wurden drei Typen mit Polystyrol latex auf 1000 Pa Druckverlust bei Nennvolumenstrom vorbeladen und anschließend ihre Widerstandskennlinie bestimmt. In Abb. 17 werden die Ergebnisse mit denen der unbeladenen Filter verglichen. Die Kurve des Filters AN wurde aus Ref. 9, Tab. 5 übertragen. Der begrenzte Umfang der Testergebnisse läßt bisher nur die Feststellung zu, daß der Druckverlust bei hohen Strömungsgeschwindigkeiten durch die Vorbeladung auf ungefähr die 4-fachen Werte ansteigt, ebenso wie bei Nennvolumenstrom.

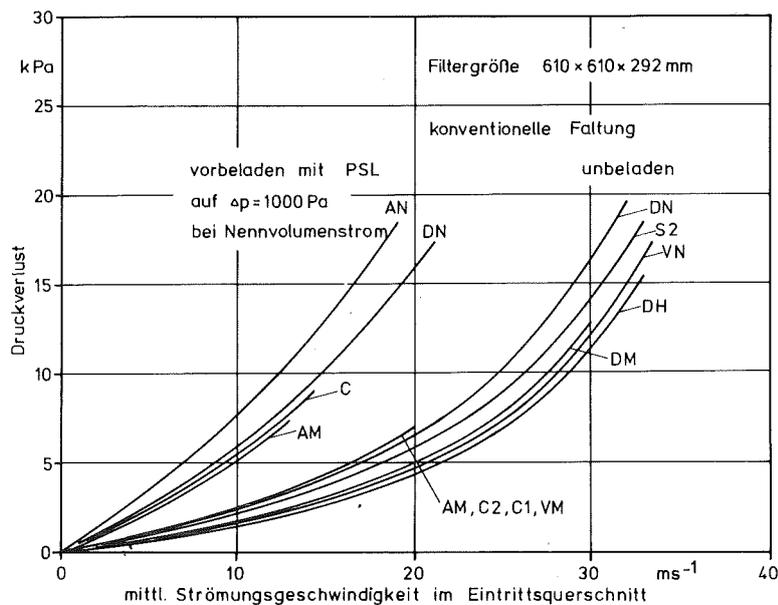


Abb. 17: Verschiebung der Druckverlustkennlinien infolge Vorbeladung auf 1000 Pa Druckverlust bei Nennvolumenstrom, konventionelle Faltung

Der Einfluß der Vorbeladung auf die Kennlinien der Filter in V-Bauweise ist in Bild 18 dargestellt. Es fällt dabei auf, daß der für diese Bauart typische steile Anstieg der Druckverlustkurven zu niedrigeren Strömungsgeschwindigkeiten hin verschoben wurde.

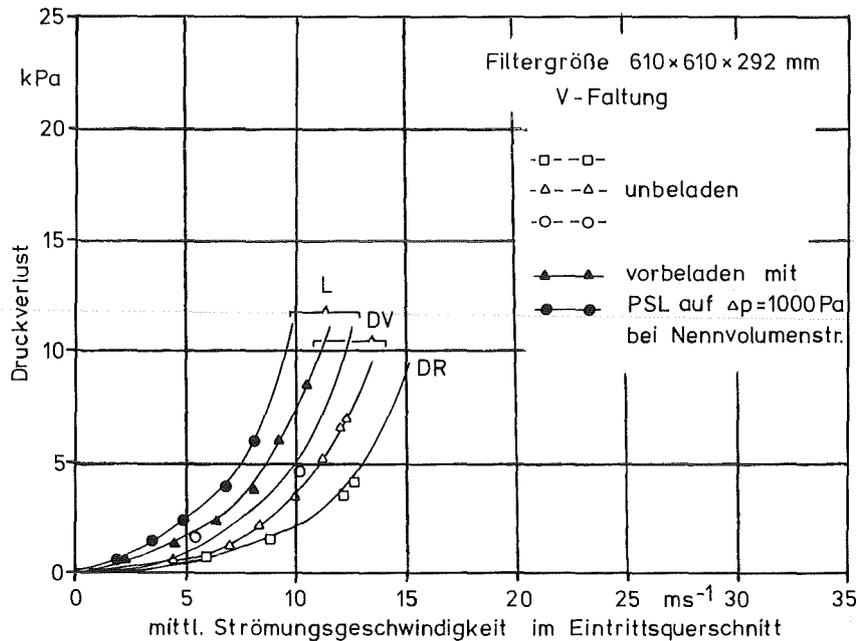


Abb. 18: Verschiebung der Druckverlustkennlinien infolge Vorbeladung auf 1000 Pa Druckverlust bei Nennvolumenstrom; Filter in V-Bauweise

5.3. Diskussion der Ergebnisse der Druckverlustmessungen

Bekanntlich ist es der Zustand der Strömung, charakterisiert durch eine Reynolds-Zahl, der den Verlauf der Druckverlustkennlinie bestimmt. Im Falle der Durchströmung eines Fasermediums, wie das Filterpapier, definiert man eine Re-Zahl mit dem Faserdurchmesser D_f als charakteristischer Länge

$$Re = \frac{D_f \cdot v_0}{\nu \cdot \rho}$$

mit der linearen Luftgeschwindigkeit v_0 , der Porosität ϵ und der kinematischen Viskosität γ . Laminare Strömung liegt bei Re-Zahlen unter 1 vor. In diesem Fall gilt das DARCY'sche Gesetz dem zufolge der Druckverlust linear mit wachsender Strömungsgeschwindigkeit ansteigt. Zur näheren Beschreibung geht man vielfach von einem Porenmodell aus. Entsprechende Gleichungen werden beispielsweise von Davies²⁸⁾, Clarenburg und Mitarbeiter (diskutiert in Ref. 28) oder First²⁹⁾ abgeleitet. Ein anderes Konzept, das die Strömung durch ein Fasermaterial mit großem Hohlraumanteil realistischer beschreibt³⁰⁾, aber mathematisch wesentlich aufwendiger ist, geht von der Widerstandskraft der umströmten Einzelfaser aus. Im ersten Fall erhält man einen streng linearen²⁸⁾ im zweiten Fall einen fast linearen Zusammenhang zwischen Druckverlust und Strömungsgeschwindigkeit für laminare Strömung. Nur im Fall turbulenter Strömung, für Re-Zahlen > 1 liegt eine quadratische Abhängigkeit vor.

Mit einer Filterpapierfläche von 20 m^2 , einem angenommenen mittleren Faserdurchmesser von $1 \text{ }\mu\text{m}$ und einem Hohlraumvolumenanteil von 95 % und einer Anströmgeschwindigkeit von 30 ms^{-1} beträgt die Re-Zahl lediglich 0,04. Da die höchste erreichte Geschwindigkeit etwa 35 ms^{-1} betrug, folgt hieraus, daß im gesamten untersuchten Bereich im Filterpapier laminare Strömung vorlag. Hieraus folgt weiterhin, daß die Druckverlustkennlinien aller getesteten Schwebstofffilter linear verlaufen müssen. Diese Schlußfolgerung wird durch die Ergebnisse, die mit dem Metallfaserfilter erzielt wurden, gestützt. Die Faserstärke der Matten beträgt einheitlich $4 \text{ }\mu\text{m}$. Die Druckverlustkennlinie verläuft linear bis zur höchsten erreichten Re-Zahl von 0,4.

Ein Grund für die Abweichung vom theoretischen Verhalten könnte in der Kompression des Filterpapiers liegen, die mit wachsendem Differenzdruck wahrscheinlich eintritt. Als Folge davon wird die Porosität abnehmen und der Druckverlust überproportional ansteigen. Die Papiere für Schwebstofffilter sind jedoch mit Hilfe von Bindern stabilisiert und erscheinen deshalb zu stabil, um ein so starkes Zusammendrücken zu ermöglichen, das zur Erklärung der vorliegenden Abweichungen notwendig wäre.

Eine andere mögliche Erklärung geht von der von Gregory und Smith^{5, 7)} getroffenen Annahme aus, daß sich das Strömungsprofil in den einzelnen Falten mit zunehmender Geschwindigkeit ändert. Die Autoren gehen davon aus, daß

bei hohen Luftgeschwindigkeiten bevorzugt die Faltungsenden durchströmt werden, so daß die Geschwindigkeitsverteilung über das gesamte Filterpapier ungleichmäßig wird. Es liegt jedoch noch keine Abschätzung darüber vor, in wie weit hierdurch die Druckverlustkennlinie beeinflußt wird.

Ein Vorgang, der in diesem Zusammenhang von großer Bedeutung ist, wird durch die Zeitlupenfilme sichtbar gemacht. Bei den Filtern in V-Bauweise war beobachtet worden, daß sich die senkrecht im Rahmen angeordneten Packs ab einem bestimmten Differenzdruck so weit auszuweilen beginnen, so daß sie sich gegenseitig berühren. Dies veranschaulicht Abbildung 19 mit einer Aufnahme aus einem Zeitlupenfilm. Oben links sind bereits erste Beschädigungen sichtbar.

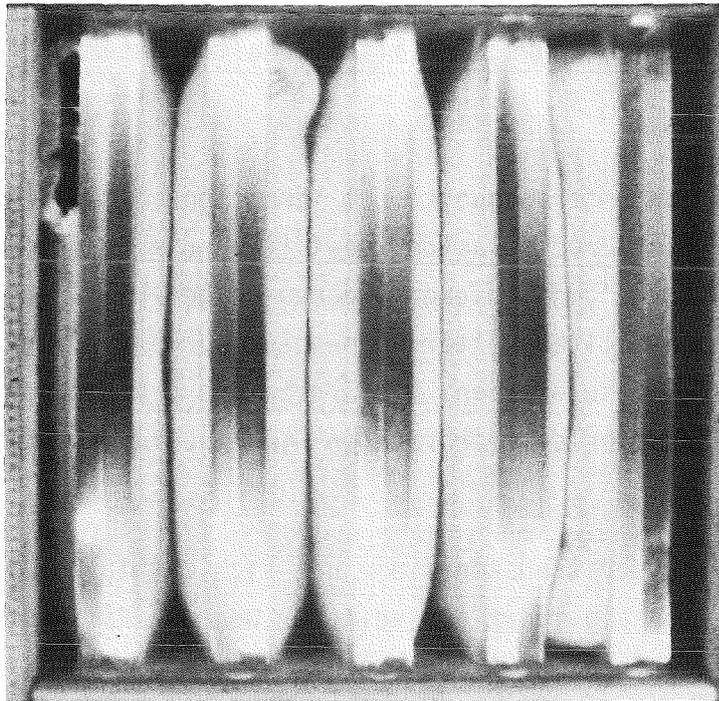


Abb. 19: Filter in V-Bauweise, während des Tests, mit gegeneinander ausgebeulten Faltenpacks

Der Vorgang des Ausbeulens der einzelnen Packs war auch von Ricketts⁹⁾ beobachtet worden. Es zeigte sich, daß das Ausbeulen gleichzeitig mit dem steilen Anstieg der Druckverlustkurven auftritt. Da sich die kleinen Packs gegenseitig über eine wachsende Fläche berühren, bleibt ein immer kleiner werdender Teil für den Luftstrom offen. In diesem Vorgang dürfte der wesent-

liche Grund für den von der Theorie stark abweichenden Verlauf der Druckverlustkennlinie dieses Typs liegen. Es wird vermutet, daß ähnliche Verformungen zumindest teilweise für den zu hohen Druckverlust der Filter in konventioneller Bauweise verantwortlich sind.

Der Vergleich der gemessenen Druckverlustkennlinien mit der Theorie erbrachte Hinweise dafür, daß der bei hohen Strömungsgeschwindigkeiten auftretende hohe Filterwiderstand durch konstruktive Maßnahmen vermindert werden kann. Dies würde die mechanische Belastung bei gegebener Strömungsgeschwindigkeit reduzieren und damit die inhärente Sicherheit erhöhen. Hierin besteht eine vierte Möglichkeit zur Verbesserung von Schwebstofffiltern im Hinblick auf Störfallbedingungen.

6. Schlußfolgerungen zum Schwebstofffilterverhalten unter Differenzdruckbelastung

Die durchgeführten Untersuchungen zum Verhalten von Schwebstofffiltern unter erhöhter Differenzdruckbelastung bestätigen die Feststellungen verschiedener Autoren³²⁻³⁴), daß diese Komponenten der Lüftungssysteme sehr empfindlich sind. Sie sollten weiter verbessert werden, um auch unter Störfallbedingungen wirksam zu bleiben. Die Ergebnisse der Analysen der Schadensformen und Schadensverläufe erbrachten Hinweise für solche Verbesserungen.

Der Verlauf der Widerstandskennlinie hat sich ebenfalls als sicherheitsrelevant erwiesen. Deshalb führt ein weiterer Weg zur Filterertüchtigung über die Erhöhung der inhärenten Sicherheit, was durch die Verminderung des Druckverlustes mit Hilfe konstruktiver Maßnahmen erreichbar sein dürfte.

7. Planung der Anlage BORA zur Schwebstofffilterprüfung unter kombinierten Beanspruchungen

Die bisher erarbeiteten Ergebnisse zur Belastbarkeit von Schwebstofffiltern haben nur für die alleinige Beanspruchung durch erhöhten Differenzdruck, bei niedriger relativer Luftfeuchte und Umgebungstemperatur, Gültig-

keit. Wie eingangs erwähnt, können bei Störfällen jedoch verschiedene Beanspruchungsarten gleichzeitig auftreten; z.B. erhöhter Differenzdruck, erhöhte Temperatur und hohe Feuchten. Auch hinsichtlich des Verhaltens von Schwebstofffiltern unter Feuchteeinwirkung gibt es aus eigenen Arbeiten sowie aus der Literatur Hinweise für eine Beeinträchtigung der Belastbarkeit, zumindest unter länger andauernder Beanspruchung. Ähnliches ist für die Einwirkung erhöhter Temperaturen anzunehmen. Deshalb werden mögliche Kombinationen der genannten Beanspruchungen wahrscheinlich zu noch früherem Filterversagen führen. Untersuchungen zu solchen Beanspruchungen sind bisher noch nicht durchgeführt worden. Es ist deshalb notwendig das Verhalten von Schwebstofffiltern vor allem unter der Kombination von Differenzdruckbelastung, erhöhter Temperatur und hoher Feuchte zu studieren.

Da es nicht möglich ist, mit der Versuchsanlage des LANL andere Bedingungen als die der Umgebungsluft einzustellen, ist der Bau eines geeigneten Prüfstandes erforderlich. Nach Abschluß der Konzept- und Planungsphase wird mit dessen Realisierung in Kürze begonnen werden. Die Charakteristika dieser Filterprüfanlage (BORA) und die damit verfolgten Ziele sollen im folgenden erläutert werden.

Das wichtigste Ziel dieser Arbeiten ist es, das Verhalten von Schwebstofffiltern zu untersuchen, um hieraus die für die Reaktorsicherheit notwendigen belastbaren Daten zu liefern. Darüber hinaus sollen Hinweise zur Entwicklung verbesserter Filterelemente gewonnen werden. Zu diesem Zweck werden wie bisher Schwebstofffilter getestet, ihre Belastungsgrenzen ermittelt, und die Schadensformen und deren Verläufe analysiert. Der Bereich der möglichen Differenzdrucke soll jedoch deutlich über den der LANL-Anlage ausgedehnt werden und die Realisierung der kombinierten Beanspruchungen möglich sein. Andererseits sollen die Strömungsvorgänge im Filter studiert werden, um mögliche örtliche Beanspruchungsspitzen abzubauen und um Informationen zur Verbesserung der Druckverlustcharakteristik zu gewinnen. Langfristig ist auch der Frage der Qualitätssicherung Rechnung zu tragen. Deshalb ist auch die Entwicklung eines Konzeptes für ein Typprüfverfahren vorgesehen.

Die wichtigsten Auslegungsdaten der Anlage sind in Tabelle IV zusammengefaßt. Sie sind als Kompromiß zu betrachten, zwischen dem Wunsch einen mög-

lichst weiten Betriebsbereich zu überdecken und den wirtschaftlichen und technischen Grenzen.

Tabelle IV: Wichtigste Auslegungsdaten der Filterprüfanlage BORA

	Betriebsbereich		
	hoher Differenzdruck	hohe Temperatur	Typprüfung
Differenzdruck am Testfilter [kPa]	80 ÷ 45	70 ÷ 20	35 ÷ 20
Anströmfläche [m ² /%]	0,17/50	0,17/50	0,34/100
Lufttemperatur [°C]	40 ÷ 90	90 ÷ 350	40 ÷ 90
rel. Feuchte max. [%]	100	-	100
Beanspruchungsdauer [s]	>1000	>1000	>1000
Leistungsaufnahme Vollast [kW]	220 ÷ 700	170 ÷ 560	330 ÷ 530

Es sind drei Betriebsbereiche zu unterscheiden. Am wichtigsten für die F+E-Arbeiten ist der Betrieb unter hohem Differenzdruck. Wir beschränken uns dabei auf eine Anströmfläche von 0,17 m². Dies entspricht einem halben Schwebstofffilter der in KKW üblichen Größe. Damit kann die Anlage noch relativ klein gehalten werden. Die Übertragung der Ergebnisse auf volle Filterquerschnitte ist noch ohne wesentliche Einschränkungen möglich. Schließlich läßt eine solche Auslegung noch Spielraum für die Untersuchung grundsätzlich anderer Filterkonstruktionen. Als Differenzdruck sind maximal 80 kPa erreichbar.

Die Beanspruchung durch erhöhten Differenzdruck soll im Temperaturbereich von 40 bis 90 °C in Kombination mit 100 % relativer Luftfeuchte möglich sein. Der 40 °C-Wert wurde mit Rücksicht auf die Kosten für die Wärmetauscher gewählt. Bei Außentemperaturen unter 20 °C sind auch niedrigere Gastemperaturen einstellbar. Eine Beanspruchungsdauer von größer 1000 s erscheint sinnvoll, um auch die Wirkung etwas länger andauernder Belastungen zu studieren.

Für das Typprüfverfahren gelten grundsätzlich die gleichen Bedingungen. Hier müssen jedoch volle Filterelemente mit einer Anströmfläche von $0,34 \text{ m}^2$ getestet werden. Dies ist dann möglich, wenn als maximaler Differenzdruck 35 kPa gefordert wird. Dieser Wert wird als ausreichend erachtet.

Luft von über $100 \text{ }^\circ\text{C}$ ist bekanntlich nur dann mit Wasserdampf zu sättigen, wenn der Gesamtdruck erhöht wird. Aus Kostengründen wird hierauf verzichtet, so daß oberhalb $100 \text{ }^\circ\text{C}$ nur eine kombinierte Beanspruchung durch hohen Differenzdruck bzw. hohen Volumenstrom und durch hohe Temperatur gefahren werden kann. Der maximal mögliche Differenzdruck sinkt mit zunehmender Temperatur ab und erreicht 20 kPa bei $350 \text{ }^\circ\text{C}$.

Im Laufe der bisher durchgeführten Vorbereitungen wurden aus einer Vielzahl von Lösungsvarianten drei Grundkonzepte ausgewählt und näher untersucht (Bild 20).

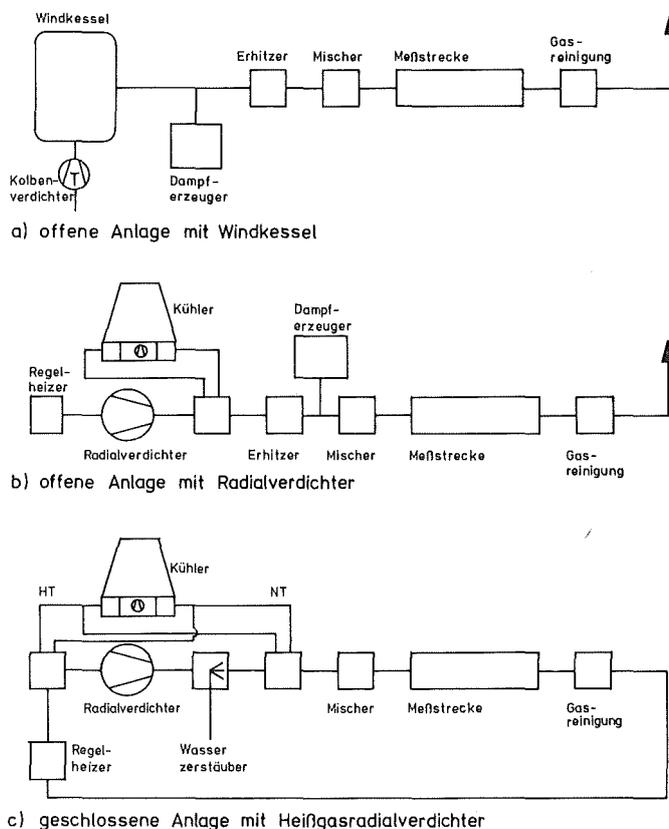


Abb. 20: Drei Grundkonzepte für eine Anlage zur Filterprüfung unter Differenzdruckbelastung

Es handelt sich dabei um eine offene Anlage mit einem Windkessel und einem Kolbenverdichter zur Erzeugung der Strömung, einem Dampferzeuger zur Befeuchtung, einem Erhitzer zur Temperaturregelung, einem Mischer, zur Homogenisierung des feuchten Luftstromes, und der Filterteststrecke. Der Luftstrom wird über nachgeschaltete Schwebstofffilter in die Atmosphäre abgegeben.

Das zweite Konzept geht ebenfalls von einer offenen Anlage aus und entspricht weitgehend der ersten Lösung. Die Strömung wird lediglich durch einen Radialverdichter aufrecht erhalten.

Als drittes Konzept wurde eine geschlossene Anlage ebenfalls mit einem Radialverdichter untersucht. Nach der Gasreinigung wird die Luft dabei wieder in den Verdichter zurückgeführt. Diese Alternative erwies sich in vieler Hinsicht als die günstigste Lösung. Die zwei wichtigsten Argumente, die gegen eine offene und damit für die geschlossene Anlage sprechen, seien hier erwähnt: Im Extremfall beträgt der Durchsatz der Anlage etwa 12 Betriebskubikmeter/s bei 90 °C. Um diesen Luftstrom mit Wasserdampf zu sättigen, wird ein Dampferzeuger mit einer Leistung von 18 t/h benötigt mit einer Anschlußleistung von 11 MW; oder ein 1,5 t/h Dampferzeuger mit knapp 1 MW Anschlußleistung und einem Speicher für 5 t Dampf. Beide Lösungen sind wirtschaftlich unsinnig. Als zweites kann man annehmen, daß es nicht möglich sein wird, 18 t Dampf/h so zu dosieren, daß die Genauigkeitsanforderungen des Versuchsbetriebes erfüllt werden.

Die Kreislaufanlage hingegen erlaubt einige einfache Maßnahmen mit denen diese Probleme gut lösbar werden. Die Details sollen anhand des stark vereinfachten Schemas der Prüfanlage erläutert werden (Bild 21).

Das Kernstück der Anlage bilden die beiden Heißgasradialgebläse, die im Falle der Typprüfung (hoher Volumenstrom) parallel geschaltet werden können und zur Realisierung hoher Differenzdrucke in Serie. In Strömungsrichtung folgt die Einrichtung zur Luftbefeuchtung. Hier wird mit Hilfe von 2-Stoffdüsen Wasser in feinsten Verteilung in den heißen Luftstrom am Gebläseaustritt eingebracht. Die Luft wird anschließend im Niedertemperaturkühler auf den Sollwert (40 - 200 °C) abgekühlt. Bei Betrieb bei 100 % r. F. fungiert dieser Kühler als Taupunktkühler und ist entsprechend groß

ausgelegt. Zur Abscheidung von Kondensattröpfchen ist er mit Drahtgestrick-tropfenabscheidern ausgestattet.

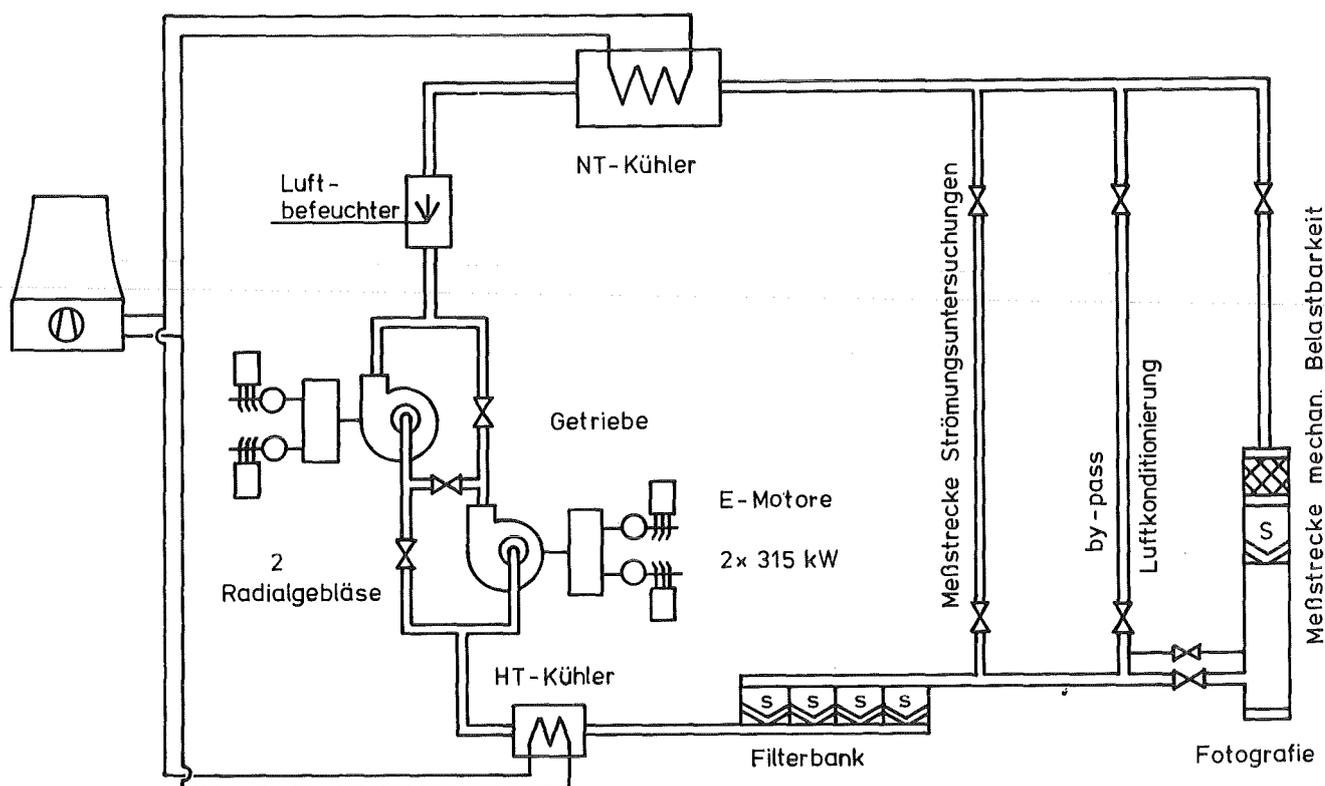


Abb. 21: Schema der Anlage BORA zur Filterprüfung unter Differenzdruckbelastung

Bei den drei parallelen Strecken handelt es sich um die Teststrecke zur Filterbelastbarkeit, um die Meßstrecke für Strömungsuntersuchungen und schließlich um den by-pass-Strang zur Konditionierung des Luftstromes. Die Einführung dieses By-pass-Stranges bringt eine wesentliche Erleichterung der Regelprobleme. Der Luftstrom wird so lange über diesen Kanal geführt, bis die Sollwerte der gewünschten Versuchsbedingungen erreicht sind. Im Gegensatz zur offenen Anlage steht hierfür ein Zeitraum von etwa 30 Minuten zur Verfügung. Nach Erreichen der Sollwerte wird die Strömung auf das Testfilter geleitet. Damit auch in diesem Luftvolumen die gewünschten thermodynamischen Bedingungen vorliegen, wird während der Konditionierungsphase die Teststrecke durch einen kleinen Volumenstrom gespült. Zur besseren Temperaturkonstanz erhält die Anlage eine Begleitheizung und eine Wärmeisolierung.

In der Rücklaufleitung ist eine große Schwebstofffilterbank zur Gasreinigung vorgesehen und der Hochtemperaturkühler. Dieser Kühler arbeitet im Bereich von 200 °C bis 350 °C. Er führt so viel Wärme ab, wie dem Luftstrom bei der anschließenden Verdichtung wieder zugeführt wird, so daß am Gebläseaustritt die Solltemperatur vorliegt. Hierdurch werden die Gebläse thermisch entlastet. Durch Ausnutzung der Verdichtungswärme kann im Hochtemperaturbetrieb auf einen Heizer verzichtet werden.

Aus Kostengründen wird die Anlage BORA in einer Raumgruppe der Rotunde des stillgelegten Reaktors FR 2 untergebracht. Die Montage wird im vierten Quartal 1983 abgeschlossen sein.

Langfristig sind nicht nur Schwebstofffilter sondern auch andere Komponenten von Lüftungsanlagen zu untersuchen. Die Dimensionierung der Anlage wird auch die Prüfung solcher Komponenten erlauben, so daß sie auch nach Abschluß der Schwebstofffilterarbeiten weiter benötigt werden wird.

8. Bibliographie

- (1) Smidt, D.; "Reaktor-Sicherheitstechnik", Springer-Verlag, Berlin 1979.
- (2) Der Bundesminister für Forschung und Technologie; "Deutsche Risiko-studie Kernkraftwerke", Hauptband, Verlag TÜV Rheinland, Köln 1979.
- (3) Markee, E.H. et al.; "Technical Basis for Interim Regional Tornado Criteria", Wash 1300 (1974).
- (4) Gregory, W.S. et al.; "Ventilation Systems Analysis During Tornado Conditions", LA - 6999 PR (1977).
- (5) Gregory, W.S. et al.; "Tornado Depressurization and Air Cleaning Systems", CONF - 760 822 (1977) p. 171.
- (6) Hosemann, J.P.; "Wechselwirkungen mit der Containmentstruktur und Spaltproduktfreisetzung" Atomwirtschaft (1982) S. 516.
- (7) Gregory, W.S. et al.; "Pressure Transients Across HEPA Filters", Proc. Seminar on High Efficiency Aerosol Filtration in the Nuclear Industry, Comm. of the European Communities, Luxembourg (1977) p. 578.

- (8) Gregory, W.S. et al.; "Investigations on HEPA Filters Subjected to Tornado Pressure Pulses, Initial Structural Testing", LA - 7202, Los Alamos Scientific Laboratory, 1978.
- (9) Ricketts, C.J.; "Tornado-Model Testing of HEPA Filters", Thesis New Mexico State University, Las Cruces, 1980.
- (10) Gregory, W.S. et al.; Smith, P.R.; "Response of Standard and High-Capacity HEPA Filters to Simulated Tornado and Explosive Transients", LA - 9210-M, (1982).
- (11) Andrae, R.W. et al.; "Investigations of Air Cleaning System Response to Accident Conditions", CONF - 801 038 (1981) p. 1142.
- (12) Billings, C.E. et al.; "Blast Effects on Air Cleaning Equipment Results of Filter Tests", TID-Report 7513 (1956) p. 273.
- (13) Anderson, W.L.; Anderson, L.; "Effect of Shock Overpressures on High Efficiency Filter Units", CONF - 660 904 (1966) p. 79.
- (14) Jordan, S.; Lindner, W.; "Entwicklung von Abscheidern für chemisch aggressive Aerosole", KfK-Bericht 2762, Karlsruhe 1979.
- (15) Hays, J.B.; "Performance of High Efficiency Particulate Filters Subjected to Steam-Air Mixtures", TID 7627 (1961) p. 549.
- (16) Peters, A.H.; "Application of Moisture Separators and Particulate Filters in Reactor Containment", TID 4500, DP-812 (1962).
- (17) Jones, L.R.; "High Efficiency Particulate Air Filter Performance Following Service and Radiation Exposure", CONF - 740 807 (1974) p. 565.
- (18) Durant, W.S.; "Performance of Airborne Activity Confinement Systems in Savannah River Plant Reactor Buildings", CONF - 660 904 (1966) p. 348.
- (19) Stratmann, J.; "Bericht eines Großverbrauchers von Schwebstoffiltern Klasse S", Proc. Seminar on High Efficiency Aerosol Filtration in the Nuclear Industrie, Comm. European Communities, Luxembourg (1977) p. 411.
- (20) McCormack, J.D. et al.; "Loading Capacity of Various Filters for Sodium Oxide/Hydroxide Aerosols", CONF - 780 819 (1979) p. 1018.
- (21) Pratt, P.R.; "A Preliminary Assessment of the Dust Loading Versus Pressure Drop Characteristic of High Capacity HEPA Filters", CONF - 801 038 (1981) p. 697.

- (22) Ohlmeyer, M.; "Vor-Ort-Prüfung von Schwebstofffiltern und Entnahme von Sorptionsmaterialproben bei Iod-Sorptionsfiltern", Atomkernenergie-Kerntechnik 40 (1982) p. 259.
- (23) Burchsted, C.A.; "Environmental Properties and Installation Requirements of HEPA Filters", in Treatment of Airborne Radioactive Wastes, IAEA STI/PUB 195, Vienna 1968, p. 175.
- (24) Gregory, W.S. et al.; "Air Cleaning Systems Analysis and HEPA Filter Response to Simulated Tornado Loadings", CONF - 780 819 (1979) p. 694.
- (25) White, P.A.F.; Smith, S.E.; "High Efficiency Air Filtration", Butterworths, London 1964, p. 174/175.
- (26) Dillmann, H.-G.; "Ergebnisbericht über Forschungs- und Entwicklungsarbeiten 1981 des Laboratoriums für Aerosolphysik und Filtertechnik", KfK-Bericht 3294 (1982) p. 12.
- (27) Gunn, C.A.; Eaton, D.M.; "HEPA Filter Performance Comparative Study", CONF - 760 822 (1977) p. 630.
- (28) Davis, C.N.; "Air Filtration", Academic Press, London 1973, pp. 30.
- (29) First, M.W. et al.; "High Temperature Dust Filtration", Ind. Eng. Chem. 48 (1956) p. 696.
- (30) Löffler, F.; Habilitationsschrift, Universität Karlsruhe, 1971.
- (31) Löffler, F.; "Die Abscheidung von Partikeln aus Gasen in Faserfiltern", Chem. Ing. Techn. 52 (1980) p. 312.
- (32) First, M.W.; Gilbert, A.; "Aerosol Filtration", CONF - 660 904 (1966) p. 62.
- (33) Dormann, R.G.; "A Comparison of the Methods Used in the Nuclear Industry to Test High Efficiency Filters", CEC-Report V/3603/81/Luxembourg 1981, p. 3.

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

JAHRESKOLLOQUIUM 1982

RADIOÖKOLOGISCHE UNTERSUCHUNGEN ZUM
VERHALTEN DER AKTINIDEN IN DER UMWELT

H. SCHÜTTELKOPF

M. PIMPL

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
HAUPTABTEILUNG SICHERHEIT

Radioecological Research on the Behavior of Actinides in the
Environment

H. Schüttelkopf
M. Pimpl

Abstract

The results of the research program on "Investigation of the physical and chemical environmental behavior of radionuclides characterized by a particular biological effectiveness - Pu, Am, Cm" are presented. Analytical procedures for Pu, Am, and Cm were developed. The behavior of Pu in the environment has been studied. Releases, dispersion, deposition, transport in soil, transfer to animals, dilution in a river and sedimentation were measured using Pu from nuclear weapon fallout and Pu releases of Karlsruhe Nuclear Fuel Reprocessing Plant.

The distribution coefficients and the availability of Pu, Am, and Cm in soil were determined. Future research will measure the optimum conditions for the mobilisation of Pu, Am, and Cm deposited on surface layer of soil.

A greenhouse started its operation during the last months. The transfer factors for Pu, Am, and Cm will be determined for 15 to 20 food plants, and different types of soil. Many other parameters will be studied. Using an emission spectrometer the transfer of stable elements will be measured. Consequently other highly toxic radionuclides - no actinides - will be used for further research.

1. Problemstellung

Die Freisetzung hoher Aktinidenaktivitäten nach Unfällen in kerntechnischen Anlagen, in Forschungslaboratorien und bei der militärischen Handhabung ist extrem unwahrscheinlich, aber nicht mit absoluter Sicherheit auszuschließen. Die Folge einer solchen Freisetzung wäre eine Kontamination der terrestrischen und aquatischen Ökosysteme der Umgebung mit Aktiniden in hoher Konzentration. Zielsetzung des Forschungsprogrammes "Untersuchungen des physikalischen und chemischen Verhaltens biologisch besonders wirksamer Radionuklide in der Umwelt - Pu, Am, Cm" ist daher das Verständnis des Verhaltens der wichtigen Aktiniden in der Umwelt und die Reduzierung der Folgeschäden einer unkontrollierten Freisetzung hoher Aktinidenaktivitäten.

Folgeschäden sind dabei die zu befürchtende schleichende Ausbreitung der oberflächlich abgelagerten Aktinidenaktivität und die Dosisexposition der Umgebungsbevölkerung. Eine Dosisexposition der Umgebungsbevölkerung wird hervorgerufen durch die Inhalation der resuspendierten Aktivität und durch die Aufnahme kontaminierter Nahrungsmittel. Pflanzliche Nahrungs- und Futtermittel werden kontaminiert durch die Ablagerung der resuspendierten Aktivität und durch Aufnahme der Aktivität über die Wurzeln. Kontaminierte tierische Nahrungsmittel werden produziert als Folge der Verfütterung kontaminierter Futtermittel. In diesem Zusammenhang ist der Transport der Aktiniden im Boden bis zum Wurzelbereich der Pflanzen von Interesse. In aquatischen Ökosystemen sind Verdünnungsprozesse, die Sedimentation der kontaminierten Schwebstoffe und die Aufnahme der Aktiniden durch Wasserpflanzen und -tiere von Bedeutung.

Das von uns bearbeitete Forschungsprogramm teilt sich daher in drei wesentliche Teile:

- Das radioökologische Verhalten von Pu, Am und Cm in der Umwelt.
- Die Dekontamination der Erdoberfläche von abgelagerter Aktinidenaktivität.
- Der Transfer von Aktiniden im Boden und aus dem Boden in pflanzliche Nahrungs- und Futtermittel.

2. Das Verhalten von Pu, Am und Cm in der Umwelt

Um radioökologische Untersuchungen durchzuführen müssen häufig die in der Umwelt vorhandenen extrem niedrigen Aktivitäten des Kernwaffenfallouts oder der Emissionen kerntechnischer Anlagen zur Untersuchung benützt werden. Analytische Methoden, mit denen extrem niedrige Nachweisgrenzen erreicht werden können, sind notwendig. Wegen der Kompliziertheit des Verhaltens von radioaktiven Spuren in der Umwelt sind häufig große Probenzahlen durchzusetzen. Daher müssen die radiochemischen Methoden außerdem in kurzer Zeit durchführbar sein. Die für unsere Untersuchungen benötigten Analysenmethoden wurden erarbeitet und Nachweisgrenzen im Bereich von 0,1 fCi/g erreicht. Ca. 8 Pu-Analysen können pro Tag und Laborant durchgeführt werden [1].

Die radioökologischen Untersuchungen zum Verhalten von Plutonium in der Umwelt sind weitgehend abgeschlossen. Ausbreitungsprozesse des Plutoniums mit der Abluftfahne der WAK wurden verfolgt und Ausbreitungsfaktoren gemessen. Die Depositionsgeschwindigkeit der Plutoniumaerosole wurde durch Aktivitätsbestimmungen in Niederschlägen, Gras und Bodenproben bestimmt. Die Tiefenverteilung von Plutonium im Boden wurde an vielen Stellen in der Umgebung des KfK und im Südschwarzwald gemessen. Plutoniumkonzentrationen in Pflanzen wurden durch viele Jahre in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe und in einer großen Zahl unterschiedlicher Pflanzen aus dem Südschwarzwald erfaßt. Die Verteilung von Plutonium in den Organen von Kaninchen und Damwild wurde gemessen. Ergebnisse werden auszugsweise in den Abbn. 1 und 2 und in den Tabn. 1, 2 und 3 wiedergegeben [2-4].

Tab. 1: Depositionen von Plutonium-Aerosolen auf Gras, mit dem Niederschlag und auf den Boden

Ablagerung	Zeitraum der Probenahme	Depositionsgeschwindigkeit in cm/s		
		Min	Max	Mittel
auf Gras	1977 - 1978	0,4	5,0	1,5
mit dem Niederschlag	1974 - 1975	0,1	4,2	0,6
auf den Boden	1979	0,2	4,6	1,3

Tab. 2: $^{239+240}\text{Pu}$ -Kontamination von Wildpflanzen aus dem Südschwarzwald. Probenahme: Juni 1978

Pflanzenart	$^{239+240}\text{Pu}$ -Kontamination in fCi/g trocken
Fichte:	
Nadeln	2,5 ± 0,5
Rinde	12,6 ± 1,1
Holz	2,0 ± 0,3
Harz	0,9 ± 0,05
Junge Fichte:	
Nadeln	7,5 ± 0,7
Tanne, Nadeln	2,3 ± 0,5
Tanne, Nadeln	1,7 ± 0,2
Buche, Blätter	9,9 ± 1,1
Brunnenkresse	3,3 ± 0,3
Huflattich	29,6 ± 2,4
Lupine	1,9 ± 0,3
Gras	2,1 ± 0,4
Heu	1,7 ± 0,3
Farn	4,3 ± 0,5
Schachtelhalm	8,9 ± 1,2
Moos auf Buche	144 ± 14
Moos auf Stein	500 ± 25
Baumflechte	110 ± 9

Tab. 3: $^{239+240}\text{Pu}$ -Konzentration in verschiedenen Organen von Kaninchen vom Gelände in und um das KfK. Probenahme: 1977

Organ	Probengewicht in g frisch	^{239}Pu -Konzentration in fCi/g frisch
Herz	47	1,8
Lunge	95	≤ 0,4
Nieren	100	1,7
Milz	103	1,8
Leber	461	0,92
Fleisch	1279	0,40
Haut	1250	0,26
Oberschenkel- knochen	198	4,2
Rückgrat	1150	3,8
Magen+Inhalt	711	0,44
Darm+Inhalt	2665	0,66

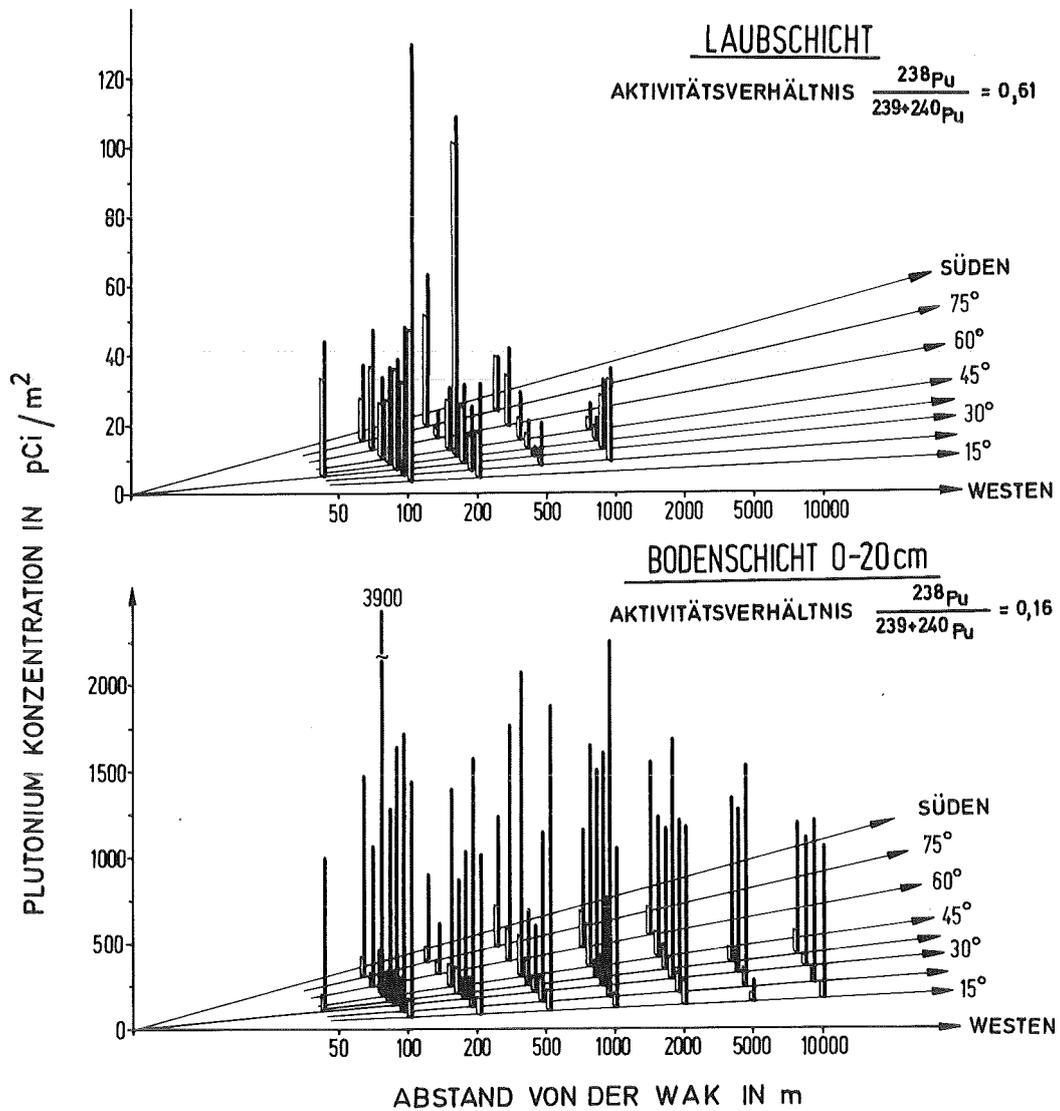


Abb. 1 : ²³⁸Pu-UND ²³⁹⁺²⁴⁰Pu-DEPOSITIONEN IN DER 2. HAUPTWINDRICHTUNG ≈ 30° VON DER WAK

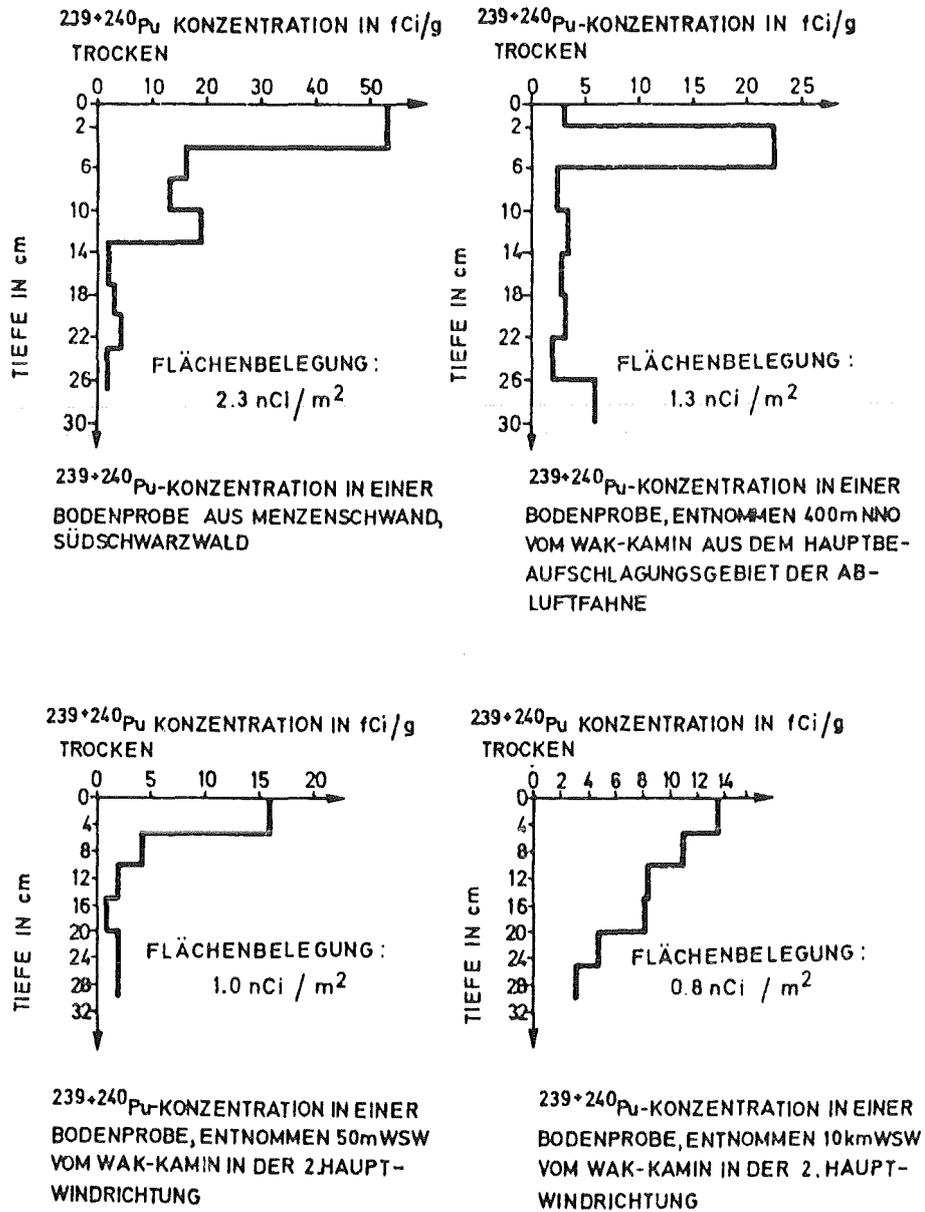


Abb. 2: Tiefenprofile in Bodenproben aus dem Südschwarzwald und aus der Umgebung der WAK

Zum Studium des Verhaltens von Plutonium in einem aquatischen Ökosystem wurden die Plutoniumemissionen mit dem Abwasser des KfK in den Altrhein herangezogen. Objekte der Untersuchung waren die Verdünnung des Abwassers entlang dem Altrhein, die Abnahme der Plutoniumkontamination im Altrheinwasser, die Sedimentation der plutoniumkontaminierten Schwebstoffe entlang dem Altrhein und die Kontamination von Wasserpflanzen und -tieren im Altrhein. Eine rasche Sedimentation des Plutoniums, Abb. 3, und ein im allgemeinen niedriger Transfer des Plutoniums in Lebewesen, Tab. 4, wurden beobachtet [5-8].

Tab. 4: Transferfaktoren Wasser - Lebewesen im Rheinniederungskanal beim KfK

Lebewesen	Transferfaktor pCi/kg frisch/pCi/kg Wasser
Pflanzen:	
Schilf } Schwertlilie } Wasserpest	0,4 - 100 4 - 194
Fisch:	
Knochen	0,6 - 60
Eingeweide	0,6 - 5,2
Fleisch	0,3 - 0,9
Muscheln	
Schale	14000 - 26000
Fleisch	260
Bisamratte:	
Knochen	0,3 - 2,2
Fleisch	0,3 - 1,8
Leber	0,2 - 1,5
Lunge	≤ 0,1 - 2,6
Nieren	2,7 - 7,0

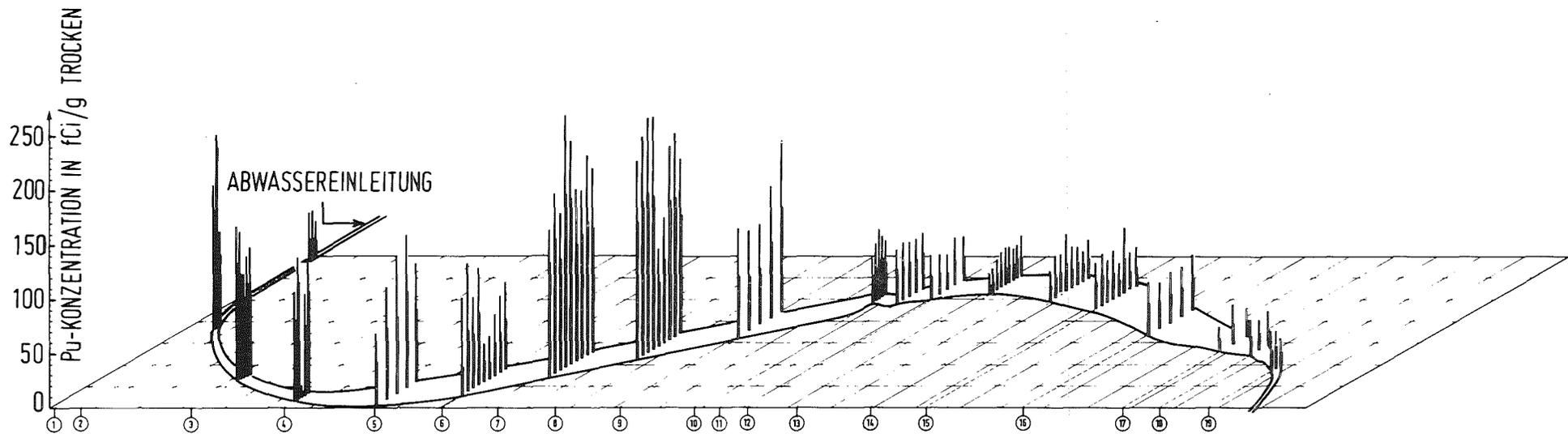


Abb. 3: SCHEMATISCHE DARSTELLUNG DER ^{238}Pu -UND $^{239+240}\text{Pu}$ -KONZENTRATIONEN
 IN SEDIMENTPROBEN AUS DER OBERSTEN SEDIMENTSCHICHT DES LINKENHEIMER ALTRHEINS.
 WEISSE BALKEN $^{239+240}\text{Pu}$, SCHWARZE BALKEN ^{238}Pu .

3. Die Dekontamination der oberen Erdschichten

Liegt in der Umgebung eine ausgedehnte und hohe Aktinidenkontamination der oberen Erdschichten vor, müssen Maßnahmen ergriffen werden, um eine schleichende Ausdehnung der Kontamination zu vermeiden und um den kontaminierten Raum der Bevölkerung wieder zugänglich zu machen. In Frage kommen hier die Abdeckung mit nichtkontaminierter Erde, das Abtragen und spätere Einlagern der kontaminierten Erde sowie die bauliche Abdeckung des kontaminierten Bereiches z. B. durch eine Betonschicht. Ziel unserer Untersuchungen ist es, die Aktinidenkontamination durch Berieseln mit Lösungen von Komplexbildnern zu mobilisieren und in tiefere Erdschichten zu verdrängen. Unter tieferen Erdschichten wird dabei ein Bereich verstanden, der unterhalb der Pflanzenwurzeln und oberhalb der grundwasserführenden Schicht liegt.

Zur Beurteilung der Beweglichkeit von Radionukliden im Boden ist die Kenntnis der Verteilungskoeffizienten der interessierenden Radionuklide zwischen Boden und Lösung notwendig. Mit 8 verschiedenen Böden und den Komplexmitteln Acetat, Tartrat, NTA, EDTA und DTPA wurden Verteilungskoeffizienten im Konzentrationsbereich von $3 \cdot 10^{-4}$ M bis $3 \cdot 10^{-1}$ M für Pu, Am und Cm bestimmt. Die kleinsten Verteilungskoeffizienten wurden mit dem Komplexmittel DTPA erhalten.

Auf 2 Erdsäulen von 30 cm Durchmesser und 40 cm Höhe wurden je ca. 100 nCi Pu-239, Am-241 und Cm-244 aufgegeben. Die Säulen wurden 8 Wochen lang mit 0,1 M DTPA-Lösung berieselt, wobei Säule 1 täglich 150 ml, entsprechend 750 mm Niederschlag/a erhielt, Säule 2 das doppelte. Die Verwendung

von DTPA-Lösung führt zu einer so extremen Steigerung der Beweglichkeit der Aktiniden in Böden, daß bereits nach 8 Wochen Gießen mit 0,1 M DTPA-Lösung bis zu 75 % der auf die Erdsäule gegebenen Aktivität ausgespült ist, bei Verdopplung der Gießmenge sogar bis zu 90 % (Abbn. 4 und 5). Die in den Säulen verbliebenen Aktiniden sind in die unteren Bodenschichten verlagert, ebenso die vorhandene natürliche Aktivität (Abb. 6). In den obersten 10 cm der Bodensäulen, also dem Wurzelbereich, verblieben in Säule 1 weniger als 10 % der aufgegebenen Aktivitäten, in Säule 2 weniger als 5 % [9].

20 weitere Erdsäulen, etwa 80 cm lang und 30 cm Durchmesser, wurden aus 9 verschiedenen Böden unverändert gestochen. Auf diesen Säulen sollen die Parameter der Aktinidenauswaschung optimiert werden. Zielsetzung ist ein billiges und schnell wirksames Verfahren zur Dekontamination der obersten Erdschicht zu erhalten.

Experimente im freien Feld sind vorerst nicht beabsichtigt, da eine entsprechende Kontamination der Umgebung nicht zulässig ist und da Falloutplutonium mit dem bei Unfällen zu erwartendem Plutonium nicht vergleichbar ist.

4. Die Messung der Transferfaktoren Pflanze/Boden

Unter Transferfaktoren versteht man das Verhältnis der Schadstoffkonzentrationen in Pflanzen und im Boden, auf dem sie gezüchtet wurden. Für Plutonium wurden Faktoren zwischen 10^{-9} und 10^{-3} publiziert. Transferfaktoren für Americium wurden selten und für Curium überhaupt nicht bestimmt. Ein Teil der Meßwerte ist gefälscht durch Ablagerungen von resuspendierten Aktiniden. Modelle für den Transfer von Schadstoffen aus dem Boden in Pflanzen fehlen praktisch vollständig [10, 11].

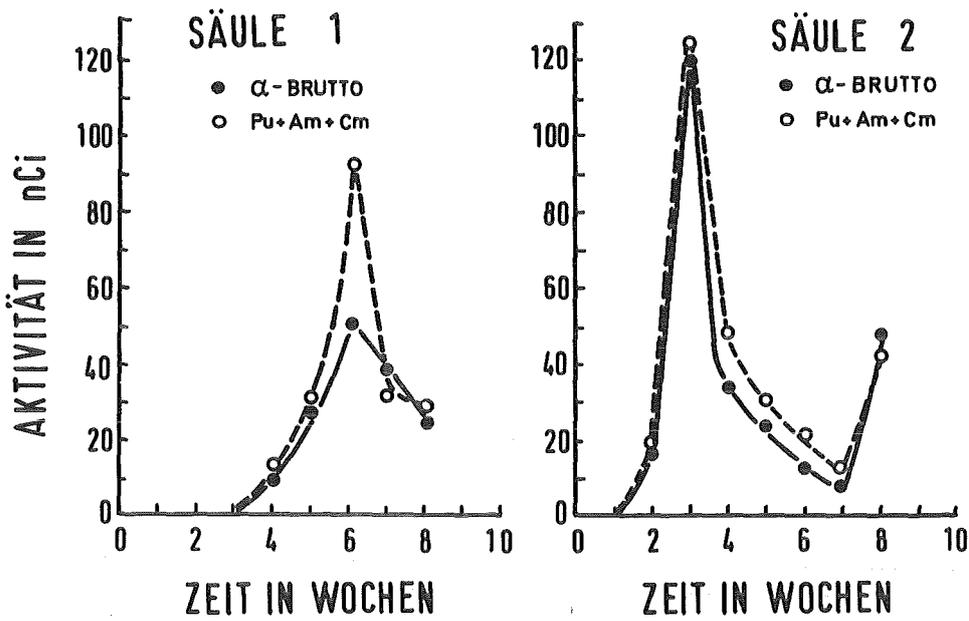


Abb. 4: α-AKTIVITÄT IN DEN WÖCHENTLICH GESAMMELTEN ELUATFRAKTIONEN DER BODENSÄULEN (SÄULE 1: 1050 ml 0,1M DTPA/WOCHE; SÄULE 2: 2100 ml 0,1M DTPA/WOCHE)

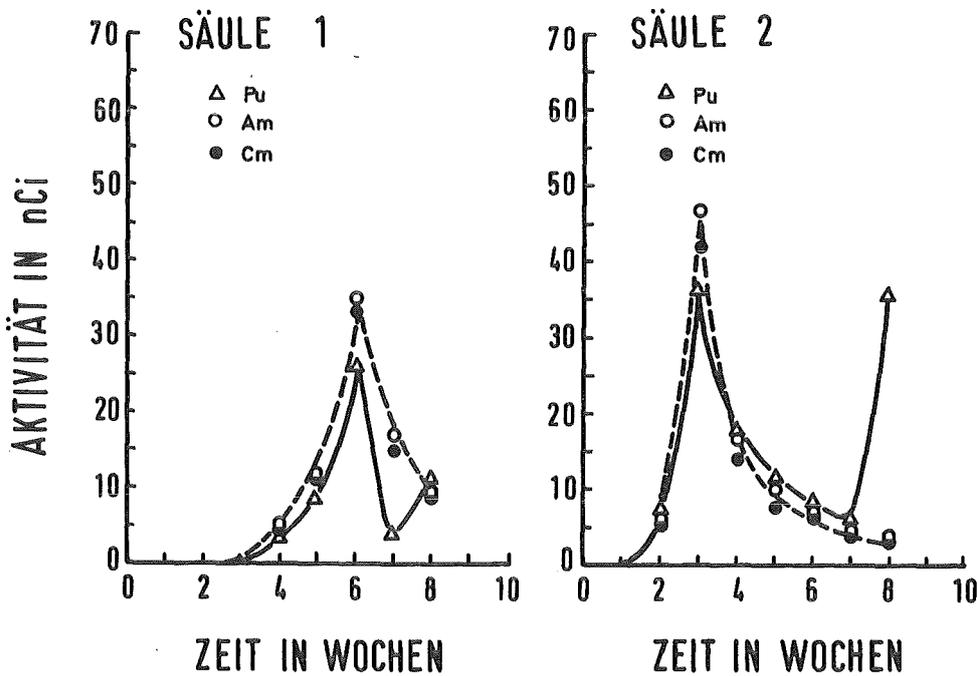


Abb. 5: Pu, Am UND Cm AKTIVITÄTEN IN DEN WÖCHENTLICH GESAMMELTEN ELUATFRAKTIONEN DER BODENSÄULEN (SÄULE 1: 1050 ml 0,1M DTPA/WOCHE; SÄULE 2: 2100 ml 0,1M DTPA/WOCHE)

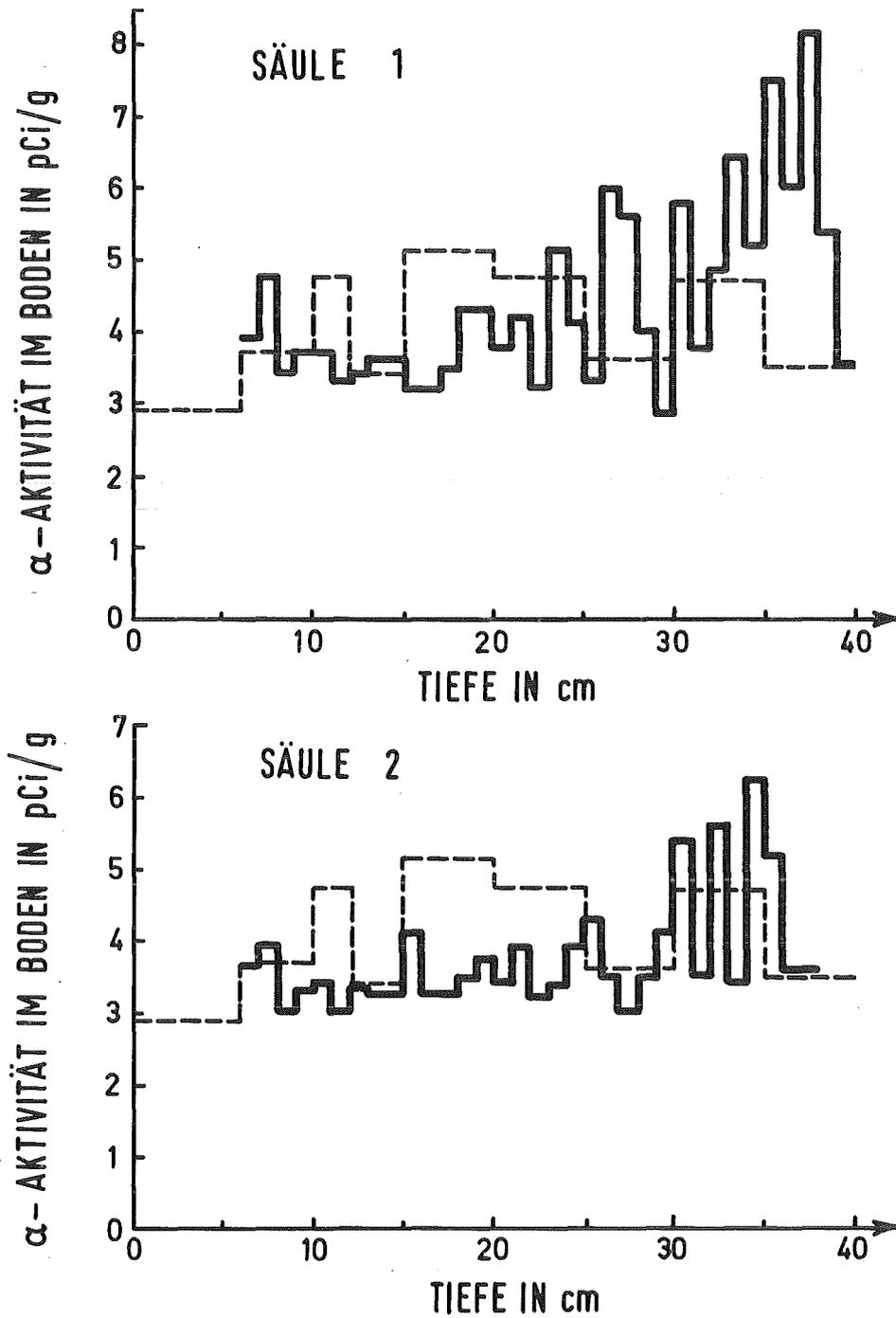


Abb. 6: α -AKTIVITÄT IN DEN BODENSCHICHTEN VOR DER BEREGNUNG (---) UND NACH DER BEREGNUNG MIT 0,1 M DTPA LÖSUNG (—)

In einem für diese Untersuchungen errichteten Glashaus sollen Transferfaktoren für 15 bis 20 Nahrungs- und Futtermittel auf den 10 wichtigsten landwirtschaftlichen Böden der Bundesrepublik gemessen werden. Durch die Arbeit im Glashaus und andere Vorkehrungen wird eine Fälschung der Daten durch Deposition von resuspendierten Aktivitäten vermieden werden können. Erste Untersuchungen werden durchgeführt werden mit den Tracern Pu-238, Am-241, Cm-244 und Np-237. Die Transferfaktoren werden in Abhängigkeit von Bodenparametern wie dem pH-Wert, dem Tongehalt, der Ionenaustauschkapazität, dem Anteil an organischen Bestandteilen und dem Gehalt an verschiedenen anorganischen Substanzen bestimmt werden. Außerdem wird untersucht der Einfluß der Düngung, der Fruchtfolge, der klimatischen Parameter und der Kontaktzeit von Boden und radioaktivem Leitisorotop.

Nach ersten Untersuchungen zu den Aktiniden werden neben diesen auch andere Radiotracer von Elementen mit extrem radiotoxischen Radionukliden zugesetzt werden. Ein ICP-Emissionsspektrometer wird benützt werden, um die Abhängigkeit der Transferfaktoren von der Konzentration der inaktiven Elemente im Boden zu bestimmen, um zu überprüfen, ob Radiotracer und inaktives Element im Gleichgewicht sind, zur Aufstellung von Nährstoffbilanzen, zur Messung der Verteilung von Spurenelementen und zur Bestimmung von Transferfaktoren für Elemente, von denen keine geeigneten Radiotracer zur Verfügung stehen. Insgesamt sollen routinemäßig ca. 40 Elemente mit dem ICP-Emissionsspektrometer bestimmt werden. Dabei werden auch alle hochtoxischen Schwermetalle und ihre Verteilung zwischen Boden und Pflanze erfaßt werden.

Das für diese Untersuchungen errichtete Glashaus ist seit mehreren Monaten in inaktiver Erprobung. Mit Beginn des zweiten Quartals 1983 werden die radioaktiven Experimente im Glashaus aufgenommen werden. Die Gesamtzahl der möglichen Experimente wird bestimmt durch die Grundfläche von 150 m² und die Möglichkeit max. 2 bis 3 Erntekampagnen pro Jahr durchzuführen. Limitierend ist zur Zeit die personelle Ausstattung, mit einem Assistenten können die radiochemischen Untersuchungen für 2 bis 3 Elemente durchgeführt werden. Da nahezu alle hochradiotoxischen Substanzen durch radiochemische Bestimmungen erfaßt werden müssen, ist mit der Untersuchung der Transferfaktoren der Aktiniden unsere personelle Ausstattung z.Zt. mehr als ausgelastet. Mit der relativ einfachen Zielsetzung, notwendige Datensätze für alle wesentlichen pflanzlichen Nahrungs- und Futtermittel für die Aktiniden zu messen, werden im Glashaus mindestens 3 Jahre Experimente durchgeführt werden müssen. Bei einer Erweiterung auf andere Radionuklide aus der Gruppe der Spaltprodukte, der Aktivierungsprodukte und der natürlichen Radioelemente und, wenn die Erstellung von allgemeinen Modellen für den Transfer anorganischer Elemente zwischen Boden und Pflanze angestrebt werden wird, dann werden Experimente im Glashaus während mindestens eines Jahrzehnts notwendig sein.

5. Literatur

- [1] H. Schüttelkopf
"Entwicklung einer Analysenmethode für Plutonium im Femtogramm/Gramm-Bereich und ihre Anwendung auf Umweltproben"
KfK 3035 (September 1981)
- [2] H. Schüttelkopf, M. Pimpl
"Radioecological studies on plutonium and iodine-129 in the surroundings of the Karlsruhe reprocessing plant"
Intern. Symp. on Migration in the Terrestrial Environment of Long-lived Radionuclides from the Nuclear Fuel Cycle, Knoxville, Tenn., July 27-31, 1981, IAEA-SM-257/100
- [3] H. Schüttelkopf
"Das Verhalten von Plutonium in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe"
KfK 3034 (August 1981)
- [4] H. Schüttelkopf, M. Pimpl, G. Herrmann
"Plutoniumfreisetzungen in die Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe"
Gemeinsame Strahlenschutztagung über radiologische Auswirkungen von Kernkraftwerken und anderen kerntechnischen Anlagen auf den Menschen und seine Umwelt, Lausanne/Schweiz, 30. September - 2. Oktober 1981
- [5] M. Pimpl, H. Schüttelkopf, M. Afsar
"Die Plutoniumkontamination des Altrheins: Die Kontamination der Sedimente"
KfK 2892 (Dezember 1979)
- [6] M. Pimpl, H. Schüttelkopf
"Plutonium as a tracer for studies of settling processes in a slow body of running water"
4th Intern. Conf. on Nuclear Methods in Environmental and Energy Research, Columbia, Miss., April 14-17, 1980

- [7] M. Pimpl, H. Schüttelkopf
"Die Messung der Abwasserverdünnung im Altrhein mit
der Tritiumemission des Kernforschungszentrums Karlsruhe"
KfK 3073 (November 1980)
- [8] M. Pimpl, H. Schüttelkopf
"Die Plutoniumkontamination des Altrheins: Die
Plutoniumkontamination als Funktion des Teilchen-
durchmessers der Sedimente"
KfK 3074 (Mai 1982)
- [9] M. Pimpl, H. Schüttelkopf
"Decontamination of soils by irrigation with solutions
containing complexing agents"
Proc. of the 3rd Intern. Symp.: Radiological Protection
- Advances in Theory and Practice, Inverness, Scotland,
6th-11th June 1982
- [10] M. Pimpl, H. Schüttelkopf
"Transport von Plutonium, Americium und Curium aus
Böden in Pflanzen durch Wurzel Aufnahme"
KfK 2891 (Dezember 1979)
- [11] M. Pimpl, H. Schüttelkopf
"Transport of plutonium, americium, and curium from
soils into plants by root uptake"
Nucl. Safety 22, 214-25, März/April 1981