

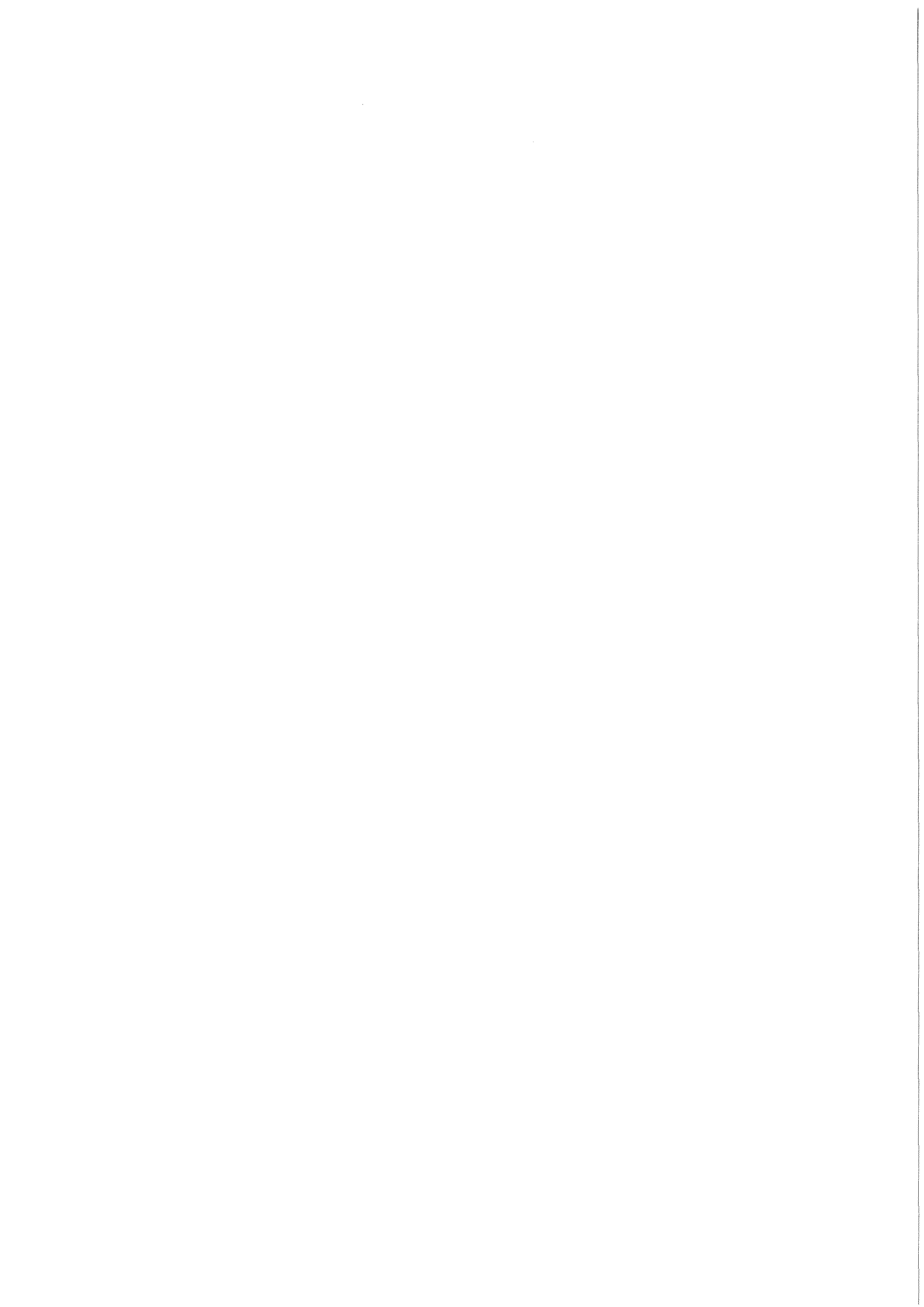
**KfK 3670  
Februar 1984**

**Sammlung der Vorträge zum  
Jahreskolloquium 1983 des  
Projektes Nukleare Sicherheit**

**Karlsruhe, am 22. November 1983**

**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 3670

Sammlung der Vorträge zum  
Jahreskolloquium 1983 des  
Projektes Nukleare Sicherheit

Karlsruhe, am 22. November 1983

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003



Inhaltsverzeichnis

Seite

An Engineer-Constructor' view of Nuclear Power Plant Safety	1 - 9
Sicherheit von Kernkraftwerken aus der Sicht eines Anlagenerstellers	
J.W. Landis, S.B. Jacobs, Stone & Webster Engineering Corporation Boston, Massachusetts	
Erfahrungen im Kernkraftwerk Biblis hinsichtlich Sicherheit der Anlagen	11 - 30
Experience on Safety of Installation at the Nuclear Power Plant Biblis	
F. Meyer, Betriebsleiter, Kernkraftwerk Biblis	
Stand der Reaktorsicherheitsforschung im Projekt Nukleare Sicherheit	31 - 109
Status of Reactor Safety Research in the Nuclear Safety Project	
G. Bork, A. Fiege, W. Gulden, J.P. Hosemann, H. Rininsland, KfK - Projektleitung PNS	
Integritätsnachweis für die Behältereinbauten eines Druckwasserreaktors beim Blowdown - Ergebnisse und Wertung	111 - 139
Assessment of Integrity for the Pressure Vessel Internals of PWRs under Blowdown Loadings - Results and Discussion	
M. Geiß, J. Benner, A. Ludwig, KfK - Institut für Reaktorentwicklung	
Auswirkung von zyklischer Thermoschock-Belastung auf das Rißausbreitungsverhalten	141 - 170
Effect of Cyclic Thermal Shock Loading on Crack Growth Behavior	
H. Stamm, G. Czuck, KfK - Institut für Reaktorbauelemente/ Institut für Zuverlässigkeit und Schadenskunde der Universität Karlsruhe	

Seite

Untersuchungen zur Temperatureskalation bei Hochtemperaturtransienten	171 - 201
Investigations on Temperature Escalation under Severe Fuel Damage Conditions	
S. Hagen, KfK - Hauptabteilung Ingenieurtechnik S.O. Peck, Del. von EG&G, Idaho	
Aktivitätsfreisetzung und Aerosolbildung beim LWR-Kernschmelzen	203 - 231
Release of Radioactivity and Formation of Aerosols during LWR Core Meltdown	
H. Albrecht, KfK - Institut für Radiochemie	
Modellierung der Auflöserabgasstrecke der geplanten Wiederaufarbeitungsanlage als Grundlage für eine sicherheitsanalytische Bewertung	233 - 255
Modelling of the Offgas-Cleaning System of the Planned Reprocessing Plant as a Basis for a Safety Analysis	
K. Nagel, H. Wenzelburger, KfK - Institut für Datenverarbeitung in der Technik J. Furrer, Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik R. v. Ammon, Institut für Heiße Chemie	

AN ENGINEER-CONSTRUCTOR'S  
VIEW OF NUCLEAR POWER  
PLANT SAFETY

BY

J.W. LANDIS

S.B. JACOBS

STONE & WEBSTER  
ENGINEERING CORPORATION  
BOSTON, MASSACHUSETTS

Talk Presented at the  
1983 Annual Meeting of the  
Projekt Nukleare Sicherheit  
November 22, 1983  
Kernforschungszentrum Karlsruhe

AN ENGINEER-CONSTRUCTOR'S VIEW OF NUCLEAR  
POWER PLANT SAFETY

by

J.W. LANDIS AND S.B. JACOBS

INTRODUCTION

For nuclear power to fulfill its promise of producing safe, economic, reliable electric power, the worldwide nuclear community must integrate its safety research and development (R&D) efforts. This paper discusses the roles played in nuclear safety R&D by various U.S. members of that community, including engineer-constructors, utilities, manufacturers, the U.S. Department of Energy (DOE), and the U.S. Nuclear Regulatory Commission (NRC). It covers their contributions, how they interact, and how their efforts are ultimately translated into regulations. The paper also suggests some improvements in this process.

Safety is the foundation of the engineer-constructor's business philosophy. Indeed, by definition, an engineer is one who employs science and technology in a safe and economical manner for the benefit of man. As an engineer-constructor, Stone & Webster Engineering Corporation (SWEC) is professionally dedicated to this philosophy. We believe that a continuing R&D program is essential to effective implementation of this philosophy in each area of technology. Most, if not all, U.S. nuclear safety R&D is performed in the context of NRC regulatory and DOE development activities. Of particular importance is NRC's recent adoption of the concept of a "safety goal", which is currently undergoing a 2-year trial period. The safety goal is a quasi-quantitative benchmark used to evaluate safety measures, and is intended to answer the question, how safe is safe enough?

SWEC recognizes the value of basic research and supports it through contracts with individual scientists and grants to educational and research institutions. We participate directly and significantly in development and demonstration work. Much of this endeavor is focused on developing practical applications for technical discoveries and demonstrating their viability.

STONE & WEBSTER ENGINEERING CORPORATION'S CONTRIBUTION TO SAFETY

At SWEC we have been involved in the development of safety features of nuclear power plants ever since we served as the engineer-constructor for the first commercial nuclear power station at Shippingport, Pennsylvania, in the 1950s. Our personnel have pioneered a number of safety innovations and improvements.

Among these innovations is the subatmospheric containment for pressurized water reactor (PWR) power plants. This type of containment is designed so that leakage will terminate within 1 to 2 hours of the worst postulated loss of coolant accident. Other notable contributions include first use of reinforced-concrete atmospheric containments for PWR power

plants and of reinforced-concrete, vapor-suppression containments for boiling water reactor (BWR) power plants. Both concepts meet rigorous U.S. safety requirements.

SWEC has performed a substantial amount of work on developing standardized plant designs and has developed standardized engineering and construction techniques and procedures. Standardization concepts are being developed in Canada, France, USSR, and Germany, as well as in the United States. The West German convoy concept, which involves developing a number of standardized plants in a common effort, has been quite successful. We believe standardization contributes to safety in a number of ways. Use of standardized designs, procedures, techniques, equipment, and methods increases efficiency and results in higher quality. Standardization also reduces the design variations with which plant operators, emergency teams, and regulatory personnel must be familiar, thus increasing operator capability, and permits specialized talents to be focused on important safety considerations.

Other ongoing SWEC activities in the vital area of safety R&D include development of improved control room designs, practical emergency procedures, and more accurate and efficient methods of stress analysis. SWEC also is directly involved, as are people here at Karlsruhe, in the current worldwide effort to reassess radiological source terms. This effort will be discussed later.

#### OTHER INDUSTRY CONTRIBUTIONS

As indicated in the first paragraph of this paper, all segments of the U.S. nuclear power industry contribute strongly to nuclear safety R&D.

U.S. utilities contribute directly and through the Electric Power Research Institute (EPRI), a utility-supported R&D organization that is firmly committed to nuclear power as a means of increasing U.S. energy self-sufficiency. Current EPRI activities include hydrogen burn tests and an assessment of transient fuel behavior. EPRI also is a primary participant in the ongoing effort to reassess radiological source terms. For example, EPRI is sponsoring the suppression pool scrubbing measurements being made at Battelle Columbus Laboratory, and supporting the aerosol transport tests at Marviken (Sweden) and the in-reactor source term experiments at Argonne National Laboratory.

One of the most important inputs of U.S. industry to nuclear safety R&D is the Industry Degraded Core Rulemaking (IDCOR) Program, which was organized shortly after the TMI accident to provide a basis for participation in NRC's severe accident decision process. This program, which operates under the auspices of the Atomic Industrial Forum (AIF), is in the process of finalizing a comprehensive and technically sound position on the issues related to potential degraded core accidents in nuclear power light water reactors. It is concerned primarily with the ability of existing plants to withstand containment challenges and an evaluation of new, additional safety features that were recommended after the TMI accident. It also includes an assessment of source terms. The results, due to be released soon, will be used in determining what safety improvements and regulatory changes should be made, whether these changes

are consistent with the NRC safety goal, and whether their proposed benefits would be compatible with their attendant costs.

#### THE ROLE OF GOVERNMENT

Two Federal government agencies are responsible for the bulk of nuclear safety R&D: the U.S. DOE and the U.S. NRC. In general, NRC safety R&D is for the purpose of supporting regulatory actions and decisions, while the DOE program is directed more at technological advances. There is potential for overlaps and gaps between these two independent programs, and between the government programs and the industry programs described above.

DOE coordinates industry and government nuclear safety R&D efforts. DOE has convened working groups to assist it in several specific technical areas, including:

- Instrumentation and control technology
- Probabilistic risk assessment
- Dose reduction
- Containment integrity
- Source terms

These working groups are made up of experienced senior technical representatives from NRC, EPRI, the IDCOR Program, individual utilities and owners groups, architect-engineers, engineer-constructors, manufacturers, Edison Electric Institute, AIF, and the national laboratories. Through these groups, DOE determines nuclear safety R&D needs and whether these needs are being met. If it is determined that specific needs are not being met, DOE recommends new programs and priorities and stimulates cooperative funding of the programs by the nuclear industry, groups from other nations, EPRI, the Institute of Nuclear Power Operations, and NRC.

The NRC, through its safety goal and regulatory activities, provides the context for most ongoing nuclear safety R&D efforts. NRC also conducts its own R&D through its Office of Regulatory Research. According to the NRC Long Range Research Plan (NUREG 0961) (NRC 1983), the most pressing issues facing this office concern severe accidents, pressurized thermal shock, risk analysis, human factors, and plant aging. Ideally, R&D programs and the regulatory process should be closely coupled so that significant results of all relevant nuclear safety R&D ultimately are reflected in NRC regulations.

Recent actions to improve the coordination of NRC's nuclear safety R&D through increased opportunities for industry review of proposed programs include:

- Publication of the NRC Long Range (5 year) Research Plan (NUREG 0961) for comments and recommendations.

- Issue of drafts for comment during the early stages of specific R&D tasks, such as those on Severe Accidents (NUREG 0900), Human Factors (NUREG 0985), and Prioritization of Generic Safety Issues (NUREG 0933).
- Publication of the Advisory Committee on Reactor Safeguards reports to the Congress on its review of nuclear safety R&D (NUREGs 0795, 0864, 0875).
- An annual meeting, sponsored by NRC, at which reports on nuclear safety R&D programs currently underway are made in a public forum.
- Formal DOE review, including solicitation of comments from industry, of the proposed NRC nuclear safety R&D program.

#### THE SOURCE TERM EFFORT

The drive toward more realistic source terms in the United States has now grown to what can correctly be described as a consensus effort. The NRC has established a vigorous program, headed by an Accident Source Term Program Office staffed by full-time people of the highest quality. The program involves participation by all the national laboratories. It includes experimental as well as calculational work.

The NRC has organized peer reviews of the calculational work being performed. The peer groups include representatives of virtually every organization in the U.S. that has capability and experience in the source term and severe-accident areas.

In addition, NRC has requested the American Physical Society to conduct an overall review of the "science" of the reassessment. This will be not so much an examination of the specific results as a determination of the validity of the questions being asked and the methods being used. A committee of eminent scientists has already been organized by Dr. Richard Wilson of Harvard University to perform this review.

As indicated previously, the nuclear industry is contributing to the reassessment in several ways:

- EPRI is comparing the Reactor Safety Study (WASH 1400) results (which are the basis for the current source terms) with counterpart calculations using current codes and knowledge. EPRI is also sponsoring a series of experiments to help tie the calculations to experimental data.
- IDCOR has, among other significant studies, investigated fission product retention phenomena and developed new codes expressing them.
- The American Nuclear Society (ANS) has established a Special Committee on Source Terms chaired by Dr. William Stratton of Los Alamos National Laboratory, an eminent scientist who has been associated with the source term effort since serving on

the technical staff of the Kemeny Commission. This committee brings together representatives of stature from many of the organizations involved in source term research, and will produce a report containing both a comprehensive discussion of the technical background of the reassessment and the results of parametric studies whose objective is to increase understanding of the effects of the principal variables. These parametric studies are being contributed to the ANS effort by SWEC.

SWEC, in fact, is taking the source term effort so seriously that we have more than 30 (about 15 equivalent full-time) people working on various aspects of the program at our own expense. This is a concrete expression of the professional attitude of engineer-constructors mentioned earlier. We consider the source term issue so important to the nuclear industry and the nation that we are willing to make a significant contribution of resources without thought of compensation.

Because the parametric studies are so important, let us give you a few examples of some of the results. We have selected 18 parameters for study, covering a wide range of loss of coolant accidents and containment-bypass accidents. We will discuss some of the results applicable to PWRs with large dry containments, represented by Surry, a nuclear power station owned and operated by Virginia Electric and Power Company.

In reactor-accident analyses, potential risk is determined through consideration of both an accident's potential consequences and its probability of occurrence. These analyses historically have been concentrated on accidents with large potential consequences and low probabilities of occurrence. The results, therefore, are that these accidents pose low overall risks. Some members of the general public and the news media, however, have focused on the large consequences and have dismissed the probability of occurrence as irrelevant, no matter how low. This has led these individuals to perceive the risks of nuclear power as unacceptable.

In light of the current emphasis on evaluation of potential consequences of an accident and not on probability of occurrence, reexamination of the method of calculation of these consequences is being undertaken by several groups, including SWEC and the Project for Nuclear Safety at Karlsruhe, as mentioned earlier. NRC and its predecessor, the Atomic Energy Commission, have intentionally and consistently used conservative source terms in studies of light water reactor accident consequences. There is now a large and rapidly growing body of data indicating that these U.S. government studies significantly exaggerated the accident consequences because of the use of unrealistically high source terms. General agreement exists among engineers and scientists in the reactor safety community that reduction in source terms is warranted. At this time, however, agreement has not been reached on how large a reduction is appropriate.

In 1982 SWEC proposed adoption of Interim Source Terms (Allen 1982, Warman 1982) as a conservative replacement for the current unrealistic source terms until ongoing confirmatory research is completed. These



proposed Interim Source Terms have been formulated on the basis of empirical data (from actual reactor accidents, destructive tests, and experimental investigations) and results of analyses of fission-product retention in power plant systems and structures.

SWEC studies show that substantial reductions in accident source terms are warranted because of the effects of natural retention mechanisms that operate in the reactor containment buildings and structures outside the containment. The phenomena we have investigated have not received the degree of R&D attention we believe they deserve, but we are confident enough of the accuracy of our analyses to present our major findings and conclusions (which pertain to dry PWR power plants) here today.

SWEC has found that late overpressurization challenges to containment integrity do not have the potential for causing major releases of radioactivity because most of the fission products are by then no longer airborne in the containment. Overpressure breaches of large dry PWR containments, which, in the U.S., usually have nominal design pressures ranging from 57 to 75 psia (approximately 4 to 5 bars absolute), do not occur during the early phase of an accident. Therefore, the most credible accident source terms are those associated with failure to isolate the containment or those associated with small leak paths.

Our studies have added to the evolving understanding of fission-product retention mechanisms. Our analyses have quantified the relationship between size of the containment opening and releases from the containment. We performed analyses for openings in the containment ranging from 0.1 to 7.0 sq ft (93 to 6500 sq cm). For a large break loss of coolant accident, such as the AB sequence, releases from the containment were found to be maximized for a 1.0 sq ft (930 sq cm) opening. For a transient such as the TMLB sequence, releases increased rapidly with the opening sizes up to approximately 2.0 sq ft (1860 sq cm) but only approximately 25 percent between 2.0 and 7.0 sq ft (1860 and 6500 sq cm).

SWEC analyses have also quantified the relationship between the timing of the containment opening and releases from the containment. Releases were found to decrease exponentially with time after aerosol injection into the containment. Core-concrete interaction did not affect this decrease substantially.

It was found that use of single control volumes in analyses of complex structures, such as PWR containments, results in substantial over-estimates of releases. Releases from the containment, particularly for preexisting openings, are typically into structures outside the containment, and retention of fission products in these structures has been shown to be substantial. Therefore, using the actual compartmentation and flow restrictions in the containment in the analyses results in significantly increased calculated retention in the plant.

The effect of suspended liquid (water droplets) associated with the two-phase nature of the post-accident atmosphere has been shown to enhance agglomeration and settling of radioactive aerosols within the plant. Diffusiophoresis (the removal of aerosols due to the process of

steam condensation on passive heat sinks) has been shown to have a significant effect on retention of fission products within the plant.

Individually, several of the phenomena SWEC studied were found to reduce fission product leakage by a factor of two or less compared to what was reported in WASH 1400 and more recent probabilistic risk assessments. The combined effects of these phenomena, however, resulted in much larger reductions. For example, our analyses for the Surry Plant support a postulated release for the TMLB accident sequence of approximately 1 percent of the core inventories of iodine, cesium, and tellurium, compared to postulated releases of 70, 40, and 30 percent, respectively, reported in the WASH 1400. This represents reduction factors of 70, 40, and 30, respectively, for these significant contributors to risk.

Thus, careful reappraisal of fission product retention in the containment and structures outside the containment results in substantial reductions in calculated releases to the environment, which of course reduces calculated offsite consequences. The low risk to the public is not only a result of low probability of occurrence, but also of much lower releases to the environment for conceivable accidents than had been assumed previously.

SWEC has used the proposed Interim Source Terms to analyze the potential radiological consequences of postulated accidents at four nuclear power plant sites. Since the effect of source term reduction on radiological consequences is site dependent, these analyses used site-specific meteorological and demographic data.

The results dramatically demonstrate the effects of using reduced source terms and site-specific data in accident-consequence analyses. Using the proposed Interim Source Terms for all four sites, no early (i.e., within a year of the accident) fatalities were calculated to occur under typical weather conditions at three sites and only two early fatalities were calculated to occur at the fourth site. These figures are as much as three orders of magnitude less than those calculated using current source terms. The number of latent fatalities (i.e., cancer-related fatalities over the lifetime of the exposed population) was also calculated for each of the four sites and likewise found to be much lower for the proposed Interim Source Terms. In fact, they were found so low as to be statistically insignificant and indistinguishable from expected normal variations in the cancer mortality rate from all other natural and man-made causes.

Therefore, use of the proposed Interim Source Terms results in low calculated reactor accident consequences--so low that such consequences are similar to those of normal, customarily accepted, industrial accidents.

As the ongoing reassessment of source terms establishes that nuclear power is inherently safe, the focus of nuclear power plant safety R&D will change. Nuclear safety R&D should then turn inward to minimize damage in power plants. The reassessment of source terms will not be over at this point; further analysis will still be required to determine even more accurate source terms for use in design.

## CONCLUSION

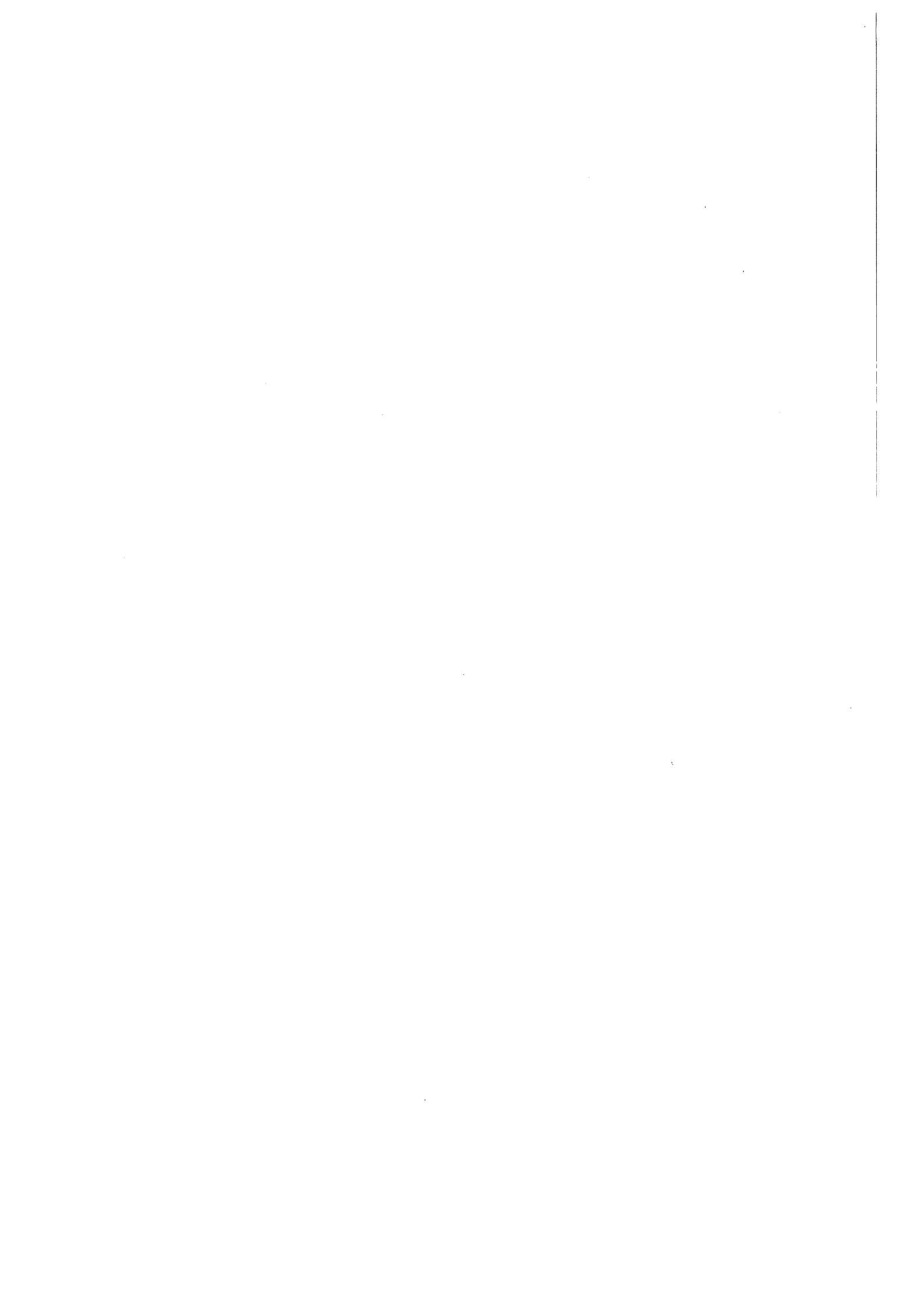
More accurate source terms and a new focus for nuclear safety R&D would enable nuclear power to fulfill its potential as an economical and safe means of producing electric power. For this to become a reality, however, ongoing industrial and government nuclear safety R&D programs must be coordinated better, and regulations must promptly reflect the results of these programs.

## REFERENCES

Allen, W.F., Jr. Much of the Anxiety about Nuclear Power Is Needless. Public Utilities Fortnightly, Arlington, VA, 1982.

U.S. Nuclear Regulatory Commission. Long Range Research Plan--FY 1984-FY 1988. NUREG-0961, Washington, DC, April 1983.

Warman, E.A.; Gardner, R.; and Jacobs, S.B. Application of Reduced Source Terms in Reactor Accident Analysis. 1983 Conference of Engineering and Operation Division, Southeastern Electrical Exchange, New Orleans, LA, April 14, 1983.



PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT  
JAHRESKOLLOQUIUM 1983

ERFAHRUNGEN IM KERNKRAFTWERK BIBLIS  
HINSICHTLICH SICHERHEIT DER ANLAGEN

F. MEYER  
BETRIEBSLEITER  
KERNKRAFTWERK BIBLIS

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Erfahrungen im Kernkraftwerk Biblis  
hinsichtlich Sicherheit der Anlagen

Kurzfassung:

Der Bericht befaßt sich nicht mit Erfahrungen hinsichtlich nuklearer Sicherheit, da sich kein derartiger Vorfall ereignet hat.

Der Begriff "Anlagensicherheit" ist in Richtung Betriebszuverlässigkeit oder in anderen Worten "Anlagenverfügbarkeit" erweitert worden. Daher wird vielmehr anhand einiger Beispiele und Diagramme berichtet, wie Fehler, die zu ernsthaften Störungen mit Transienten, Turbinen- oder Reaktorabschaltungen führen können, frühzeitig erkannt werden und welche geeigneten Maßnahmen ergriffen wurden, um die Anzahl der Fehlertransienten und Abschaltungen zu minimieren. Dies gilt sowohl für technische als auch menschliche Fehler (jeweils ca. 50 %).

Das Resultat dieser Maßnahmen ist die tatsächliche Verminderung der Anzahl der Transienten und Reaktorschnellabschaltungen und somit auch der Wahrscheinlichkeit von Vorkommnissen, welche die Anlagensicherheit gefährden könnten.

Experience on Safety of Installations at the  
Nuclear Power Plant Biblis

Abstract:

The report is not concerned in experience with nuclear safety because no incident of this kind has occurred. The term plant safety has been extended to the meaning of reliability of operations or in other words in plant availability.

Therefore it is much more reported by means of a few examples and diagrams how failures which can lead to serious disturbances with transients, turbine- or reactor trips have early been recognized, and which suitable actions were taken to minimize the number of failures, transients and shut downs. This is valid for technical failures as well as for human errors (c. 50 % each).

The result of these measures is the effective reduction of the number of transients and reactor scrams and consequently also of the probability of incidents which could endanger the plant safety.

## 1. Einleitung

Oberstes Gebot bei der Planung und dem Bau von Kernkraftwerken und natürlich auch beim Betrieb dieser Anlagen ist es, die zusätzliche unkontrollierte Freisetzung von Radioaktivität als Folge von Störungen und Störfällen zu vermeiden. Um dieses Ziel zu erreichen, müssen störungsauslösende Ereignisse weitgehend verhindert werden, da sie sich direkt oder bei weiteren Fehlfunktionen zu Störfällen entwickeln können. Damit wird also die Anzahl der Transienten oder die Anforderungen der Sicherheitssysteme und so auch die Wahrscheinlichkeit für die Freisetzung von Radioaktivität reduziert.

Treten trotzdem Fehler an Betriebssystemen, Sicherheitssystemen oder bei der Bedienung auf, die durch betriebliche Regelungs- und Schutzmaßnahmen oder Begrenzungen allein nicht abgefangen werden können, werden die Transienten bei Erreichen von Grenzwerten durch weitere Sicherheitseinrichtungen beherrscht, indem die Anlage abgeschaltet wird. Falls erforderlich werden über die Abschaltung hinaus zusätzliche Maßnahmen zur Sicherstellung der Kernkühlung durch das Reaktorschutzsystem angeregt, um eine Beschädigung des Kerns und schwerwiegendere Folgen zu verhindern.

Da im Laufe der Betriebszeit des Blockes A seit 1975 und des Blockes B seit 1977 keine der vorgekommenen Leistungstransienten mit über das normale betriebliche Maß hinausgehendem Aktivitätsaustritt verbunden war, kann das Ziel der nuklearen Sicherheit mit den bisherigen Schutzmaßnahmen als erreicht gelten.

Im folgenden sollen einige betriebliche Erfahrungen und die getroffenen Maßnahmen erläutert werden, die dazu beigetragen haben, Störungen zu vermeiden und damit einen sicheren Betrieb der Anlagen zu gewährleisten.



## 2. Maßnahmen zur Verhinderung von Störungen

Wie eine Analyse der auslösenden Ereignisse für z.B. die in Biblis aufgetretenen ungeplanten Reaktorschnellabschaltungen zeigt (Bild 1), können die auslösenden Ursachen derartiger Störungen zu 48 % auf technisches und zu 52 % auf menschliches Fehlverhalten zurückgeführt werden. Zu beiden Bereichen wurden betriebliche Maßnahmen ergriffen, die - wie das Bild 1 verdeutlicht - zu einer Abnahme der Reaktorschnellabschaltungen geführt und auch die Verfügbarkeit erhöht haben (Bild 2). Die durchgeführten Maßnahmen dienen nicht nur zur Vermeidung von Abschaltungen sondern sollen auch alle sonstigen Störungen weitgehend verhindern.

### 2.1 Maßnahmen zur Vermeidung technisch bedingter Störungen

Um Störungen aufgrund technischer Ursachen zu vermeiden, müssen

- Fehler frühzeitig erkannt,
- Fehler rechtzeitig behoben und
- die aufgetretenen Störungen ausgewertet werden,

damit eine Wiederholung möglichst ausgeschlossen ist.

#### 2.1.1 Erkennen von technischen Fehlern

Als Hilfsmittel technische Fehler zu erkennen, dienen im laufenden Betrieb die Störmeldungen auf der Warte in Zusammenhang mit der gesamten Instrumentierung. Darüber hinaus können Fehler bei ständig wiederkehrenden Begehungen der Anlage nach einem technisch begründeten Programm erkannt werden, bevor Störmeldungen oder direkte Auswirkungen

auftreten. Mit Hilfe der im laufenden Betrieb durchgeführten Funktionstests an wichtigen Anlagenteilen sind Mängel erkennbar, bevor sie im Anforderungsfall zu einer Fehlfunktion mit eventuell weiterreichenden Auswirkungen führen.

Da im laufenden Betrieb eine Früherkennung insbesondere an passiven Komponenten, wie druckführenden Umschließungen, nicht möglich ist, erfolgt in den Revisionen schwerpunktmäßig eine Prüfung dieser Komponenten. Darüber hinaus wird mit Hilfe einer vorbeugenden Instandhaltung das Ziel verfolgt, insbesondere Verschleißteile und Materialermüdungen durch rechtzeitige Maßnahmen nicht zu störenden Auswirkungen kommen zu lassen. Insbesondere an den Teilen, die im laufenden Betrieb nicht geprüft werden können bzw. sich nicht selbst prüfen, werden während der Revision Funktionstests durchgeführt.

Eine Auswertung, wie aufgetretene technische Fehler oder besondere Vorkommnisse mit potentieller sicherheitstechnischer Bedeutung für die Anlage (Primärkreis, Sicherheitssysteme einschließlich Stromversorgung) erkannt wurden, ergibt, daß dies bei 76 % der Fehler im laufenden Betrieb und bei 24 % während der Revisionen geschah (Bild 3). Die hauptsächlichsten Erkennungshilfen waren zu etwa jeweils 24 % Meldungen und Instrumentierungen sowie Funktionstests. Durch örtliche Begehungen konnten ca. 12 % der technischen Fehler frühzeitig erkannt werden. Nur etwa 15 % der technischen Fehler haben zu direkten Auswirkungen auf den Betriebszustand der Anlage geführt, wobei u.a. als Ursachen der Einfall von Steuerstäben, das Öffnen von Abblaseventilen oder die Fehlfunktion eines Systems im Anforderungsfall zu nennen sind.

### 2.1.2 Beheben der erkannten technischen Fehler

Ein frühzeitiges Erkennen einer gestörten technischen Komponente reicht nicht aus, zu verhindern, daß Störungen eingeleitet werden. Die im laufenden Betrieb erkannten Fehler müssen direkt oder bei einem Stillstand behoben werden.

Gefährden derartige Fehler die Anlagensicherheit oder können sie wirtschaftliche Schäden z.B. eine Abschaltung hervorrufen - derartige Fehler treten durchschnittlich 3 - 4 pro Tag und Block auf -, wird eine sofortige Behebung eingeleitet. Dadurch ist sichergestellt, daß es zu keiner Störung aufgrund verzögerter Fehlerbeseitigung kommt.

Lassen sich die Fehler im laufenden Betrieb nicht beseitigen und kann mit der Beseitigung nicht bis zum nächsten Revisionstermin gewartet werden, wird die Anlage zu einem Stillstand abgeschaltet. Wie das Bild 4 zeigt, sinkt nach der Inbetriebnahme des Blockes B im Jahre 1977 die Anzahl der Stillstände der Blöcke A und B ab und erreicht 1982 lediglich die Anzahl 2. Damit wird deutlich, daß Probleme an wesentlichen technischen Komponenten durch Prüfung, vorbeugende Instandhaltung und Qualitätssicherung weitgehend bekannt und unter Kontrolle sind.

Eine Analyse der Ursachen für diese Stillstände zeigt, daß insgesamt 9 entsprechend 16% durch Fehler oder Überprüfungen an sicherheitstechnisch wichtigen Komponenten des Primärkreises oder der Sicherheitssysteme bedingt waren. Bei zwei der drei durch den Primärkreis bedingten Stillstände wurde vorsorglich eine Überprüfung durchgeführt, ohne daß ein Schaden bereits erkennbar war. Als Ursache für diese Stillstände sind nicht eindeutig verifizierbare Körperschallsignale im Bereich des Primärkreislaufes und die Überprüfung der Impulsleitungen für die Primärsicherheitsventile aufgrund eines Revisionsbefundes im anderen Block zu nennen. Beim 3. Stillstand wurde eine Leckage an Druckhalterventilen behoben, bevor diese zu nennenswerten Auswirkungen hätten führen können.

Auch die Stillstände, bedingt durch Ursachen an den Sicherheitssystemen hatten in keinem Falle weitreichendere Auswirkungen, als den Fehler der Komponenten selbst. So traten z.B. Undichtigkeiten am Speisewasserbehälter auf, sie führten jedoch nicht zu seinem Ausfall. Auch der Schaden an einem Notstrom-Dieselaggregat hatte keine sicherheitstechnische Auswirkung für die Anlage, da er nicht im Anforderungsfall auftrat.

Die verbleibenden 84 % der Stillstände fallen nicht in die oben genannte Kategorie. Als Ursachen für diese sind u.a. zu nennen:

Undichte Rohre in den Speisewasser-Vorwärmern, Probleme mit Dichtungen der Hauptkühlmittelpumpen und Schäden im Bereich des Generators und der Eigenbedarfsversorgung.

### 2.1.3 Auswertung von Störungen

Als dritter Punkt, der zur Vermeidung technisch bedingter Störungen dient, ist die Auswertung aller Störungen in bezug auf die Ursache für die Transiente oder das Ereignis zu nennen. Diese Erkenntnisse haben häufig Verbesserungen in der Technik zur Folge, die derartige Fehler zukünftig vermeiden.

Als Beispiel für eine solche Transiente ist das Öffnen eines Abblaseventils am Druckhalter infolge eines Fehlers in der Sollwertbildung für die Regelung zu nennen. Als Folgerung aus dieser Störung wurde der einsträngigen Regelung eine viersträngige Druckbegrenzung überlagert, so daß Einzelfehler in der Regelung oder Begrenzung derartige Störungen nicht mehr hervorrufen können.

Folgendes weitere Beispiel für eine technische Maßnahme als Konsequenz einer Störung - nämlich dem Notstromfall durch Ausfall eines Eigenbedarfstransformators - sei erwähnt, durch die sich die Eintrittswahrscheinlichkeit für den Notstromfall um etwa den Faktor  $10^{-1}$  reduziert. Dies wurde durch die direkte Einspeisung in die Eigenbedarfsschienen von einem Reservenetzanschluß mit technisch relativ einfachen Mitteln aber hohem Investitionsaufwand erreicht.

Um ein optimales Anlagenverhalten bei Transienten zu gewährleisten und in deren Folge keinen Störfall entstehen zu lassen, müssen viele betriebliche Einrichtungen im Anforderungsfall richtig funktionieren. Diese sind im normalen Leistungsbetrieb zum größten Teil nicht in direktem Eingriff. Ihre ordnungsgemäße Funktion muß daher zusätzlich bei jeder Transiente überprüft werden. So wird bei einem Lastabwurf z.B. aufgrund einer Netzstörung über die ordnungsgemäße Funktion der Umleitstation der Turbine der Sekundärdruck geregelt auf den Sollwert angehoben. Wird zu wenig Dampf über die Umleitstation abgegeben, kann es zum Ansprechen der sekundärseitigen Sicherheitsventile kommen; wird zuviel Dampf abgegeben, kann das Absperrsignal für den Frischdampf- und Speisewasserkreislauf ansprechen. Beide Fälle ergeben kein optimales Anlagenverhalten. Es ist daher das Ziel der Auswertung betrieblicher Störungen, schon geringfügige Abweichungen von der ordnungsgemäßen Funktion zu erkennen und zu beheben.

Darüber hinaus wird der weitere Verlauf einer Störung, z.B. das Abkühlen der Anlage überprüft und analysiert. So konnte im Verlauf des schon erwähnten Notstromfalles durch Ausfall eines Eigenbedarfstransformators das Phänomen der Dampfpolsterbildung beim Abkühlen im Bereich des Reaktordruckbehälterdeckels beobachtet werden. Es wurde bestätigt, daß auch bei Naturumlauf die Wärmeabfuhr aus dem Kern während der Dampfpolsterbildung in gewohnter Weise funktioniert.

Die Auswertung von Transienten und sicherheitstechnisch besonderen Vorkommnissen beschränkt sich selbstverständlich nicht nur auf die Anlagen in Biblis.

Außerdem wird durch den Erfahrungsaustausch mit anderen in- und ausländischen Betreibern und Herstellern versucht,

- auf Fehler frühzeitig aufmerksam zu werden
- die Übertragbarkeit zu prüfen
- Schwachpunkte zu erkennen
- Maßnahmen möglichst durchzuführen, bevor eigene negative Erfahrungen vorliegen.

Ein Beispiel für eine verhältnismäßig einfache Maßnahme als Folge des Störfalls von Three Mile Island 2, durch die die Auswirkungen eines fehlerhaften Offenbleibens eines Abblaseventils am Druckhalter durch Erweiterung der automatischen Maßnahmen begrenzt wurden, ist hier zu erwähnen:

Das schon vorhanden gewesene vorgelagerte Absperrventil wird zugefahren, wenn ein Zu-Befehl für das Abblaseventil ansteht, dieses aber nicht geschlossen ist. Darüber hinaus wird das Absperrventil bei Unterschreiten eines Siedeabstandgrenzwertes ebenfalls geschlossen.

Dieses Beispiel macht deutlich, wie derartige betriebliche Erfahrungen letztlich durch technische Maßnahmen zu einer Erhöhung der Sicherheit der Anlagen beitragen und gleichzeitig das Betriebspersonal entlasten kann.

## 2.2 Maßnahmen zur Vermeidung von Störungen aufgrund menschlicher Fehler

Wie eingangs erläutert, ist nicht nur das fehlerhafte Verhalten technischer Einrichtungen Ursache für ungeplante Abschaltungen sondern auch die menschliche Unzulänglichkeit (Bild 1). Um Gegenmaßnahmen ergreifen zu können, ist es notwendig, ihre Ursachen zu kennen. Diese treten am deutlichsten zu Tage, wenn sie zu einer Störung geführt haben. Erst wenn die Ursachen bekannt sind, können Maßnahmen eingeleitet werden, die eine Wiederholung verhindern.

### 2.2.1 Ursachen menschlich bedingter Fehler

Eine Analyse der auslösenden Ereignisse ungeplanter Abschaltungen ergibt, daß die Auslösungen teils direkt teils indirekt durch menschliche Fehler verursacht wurden.

Einige Ursachen sind nachfolgend aufgeführt:

- Fehler bei Arbeiten in der Anlage, z.B. Anregung von Fehlsignalen, Fehlschaltungen
- Fehlerhafte Maßnahmen bei Instandhaltungs- und Wartungsarbeiten, z.B. Fehleinstellung von Grenzwerten oder Kennlinien
- Unvollständiges Konzept bei der Auslegung oder bei Prüfungen, z.B. Randbedingungen, die nicht berücksichtigt wurden
- Schnelle Maßnahmen des verantwortlichen Schichtpersonals.

### 2.2.2 Vermeiden menschlich bedingter Fehler

Das Lernen aus den aufgetretenen Fehlern ist eine anschauliche und wirkungsvolle Methode, diese Fehler zu vermeiden. Daher werden die Erkenntnisse aus Störungen an alle Betroffenen durch Schulung weitervermittelt. Um Fehler bei Arbeiten in der Anlage auf ein unvermeidbares Maß zu reduzieren, werden alle nicht zwingend erforderlichen Arbeiten während der Revision oder bei sonstigen Stillständen ausgeführt. Durch qualitätssichernde Maßnahmen, wie Funktionstests wird versucht, Fehler bei Instandhaltungsarbeiten vorzeitig zu erkennen und zu beseitigen, damit diese keine Störung auslösen oder die Auswirkung bei einer Störung vergrößern können.

Die betrieblichen Erfahrungen dienen auch dazu, ein unvollständiges Konzept bei der Auslegung zu erkennen und geeignete Maßnahmen zu ergreifen. So wurde z.B. bei einem Lastabwurfversuch zum Zyklusende ein schneller Anstieg der Reaktorleistung durch den stark negativen Temperaturkoeffizienten festgestellt, der durch die vorhandenen Begrenzungen allein nicht abgefangen werden konnte, so daß es auslegungsgemäß zur Reaktorschnellabschaltung kam. Dieser Leistungsanstieg wurde bis zu diesem Zeitpunkt nicht so stark eingeschätzt und machte daher auf eine für die Anlagen in Biblis unvollständige Auslegung in einem Teilbereich aufmerksam.

Diese Erkenntnisse aus Störungen, daß z.B. durch schnelle Handmaßnahmen des verantwortlichen Schichtpersonals eine Abschaltung ausgelöst oder die Auswirkungen bei einer Störung vergrößert werden können, werden im Rahmen der gründlichen Wiederholungsschulungen vermittelt.

Ein wesentliches Hilfsmittel bei diesen Schulungen ist auch das Transientenverhalten von aufgetretenen Störungen. So wurden z.B. zusätzlich das Anlagenverhalten bei Dampfpolsterbildung beim Abkühlen ohne Betrieb der Hauptkühlmittelpumpen in der Schulung erläutert und die Vorgehensweise in das Betriebshandbuch aufgenommen.

Um insbesondere bei sicherheitsrelevanten Ereignissen vom Wartenpersonal keine schnellen Eingriffe zu verlangen - der Mensch benötigt Zeit, um sich bei derartigen Ereignissen erst auf die Situation einzustellen - muß gerade in diesem Bereich die Technik den Menschen entlasten.



Deshalb werden schnell notwendige Maßnahmen automatisiert, so daß im Störfall dem Betriebspersonal Zeit zur Situationsanalyse verbleibt. So muß z.B. das schon erwähnte, fehlerhafte Offenbleiben eines Druckhalterabblaseventils nicht schnell durch das Betriebspersonal erkannt werden, sondern wird durch automatisches Schließen des vorgelagerten Absperrventils aufgrund geeigneter Erkennungskriterien geschlossen.

Damit das verantwortliche Schichtpersonal auf sicherheitsrelevante Ereignisse vorbereitet ist, wird neben der theoretischen Ausbildung über physikalische und anlagentechnische Vorgänge bei Stör- und Schadensfällen das Vorgehen bei derartigen Ereignissen am Kraftwerkssimulator trainiert und zyklisch wiederholt. Hierbei werden auch Störfallabläufe anderer Kernkraftwerke simuliert.

### 3. Auswertung ungeplanter Abschaltungen

Alle zuvor erläuterten Maßnahmen können dazu beitragen, die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten von Störungen zu reduzieren. Es gelingt jedoch nicht, Störungen vollkommen auszuschließen. Dies verdeutlicht auch die im Bild 1 dargestellte Anzahl der bei Leistungsbetrieb ungeplanten Reaktorschnellabschaltungen.

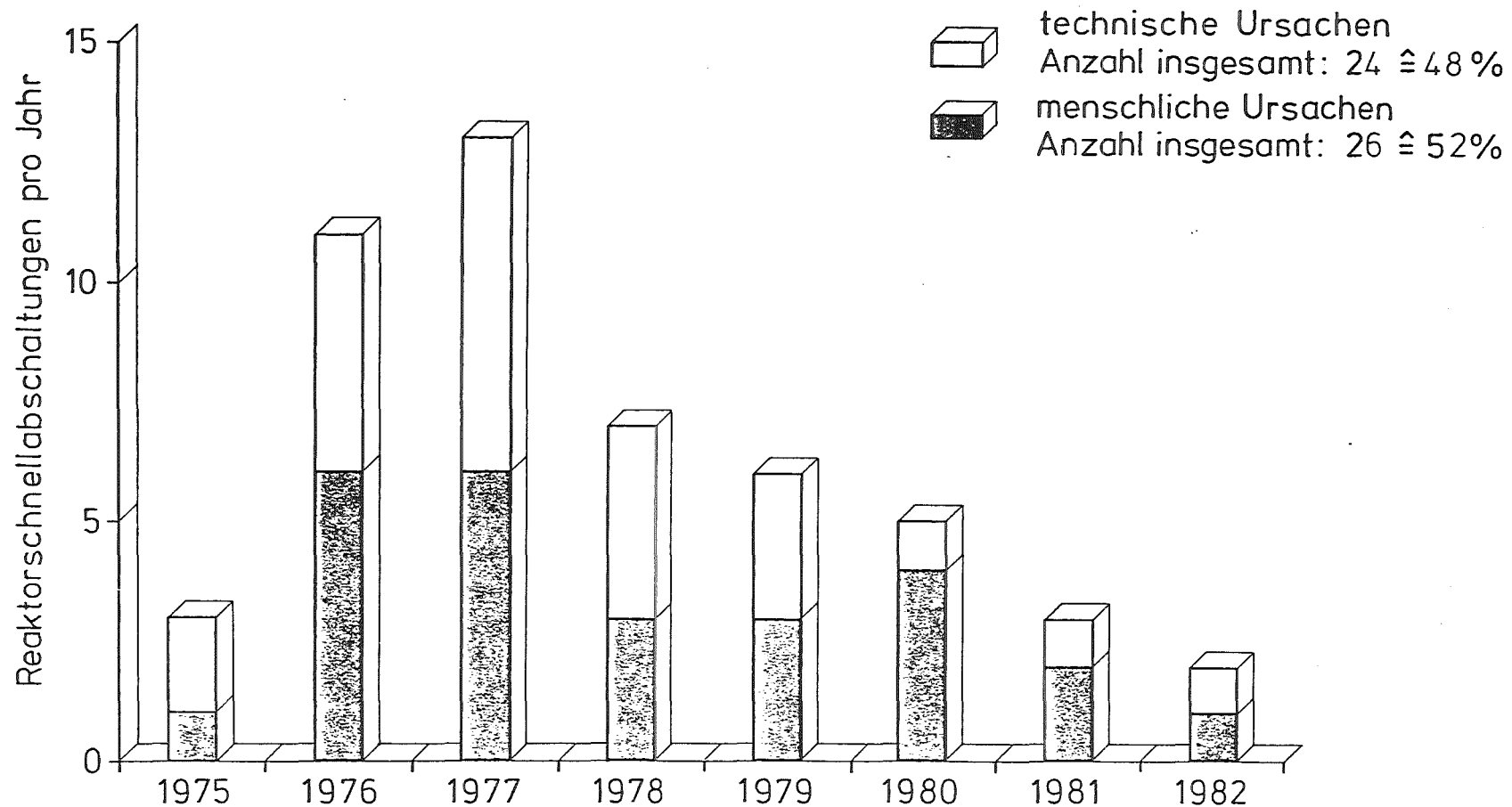
Die während der Inbetriebsetzung und den ersten beiden Betriebsjahren des Blockes A - dem Prototyp dieser Leistungsgröße von 1300 MWe - gewonnenen Erfahrungen in technischer und menschlicher Hinsicht lagen bei der Übernahme des Blockes B 1977 bereits vor. Daher stieg 1977 die gesamte Anzahl der Abschaltungen nur geringfügig an. Im weiteren Verlauf der Betriebszeit ergaben sich für die Blöcke A und B nahezu die gleiche Anzahl an Abschaltungen.

Sowohl bei den Störungen, die durch technische als auch bei denen, die durch menschliche Ursachen ausgelöst wurden ist eine deutliche Abnahme erkennbar.

Wie das Bild 5 verdeutlicht, wurden die Störungen, die durch betriebliche Schutzanregungen oder Begrenzungen nicht abgefangen werden konnten, zu 70 % allein durch die Reaktor- und Turbinenschnellabschaltung erfolgreich beendet und beherrscht. In 30 % der Fälle wurden direkt mit der RESA-Auslösung oder im weiteren Verlauf der Transiente Reaktorschutzmaßnahmen, wie Primärkreisabschlußsignal, Absperrsignal für Frischdampf- oder Speisewasserkreislauf oder Notstromsignal angeregt. Ein Beispiel für eine Reaktorschnellabschaltung mit direkter Auslösung der Notstromsignale lag bei dem zuvor erwähnten Ausfall des Eigenbedarfstransformators vor. Die ergriffenen Maßnahmen haben dazu geführt, daß auch diese Leistungstransienten erfolgreich beherrscht wurden und es in keinem der Fälle zu einer über das normale betriebliche Maß hinausgehenden Freisetzung von Radioaktivität kam. Des weiteren haben die ausgeführten technischen Verbesserungen zur Verhinderung von Störungen auch dazu beigetragen, die Zahl der Anforderungen für Reaktorschutzmaßnahmen zu reduzieren.

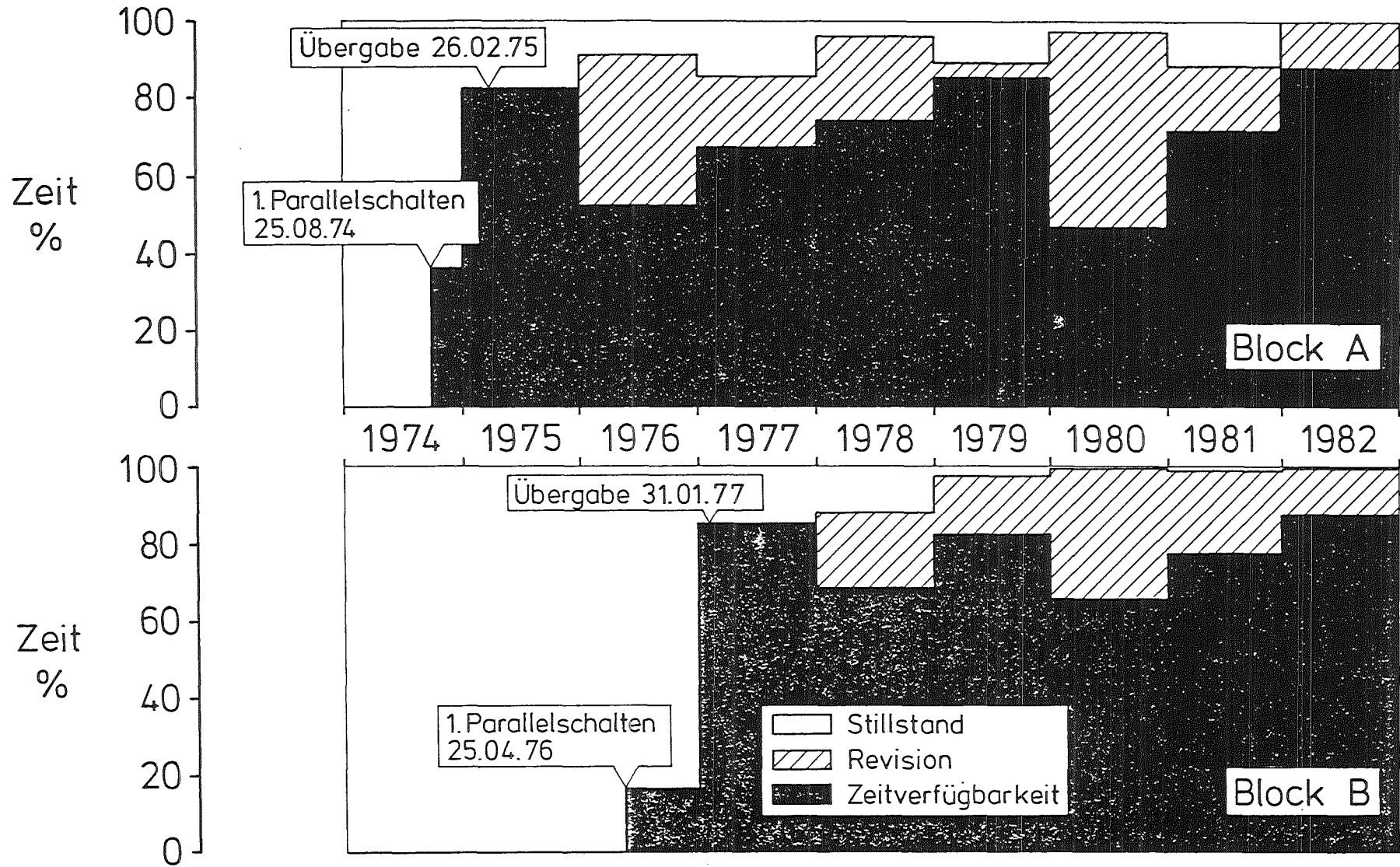
Sicherlich werden die Ursachen für die Schutzanforderungen trotz der getroffenen Gegenmaßnahmen nicht vollkommen ausgeschlossen werden können. Es ist jedoch beruhigend zu vermerken, daß in Kernkraftwerken Störfälle von Sicherheitstechnischer Bedeutung oder gar mit Auswirkungen auf die Umgebung zu den Raritäten zu zählen sind. Hierzu haben neben gründlicher Planung und Konstruktion auch die ständigen kleinen Verbesserungen aufgrund der betrieblichen Erfahrungen beigetragen.

Abschließend kann wohl gesagt werden, daß hinsichtlich der Sicherheit von Kernkraftwerken mit Leichtwasserreaktoren in der Bundesrepublik Deutschland ein Stand erreicht ist, der kaum noch verbessert werden kann. Weitere Sicherheitsforschungen sollten daher vorwiegend dem Abbau von Konservativitäten dienen, um in jeder Beziehung optimale Verhältnisse zu erreichen.



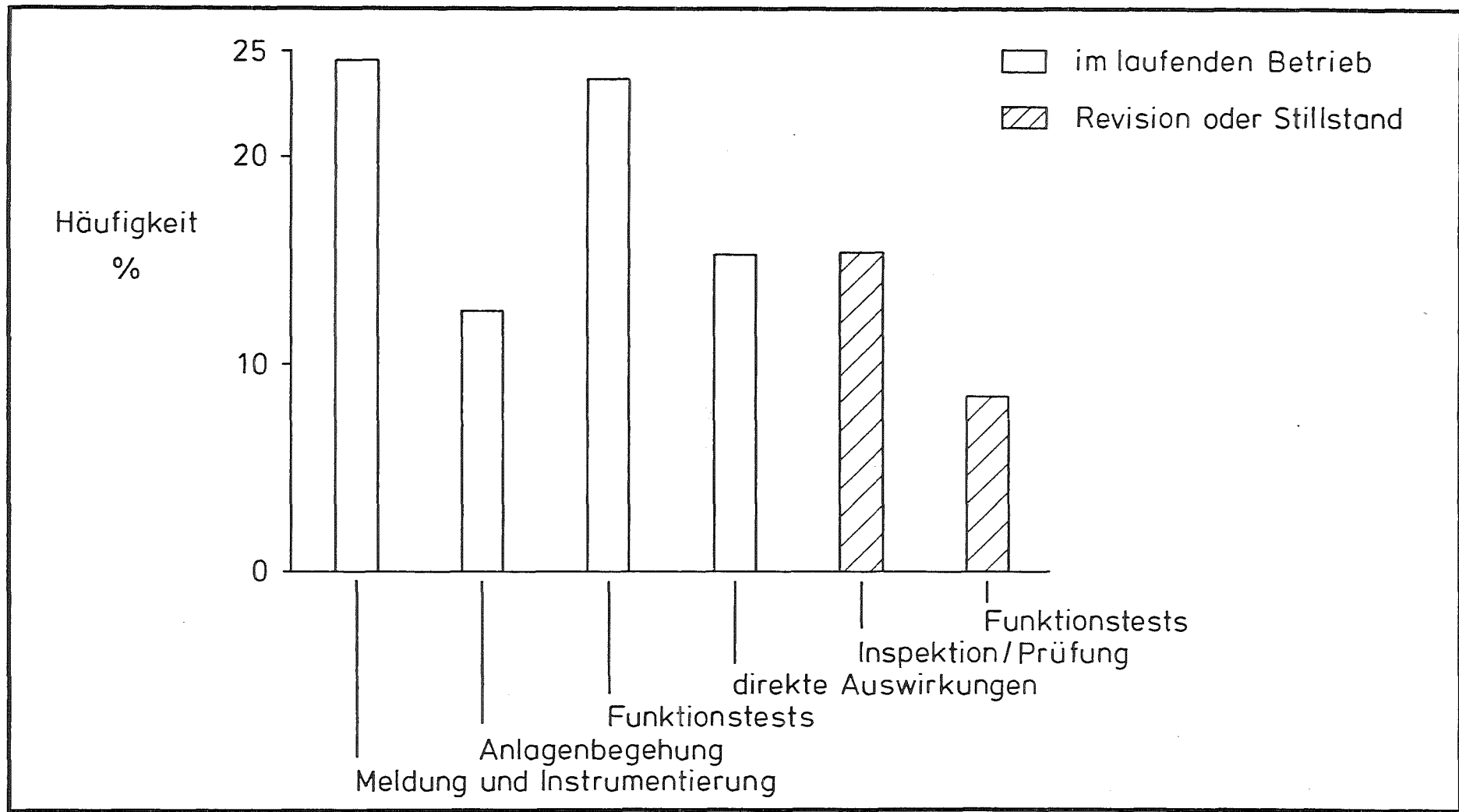
RWE  
BV-Bibilis

Bild 1: Ursachen ungeplanter Reaktorschnellabschaltungen bei Leistungsbetrieb Block A und B  
 Übergabe: Block A 1975, Block B 1977



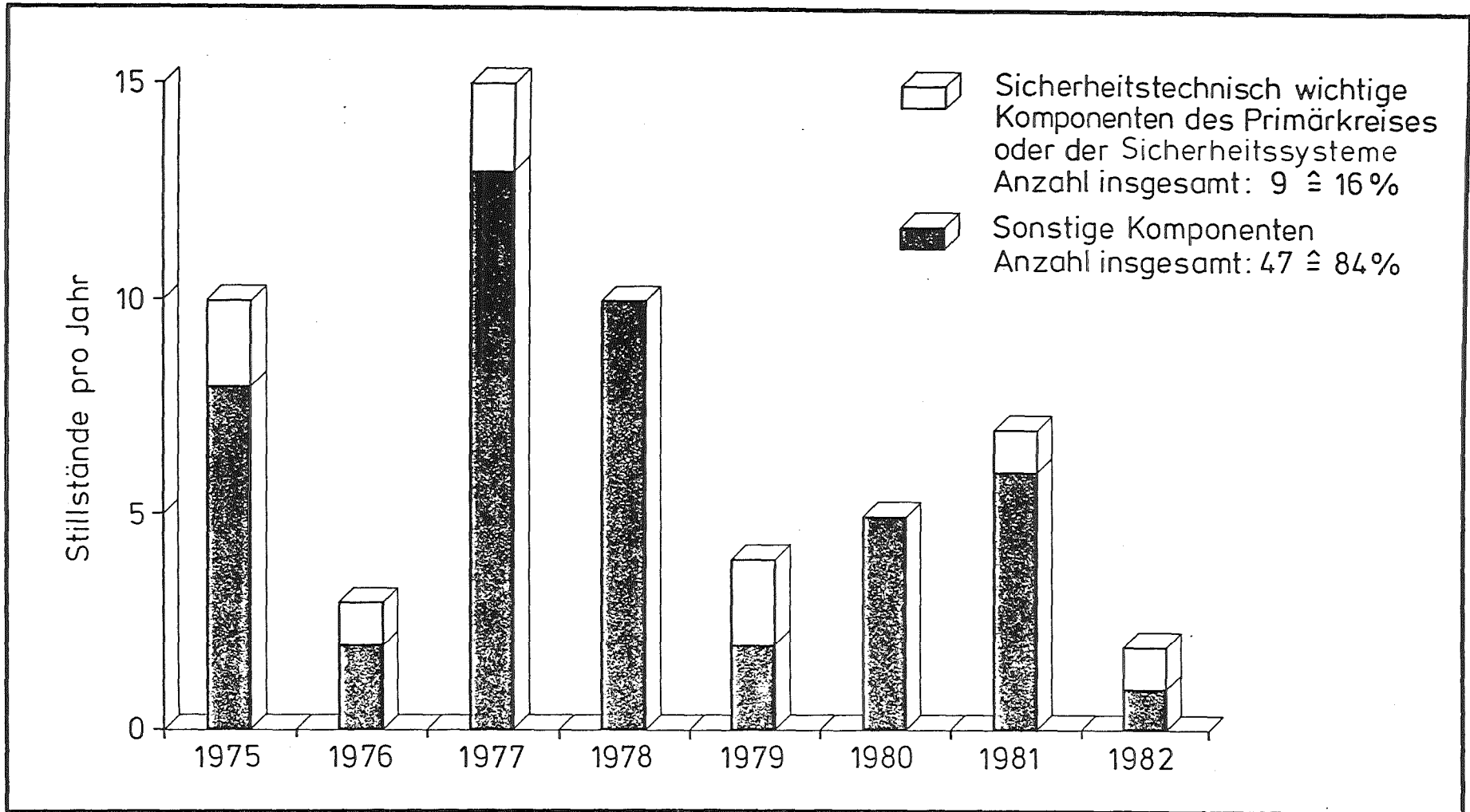
RWE  
BV-Biblis

Bild 2: Zeitverfügbarkeit, Revisions- und Stillstandsdauer der Blöcke A und B je Betriebsjahr



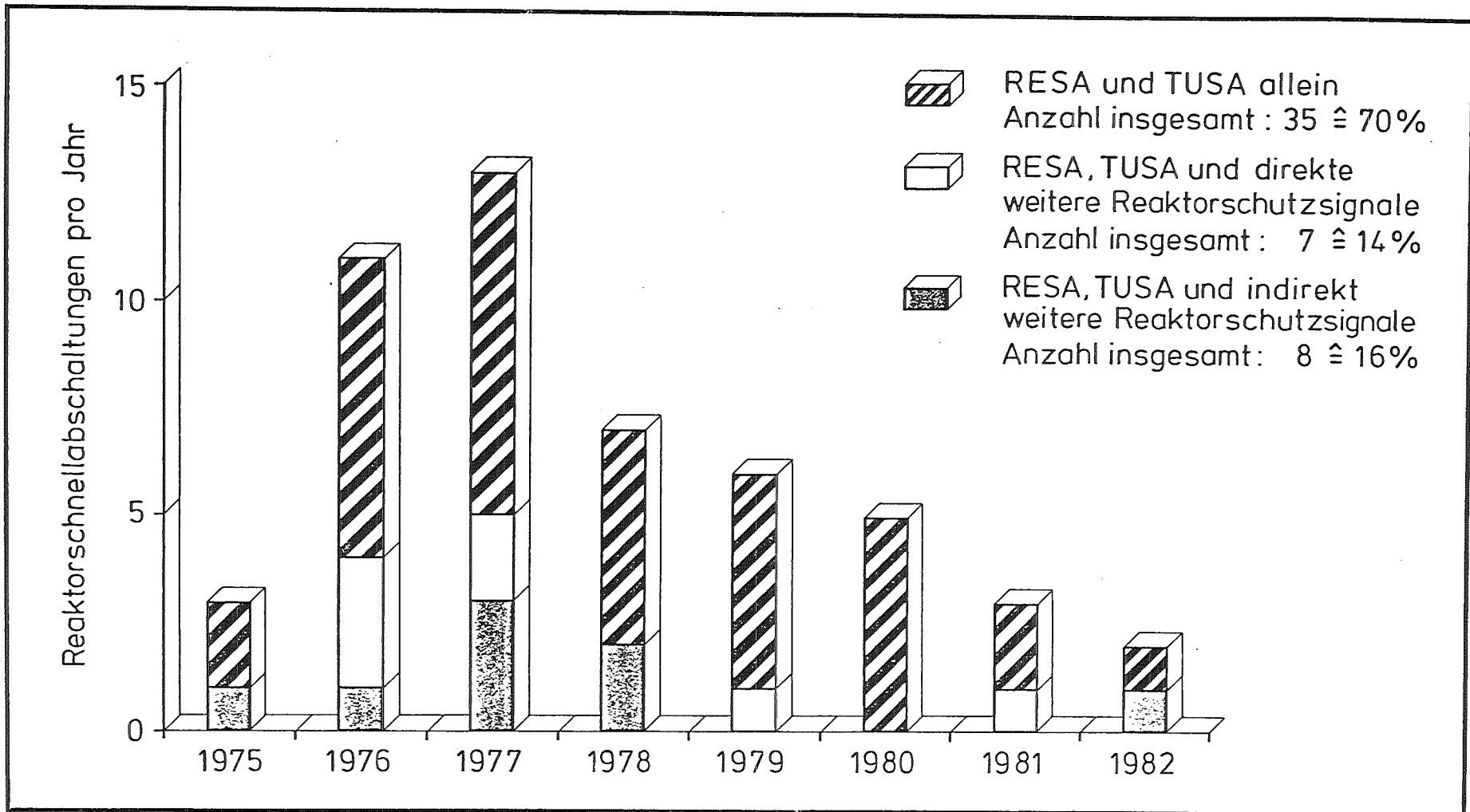
RWE  
BV-Biblis

Bild 3: Relative Häufigkeit der Erkennung technischer Fehler mit sicherheitstechnischer Bedeutung für die Anlage, Block A und B



RWE  
BV-Biblis

Bild 4: Ursachen von Stillständen  
der Blöcke A und B



RWE  
BV-Biblis

Bild 5 : Auslösung von Reaktorschutzsignalen bei ungeplanten Reaktorschnellabschaltungen im Leistungsbetrieb Block A und B



PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT  
JAHRESKOLLOQUIUM 1983

STAND DER REAKTORSICHERHEITSFORSCHUNG  
IM PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

G. BORK  
A. FIEGE  
W. GULDEN  
J.P. HOSEMANN  
H. RININSLAND

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE  
PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

## Stand der Reaktorsicherheitsforschung im Projekt

### Nukleare Sicherheit

#### Zusammenfassung

Die Untersuchungen zum Strukturverhalten konzentrieren sich mehr und mehr auf das Verhalten des Sicherheitsbehälters eines DWR durch Belastungen nach einem Kernschmelzenunfall, um die denkbaren Modi seines Versagens beschreiben zu können. Über erste experimentelle und analytische Ergebnisse wird berichtet.

Die theoretischen Arbeiten zum Thermoschockverhalten werden von Experimenten an Platten mit gezielt eingebrachten, natürlichen Anrissen begleitet, deren erste Ergebnisse zufriedenstellend mit den theoretisch ermittelten Rißfortschrittswerten übereinstimmen.

Die Untersuchungen zu schweren Kernschäden wurden mit grundlegenden Versuchen zur gleichzeitigen Innen- und Außen-Oxidation der Zircaloy-Hüllrohre bei erhöhten Temperaturen fortgesetzt.

Über den Stand der Fertigstellung der Großexperimentiereinrichtungen wird berichtet; im einzelnen sind diese

- CORA: zur Untersuchung schwerer Kernschäden an Einzelstäben und Bündeln;
- BETA: zur Untersuchung der Beton-Kernschmelze-Wechselwirkung;
- DEMONA: zur Demonstration der Aerosolphysik und Thermodynamik im Containment
- BORA: zur Prüfung von Schwebstofffiltern unter Druck-, Temperatur- und Feuchteeinfluß.

In allen vier Versuchseinrichtungen können die Experimente in 1984 begonnen werden.

Ein sog. Jodmodell, das das physikalische und chemische Verhalten von Jod und Cäsium beschreibt, wurde aufgestellt und international anerkannt.

Die radioökologischen Untersuchungen brachten erste Ergebnisse von Transferfaktoren Boden/Pflanze und zum Einfluß von Mikroorganismen im Boden.

Im Rahmen der sicherheitsanalytischen Untersuchungen zur großen WAA konnte die Modellierung des Systems Auflöserabgasstrecke weitgehend abgeschlossen werden und kann somit als Basis sowohl für Störfallbetrachtungen als auch für die Festlegung von Betriebs-, Wartungs- und Reparaturstrategien dienen.

Die internationale Zusammenarbeit wurde intensiviert und konzentriert sich im wesentlichen auf die Untersuchung hypothetischer Störfälle und eine möglichst realistische Beurteilung ihrer Folgen.

## Status of the Reactor Safety Research in the Project Nuclear Safety

### Abstract

The investigations on mechanical behavior of structures are more and more concentrated on the behavior of the containment of a PWR during and after a core meltdown accident in order to describe the probable modes of failure. First experimental and analytical results are reported.

The analytical work on thermal shock is accompanied by experiments on plates with well defined, natural cracks. First results are in good agreement with the calculated crack growth.

Basic investigations on simultaneous inner and outer oxidation of Zry-tubes at elevated temperatures were performed.

The construction of four big experimental facilities, CORA, BETA, DEMONA and BORA is nearly completed. In 1984 the experiments can be started.

A so-called "iodine model" describing the physical and chemical behavior of iodine and cesium has been developed and internationally discussed.

Radioecological investigations are focussed on the transfer of nuclides soil-plant and on the influence of microbiological systems.

In the frame of the safety analysis of a big reprocessing plant the modelling of the off-gas cleanup system is available as a basis for accident evaluation as well as for operation, maintenance and repair.

The international cooperation was intensified and concentrates mainly on investigations of hypothetical accidents and a realistic assessment of their consequences.

## 1. Einleitung

Das zurückliegende Arbeitsjahr des PNS war geprägt

- durch Konzentration der Arbeiten auf schwere hypothetische Störfälle, die einerseits zu teilzerstörten Kernen und andererseits zum unkontrollierten Kernschmelzenunfall führen
- durch den Aufbau und die Vorbereitung von einigen Großexperimenten wie CORA, BORA, BETA und DEMONA
- durch analytische und experimentelle Arbeiten als Basis für eine möglichst realistische Abschätzung des Quellterms oder Source Terms
- durch einen sehr intensiven internationalen Austausch von Erfahrungen bei den vorgenannten Aktivitäten, vor allem mit den Amerikanern mit dem Ziel, eine gemeinsame, von allen akzeptierte Basis für die Beurteilung hypothetischer Störfälle zu finden.

Der vorliegende Bericht wird sich also mit einer Auswahl von wesentlichen Ergebnissen der PNS-Forschungsarbeiten befassen, über den Stand der Großexperimentiereinrichtungen berichten und einen Überblick über die internationalen Diskussionen geben, die im vergangenen Jahr unter maßgeblicher deutscher Beteiligung erheblich zugenommen haben.

Die Struktur des vorliegenden Berichtes wird sich im wesentlichen an der Aufgabenstruktur des PNS-Programmes orientieren. Es wird aus den Arbeitsgebieten

- Beanspruchung von Reaktorkomponenten bei Störfällen,
- Brennelementverhalten bei Störfällen,
- Untersuchungen zu schweren Kernschäden,
- Kernschmelzen,
- Riskostudie Phase B,
- Rückhaltung, Verhalten und Auswirkung freigesetzter Aerosole aus kerntechnischen Anlagen

und abschließend über die internationalen Aktivitäten berichtet.

## 2. Beanspruchung von Reaktorkomponenten bei Störfällen

Unter diesem Arbeitstitel wird eine ganze Reihe von Vorhaben zusammengefaßt, die sich mit aktuellen Fragestellungen aus dem Bereich der Thermohydraulik, der Festigkeitsanalyse und des Materialverhaltens beschäftigen. Abb. 1 gibt einen Überblick über die Schwerpunkte.

### 2.1 Beanspruchung von Reaktorkomponenten im Reaktordruckbehälter

Die Untersuchungen zum Problembereich Blowdown sind im wesentlichen abgeschlossen. Es konnte der Nachweis geführt werden, daß die bei einem plötzlichen Bruch der Primärkühlmitteleitung auftretenden dynamischen Beanspruchungen der Reaktoreinbauten Abschaltbarkeit und Nachkühlbarkeit des Reaktors nicht in unzulässiger Weise beeinträchtigen / 1 /, / 2 /.

An zwei Beispielen soll diese Aussage illustriert werden. Beide Ergebnisse beziehen sich auf die Beanspruchung der Kernmantel-Einspannung eines DWR deutscher Bauart unter Blowdownbedingungen.

Das erste Beispiel quantifiziert den Einfluß einer detaillierten Modellierung der Kerneinbauten auf die Beanspruchung des Kernmantels.

Die Version 5 des Rechenprogramms FLUX / 3 /, / 4 /, das in den vergangenen Jahren am IRE entwickelt und an HDR-Experimenten verifiziert wurde, enthält Modelle für die verschiedenen Kernbehältereinbauten (Reaktorkern, Cocestützen, Kernumfassung, oberer und unterer Tragrost, Gitterplatte) einschließlich ihrer Wechselwirkung untereinander, mit dem Kernbehälter und mit dem Kühlmittel. Abb. 2 zeigt, daß die früher verwendete, wesentlich einfachere Modellierung der gesamten Kerneinbauten als Massering am unteren Ende des Kernmantels (50% der Kernmasse) konservative Beanspruchungen liefert. Auf eine detaillierte und aufwendige Modellierung der Kerneinbauten kann deshalb verzichtet werden.

Das zweite Beispiel liefert Ergebnisse einer detaillierten Festigkeitsanalyse des Übergangsbereichs zwischen Kernmantel und Flansch - der Stelle der maximalen Beanspruchung. Es zeigt, daß unter Blow-

downbeanspruchungen allenfalls lokale plastische Verformungen zu erwarten sind.

In Abb. 3 sind die plastisch verformten Bereiche an der Einspannung unter verschiedenen Belastungsannahmen skizziert. Für eine Blowdownbeanspruchung erhält man die oben rechts ( $M=105\text{MNm}$ ) ermittelten plastischen Zonen, die bei dem sehr zähen Material die Strukturintegrität keinesfalls gefährden.

Eine Zusammenfassung und abschließende Wertung der wesentlichsten Ergebnisse dieser Vorhaben enthält der Vortrag von Herrn Geiß über den "Integritätsnachweis für die Behältereinbauten eines Druckwasserreaktors beim Blowdown".

## 2.2 Das Verhalten des DWR-Sicherheitsbehälters bei Störfällen

Der Sicherheitsbehälter eines Kernkraftwerks ist für die Sicherheitsphilosophie von fundamentaler Bedeutung. Er stellt im Falle eines Störfalles die letzte Barriere für die im Reaktor freigesetzten Spaltprodukte dar.

Abb. 4 gibt einen Überblick über die PNS-Untersuchungen zum Verhalten von DWR-Sicherheitsbehältern deutscher Bauart unter statischer und dynamischer Belastung/ 5/.

Schwerpunkt der Arbeiten war bisher die Untersuchung der für einen Kernschmelzenunfall zu erwartenden Beanspruchung des Sicherheitsbehälters durch langsam ansteigenden Innendruck bis in den Bereich großer plastischer Verformungen / 6/.

Analysen mit dem hierfür entwickelten Rechenprogramm ROTMEM lieferten erste wichtige Ergebnisse zum Versagensdruck und zur Versagensart. Sie zeigten jedoch auch die Notwendigkeit, das Materialverhalten des verwendeten Werkstoffs 15 MnNi 63 im plastischen Bereich experimentell genauer zu bestimmen.

Zur Überprüfung der Werkstoffmodelle bei zweiachsiger Beanspruchung wurden Experimente durchgeführt, in denen speziell solche Spannungszustände auftreten, die für den Sicherheitsbehälter typisch sind. Es handelt sich dabei um den Spannungszustand im ungestörten Kugel-

bereich und im Schalenbereich in der Nähe einer dickeren Ronde. Solche Spannungszustände lassen sich am einfachsten nachbilden, indem eine runde, ebene Membran (Durchmesser 860 mm) am Rand fest eingespannt und dann einseitig mit Flüssigkeitsdruck beaufschlagt wird (Abb. 5). Um den Einfluß der Walzgutdicke auf die Festigkeits-eigenschaften auszuschließen, wurden die Membranen aus Blechtafeln des Sicherheitsbehälterwerkstoffes 15 MnNi63 mit der Originaldicke von 38 mm spanabhebend hergestellt. Dieser Bearbeitungsprozeß erlaubt es, zukünftig auch Membranen mit verdickten Ronden herzustellen und deren Versagensart experimentell zu bestimmen.

Während der Versuchsdurchführung wurde der Druck langsam in Stufen von rund 5 bar erhöht. Nach jedem Lastschritt wurden die Koordinaten von zahlreichen auf der Membran markierten Punkten mit einer 3D-Koordinaten-Meßmaschine vermessen.

Abb. 6 zeigt die Membran, nachdem sie bei einem Druck von 42,8 bar versagte. Die Aufwölbung der Membran betrug rund 250 mm; die größten Vergleichsdehnungen lagen bei 40%, die Wandstärke hatte von 2 mm auf 1,2 mm abgenommen.

Abb. 7 enthält einen Überblick über alle bei PNS zum Versagen des Sicherheitsbehälters unter quasi-statischem Innendruck durchgeführten Untersuchungen. Diese Arbeiten werden in Abstimmung mit KWU durchgeführt. Zum Sandia-Lab, das im Auftrag der NRC das Containment Integrity Program durchführt, bestehen enge Kontakte.

Als Beispiel für den Einsatz des Rechenprogramms ROTMEM wird der Sicherheitsbehälter an der Stelle einer Durchführung für die Speisewasserleitung betrachtet (Abb. 8). Die elastischen Eigenschaften der Ronde mit Stutzen wurden einer linearen Finite-Element-Rechnung entnommen und als Randbedingung in ROTMEM benutzt. Stutzen und Ronde sind konstruktiv so auf den Sicherheitsbehälter abgestimmt, daß es bei linear-elastischem Materialverhalten nicht zu einer Überhöhung des Beanspruchungsniveaus im Schalenbereich vor der Ronde kommt. Diese Eigenschaft blieb bis zu einem Überdruck von 11 bar erhalten, wo bereits kleine plastische Verformungen auftraten. Die Membrandehnungen lagen bei 0,2%, die Aufweitungen des Sicherheits-



behälters bei 40 mm. Bei 11,4 bar jedoch hatte sich der Beanspruchungszustand deutlich verändert. In einem schmalen Ringbereich um die Ronde ist es zu starken Dehnungsüberhöhungen gekommen. Die Dehnungen unmittelbar vor der Ronde erreichten Werte von 2,4%, die Dehnungen im übrigen Schalenbereich Werte von 1,4%. Die Aufweitung des Sicherheitsbehälters betrug jetzt rund 200 mm.

Außerdem wurde festgehalten, wie sich die Wandstärke der Schale am Übergang zur Ronde mit wachsendem Innendruck verringerte (Abb. 9 ausgezogene Linie). Bei einem Überdruck von 14.3 bar trat plastische Instabilität auf. Die Vergleichsdehnungen im ungestörten Schalenbereich betragen bei diesem Druck etwa 5 - 6% (Umfangs- und Meridiandehnungen je rund 2.5 - 3%). Die starke Abnahme der Wandstärke ist auf einen sehr schmalen Ringbereich um die Ronde konzentriert, so daß man von einer Einschnürung sprechen kann. Die gestrichelte Linie in Abb. 9 zeigt im Vergleich dazu die Wandstärke eines Punktes, der sich 250 mm vor der Ronde befindet.

Die hier berechneten Daten, insbesondere der berechnete Versagensdruck, müssen wegen der oben erwähnten Unzulänglichkeiten beim Werkstoffmodell sicher noch korrigiert werden. Gewisse Aussagen zur Versagensart des Sicherheitsbehälters können dagegen jetzt schon gemacht werden: wenn der Druck im Sicherheitsbehälter immer weiter ansteigt, ist ein Versagen durch plastische Instabilität in einem schmalen Ringbereich um eine Ronde zu erwarten. Das heißt, die Ronde wird aus dem Sicherheitsbehälter herausgetrennt werden. Die Spannungen um das entstandene Loch im Sicherheitsbehälter werden dann aber so stark anwachsen, daß eine großräumige Ausbreitung plastisch instabiler Zonen mit nachfolgenden Brüchen zu erwarten ist.

Diese unerwünschte Versagensart des Sicherheitsbehälters kann nur dann ausgeschlossen werden, wenn weitere Schwachstellen identifiziert werden können, die bei niedrigeren Drücken als den oben berechneten zu Leckagen oder Versagen führen. Einige dieser möglichen Schwachstellen, wie z.B. die Befestigung der Materialschleuse am Sicherheitsbehälter, werden zur Zeit genauer untersucht.

### 2.3 Thermoermüdung und Thermoschockverhalten von Reaktorkomponenten

Dieser Problembereich der Reaktorsicherheitsforschung gewann in den vergangenen Jahren immer mehr an Bedeutung, sowohl bei Betriebs transienten als auch unter Störfallbedingungen. Bereits bei der Auslegung von Reaktorkomponenten muß von der Existenz von Rissen ausgegangen werden, die während der Fertigung oder während des Betriebs entstehen können. Eine optimale Dimensionierung erfordert eine genaue Kenntnis der Gesetzmäßigkeiten der stabilen und instabilen Rißausbreitung, die durch die Betriebslastwechsel oder bei postulierten Störfällen auftreten. Durch Temperaturtransienten hervorgerufene Thermospannungen sind wegen der starken örtlichen und zeitlichen Gradienten besonders schwer in ihrer Wirkung zu beurteilen.

Zur Untersuchung dieser Problematik wurde im Jahr 1983 ein neues PNS-Vorhaben "Thermoermüdung und Thermoschockverhalten von Reaktorkomponenten" gestartet. Dieses Vorhaben wird von der am IRB angegliederten Arbeitsgruppe "Zuverlässigkeit und Schadenskunde im Maschinenbau" (ZSM) bearbeitet. Es hat zum Ziel, die Ausbreitung von Rissen bei mehrmaliger zyklischer Thermoschockbelastung und bei einmaligem starkem Thermoschock zu messen und mit bruchmechanischen Methoden zu beschreiben.

Das Vorhaben gliedert sich in einen theoretischen und in einen experimentellen Teil. Im theoretischen Teil werden örtliche und zeitliche Temperatur- und Spannungsverteilungen berechnet. Für die thermozyklische Beanspruchung müssen aus den Spannungsverteilungen Spannungsintensitätsfaktoren für Oberflächenrisse berechnet werden. Dazu wurden neue Berechnungsverfahren für Oberflächenrisse entwickelt / 7/. Für die starke Thermoschockbeanspruchung ist die Entwicklung von Kriterien für instabile Rißausbreitung im elasto-plastischen Bereich notwendig.

Im experimentellen Bereich werden an einer Platte mit Oberflächenriß die Rißausbreitung bei thermozyklischer Ermüdung gemessen und die instabile Rißausbreitung bei überlagerter mechanischer und thermischer Belastung untersucht. Bei der zu diesem Zweck konzipierten und in einer ersten Ausbaustufe bereits einsatzfähigen Thermoschock-Prüfanlage THESPA wurde großer Wert auf eindeutige thermische Randbedingungen gelegt, um die zeitliche und örtliche

Temperatur- und Spannungsverteilung möglichst genau erfassen zu können.

Die an THESPA-Experimenten verifizierten Berechnungsverfahren für die instabile Riausbreitung sollen spter fr die Analyse groer Integralexperimente wie z.B. den Thermoschock-Versuchen in der Phase II des HDR-Projekts eingesetzt werden. Der aktuelle Stand dieses Vorhabens sowie die ersten Ergebnisse werden von Herrn Stamm in seinem Vortrag "Auswirkung von zyklischer Thermoschock-Belastung auf das Riausbreitungsverhalten" vorgestellt.

#### 2.4 Thermo- und fluiddynamische Analysen

Die Entstehung und das Wachstum von Rissen unter Thermoschockbedingungen werden entscheidend von den thermohydraulischen Randbedingungen in den betrachteten Komponenten beeinflusst. Zur Ermittlung dieser dreidimensionalen Strmungszustnde wird zur Zeit das am ANL entwickelte Rechenprogramm COMMIX bernommen, erweitert und eingesetzt.

### 3. Strfalltrainer

Mit Beginn des Jahres 1983 wurde der in den vergangenen Jahren am IRE entwickelte Reaktor-Strfalltrainer als Vorhaben ins PNS bernommen / 8 /.

Grundlage fr die Entwicklung dieses Strfalltrainers (oder auch Strfall-Prsentators) ist eine Studie / 9 /, in der ein Trainingskonzept fr das kenntnisbedingte Handeln bei Strfllen in Kernkraftwerken vorgeschlagen wird. Dieses Training richtet sich an das verantwortliche technische Fhrungspersonal, dessen Diagnose- und Prognosefhigkeit geschult werden soll. Das Trainingskonzept wird in Abb.10 verdeutlicht. Ein Ausbildungsteam A bereitet mit Hilfe von Rechenprogrammen und anderen Hilfsmitteln einen Strfall vor und zeigt ihn mit einem Prsentator, dem sog. Strfalltrainer, dem Schlerteam B. Im Verlauf dieser dynamischen Prsentation des Strfalls diskutieren die beiden Teams miteinander, um so zu erreichen, da das Wissen des Teams A mglichst effektiv auf das Team B bertragen wird, bzw. neue Erkenntnisse gemeinsam erarbeitet werden.

Zur Schulung der Diagnose- und Prognosefähigkeiten sind vor allem außergewöhnliche Störfallsituationen geeignet, für die ein Simulator oft nur unter größtem Aufwand eingerichtet werden kann.

Während der Simulator auf Grund relativ weniger vom Schüler zum Teil veränderbarer Prozeßparameter in Realzeit einen großen Datenstrom (alle Meßwerte und Meldungen) produzieren muß, wird dieser Datenstrom beim Störfalltrainer nur problemgerecht präsentiert. Der Schüler ist lediglich in der Lage, die für seine Diagnose wichtigen Informationen anzuwählen. Darüberhinaus ist es aber auch möglich, aus didaktischen Gründen den Ablauf beliebig zu unterbrechen, zu beschleunigen oder zu verzögern und zeitliche Sprünge durchzuführen. Durch die genannten Unterschiede der beiden Lehrmittel ergibt sich für den Störfalltrainer ein wesentlich geringerer Hardware-, Wartungs- und Bedienungsaufwand, so daß er als Bürogerät am oder in der Nähe des Arbeitsplatzes betrieben werden kann.

Der Grundaufbau des Störfalltrainers geht aus Abb.11 hervor. Ausgehend von den störfallspezifischen Daten stellt der Störfalltrainer mit Hilfe eines kraftwerkspezifischen Datenbestandes und eines intern geführten Zustandsvektors sämtliche Warteninformationen bereit. Dabei kann der Störfall in Realzeit, beschleunigt oder verzögert ablaufen. Unterbrechungen und zeitliche Sprünge sind jederzeit möglich.

Der Umfang der Informationen entspricht dem in der Warte; die Beschreibung der Meßwerte und Meldungen werden direkt aus den Kraftwerksdateien übernommen.

Diese in den Dateien gespeicherten Informationen befähigen das System, einen Störfall wartenähnlich darzustellen, wobei die Warte durch fünf Bildschirmstationen und zwei Drucker repräsentiert wird. Durch diese "Fenster" kann der Anwender den "Blick" mit Hilfe spezieller Anweisungen auf beliebige Informationen der Warte richten.

Der Störfalltrainer ist so ausgelegt, daß er in jedem Kernkraftwerk stehen kann; das gilt sowohl für seine Hardware, d.h. Baugröße, Rechner- und Kosten usw. (Bürocomputer, ca. 100 TDM), als auch seine Software zum Einspielen und Archivieren von Störfällen und für ihre Modifikation.

Die in den Störfalltrainer einzubringenden Störfälle sind überwiegend solche, die bereits in der betrachteten Anlage auftraten. Die Übertragung von Störfällen aus anderen Anlagen stellt eine zweite wesentliche Quelle für den Aufbau des Störfallarchivs dar. Eine dritte Möglichkeit, an der zur Zeit gearbeitet wird, stellt die Übernahme hypothetischer Störfälle in die Störfalldatei dar, die aus Computeranalysen stammen. Geeignet für solche Störfallrechnungen sind Programme wie z.B. RELAP, TRAC, ALMOD oder DRUFAN.

#### Aktueller Stand

Ein Prototyp des Störfalltrainers, der sich an zwei verschiedenen Kernkraftwerken orientiert, ist entwickelt und steht zur Erprobung zur Verfügung. Eine Weiterentwicklung dieses Konzepts zum Training des kenntnisbedingten Handelns wird nur dann erfolgen, wenn sich der Trainer im Einsatz bewährt und wenn er die Akzeptanz der Zielgruppen, dem verantwortlichen Führungspersonal, findet.

### 4. Brennelementverhalten bei Störfällen

#### 4.1 Untersuchungen zum Kühlmittelverluststörfall - REBEKA-6

In Erweiterung des ursprünglich definierten Versuchsprogramms wurde ein zusätzlicher REBEKA-Versuch mit einem 7x7-Bündel zum Einfluß der Durchströmungsrichtung auf die Zircaloyhüllrohrverformung und die resultierende Kühlkanalblockade durchgeführt.

Bei allen bisherigen Bündelexperimenten wurde die Teststrecke entsprechend den Auslegungsrechnungen für einen deutschen Druckwasserreaktor mit Heißeinspeisung in der sog. Wiederauffüllphase mit einer von oben nach unten gerichteten Dampfströmung beaufschlagt, die in der anschließenden Flutphase durch eine von unten nach oben gerichtete Zweiphasenströmung abgelöst wurde/ 10 /, (vergl. Abb. 12). Diese Strömungsumkehr während der plastischen Verformung der Hüllrohre verursacht eine axiale Verteilung der Berststellen um die axiale Mittelebene des Bündels und relativ kleine Kühlkanalversperrungen von etwa 50% (vergl. Abb.13, linke Seite).

Der Versuch REBEKA-6 wurde ohne Strömungsumkehr gefahren; d.h. sowohl die Dampfkühlung während der Wiederauffüllphase als auch die Zweiphasenkühlung in der Flutphase erfolgten von unten nach oben, wie dies generell für Druckwasserreaktoren ohne Heißeinspeisung, nach vorläufigen TRAC-Rechnungen, aber auch für einige Kernbereiche in Reaktoren mit Heißeinspeisung zu erwarten ist. Diese Versuchsführung bewirkte erwartungsgemäß eine erhöhte Koplanarität der Berststellen und eine höhere Kühlkanalversperrung von etwa 60% (Abb.13, rechte Seite).

Aus meßtechnischen Gründen war das Testbündel mit zahlreichen Thermoelementen ausgerüstet, außerdem waren drei der 49 Stäbe im Bündel ohne Innendruck gefahren worden. Aus diesen Gründen wurde die maximale Kühlkanalversperrung vermutlich unterschätzt. Im ungestörten und voll verformungsfähigen Bündel hätte die maximale Kühlkanalversperrung wahrscheinlich bei etwa 70 - 80% gelegen, also in der gleichen Größenordnung, wie dies auch bei den Inpile Tests im NRU-Reaktor festgestellt wurde.

Aus unserem FEBA-Programm wissen wir, daß Kühlkanalversperrungen dieser Größenordnung kühlbar sind.

Wegen seiner relativ einfachen und überschaubaren Kühlbedingungen diente der Versuch REBEKA-6 als Grundlage für das deutsche Standardproblem No. 7 und im Rahmen der OECD-geförderten Standardproblemaktivität gleichzeitig als internationales Standardproblem No. 14.

Zum deutschen Standardproblem wurden mit Kenntnis der fluiddynamischen Randbedingungen Vorausberechnungen zum thermischen und mechanischen Verhalten des Brennstabbündels durchgeführt und termingerecht vor Aufhebung des Datenverschlusses eingereicht. An dieser Aktivität waren sieben Institutionen, darunter vier ausländische beteiligt.

Die Erstellung des Vergleichsberichtes und die Bewertung des Vergleichs wird z.Zt. von Herrn Prof. Karwat/TU-München im Auftrag und in Zusammenarbeit mit GRS-Köln durchgeführt.

#### 4.2 Brennstabsimulatoreffekte bei Flutexperimenten SEFLEX

Für thermohydraulische Experimente zur Untersuchung des Wärmeüberganges im Kern während der Flutphase von Kühlmittelverluststörfällen werden weltweit gehämmerte, elektrisch beheizte Brennstäbe mit Stahlhülle und ohne Spalt zwischen Hülle und Isolator eingesetzt.

Vergleichende Untersuchungen im Rahmen des Haldenprogramms (Abb.14), aber auch theoretische Überlegungen, haben gezeigt, daß beim Fluten von nuklear beheizten Brennstäben die Maximaltemperatur der Hüllrohre (um 0-150K) niedriger und die Benetzungszeiten (um den Faktor 1,5-5) kürzer sein können als bei Heizstäben, wie sie für die Flecht-, 2D/3D, PKL- oder FEBA-Versuche verwendet werden. Nachrechnungen von LOFT-Versuchen zeigen denselben Trend. Der Grund für diese Abweichungen liegt in den unterschiedlichen Materialdaten von Heiz- und Nuklearstäben, insbesondere aber am Fehlen des Spaltes zwischen Hüllrohr und Wärmequelle bei den Heizstäben.

Ziel des neuen Vorhabens SEFLEX ist es daher, den Einfluß des radialen Wärmewiderstandes verschiedener elektrisch beheizter Heizstäbe und Brennstabsimulatoren im Vergleich zu nuklear beheizten Brennstäben auf den Wärmeübergang an der Staboberfläche und das axiale Fortschreiten der Benetzungsfront während der Flutphase von Kühlmittelverluststörfällen zu untersuchen und die Qualität der bisherigen Wärmeübergangsmodelle zu beurteilen.

Nachdem die gute Simulationsqualität der REBEKA-Brennstabsimulatoren mit Zircaloy-Hülle und Spalt im Rahmen des Halden-Programms nachgewiesen wurde (vergl. Abb.15), soll dieses Ziel durch einen experimentellen Vergleich zwischen REBEKA-Brennstabsimulatoren und FEBA-Heizstäben in der FEBA-Teststrecke erarbeitet werden.

Das Vorhaben SEFLEX soll in 1984 abgeschlossen werden.

## 5. Untersuchungen zu schweren Kernschäden

### 5.1 Oxidationsverhalten von Zircaloy-Hüllrohren und Stahl

Nach Abschluß der isothermen Hochtemperaturoxidationsversuche an Zircaloy-4-Hüllrohrabschnitten in Wasserdampf bei 600 - 1600°C und Versuchszeiten bis zu 25 Stunden /11/, wurden temperaturtransiente Oxidationsversuche im breakaway-relevanten Temperatur- und Zeitbereich durchgeführt.

Die Transientenversuche bestanden aus linearen Temperaturrampen von + 0,1 bzw. - 0,1 K/s nach isothermer Voroxidation bis in den Grenzbereich des Breakaway. Auch im transienten Fall wurde nachgewiesen, daß die Ribbildung in der  $ZrO_2$ -Schicht bei einer kritischen Schichtdicke einsetzt, wodurch die Oxidation beschleunigt wird. Andererseits kommt die Ribbildung dann zum Stillstand, wenn das kritische Schichtdicke/Temperatur-Gebiet verlassen wird. Damit können die isothermen Ergebnisse auf den transienten Fall übertragen werden. Das Auftreten des Breakaway-Effektes ist auch hier auf den Fall einer starken Oxidation bei Temperaturen von  $\leq 1050^\circ C$  begrenzt.

Nach Abschluß dieser Oxidationsversuche mit Dampfüberschuß wurden Parameterstudien zum Einfluß verminderten Dampfangebots und von Wasserstoffanteilen im Dampf auf die Oxidationskinetik von Zircaloy-4 begonnen. Diese Versuche werden in Atmosphären aus Dampf, Wasserstoff und Argon durchgeführt. Das Argon soll dabei als Trägergas zum gleichmäßigen Wasserstoffdurchsatz beitragen und die mit dem Wasserstoff verbundenen Sicherheitsrisiken vermindern.



Erste Versuchsergebnisse bei 800 bzw. 1000°C liegen vor. Die Experimente werden z.Zt. auf höhere Temperaturen ausgedehnt.

Zusätzlich zu den Zircaloy-Oxidationsexperimenten wurden im Rahmen der FDWR-Aktivitäten des PNS Experimente an ferritischem Stahl (1.4914) und austenitischem Stahl (1.4970) durchgeführt /12/.

In der Arrhenius-Auftragung der parabolischen Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten  $K_p$  gegen die reziproke absolute Temperatur (Abb.16) wird deutlich, daß der ferritische Stahl 1.4914 im gesamten Temperaturbereich stärker oxidiert als Zircaloy-4. Auch die Oxidation des austenitischen Stahls 1.4970 erfolgt oberhalb von 1200°C etwa genauso schnell wie die des Zircaloy.

## 5.2 Wechselwirkung zwischen Zircaloy-Hüllrohren und $UO_2$ -Brennstoff

Nach dem Abschluß und der Dokumentation der  $UO_2$ /Zircaloy-Reaktionsexperimente mit kurzen LWR-Brennstababschnitten unter inerten Versuchsbedingungen /13/, /14/, /15/, über die beim letzten Jahreskolloquium ausführlich berichtet wurden, wurden erste isotherme Experimente unter oxidierenden Versuchsbedingungen durchgeführt. Als Oxidationsmedium diente eine (Ar +25 Vol.%  $O_2$ )-Mischung, der Druck betrug 40 bar. Die Glühtemperaturen variierten zwischen 1000 und 1500°C, die Glühzeiten zwischen 3 und 150 min. Durch Sauerstoffaufnahme der Zircaloy-Hülle von innen infolge Reaktion mit dem  $UO_2$  und von außen infolge Reaktionen mit dem gasförmigen Sauerstoff entstehen sauerstoffstabilisierte  $\alpha$ -Zr(O)-Phasen, die etwa gleich schnell in das Hüllrohr wachsen. Auf der Hüllrohraußenoberfläche bildet sich außerdem, aufgrund des größeren Sauerstoffpotentials des Gasgemisches gegenüber dem  $UO_2$ , eine  $ZrO_2$ -Schicht. Die verschiedenen Reaktionszonen sind in Abb. 17 schematisch dargestellt. Die Ergebnisse von Reaktionsglühungen bei 1100°C sind in Abb. 18 wiedergegeben. Es sind die Dicken von verschiedenen Reaktionszonen in Abhängigkeit von  $t$  aufgetragen. Man erkennt das Schichtdickenwachstum in Abhängigkeit von der Zeit, außerdem ist eine Durchmesserzunahme infolge Volumenzunahme von  $ZrO_2$  festzustellen. Nach ca. 60 min ist der Anteil des Hüllrohres, der nicht

durch Sauerstoffaufnahme chemisch beeinflusst wurde (prior  $\beta$ -Zry) und daher nahezu unveränderte mechanische Eigenschaften besitzt, vollständig in  $\alpha$ -Zr(O) umgewandelt. Nach dieser Zeit besitzt das oxidierte Hüllrohr praktisch keine mechanische Stabilität mehr, das Zircaloy ist versprödet. Bereits geringe Kräfte während der Abkühlung oder bei der nachfolgenden Handhabung führen zum Auseinanderbrechen der Brennstababschnitte.

Infolge der kombinierten Außen- und Innenoxidation der Zry-Hülle wird die Zeit bis zu einer vollständigen Versprödung um etwa den Faktor 4 gegenüber der einseitigen Oxidation reduziert. Bei  $1400^{\circ}\text{C}$  beträgt sie z.B. nur einige Minuten, bei  $1000^{\circ}\text{C}$  ist die Hülle selbst nach der max. Versuchszeit von 150 min noch nicht vollständig oxidiert.

Bei Temperaturen oberhalb  $1400^{\circ}\text{C}$  kommt es infolge der starken exothermen Reaktion an der Außenseite der Hülle zu einer unkontrollierten Temperaturerhöhung mit Temperaturen bis zu  $2000^{\circ}\text{C}$ . Das metallische Zry und  $\alpha$ -Zr(O) schmelzen und lösen dabei  $\text{UO}_2$  in stärkerem Maße auf. Da die äußere  $\text{ZrO}_2$ -Schicht mechanisch erhalten bleibt, wird ein Weglaufen der entstehenden Schmelzen verhindert. Die unkontrollierten Temperaturerhöhungen sollen in weiterführenden Experimenten durch Voroxidation der Zircaloy-Hülle reduziert werden.

### 5.3 Einzelstab- und Bündelexperimente zur Untersuchung schwerer Kernschäden (CORA-Programm)

Ziel des CORA-Programms ist die Untersuchung von Brennstäben und Brennstabbündeln bei Hochtemperaturtransienten, die die derzeitigen Auslegungsgrenzen von  $1200^{\circ}\text{C}$  überschreiten, aber vor dem Übergang zum unkontrollierten Kernschmelzen abgefangen werden können. Dieses Programm wurde in meinem letzten Statusbericht ausführlich beschrieben.

Die bisher durchgeführten Arbeiten konzentrierten sich auf die Fertigung und Montage der Versuchsanlage sowie auf Einzeleffektuntersuchungen zur Temperatureskalation, die in der alten NIELS-

Anlage durchgeführt wurden.

Abb.19 zeigt im linken Teil die im wesentlichen bereits fertiggestellten Komponenten der Versuchsanlage CORA. Der rechte Teil der Abbildung vermittelt einen Eindruck von den Abmessungen des Containments, in dem diese Komponenten untergebracht werden.

Es wird erwartet, daß der Versuchsbetrieb in dieser Anlage Ende 1984 aufgenommen werden kann.

Über die Ergebnisse der bisher in der Anlage NIELS durchgeführten Einzeleffektuntersuchungen zur Temperaturskalation bei Hochtemperaturtransienten wird Herr Dr. Hagen im Rahmen dieses Kolloquiums ausführlich berichten (vergl. auch /16/, /17/, /18/).

#### 5.4 Code-Entwicklung zum Brennstabverhalten bei hohen Temperaturen

Zur Analyse des Verhaltens von Brennstäben und Brennstabsimulatoren unter Störfallbedingungen wurde in den vergangenen Jahren das Programmsystem SSYST entwickelt /19/. Die begleitende Berechnung der in NIELS und CORA durchgeführten bzw. geplanten Experimente erfordert eine detailliertere Modellierung der

- . Oxidationskinetik bei hohen Temperaturen, der
- . Wechselwirkung zwischen  $UO_2$  und Zircaloy und der
- . Wechselwirkung zwischen Hüllrohroberfläche und dem im umgebenden Kühlkanal strömenden Dampf.

Mit der Erstellung dieser Programm-Moduln wurde begonnen. Da SSYST als geometrische Modellvorstellung auf einen Einzelstab einschließlich seiner Kühlkanal-Umgebung begrenzt ist, wurde zusätzlich das in USA erstellte Rechenprogramm SCDAP /20/ übernommen, das die Analyse des Bündelverhaltens bis hin zur Bildung von Schüttbetten ermöglicht.

### 5.5 Langzeitkühlung im stark beschädigten Core (COLD-Programm)

Ziel der im Rahmen des COLD-Programms durchgeführten Dryout-Experimente mit induktiv beheizten Schüttbetten ist es, die Grenzwerte der Wärmeabfuhr aus Schüttbetten mit inneren Wärmequellen zu ermitteln, die beteiligten Mechanismen zu verstehen und die vorhandenen Modelle zu verifizieren und, soweit nötig, zu verbessern.

Nachdem im Vorjahr in Dryout-Experimenten experimentell nachgewiesen war, daß zwischen einer kritischen Erhöhung der der Schüttung zugeführten Leistung und dem Auftreten der ersten trockenen Stelle im Bett eine stetige Änderung des Flüssigkeitsinhaltes der Schüttung stattfindet, die nennenswerte Zeiten dauern kann (Sättigungs-transienten /21/), wurde auf den Ansätzen eines stationären Dryout-Modells von Lipinski basierend ein Rechenmodell entwickelt, das es erlaubt, die Sättigungstransiente als eine Folge von quasistationären Zuständen zu berechnen /22/.

Das gewählte Verfahren hat gegenüber den an anderer Stelle entwickelten Volltransientmodellen den Vorteil, daß es mit geringem Rechenaufwand alle Bereiche der Transienten bis zum Dryout zu berechnen erlaubt, ohne zur Vereinfachung auf bestimmte Glieder aus dem zugrundeliegenden Modellansatz verzichten zu müssen.

In Abb.20 ist die Lage des Flüssigkeitsspiegels in einem Dryout-experiment als Funktion der Zeit aufgetragen. Die Kreuze geben die Meßdaten wieder. Die Lage der Dryoutzone ist schraffiert gekennzeichnet. Die durchgezogenen Linien sind die Ergebnisse der Modellrechnung für verschiedene Exponenten der relativen Permeabilität der Schüttung im turbulenten Bereich. Es zeigt sich, daß die Genauigkeit des mit quasi-stationären Stufen rechnenden Näherungsverfahrens sehr gut ist, wenn die bisher angenommene kubische Abhängigkeit der relativen Permeabilität von der Sättigung durch einen Exponenten von etwa 4-5 ersetzt wird. In diesem Fall werden sowohl die Geschwindigkeit des sich nach unten bewegenden Wasserspiegels (Neigung der Kurve) als auch der Ort des ersten Austrocknens der Schüttung (Endpunkt der Kurve) gut wiedergegeben.

Die jetzt laufenden Arbeiten konzentrieren sich auf den Aufbau einer Versuchsanordnung für höhere Schüttbetten (bis 1m) mit variablem Kühlmittelzufluß von unten und auf die Entwicklung einer geeigneten Methode für die Messung des Flüssigkeitsgehaltes in einer Schüttung (Sättigungsmessung).

Weitere Informationen zum SFD Programm des KfK in /23/ und /24/.

## 6. Kernschmelzen und Risikostudie Phase B

### 6.1 PNS-Arbeiten zur Risikostudie Phase B

Sämtliche Arbeiten zur Phase B der Risikostudie werden von der Gesellschaft für Reaktorsicherheit im Auftrage des BMFT und im Sinne eines Projektes koordiniert und betreut. In diesem Rahmen wurde dem PNS die fachliche Verantwortung für ein Arbeitspaket übertragen, das von der Untersuchung der physikalischen und chemischen Vorgänge beim unkontrollierten Kernschmelzenunfall bis hin zur Bestimmung der Unfallfolgen und Notfallschutzmaßnahmen reicht. Hierzu gehören im wesentlichen

- die Beton-Schmelze-Wechselwirkung,
- das Verhalten der Aerosolpartikeln im Containment und angrenzenden Räumen wie z.B. Ringraum, Hilfsanlagegebäude
- die Chemie der wichtigsten Spaltproduktelemente wie z.B. Jod und Cäsium während des gesamten Unfallablaufs,
- die Belastung und Versagensart des Containments sowohl
  - . bei langfristigem Überdruck als auch
  - . bei möglicher dynamischer Belastung,
- das Verhalten von Lüftungsanlagen und das Rückhaltevermögen von Filtern,
- Bestimmung realistischer Quellterme (Source Terms) auf der Basis der vorgenannten Untersuchungen,
- Auswahl geeigneter Ausbreitungsmodelle,
- Berechnung der Unfallfolgen,
- Überlegungen zu sinnvollen Notfallschutzmaßnahmen.

Das PNS hat sich letztlich dieser sehr schwierigen und anspruchsvollen Aufgabe gestellt, weil die wesentlichen analytischen und experimentellen Aufgaben seit Jahren in Karlsruhe bearbeitet und im Laufe der nächsten zwei bis drei Jahre zum Abschluß gebracht werden.

## 6.2 BETA-Programm

Zwei Schlüsselexperimente sind das BETA- und DEMONA-Versuchsprogramm. Das BETA-Programm, das beim Jahreskolloquium 1982 /25/ ausführlich vorgestellt wurde, befaßt sich mit Wechselwirkungsprozessen zwischen einer heißen Kernschmelze und dem Betonfundament, um die Erzeugung von kondensierbaren und nichtkondensierbaren Gasen sowie von Aerosolen und festen und flüssigen Phasen zu ermitteln. Abb.21 zeigt die Ausgangssituation der Kernschmelze-Beton-Wechselwirkung für den 1300 MWe-Reaktor, nachdem die Schmelze den Reaktordruckbehälter verlassen hat und in die Reaktorgrube gelangt ist. 160 t oxidische und 70 t metallische Schmelze treten maximal mit dem Beton in Wechselwirkung. Die dabei auftretenden physikalischen und chemischen Effekte können mit dem WECHSL-Code berechnet werden. Der Nachweis soll mit dem BETA-Programm erbracht werden. Diese Ergebnisse werden somit die Bestimmung der treibenden Kräfte zu jedem Zeitpunkt ermöglichen, die den Sicherheitsbehälter mechanisch belasten und versagen lassen, und bei Versagen des Sicherheitsbehälters die luftgetragene Aktivität aus dem Sicherheitsbehälter austragen.

Abb.22 zeigt die Versuchsanlage BETA, deren Fertigstellung kurz bevorsteht. Tests einzelner Anlagenteile wurden und werden bereits durchgeführt. Mit den eigentlichen Abnahme- und Inbetriebnahmeversuchen soll im Januar 1984 begonnen werden. Mit dem Start des eigentlichen Versuchsprogramms wird im März/April 1984 gerechnet.

Am geplanten Versuchsprogramm - wie beim PNS-Jahreskolloquium 1982 vorgetragen - hat sich nichts geändert. Fünf Experimente werden bei verschiedenen Temperaturen in der Hochtemperaturphase durchgeführt, die durch eine vollkommen flüssige Schmelze charakterisiert ist. Die Versuche in der Niedrigtemperaturphase sind auf das Verhalten von erstarrender Schmelze in Beton und das Langzeitverhalten eines solchen Systems unter Berücksichtigung des veränderten Wärmeübergangs bei Krustenbildung ausgerichtet.

Diese Experimente sollen in 1985 abgeschlossen werden.

### 6.3 DEMONA-Programm

Das DEMONA-Programm /26/ ist ein Experimentalprogramm, mit dessen Hilfe demonstriert werden soll, daß die Aerosolablagerungen über der Zeit mit dem verifizierten Code NAUA richtig berechnet werden können. Mit Abb. 23 soll in Erinnerung gerufen werden, daß aufgrund der SASCHA-Experimente, über die im Vortrag von H. Albrecht /27/ ausführlich berichtet wird, ca. 3,5 t Aerosolpartikeln in das Containment freigesetzt werden, von denen nur 2,6% radioaktiv sind.

Dieses Aerosolsystem unterliegt wesentlichen Abscheidemechanismen wie z.B. Koagulation, Kondensation, Diffusion, Diffusiophorese, Thermophorese und schließlich vor allem der Sedimentation. Diese Vorgänge sind in NAUA/28/modelliert. Die NAUA-Rechnungen ergeben dann den in Abb. 24 gezeigten Abbau des Aerosols, wonach sich in etwa fünf Tagen, bis zum Zeitpunkt des Überdruckversagens des Sicherheitsbehälters, der luftgetragene Massenanteil um sechs Zehnerpotenzen verringert hat, d.h. von den 3,5 t verbleiben nach fünf Tagen noch etwa 3 g luftgetragen. Da diese drastische Verringerung sowohl in der Öffentlichkeit als auch bei manchen Fachleuten auf Skepsis gestoßen ist, und da andererseits dieser Aerosolabbau einen wesentlichen Beitrag zur Bestimmung des Source Terms liefert, wurde vom PNS ein Demonstrationsexperiment in einem größeren Volumen vorgeschlagen, an dem sich neben Battelle Frankfurt und dem PNS vor allem das Eidgenössische Institut für Reaktorforschung (EIR) und die Kraftwerkunion (KWU) beteiligen. Hierfür bot sich das Battelle-Modell-Containment in Frankfurt an, das ein Gesamtvolumen von 640 m<sup>3</sup> hat und es gestattet, innere Strukturen und Teilvolumina in einem gewissen Maße zu variieren. Wie Abb. 25 zeigt, wurde das Modell-Containment in einem linearen Maßstab von 1 : 4 dem Containment von Biblis A nachgebaut.

Der Stand der Vorbereitungen der DEMONA-Experimente ist ebenfalls weit fortgeschritten. Im September 1983 wurde ein Leckversuch bei 3 bar erfolgreich abgeschlossen. Es ergab sich eine Leckage von ca. 70% pro Tag, die ausreichend niedrig ist, um mit den Ergebnissen sowohl NAUA als auch den Thermodynamik-Code COCMEL der KWU verifi-

zieren zu können.

Zur Aerosolerzeugung werden drei Plasmabrenner verwendet, mit denen in Brennkammern, die von KWU erstellt werden, Metallpulver verdampft wird. Die Einzelerprobung der Brenner wurde erfolgreich abgeschlossen. Die gemeinsame Erprobung aller drei Aerosolgeneratoren soll im Dezember erfolgen.

Die notwendige Instrumentierung wurde zu einem wesentlichen Teil vom EIR entwickelt und bereits geliefert. Beim jetzigen Stand der Vorbereitungen ist damit zu rechnen, daß spätestens im März 1984 mit dem eigentlichen Versuchsprogramm begonnen werden kann.

Sieben Experimente sind insgesamt geplant, die in Abb.26 aufgelistet sind.

- Der erste Versuch, der bereits durchgeführt wurde, war ein reiner Thermodynamiktest ohne Aerosol. Die Leckratenmessung hat die Bestätigung geliefert, daß die weiteren Versuche im Battelle-Modellcontainment durchgeführt werden können.
- Der zweite Versuch ist ein reiner Trockenversuch ohne Dampferzeugung. Ziel ist der Nachweis, daß NAUA-Rechnungen ohne Kondensation und Diffusiophorese zu hinreichend genauen Ergebnissen führen. Für diesen Versuch ist die Kenntnis der Formfaktoren für die Partikelagglomerate notwendig. Sie werden zuvor von LAF I ermittelt. Der Vergleich mit den folgenden Versuchen soll zugleich demonstrieren, daß Aerosolpartikeln in gesättigter Dampf Atmosphäre nahezu den Formfaktor 1 annehmen (Kugelform).
- Der dritte Versuch ist der Basisversuch, analog zu FK 6 (spätes Überdruckversagen). Die Anfangskonzentration der Partikelmasse ist maximal.
- Der vierte Versuch ist identisch zum dritten. Allerdings ist die Anfangskonzentration der Partikelmasse hier deutlich geringer. Mit diesem Versuch soll beispielhaft demonstriert werden, daß NAUA in der Lage ist, das Zusammenspiel der verschiedenen aerosolphysikalischen Parameter und Effekte richtig zu bewerten. Zugleich



gibt der Versuch Aufschlüsse für das Aerosolverhalten bei einem postulierten großen Leck im SB.

- Der fünfte Versuch enthält die transiente Änderung der Thermodynamik im Containment während der Aerosolabbauphase. Damit soll demonstriert werden, daß das Zusammenspiel von COCMEL und NAUA auch bei instationären Verhältnissen zu richtigen Ergebnissen führt.
- Der sechste Versuch entspricht Versuch Nr. 3 mit komplexer Containmentgeometrie. Während zuvor alle Versuche im Modellcontainment bei einfachster Geometrie durchgeführt wurden (Entfernung aller Abdeckungen; nahezu "Einraummodell") sollen nun alle Subcompartments vorhanden sein. Ziel des Versuchs ist die Demonstration, daß COCMEL und NAUA als Einraummodell mit hinreichender Genauigkeit auf das komplexere reale Containmentsystem angewandt werden können.
- Der siebente, achte und neunte Versuch sind Reserveversuche (falls erforderlich).
- Der zehnte Versuch entspricht Versuch Nr. 6. Eine Zusatzinstrumentierung incl. Videoaufzeichnung ist dafür bestimmt, die Wirksamkeit natürlicher Aerosolabbaumechanismen für die interessierte Öffentlichkeit zu demonstrieren. Zu diesem Versuch sollen Beobachter eingeladen werden.

Es muß nochmals betont werden, daß das DEMONA-Programm lediglich einen Demonstrationscharakter besitzt. Die Aerosolfachleute sind sicher, daß der Aerosolabbau mit dem NAUA-Code korrekt beschrieben wird. Dies wurde erst kürzlich durch mehrere Vorträge auf dem Water Reactor Safety Information Meeting der USNRC Ende Oktober 1983 bestätigt. In diesen Vorträgen setzten sich amerikanische Fachleute mit dem NAUA-Code wissenschaftlich auseinander und bestätigten, daß er der z.Zt. am besten verifizierte und dokumentierte Aerosolcode ist.

Es sei noch erwähnt, daß das PNS mit dem Marviken-V-Projekt, in dem ein internationales Versuchsprogramm zum integralen Aerosolverhalten

im Primärkreis betreut wird, einen Vertrag zum freien Austausch der Ergebnisse beider Programme Anfang Dezember abschließen wird.

#### 6.4 Jodmodell

Die DEMONA-Experimente und die NAUA-Rechnungen beschreiben und bestimmen das Aerosolverhalten, ohne die einzelne Spezies radioaktiver und nichtradioaktiver Stoffe zu berücksichtigen.

Für die Source-Term-Bestimmung ist es daher notwendig, das chemische und physikalische Verhalten der wesentlichen Nuklide wie Jod und Cäsium während des Verlaufs eines Kernschmelzenunfalls zu verfolgen und so zu beschreiben, daß ihre chemische Form zu jedem Zeitpunkt des Unfalls mit einiger Sicherheit vorhergesagt werden kann. Dies führte zu einem sog. Jod-Modell, mit dem erstmals der Versuch unternommen wird, das Transportverhalten und die Freisetzung des Spaltjods bei schweren Reaktorstörfällen unter Berücksichtigung aller wichtigen ablaufenden chemischen Reaktionen zu beschreiben. Bei der Komplexität des Störfallablaufes und der Vielschichtigkeit der Jod-Chemie bedeutet das einen hohen Anspruch, dem erwartungsgemäß nicht im ersten Anlauf voll entsprochen werden kann. Daher wurde das Hauptgewicht darauf gelegt, zuerst alle wichtigen Reaktionen zu erfassen und die vorhandenen Best-Estimate-Kenntnisse über ihre Abläufe in das Modell einzusetzen. Zahlreiche Gespräche mit deutschen Experten wie auch erst kürzlich stattgefundene intensive Diskussionen mit führenden amerikanischen und kanadischen Fachleuten berechtigen zu der Annahme, daß dieses Ziel erreicht wurde.

Die starke Abhängigkeit der das Jod betreffenden chemischen Reaktionen von den herrschenden Umgebungsbedingungen läßt es sinnvoll erscheinen, für die Modellierung den Störfallablauf in sechs Abschnitte zu unterteilen, nämlich

- Freisetzung aus dem Brennstoff,
- Reaktionen im Primärkreislauf,
- Freisetzung aus dem Primärkreislauf in den Sicherheitsbehälter,
- Reaktionen und Verhalten innerhalb des Sicherheitsbehälters,
- Freisetzung aus dem Sicherheitsbehälter, Verhalten in angrenzen-

den Bereichen (Ringraum, Hilfsanlagengebäude).

- das Verhalten während und nach dem Eindampfen des Sumpfwassers.

Für Details wird auf den Vortrag von Hosemann, Neeb und Wilhelm /29/ hingewiesen.

Die betrachteten chemischen Formen von Jod und Cäsium sind

- elementares Jod
- Organojod
- Cäsiumjodid
- Silberjodid
- $J^-$  - Ionen
- $Cs^+$  - Ionen,

die luftgetragen und/oder im Sumpf vorliegen können und deren Verhalten im Containment, im Ringraum und im Anlagengebäude zu beschreiben ist.

Ganz entscheidend für die Jod-Freisetzung nach außen sind die thermodynamischen Bedingungen beim Versagen der Stahlhülle, die wiederum stark von den Transportwegen und ihren freien Strömungsquerschnitten abhängen. In früheren Studien mußte davon ausgegangen werden, daß beim Überdruckversagen die Stahlhülle schlagartig aufreißt, dabei u.U. auch die Betonschale flächig beschädigt, wobei eine mögliche Rückhaltewirkung des Ringraumes völlig verlorengehen würde. Neuerdings konnten in bei PNS und KWU durchgeführten Untersuchungen zwei Fälle erarbeitet werden /30/, mit denen das "späte Überdruckversagen" plausibel eingegrenzt werden kann.

Im ersten, dem Best Estimate-Fall, wird angenommen, daß die Leckage des Sicherheitsbehälters ab einem Innendruck von 9 bar mit weiter steigendem Druck zunimmt. Dies führt dazu, daß bald nach der etwa 5 Tage dauernden Phase des dichten Sicherheitsbehälters (mit Auslegungsleckage) eine Leckage in den Ringraum folgt, bei der der Leckmassenstrom gerade der Sumpfwasserverdampfungsrate entspricht. Analysen mit dem Code COCMEL führen auf das Ergebnis, daß in diesem Fall ein Leckquerschnitt von  $21 \text{ cm}^2$  erreicht wird. Von diesem Augenblick an herrscht so lange ein konstanter Druck von etwa 9,14 bar im Sicherheitsbehälter, bis nach insgesamt 3 Wochen das gesamte Sumpfwasser verdampft ist.

Unter diesen Bedingungen wird bei funktionsfähiger Ringraumabsaugung der vergleichsweise kleine Leckmassenstrom nicht zu einem Druckaufbau im Ringraum führen, da der Dampfanteil dort fast vollständig kondensiert wird. Der verbleibende Rest wird zusammen mit den von außen angesaugten Luftanteilen über die Filter und das Gebläse mit einer maximalen Förderleistung von  $4000 \text{ m}^3/\text{h}$  durch den Entlüftungskanal abgegeben. Dabei kann davon ausgegangen werden, daß die Schwebstoff-Filter und die Jod-Filter funktionsfähig bleiben bzw. so ertüchtigt werden können, daß sie ihre Wirksamkeit auch unter diesen Bedingungen behalten; allerdings muß angenommen werden, daß die Filterwirkungsgrade wegen der erhöhten Temperaturen und des hohen Wasserdampfanteiles deutlich herabgesetzt sind. Im Modell wurden daher für diese Phase Wirkungsgrade von 99% für aerosolgetragenes Jodid, von 99,9% für elementares Jod und von 95% für Organojod angesetzt.

Für den zweiten, den Worst Case-Fall, wird unterstellt, daß bei Erreichen eines Druckes von 9 bar im Sicherheitsbehälter dieser instantan den maximalen Leckquerschnitt von  $300 \text{ cm}^2$  aufweist. Der dadurch bewirkte Leckmassenstrom führt zur sofortigen Druckentlastung im Sicherheitsbehälter und zum Druckaufbau im Ringraum, nach der COCMEL-Analyse auf einen Maximaldruck von 1,28 bar. Sowohl die Schleuse ins Hilfsanlagengebäude als auch die Türen, die über Treppenhäuser und weitere Türen nach außen führen, halten diesem Druck stand. Wegen der laufenden Unterdruckhaltung wird aber der Absaugkanal hinter den Filtern eingedrückt mit der Folge, daß diese vom Leckmassenstrom aus dem Ringraum umgangen werden. Die Filter werden also nicht wirksam. In diesem Fall ist das Sumpfwasser nach 9,5 Tagen vollständig verdampft.

Für diese beiden Fälle wurde mit dem Jodmodell die integrale Freisetzung berechnet.

In Abb.27 sind beide Fälle nebeneinander dargestellt. Im links gezeigten Fall 1 beträgt demnach innerhalb von 14 Tagen die Gesamtfreisetzung (jeweils in Anteilen des Gesamtjod-Inventares)

- $\text{J}_2$	$3,0 \cdot 10^{-9}$
- CsJ	$4,6 \cdot 10^{-8}$
- Organojod	$4,2 \cdot 10^{-7}$
- Summe Jod	$4,7 \cdot 10^{-7}$

In dem rechts gezeigten Fall 2 ist der Freisetzungsverlauf bis zum Überdruckversagen nach 5 Tagen gleich dem des Falles 1. Dann allerdings ändern sich die Verhältnisse drastisch, da die Filterwirkungsgrade gleich Null gesetzt werden und die Leckmassenströme wesentlich erhöht sind. Dies führt dazu, daß nun hinsichtlich der Freisetzung elementares Jod dominiert, gefolgt von Organojod und partikelgebundenem CsJ. Im Fall 2 ist die Jod-Freisetzung nach 7 Tagen praktisch beendet; die Gesamtfreisetzung beträgt

- J <sub>2</sub>	5,9 · 10 <sup>-5</sup>
- CsJ	5,4 · 10 <sup>-6</sup>
- Organojod	3,4 · 10 <sup>-5</sup>
- Summe Jod	9,8 · 10 <sup>-5</sup>

Zum Vergleich sei an dieser Stelle die Jodfreisetzung in der Deutschen Risikostudie Phase A erwähnt, die bei 1% oder 10<sup>-2</sup>, also zwei Zehnerpotenzen höher lag als der Fall 2 ("Worst Case"). Darüberhinaus hat die Differenzierung nach verschiedenen chemischen Erscheinungsformen natürlich auch Auswirkungen hinsichtlich der radiologischen Folgen. Diese Beispiele mögen einen Eindruck von der Vorgehensweise im Jodmodell vermitteln.

Es sei nochmals darauf hingewiesen, daß eine Reihe von Daten über wesentliche Reaktionsabläufe zur Zeit noch nicht mit befriedigender Zuverlässigkeit bekannt sind. Ein Großteil von ihnen ist Gegenstand von laufenden oder geplanten Untersuchungsvorhaben im In- und Ausland. Durch die guten fachlichen Kontakte zu den führenden, auf diesem Gebiet arbeitenden Institutionen ist sichergestellt, daß die Ergebnisse ohne größeren Verzug in das Modell einfließen können, so daß nach und nach zunehmend konkrete Rechenergebnisse erwartet werden können.

Ein weiteres Entwicklungsziel für die nähere Zukunft ist die Anwendung des Jod-Modells auf andere Störfallabläufe, wobei vor allem der Hochdruckpfad und die Freisetzungskategorie 2 beider Pfade zu erwähnen sind. Die Anwendbarkeit des Modells für diese Sequenzen steht außer Zweifel; wesentliche Aufgabe ist die Bewertung der z.T. anders als im vorliegenden Fall ablaufenden chemischen Reaktionen.

## 7. Rückhaltung, Verhalten und Auswirkung freigesetzter Radionuklide aus kerntechnischen Anlagen

### 7.1 Filterentwicklungen für Kernkraftwerke

Mit dem Ziel, Filter zu entwickeln, die auch bei Stör- und Unfallsituationen in kerntechnischen Anlagen ihre Rückhaltefunktion nicht verlieren, wurden im LAF II die laufenden Arbeiten fortgeführt. Dabei konzentrieren sich die Untersuchungen einerseits auf Filterelemente auf der Basis von Glasfasermedien - konstruktiv ertüchtigte HEPA-Filter -, deren Belastbarkeit mit hohen Temperaturen (bis etwa 200°C), hoher Luftfeuchte (oberhalb 85% rel. Feuchte) und größeren Differenzdrücken (über 0,3 bar) angestrebt wird. Die andere Entwicklungsrichtung bezieht sich auf Filterelemente auf der Basis von Metallfasern, die wegen ihrer wesentlich höheren Temperaturbeständigkeit (ca. 550°C) und ihrer besseren Strahlen- und Feuchteresistenz für die Beherrschung von Unfallsituationen vorgesehen sind.

Bei den Arbeiten auf dem Gebiet der Glasfaser-Schwebstofffilter werden die wichtigsten Beanspruchungsarten - Temperatur, Feuchte und mechanische Belastungen - zur Zeit getrennt untersucht. Zum Feuchteeinfluß wurden orientierende Langzeituntersuchungen mit neuen Filterelementen durchgeführt und solchen, die im praktischen Betrieb beladen worden waren. Hierbei zeigte es sich, daß sich die Luftfeuchte erst oberhalb 90 bis 95% durch einen Anstieg des Strömungswiderstandes bemerkbar macht. Im Bereich der Sättigung und vor allem bei kondensierender Feuchte treten relativ hohe Differenzdrucke auf, die zum Filterversagen führen können. Als Beispiel zeigt Abb. 28 die beschädigte Abströmseite eines vorbe-ladenen Schwebstofffilters nach dem Feuchteversuch.

Die Untersuchungen zur Belastbarkeit der Glasfaserfilter gegenüber erhöhtem Differenzdruck bei Umgebungsbedingungen wurden mit einer vierten Testserie in USA abgeschlossen. Die bisher erzielten Resultate, über die anlässlich des letztjährigen Statusbericht vorgetragen wurde, konnten dabei gefestigt werden.

Die Arbeiten zur Ermittlung der Leistungsfähigkeit von Schwebstoff-

filtern auf der Basis von Edelstahlfasern /31/ konzentrierten sich im Berichtsjahr auf die Beanspruchung unter höherer Temperatur und höherem Druck. Dekontaminationsfaktoren  $> 10^5$  konnten bereits nachgewiesen werden.

Die Temperaturabhängigkeit wurde bis  $200^{\circ}\text{C}$  (der oberen Grenze der TAI FUN-Anlage) gemessen. Es zeigte sich, daß mit steigender Temperatur der Dekontaminationsfaktor zunimmt. Dies ist mit verbesserter Diffusionsabscheidung durch die erhöhte Temperatur zu erklären. Die Untersuchungen wurden bei 30 und 40 cm/s Anströmgeschwindigkeit durchgeführt (s. Abb. 29).

Als weiteres wurde die Abhängigkeit des Dekontaminationsfaktors vom Druck untersucht. Abb. 30 zeigt mit steigendem Druck eine Abnahme des Dekofaktors im Bereich zwischen 1 und 5 bar. Auch dieses Ergebnis ist mit der Diffusionstheorie zu erklären. Hiernach erscheint es sinnvoll, eine Unfallfilteranlage außerhalb des Containments bei nahezu Umgebungsdruck zu betreiben. Außerdem bewirkt die hierbei erforderliche Gasdrosselung (isenthalpe Entspannung) eine starke Reduzierung der Gas-(Luft)Feuchte. Dies ist für den Betrieb nachgeschalteter Sorptionsfilter von entscheidender Bedeutung. Der dadurch gegebene Vorteil überwiegt bei weitem gegenüber anderen Gesichtspunkten, wie dem Betrieb einer solchen Filteranlage unter Druck, der eine etwas kleinere Bauweise aufgrund des reduzierten Volumenstromes erlauben würde.

Die Arbeiten werden weitergeführt zur Ermittlung des Filterverhaltens unter Dampfeinwirkung und zur Entwicklung von Vorfiltern, ebenfalls auf der Basis von Edelstahlfasern, aber mit größeren Faserdurchmessern, die die Hauptmenge der Grobaerosole abscheiden sollen, um die Standzeit des Feinfilterteiles wesentlich zu verlängern.

Die bisherigen Filteruntersuchungen wurden, mit Ausnahme der nach USA vergebenen, in der Anlage TAI FUN im LAF II durchgeführt. Da diese inzwischen 10 Jahre alte Anlage nunmehr weder in Bezug auf die Versuchskapazität noch hinsichtlich der physikalischen Möglichkeiten den heutigen Erfordernissen entspricht, wurde in den Jahren 1981 und 1982, insbesondere im Hinblick auf die erforderlich werdenden Schwebstofffilteruntersuchungen bei kombinierter Bean-

spruchung, die Prüfanlage BORA konzipiert und geplant/32/. Der Bauauftrag wurde um die Jahreswende 82/83 vergeben, wobei das LAF II für die Meßtechnik zum Filterverhalten und die Beistellung der Befeuchtungseinrichtung sorgen wird. Inzwischen sind die Montagearbeiten soweit fortgeschritten, daß mit dem Probetrieb der Anlage noch im Dezember gerechnet werden kann. Das Anlagenschema ist in Abb.31 dargestellt. Es handelt sich um eine Kreislaufanlage mit zwei auf höchste Pressung ausgelegten Radialgebläsen, der Befeuchtungseinrichtung und dem Niedertemperaturkühler. Daran schließen sich die Meßstrecke für Strömungsuntersuchungen, der Bypass-Strang zur Luftkonditionierung und die Meßstrecke mechanische Belastbarkeit an. Im Rücklauf sind die Filterbank und der Hochtemperaturkühler angeordnet.

Vor jedem Filtertest wird die Luft so lange über den Bypass-Strang geleitet, bis die gewünschten Luftbedingungen erreicht sind. Dann wird durch koordiniertes Öffnen von K1 und Schließen von RK die Strömung durch das Testfilter freigegeben. Während des Belastungsvorganges wird das Filterverhalten mit einer Hochgeschwindigkeitskamera gefilmt und anschließend ausgewertet.

Um Baukosten einzusparen (ca. 1,3 Mio DM), wurde die Anlage im Gebäude des stillgelegten Reaktors FR2 untergebracht. Abb.32 zeigt das Hauptkanalsystem und verdeutlicht, wie gut die Anpassung an die gegebenen Raumverhältnisse gelungen ist.

Die Abb.33 und 34 vermitteln einen Eindruck aus der Montagephase. Abb.33 zeigt eine Ansicht des Endes der Teststrecke mit den Beobachtungsöffnungen für Hochgeschwindigkeitskamera und Videokamera sowie für die Beleuchtung. Rechts daneben ist die noch nicht montierte Klappe K1 zu erkennen. Der Kanaldurchmesser beträgt 800 mm. Abb.34 zeigt eine Aufnahme vom Gebläseraum mit der Verrohrung, die nach der Luke in das Kanalsystem mündet.

Eine besonders wichtige Phase der Versuchsdurchführung betrifft die Erzeugung einer Druckrampe am Testfilter durch Umlenkung der Strömung mit Hilfe der Klappen K1 und RK. Im Hinblick auf die späteren Experimente wurde die Anlage BORA strömungstechnisch modelliert und der Einfluß der Betriebsparameter berechnet. Hierzu wurde TVENT,



der einzige verfügbare Code zur Berechnung von Lüftungsanlagen herangezogen und entsprechend erweitert. Als typisches Ergebnis zeigt Abb. 35 den zeitlichen Verlauf des Druckes an verschiedenen Stellen der Anlage bei einer Öffnungszeit der Klappe K1 von 6 Sekunden und einer Schließzeit von RK von 6,6 Sekunden. Der Druck vor dem Testfilter kann weitgehend konstant gehalten werden. Den Druckverlauf hinter dem Testfilter, dem die am Testfilter entstehende Druckrampe entspricht, zeigt die mittlere Kurve.

Die Modifikation des Rechenprogrammes TVENT und die Modellierung der Anlage BORA diente nicht nur der Vorbereitung des späteren Versuchsbetriebes. Diese Arbeiten wurden im Hinblick auf die notwendige Entwicklung von Rechencodes durchgeführt, mit deren Hilfe vernünftige Abschätzungen derjenigen Beanspruchungen möglich sein sollen, denen die Filterelemente bei einem Störfall ausgesetzt wären. Bei diesen künftigen Arbeiten wird die Anlage BORA zur Codeverifikation dienen.

Zur Beurteilung des Filterverhaltens unter extremen Betriebsbedingungen ist neben der strukturellen Integrität vor allem der Verlauf des Abscheidegrades von großer Bedeutung. Deshalb wurde im LAF II ein Prüfverfahren entwickelt, mit dem Filter einer Abscheidegradprüfung unter hoher Feuchte und Temperatur unterzogen werden können. Die dazu erforderliche Anlage ist zur Zeit im Aufbau begriffen und in Abb. 36 schematisch dargestellt. Die Funktionsweise ist folgende: Ein spezielles Testaerosol aus einer thermisch sehr stabilen, in Verbindung mit Wasser nicht korrosiven Substanz wird mit Hilfe eines Argonplasmas hergestellt. Die Messung der Aerosolkonzentration im roh- und reinluftseitigen Luftstrom erfolgt durch Probenahme auf Kernporenfiltern, die anschließend in konzentrierten Mineralsäuren unter Druck aufgeschlossen und mit Hilfe der Atomabsorptionsspektroskopie in der Graphitrohrtechnik analysiert werden. Die hohe Empfindlichkeit der Reinluftmessung erlaubt trotz der notwendigerweise niedrigen Konzentration vor dem Filter die Bestimmung von Abscheidegraden von 99,97 %.

## 7.2 Radioökologische Untersuchungen

Über das Verhalten der Aktiniden Pu, Am und Cm haben Schüttelkopf und Pimpl beim letzten Jahreskolloquium ausführlich berichtet /33/. Inzwischen ist das Element Neptunium in die Untersuchungen mit einbezogen worden, nachdem es gelungen war, das bei HS/R entwickelte und in der praktischen Anwendung bewährte Analysenverfahren zur Bestimmung von Plutonium, Americium und Curium in Umweltprouben so zu modifizieren, daß Neptunium im gleichen Analysengang ebenfalls quantitativ bestimmt werden kann.

Während die Messungen der Plutonium-, Americium- und Curium-Freisetzungen aus der WAK in Abgas und Abwasser routinemäßig fortgesetzt werden, wurden die Untersuchungen zur Aktinidenkonzentration in der Umgebung der WAK zum Abschluß gebracht. Hierüber ist ein zusammenfassender Bericht in Vorbereitung. Der Arbeitsschwerpunkt liegt nun bei der Messung von Transferfaktoren Boden/Pflanze.

Die vorbereitenden Arbeiten zur Ermittlung geeigneter Arbeitstechniken zur Pflanzenaufzucht auf kontaminierten Böden wurden abgeschlossen. Für die im Gewächshaus anzubauenden Pflanzen wurden geeignete Klimaparameter überprüft und festgelegt.

Auf drei Böden - einem Kreideboden, einem Granitverwitterungsboden und einem Sandboden - wurde mit der Messung des Transfers von Pu, Am, Cm und Np in Nutzpflanzen begonnen. Weizen, Mais und Kartoffeln wurden in drei verschiedenen großen Behältern auf kontaminiertem Boden angebaut. Die Kontamination des Bodens beträgt im Mittel 200 pCi/g Erde je für Pu und Am, für Cm und Np je bis zum 5-fachen weniger. Der Anbau dieser Nutzpflanzen erfolgt

- in Kick-Brauchmann-Gefäßen mit 8 kg Bodenfüllung und  $0,035 \text{ m}^2$  Oberfläche,
- in größeren Wannen mit 250 kg Boden und  $0,6 \text{ m}^2$  Oberfläche sowie
- in Lysimetern mit  $0,5 \text{ m}^2$  Oberfläche, in denen der entsprechende Boden in ungestörter Lagerung bis zu 80 cm Tiefe eingefüllt ist.

Lediglich die Ackerkrume bis 20 cm Tiefe wurde bei diesen Lysimetern mit Pu, Am, Cm und Np kontaminiert. Nach der ersten Vegetationsperiode soll auf diesen Böden in den gleichen Gefäßen der in der Landwirtschaft übliche Fruchtwechsel durchgeführt werden.

Erste Ergebnisse zeigen, daß die in den Berechnungsgrundlagen angegebenen Transferfaktoren Boden / Pflanze einen zu modellhaften Charakter besitzen. Bei Weidebewuchs stimmt der gemessene Wert für Pu und Am recht gut mit dem angegebenen Wert von  $2,5 \cdot 10^{-4}$  überein, während die Pflanzenaufnahme von Cm um den Faktor 20 überschätzt und bei Np um den Faktor 20 unterschätzt wird. Die Aufnahme in Weizenkörner ist bei allen Nukliden wesentlich geringer als nach den Berechnungsgrundlagen angenommen wird: bei Np um den Faktor 4, bei Cm um den Faktor 100 und bei Pu und Am um den Faktor 10 bis 20.

Bei den schon erwähnten Untersuchungen zur Aktinidenkonzentration in der Umgebung des Kernforschungszentrums wurden langfristige Veränderungen der Bioverfügbarkeit von Jod-129 und Plutonium-Isotopen im Boden beobachtet. Als Ursache hierfür wurden mit großer Wahrscheinlichkeit die durch die Tätigkeit von Mikroorganismen im Boden bedingten Umsetzungsprozesse in der Humusschicht vermutet. Deshalb wurde im Juli 1982 mit Arbeiten begonnen (Strack, Müller, Riedl), die mehr Einblick in die Abhängigkeiten des Migrations- und Retentionsverhaltens und der biologischen Verfügbarkeit von Radionukliden im Boden von den Stoffwechsellleistungen der Mikroben gewähren sollen. Die im Berichtszeitraum geübte Vorgehensweise ist die folgende:

A) Das zu untersuchende Bodenmaterial (humusreicher Waldboden: H-Horizont mit Übergang zu den angrenzenden Horizonten: F- und  $A_h$ -Lage) wird nach Ermittlung einiger physikalisch-chemischer Parameter (z.B. pH-Wert, maximale Wasserkapazität) und quantitativer und grob qualitativer Bestimmung des mikrobiellen Besatzes ca. 2,5 cm hoch in sterile Kunststoffspritzen gepackt. Die künstlichen Bodensäulen werden mit geträgerter  $^{125}\text{J}$ -Lösung markiert (ca. 500 Bq), mit Beregnungsflüssigkeit (dest.  $\text{H}_2\text{O}$  bei Kontrollversuchen, Lösungen von Chemikalien in den Hauptversuchen) beregnet und nach unterschiedlichen Standzeiten mit 5 ml destilliertem  $\text{H}_2\text{O}$  eluiert. Die wasserlösliche Jodmenge wird im Liquid Scintillation Counter (LSC) ausgemessen.

Eingriff in den Mikroorganismenbewuchs bzw. in den -stoffwechsel  
(Hauptversuche):

Um die Wirkung des Mikroorganismenbewuchses und dessen Stoffwechselleistungen auf das Nuklidverhalten in der Bodenmatrix nachweisen zu können, wurde das Bodenmaterial zusätzlich behandelt:

- Sterilisation mit feuchter Hitze zur vollständigen Abtötung aller Keime durch Autoklavieren des Bodens vor dem Einfüllen der Säulen, 20 min bei 120°C.
- Behandlung mit Chemikalien wie Antibiotika und Desinfektionsmittel (z.B. Polymyxin B und  $\beta$ -Propiolacton) zur Teilentkeimung des Bodens.
- Zugabe von gut verwertbaren Substraten, wie Glucose, zur Beeinflussung der Stoffwechselaktivität.

B) Zum Nachweis der Feinverteilung der Nuklide in der Bodenmatrix wurden Autoradiographiemethoden in Verbindung mit Fluoreszenzmikroskopie ausgearbeitet.

Ergebnisse zu A): Säulenversuche

Der überwiegende Teil der aufgegebenen  $^{125}\text{J}$ -Menge wird am Boden immobilisiert und kann nicht wieder eluiert werden (90 bis 99% des aufgetragenen  $^{125}\text{J}$ ). Wird jedoch durch Autoklavieren sterilisierter Boden in den Retentionsversuch eingesetzt, ist im Vergleich zu unbehandeltem, natürlich bewachsenem Boden der Anteil an immobilisiertem Jod deutlich reduziert (in der Größenordnung einer Zehnerpotenz). Dieses Ergebnis könnte durch eine Verminderung von Bioabsorptions- bzw. Aufnahmeprozessen erklärt werden, könnte jedoch auch auf eine Veränderung der physikalisch-chemischen Eigenschaften des Bodens, bedingt durch die Hitzeeinwirkung, zurückzuführen sein (Abb. 37). Genauere Untersuchungen sind notwendig, um eine sichere Aussage über die Ursachen des beobachteten Verhaltens von  $^{125}\text{J}$  in dem komplexen Bodenmaterial treffen zu können.

Bei den mehr selektiven Behandlungen des Bodenmaterials mit chemischen Substanzen - Polymyxin B (Antibiotika),  $\beta$ -Propiolacton (Desinfektionsmittel), Glucose (gut verwertbares Substrat) - zeigen sich Unterschiede in den Absorptionskinetiken (Abb. 38).

Bei allen Bodensäulen, unbehandelt oder mit Chemikalien behandelt, tritt im zeitlichen Verlauf eine Annäherung gegen einen Grenzwert auf, der einer maximal erreichbaren Immobilisierung des  $^{125}\text{J}$  im untersuchten System Boden/Mikroorganismen entspricht. Die Absorptionskurve für  $\beta$ -Propiolacton-behandelten Boden verläuft jedoch deutlich über den entsprechenden Kurven von mit Polymyxin B bzw. Glucose versetztem Boden und der Anteil an  $\text{H}_2\text{O}$ -eluierbarem  $^{125}\text{J}$  geht mit zunehmender Standdauer der Säulen gegen einen ca. 1,6 mal höheren Grenzwert.

#### Ergebnisse zu B): Autoradiographie

Mikroorganismenzellen, vor allem Hefezellen, die durch kurzzeitige Inkubation mit  $^3\text{H}$ - bzw.  $^{14}\text{C}$ -markierten Substanzen bzw.  $^{125}\text{J}$  in Form von Natriumjodid markiert wurden, wurden mit Bodenproben vermischt und mittels Fluoreszenzmikroskopie und Autoradiographie (stripping film) untersucht. Dabei konnten die in der Filmschicht auftretenden Schwärzungen einzelnen stoffwechselaktiven Mikroorganismen zugeordnet werden.

### 8. Störfallanalyse zur Wiederaufarbeitungsanlage

Im Rahmen der Störfallanalysen zur großen Wiederaufarbeitungsanlage untersucht das IDT die Auflöserabgasreinigung auf Störfallmöglichkeiten. Die Auflöserabgasstrecke besteht im wesentlichen aus den Anlagenteilen

- PASSAT zur Aerosol- und Jodisotopenabtrennung,
- ADAMO zur Adsorption von  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{CO}_2$ ,
- KRETA zur kryogenen Xe- und Kr-Entfernung.

Über den Stand der Arbeiten zur Modellierung dieses Systems und zur Beurteilung der Störfallmöglichkeiten wird im Vortrag von K. Nagel et al. berichtet /34/, so daß in diesem Bericht auf weitere Einzelheiten verzichtet wird.

Zu erwähnen ist, daß die sicherheitsanalytischen Arbeiten zur Wiederaufarbeitungsanlage des Projektes Sicherheitsanalyse Entsorgung (PSE) nach dessen Beendigung Mitte 1984 auf Wunsch des BMFT im PNS weiterverfolgt werden sollen, sofern die laufenden Vorhaben nicht zum Abschluß gebracht werden können, bzw. sich neue Fragestellungen z.B. aus den laufenden Genehmigungsverfahren für die Standorte Wackersdorf und Dragahn ergeben sollten.

## 9. Internationale Zusammenarbeit

Im Forschungsbereich der schweren Kernschäden hat das PNS mit der USNRC im Frühjahr dieses Jahres einen Vertrag abgeschlossen, der auf amerikanischer Seite das Severe Accident Research Program enthält. Dem amerikanischen Programm sind weitere internationale Partner wie Großbritannien, Japan, Italien und Holland assoziiert. Es fanden einige Treffen mit diesen Partnern in den USA statt, auf denen im wesentlichen die ersten PBF-Versuche bei höheren Temperaturen im Bereich Severe Fuel Damage diskutiert wurden. Bilaterale Gespräche befaßten sich mit Fragen der Modellierung.

In diesem Zusammenhang muß betont werden, daß aus deutscher Sicht die Untersuchungen zu den schweren Kernschäden mit dem Ziel durchgeführt werden, die Sicherheitsreserven auszuloten, die jenseits der festgelegten Auslegungsgrenzen im deutschen Anlagenkonzept enthalten sind, d.h. bis zu welchen Zerstörungszuständen ein teilzerstörter Kern noch kühlbar ist. Hierzu ist es notwendig, die physikalischen und chemischen Phänomene oberhalb 1200°C in Parameterstudien zu untersuchen.

Die Zielrichtung dieser Untersuchungen unterscheidet sich damit deutlich vom Ziel der Untersuchungen zum unkontrollierten Kernschmelzen, die ausschließlich einer möglichst realistischen Beurteilung des Risikos eines LWR bei diesen hypothetischen Unfallszenarien dienen.

Es erweist sich heute als richtig und wichtig, daß in Deutschland die Untersuchungen zu den schweren Kernschäden von denen zum unkontrollierten Kernschmelzen von jeher getrennt behandelt worden sind.

Hier kommt auch den politischen Stellen wie BMFT und BMI und den sie beratenden Gremien ein hohes Verdienst zu, streng darauf geachtet zu haben, zwischen Genehmigungsfragen und einer darüber hinaus gehenden Reaktorsicherheitsforschung getrennt zu haben.

Die Erkenntnisse zu einer möglichst realistischen Beurteilung des Risikos und die damit verbundenen Bemühungen, die physikalischen und chemischen Phänomene der hypothetischen Unfallabläufe und das Verhalten freigesetzter Nuklide nach hypothetischen Unfällen bestmöglich beschreiben zu können, bedürfen einer engen und vertrauensvollen Zusammenarbeit mit internationalen Fachkollegen. Besonders intensiv sind die Beziehungen zu den verschiedenen amerikanischen Stellen wie der USNRC und den von ihr beauftragten Nationallaboratorien, dem EPRI (Electric Power Research Institute) und der ANS (American Nuclear Society).

Auf dem Gebiet der Quellterm-Ermittlung gibt es in USA drei Aktivitäten:

1. Die USNRC erarbeitet zur Zeit den Bericht NUREG 0956, als Nachfolge-Report des NUREG 0772, in dem für fünf verschiedene Kernkraftwerkstypen entsprechend den denkbaren Unfallszenarien die Quellterme abgeschätzt werden sollen.
2. Das Electric Power Research Institute hat eine Kommission benannt, die sich mit einem WASH-1400 Update befaßt und deren Chairman Norman Rasmussen ist.
3. Bei der ANS arbeitet seit mehr als einem Jahr ein Special Committee on Source Term unter dem Vorsitz von Bill Stratton.

Bei allen diesen Aktivitäten ist das PNS um aktive und beratende Mitarbeit gebeten worden, soweit es die vorhandenen Kapazitäten erlauben. Dies ist nicht nur eine Anerkennung der deutschen Arbeiten, sondern bietet gleichzeitig die Möglichkeit, eine gemeinsame, internationale Basis für die Beurteilung der Risiken zu schaffen.

Bei den amerikanischen Source-Term-Überlegungen spielt das zuvor erwähnte Jodmodell inzwischen eine wesentliche Rolle. Nach einigen Gesprächen vor allem mit den Fachkollegen in Oak Ridge wurde das Jodmodell von den Amerikanern übernommen. An der Klärung der noch offenen Teilfragen zur Chemie des Jod und Cäsium wird in Oak Ridge mitgearbeitet; spontan wurde das Versuchsprogramm umgestaltet, um diese Fragen vordringlich anzugehen.

Zur Frage des Containmentverhaltens bei oder nach hypothetischen Unfällen fanden einige intensive Gespräche vor allem mit den Kollegen des Sandia National Laboratory statt, an denen auf deutscher Seite auch GRS und KWU beteiligt sind. Hier zeichnet sich eine gute Abstimmung der experimentellen und analytischen Arbeiten ab, die zu einer Fokussierung auf die wesentlichen Versagensarten führen soll.

Mit dem Ziel, eine Bestandsaufnahme der Untersuchungen zum Wasserstoffverhalten in Kürze zu erstellen, unternahm vor drei Wochen eine deutsche Delegation bestehend aus Mitarbeitern der GRS, der KWU und des PNS eine Rundfahrt zu den amerikanischen Experimenten, die im wesentlichen von Sandia und EPRI betreut werden. Auch auf diesem Gebiet zeichnet sich ab, mittelfristig nach Auswertung der Experimente zu einer gemeinsamen Beurteilung der Rolle des Wasserstoffs im hypothetischen Unfallgeschehen zu kommen.

Neben den sehr intensiven Kontakten zu den amerikanischen Fachkollegen sollten die Kooperationen mit Frankreich, Japan und Großbritannien sowie mit Schweden und Dänemark nicht vergessen werden.

Die Kooperation mit Frankreich auf der Basis des BMFT-CEA-Vertrages konzentriert sich im wesentlichen auf Untersuchungen zum Brennstabverhalten sowohl bei Auslegungsstörfällen als auch bei schweren Reaktorunfällen und der Untersuchung von Spaltproduktfreisetzungen. Beim Brennstabverhalten sind die französischen Inpile-Experimente im Phebus-Reaktor inzwischen angelaufen. Bei den Freisetzungsexperimenten kommt den Inpile-Untersuchungen im FLASH-Loop eine besondere Bedeutung zu.



Die Kooperation mit JAERI auf der Basis eines JAERI-KfK-Vertrages hat sich bisher auf das Brennstabverhalten bei LOCA- und Reaktivitätsstörfällen beschränkt. Zur Zeit ist ein Vertrag zu Untersuchungen schwerer Kernschäden in der Diskussion und wird voraussichtlich Anfang 1984 abgeschlossen werden.

Mit UKAEA besteht seit einigen Jahren ein Letter-Agreement, das auf das Brennstabverhalten begrenzt ist. Im Zuge des Public Inquiry zum Sizewell B-Druckwasserreaktor ist das britische Reaktorsicherheitsforschungsprogramm stark erweitert worden. Z.Zt. wird ein Vertrag vorbereitet, der auch die Untersuchungen zu schweren Störfällen enthalten wird.

Literatur

- /1/ R. Krieg, B. Dolensky, A. Granda  
Core Support Columns in the Upper Plenum of a Pressurized  
Water Reactor under Blowdown Loading. Part II: Three- dimensional  
Analysis Calculation of Deformations and Stresses.  
Nucl. Eng. and Des. 73 (1982), 35-44
- /2/ U. Schumann  
Impacts and Fluid-Structure Interactions in Pressurized  
Water Reactor Safety Analysis.  
Nuclear Engineering and Design 69 (1982), 313-326
- /3/ J. Benner  
Numerical Simulation of Fluid-Structure Interactions in a  
Pressurized Water Reactor Core, in: P.Lascaux (Ed.):  
Proc. Third Int. Symp. on Numerical Methods in Engineering,  
Paris, 13.3. - 16.3.1983, 337-347
- /4/ U. Schumann  
Effektive Berechnung dreidimensionaler Fluid-Struktur-  
Wechselwirkung beim Kühlmittelverluststörfall eines Druck-  
wasserreaktors - FLUX -, KfK 2645 (1979)
- /5/ R. Krieg et al.  
Investigation Program on PWR-Steel-Containment Behavior under  
Accident Conditions, KfK 3589, Oktober 1983
- /6/ B. Göller, R. Krieg, G. Messemer, E. Wolf  
Das mechanische Verhalten von Druckwasserreaktor-Sicherheits-  
behältern bei schweren Unfällen.  
KfK-Nachrichten Jahrgang 15, 4/83
- /7/ H. Stamm, D. Munz  
Einfluß überelastischer Beanspruchung auf den Spannungsinten-  
sitätsfaktor im Fall thermischer Ermüdung.  
KfK-Bericht 3590, Oktober 1983
- /8/ K. Leinemann et al.  
Trainingsgerät für Krisensituationen.  
Die Umschau, Das Wissenschaftsmagazin Nr. 7, März 1983

- /9/ D. Smidt, H. Schnauder  
Der Faktor Mensch beim Betrieb von Kernkraftwerken mit besonderer Berücksichtigung von Krisensituationen. KfK 3274, Okt. '81
- /10/ F.J. Erbacher, H.J. Neitzel, K. Wiehr  
Effects of thermohydraulics on clad ballooning, flow blockage and coolability in a LOCA.  
4th Specialists' Meeting on Water Reactor Fuel Safety and Fission Product Release in Off-Normal and Accident Conditions, Risoe, DK, May 16-20, 1983
- /11/ S. Leistikow, G. Schanz, H.v. Berg, E.Aly  
Comprehensive presentation of extended Zry-4 steam oxidation results, 600-1600°C.  
OECD-NEA-CSNI/IAEA Specialists' Meeting on Water Reactor Fuel Safety and Fission Product Release in Off-Normal and Accident Conditions.  
Risö, May 16-20, 1983
- /12/ S. Leistikow  
Comparison of H.T. steam oxidation kinetics under LWR accident conditions: Zry-4 versus stainless steel.  
6th International Conference on Zirconium in the nuclear industry.  
Vancouver, Canada, June 28 - July 1, 1982.
- /13/ P. Hofmann, D. Kerwin-Peck  
UO<sub>2</sub>/Zry-4 chemical interactions and reaction kinetics from 1000 - 1700°C under isothermal conditions.  
KfK 3552, 1983
- /14/ P. Hofmann, D. Kerwin-Peck  
Chemical interaction of Zry-4 UO<sub>2</sub> above 1700°C.  
International Meeting on Light Water Reactor Severe Accident Evaluation.  
Cambridge, Mass., USA, August 28 to September 1, 1983.
- /15/ W. Dienst, P. Hofmann, D. Kerwin-Peck  
Chemical interactions between UO<sub>2</sub> and Zry-4 from 1000 to 2000°C.  
To be published in Nuclear Technology, 1983

- /16/ S.Hagen  
Out-of-pile experiments on the HT-behavior of Zry-4 clad fuel rods.  
6th International Conference on Zirconium in the Nuclear Industry.  
Vancouver, BC, Canada, June 28 - July 1, 1982
- /17/ S. Hagen  
Out-of-pile bundle temperature escalation under severe fuel damage conditions.  
OECD-NEA-CSNI/IAEA Specialists' Meeting on Water Reactor Fuel Safety and Fission Product Release in Off-Normal and Accident Conditions.  
Risö, Denmark, May 17-20, 1983
- /18/ S.Hagen, S.O.Peck  
Temperature escalation of Zry-clad fuel rods and bundles under SFD-conditions.  
International Meeting on Light Water Reactor Severe Accident Evaluation.  
Cambridge, Mass., USA, August 18 to September 1, 1983
- /19/ H. Borgwaldt, W. Gulden  
SSYST, a Code System for Analysing Transient LWR Fuel Rod Behavior under Off-Normal Conditions.  
KfK 3359, Juni 1982
- /20/ G.P. Marino et al.  
SCDAP: A Light Water Reactor Computer Code for Severe Core Damage Analysis. Proceedings of the International Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety.  
Chicago 1982. NUREG/CP-0027 Vol. 2
- /21/ G.Hofmann  
On the location and mechanisms of dryout in top-fed and bottom-fed particulated beds.  
5th Post Accident Heat Removal Information Exchange Meeting.  
Karlsruhe, July 28-30, 1982

- /22/ G. Hofmann, T. Schulenberg  
A quasi-steady-state approximation to the transient dryout  
behavior in debree beds.  
International Meeting on Light Water Reactor Severe Accident  
Evaluation.  
Cambridge, Mass, USA, August 28 to Sept. 1, 1983
- /23/ A. Fiege  
Severe fuel damage investigation of KfK/PNS.  
KfK 3431B, Januar 1983
- /24/ A. Fiege  
Severe fuel damage research in Germany, a review of the KfK/  
PNS program.  
International Meeting on Light Water Severe Accident Evaluation.  
Cambridge, Mass., USA, August 28 to September 1, 1983
- /25/ H. Alsmeyer, M. Peehs, D. Perinic  
Untersuchung der Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton  
in der BETA-Versuchsanlage.  
PNS-Jahreskolloquium 1982, KfK 3470 (1983) S. 195-224
- /26/ H. Rininsland  
BETA- and DEMONA-Key Experimental Programs for Validation  
and Demonstration of Source Terms in Hypothetical Accidents.  
International Meeting on Light-Water Reactor Severe Accident  
Evaluation, Aug. 28 - Sept. 1, 1983, Cambridge, Mass. USA  
Seite 12.3.1 - 12.3.7
- /27/ H. Albrecht  
Aktivitätsfreisetzung und Aerosolbildung beim LWR-Kernschmelzen.  
PNS-Jahreskolloquium 1983, KfK 3670 (1984)
- /28/ H. Bunz, M. Koyro, W. Schöck  
NAUA Mod. 4, KfK 3554 (1983)
- /29/ J.P. Hosemann, K.H. Neeb, J. Wilhelm  
Neue Bewertung der Freisetzung und des Transports von Jod bei  
schweren Reaktorstörfällen.  
Jahrestagung Kerntechnik 1983, Berlin 14 - 16.6.83

- /30/ K. Hassmann, J.P. Hosemann  
Cosequences of Degraded Core Accidents  
7th Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology  
(SMIRT-7), Chicago, Ill., Aug. 22-26.8.83
- /31/ H. Pasler, H.-G. Dillmann  
Untersuchungen an Tiefbett-Metallfaserfiltern.  
Jahrestagung Kerntechnik 1983, Berlin 14 - 16.6.83
- /32/ V. Rüdinger, J. Wilhelm  
Zum Verhalten von Schwebstofffiltern unter hoher Differenz-  
druckbelastung.  
PNS-Jahreskolloquium 1982, KfK 3470, S. 225-260
- /33/ H. Schüttelkopf, M. Pimpl  
Radioökologische Untersuchungen zum Verhalten der Aktiniden  
in der Umwelt.  
PNS-Jahreskolloquium 1982, KfK 3470, S. 261-278

- Beanspruchung von Reaktorkomponenten im Reaktordruckbehälter
- Beanspruchung und Versagensart des Sicherheitsbehälters
- Thermoermüdung und Thermoschockverhalten von Reaktorkomponenten
- Thermo- und fluiddynamische Analysen

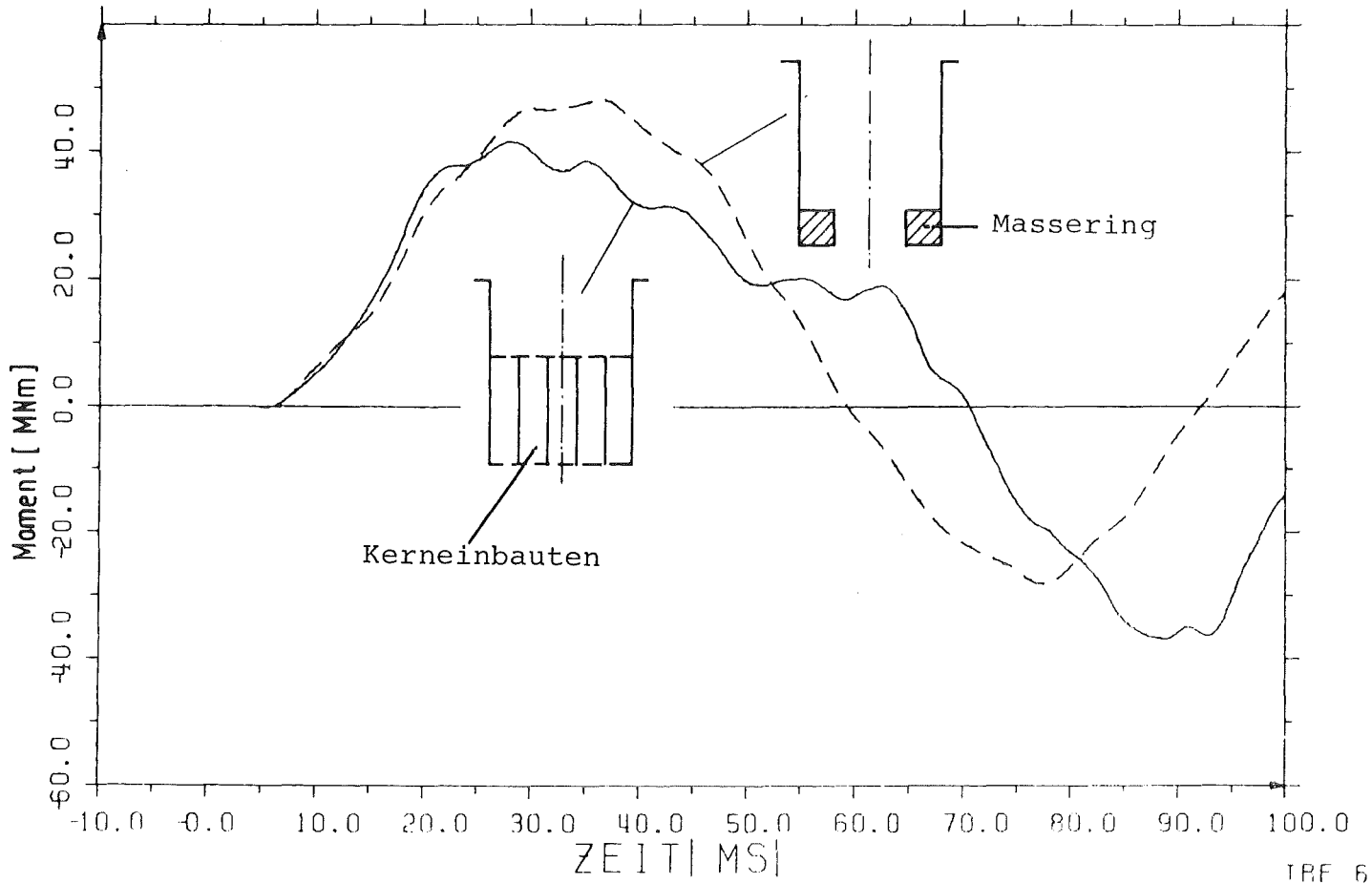
---

ABB. 1



# Verhalten von Reaktorkomponenten bei Störfällen

---

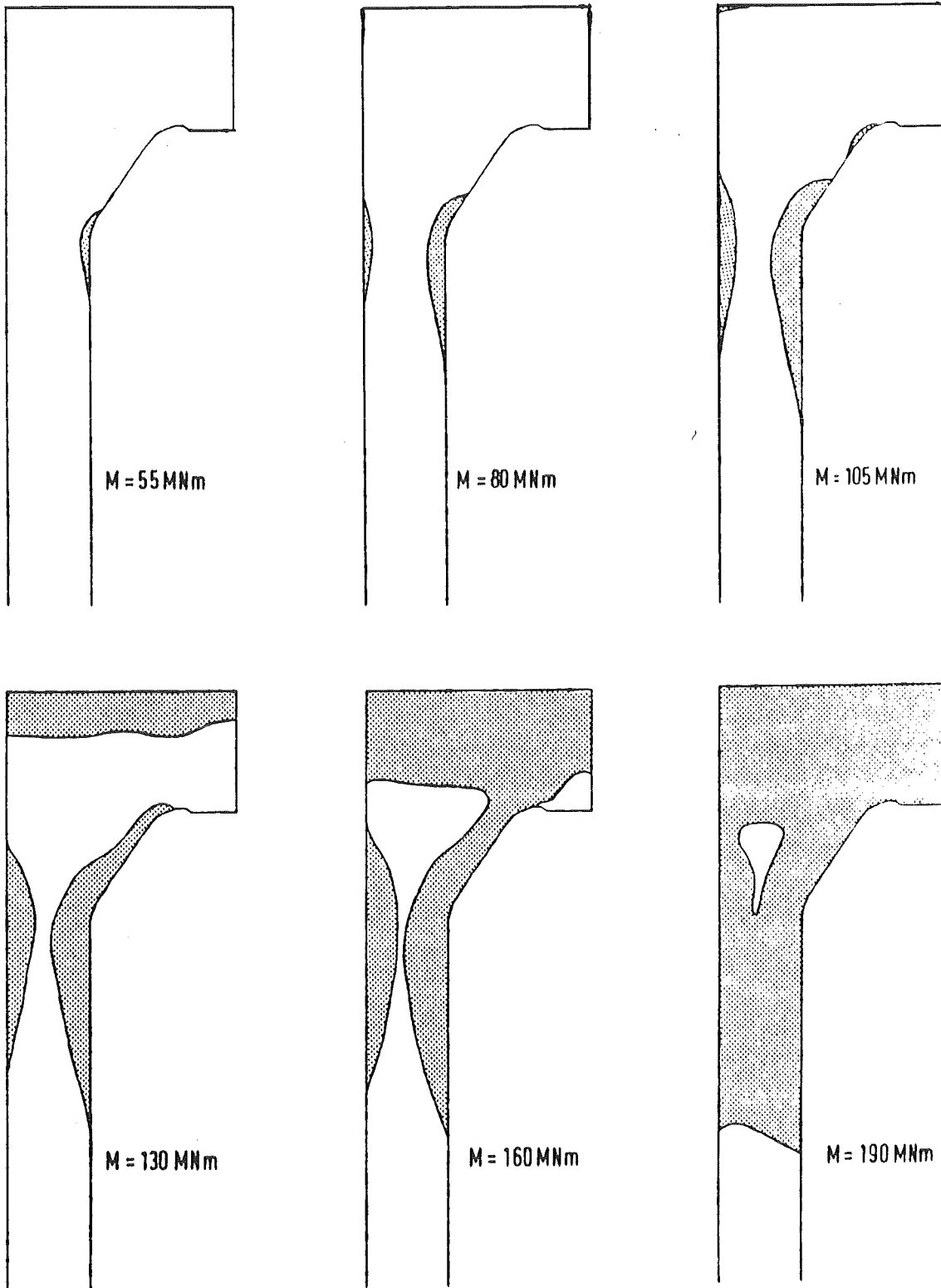


TRF 6

ABB. 2

### Beanspruchung der Kernbehältereingspannung





KfK

ABB. 3

PLASTISCHE VERFORMUNGEN AN DER EINSpanNUNG DES KERNBEHÄLTERS

- Verhalten des Sicherheitsbehälters bei quasi-statischem Anstieg des Innendrucks bis zum Versagen
- Verhalten des Sicherheitsbehälters bei schnellem Anstieg des Innendrucks
- Schwingungen des Sicherheitsbehälters bei Erdbebenbelastung  
Berücksichtigung von Imperfektionen
- Lokales Beulen des Sicherheitsbehälters bei Erdbebenbelastung

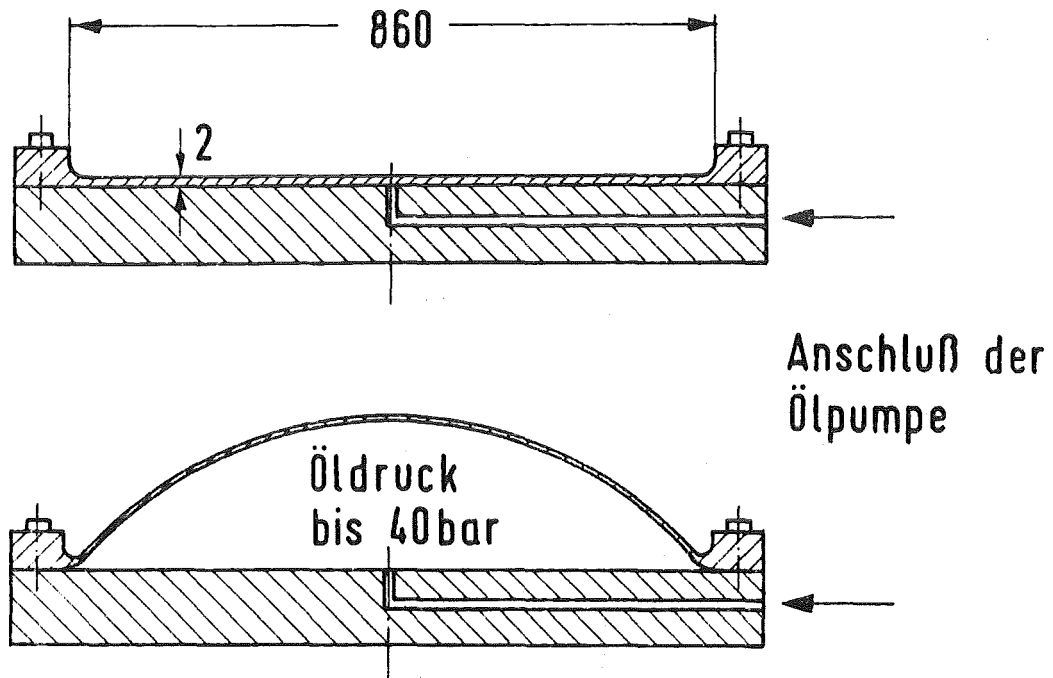


ABB. 5

MATERIALVERHALTEN BEI ZWEIACHSIGEM MEMBRANVERSUCH

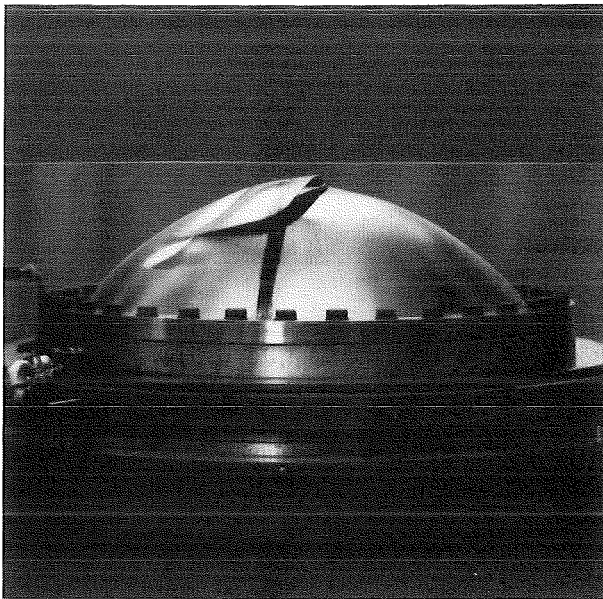


ABB. 6

VERSAGTE MEMBRAN MIT MEHR ALS 50% VERGLEICHSDEHNUNG

- **Entwicklung des Rechenprogramms ROTMEM**  
Ermittlung großer plastischer Deformationen einschließlich des Versagens durch plastische Instabilität in der Nachbarschaft von verdickten Ronden
- **Verifikation von ROTMEM**  
an Membranversuchen bei KfK und Modellversuchen im Sandia Lab.
- **Untersuchung des Werkstoff-Verhaltens**  
bei zweiachsiger Beanspruchung mit Hilfe von Membranversuchen
- **Ergänzende Untersuchungen zum Werkstoff-Verhalten**  
anhand einachsiger Zugversuche mit verschiedenen Querschnittsformen und bei verschiedenen Temperaturen
- **Experimentelle Untersuchung der Schraubverbindung zwischen der Sicherheitsbehälter-Schale und der Materialschleuse**



ABB. 7

**Verhalten des Sicherheitsbehälters bei quasi-statischem Anstieg des Innendrucks bis zum Versagen**

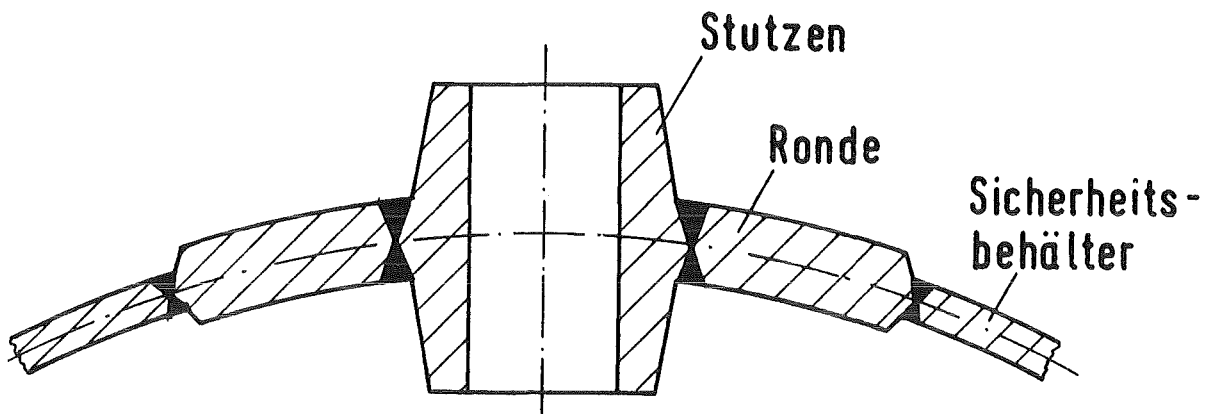


ABB. 8

DURCHFÜHRUNG DURCH DEN SICHERHEITSBEHÄLTER

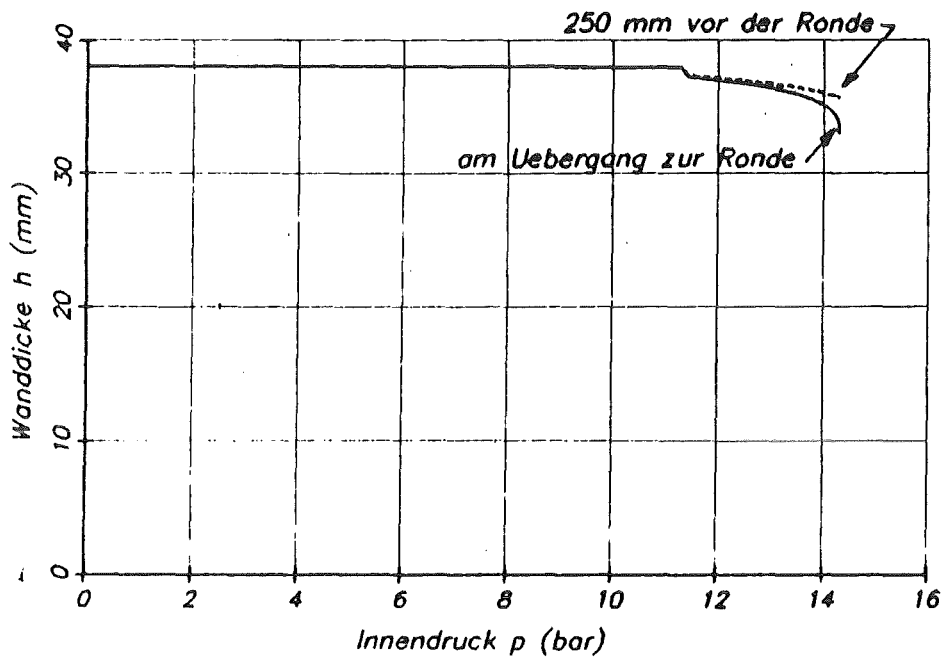


ABB. 9

ABNAHME DER WANDDICKE DES SICHERHEITSBEHÄLTERS

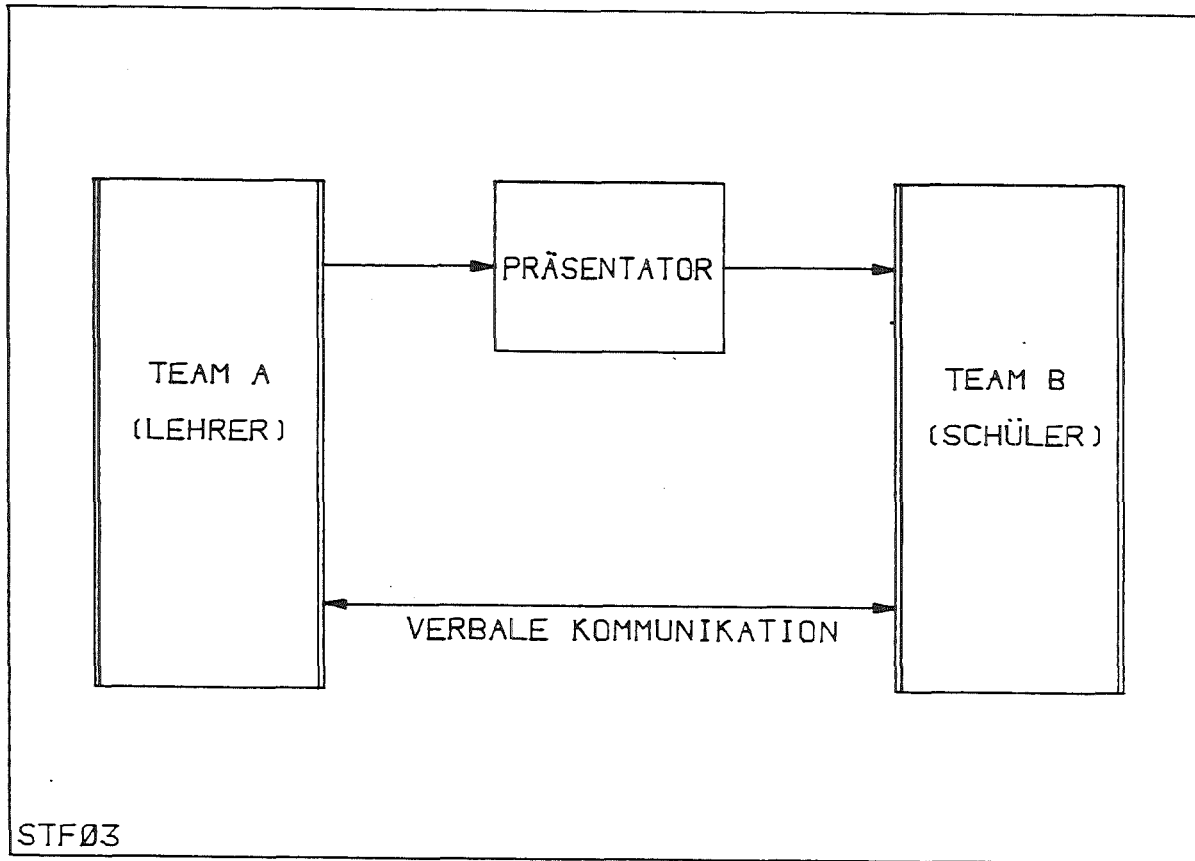


ABB. 10

TRAININGSKONZEPT DES REAKTOR-STÖRFALLTRAINERS



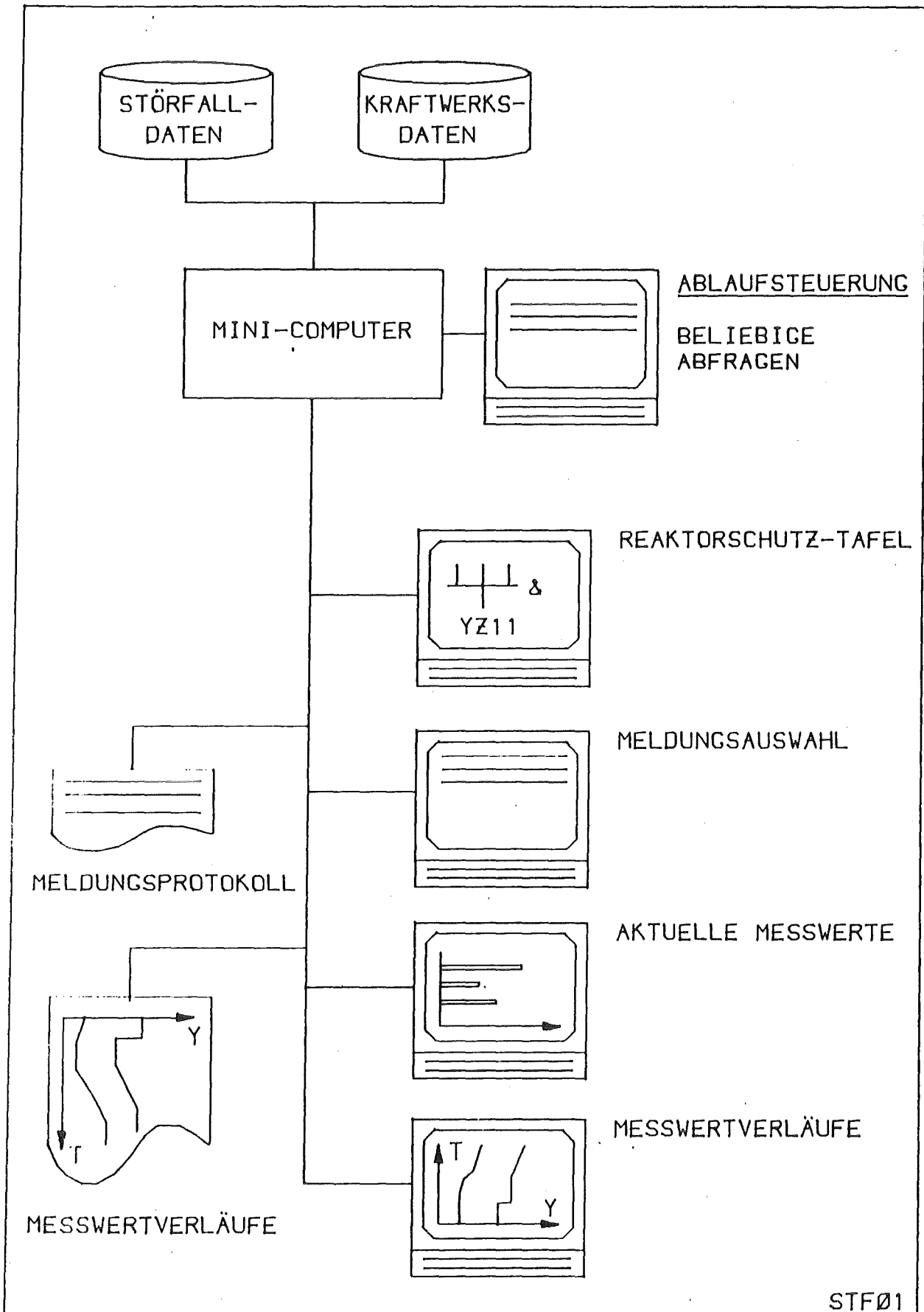
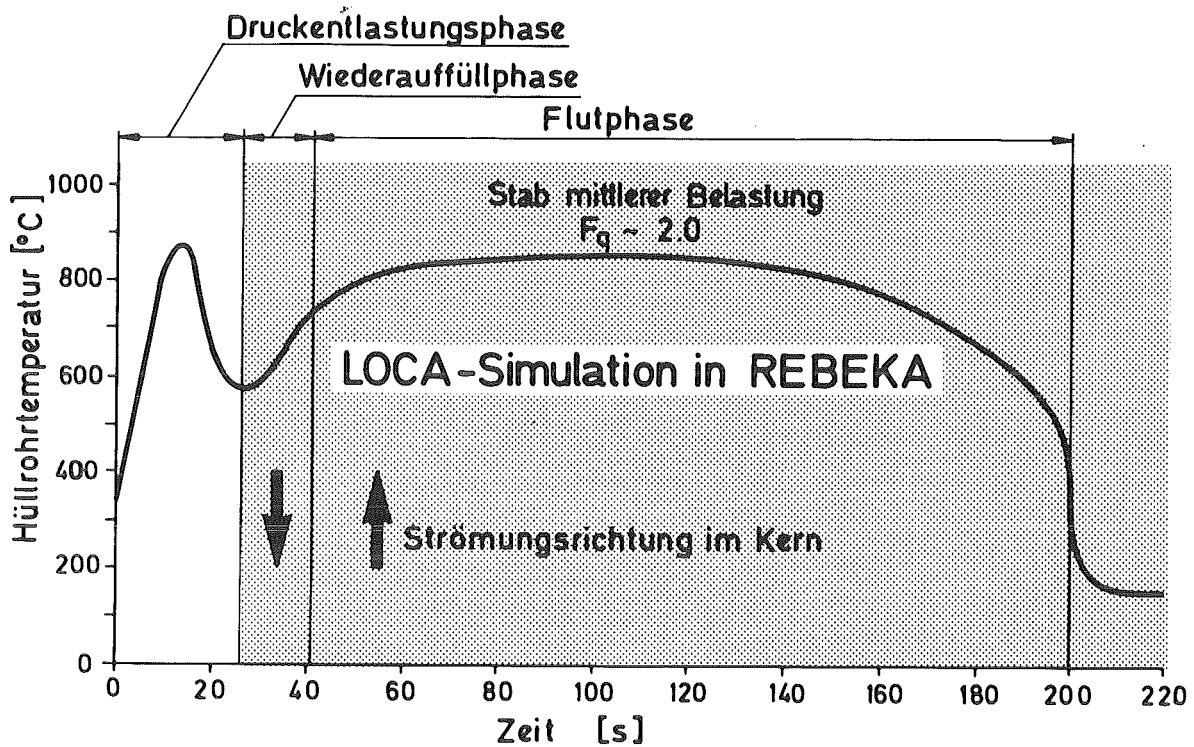


ABB. 11

STÖRFALLDATEN-AUSGABE DES STÖRFALL-TRAINERS



- Heliuminnendruck im Stab 70 bar
- Nachwärmeleistung in Stabmitte 20 W/cm
- Wärmeübergang durch abwärtsgerichtete Dampfströmung in Wiederauffüllphase 30 W/m<sup>2</sup>K
- Kalte Flutrate (Zwangsluten) 3 cm/s
- Flutwassertemperatur 130°C
- Systemdruck 4 bar
- Max. Hüllrohrtemperatur zu Flutbeginn (Testparameter) 750-850 °C

➔ Hüllrohrtemperatur- u. Innendruckverläufe sind das automatische Ergebnis aus Nachwärmeleistung, Kühlung sowie Hüllrohrverformung.



ABB. 12

## REBEKA-Bündelversuche

Versuchsführung und Versuchsbedingungen

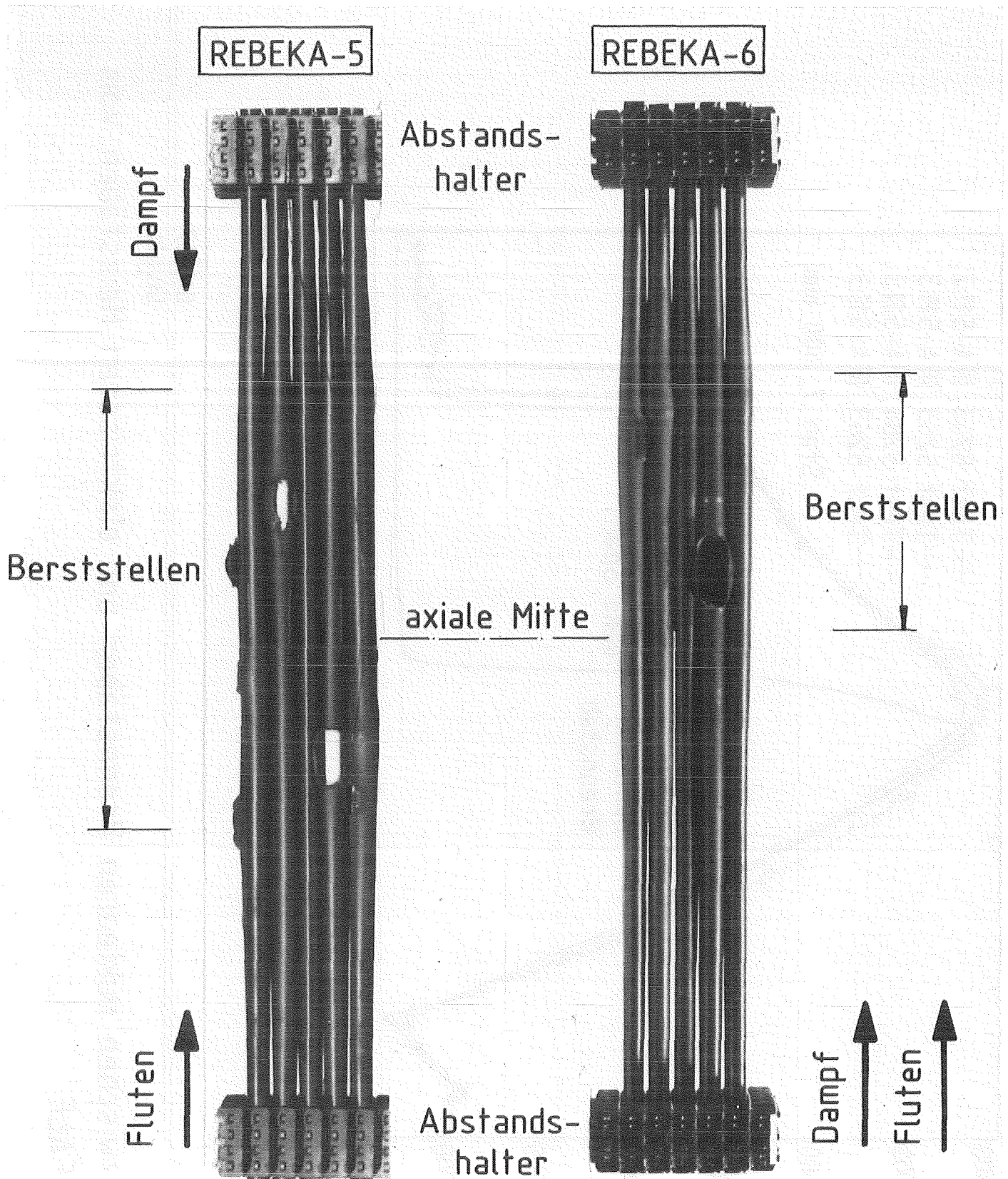


ABB. 13



Einfluß der Strömungsrichtung auf die Hüllrohrverformung

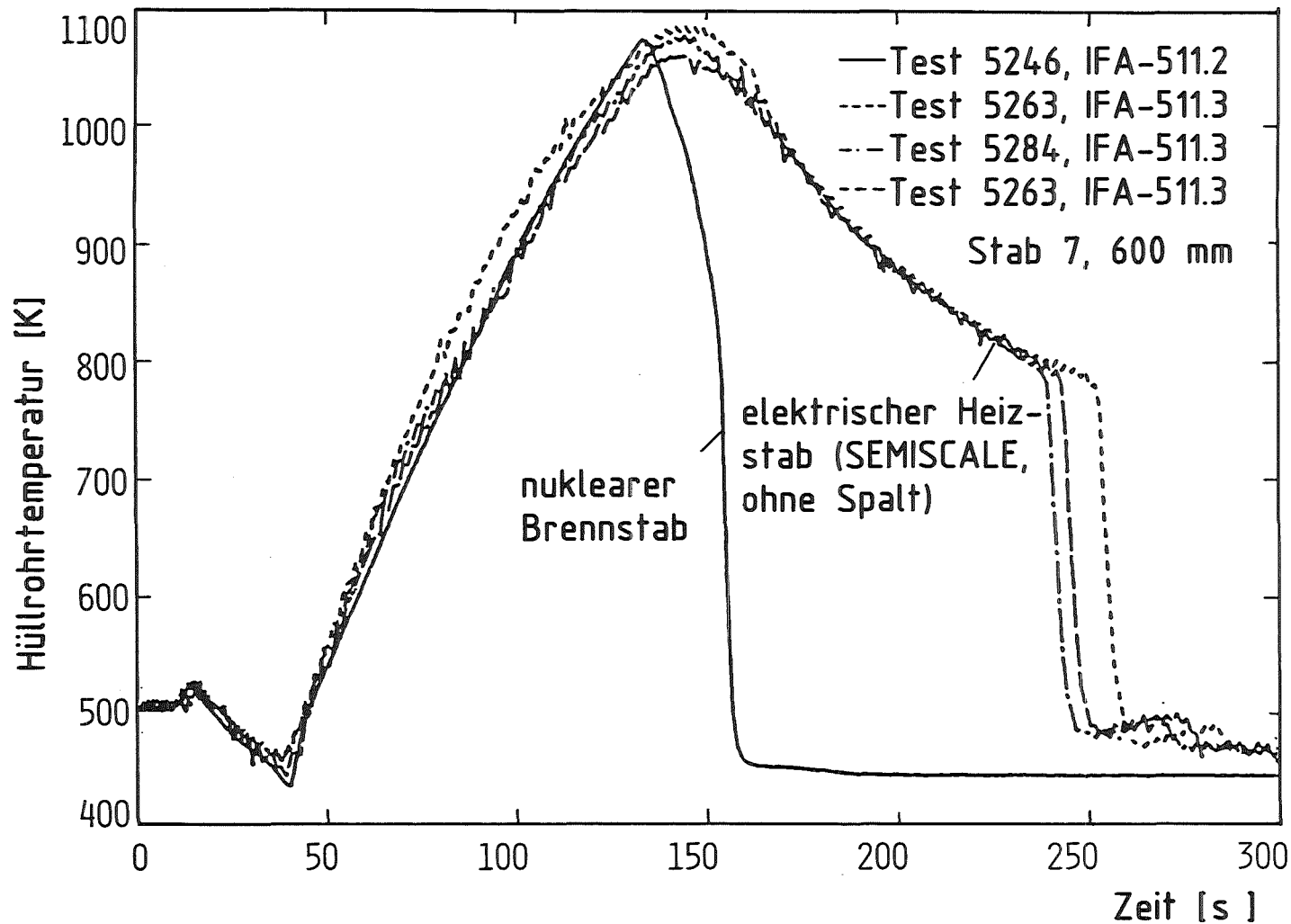


ABB. 14



Vergleich zwischen nuklearen Brennstäben und elektrischen Heizstäben vom Typ SEMISCALE

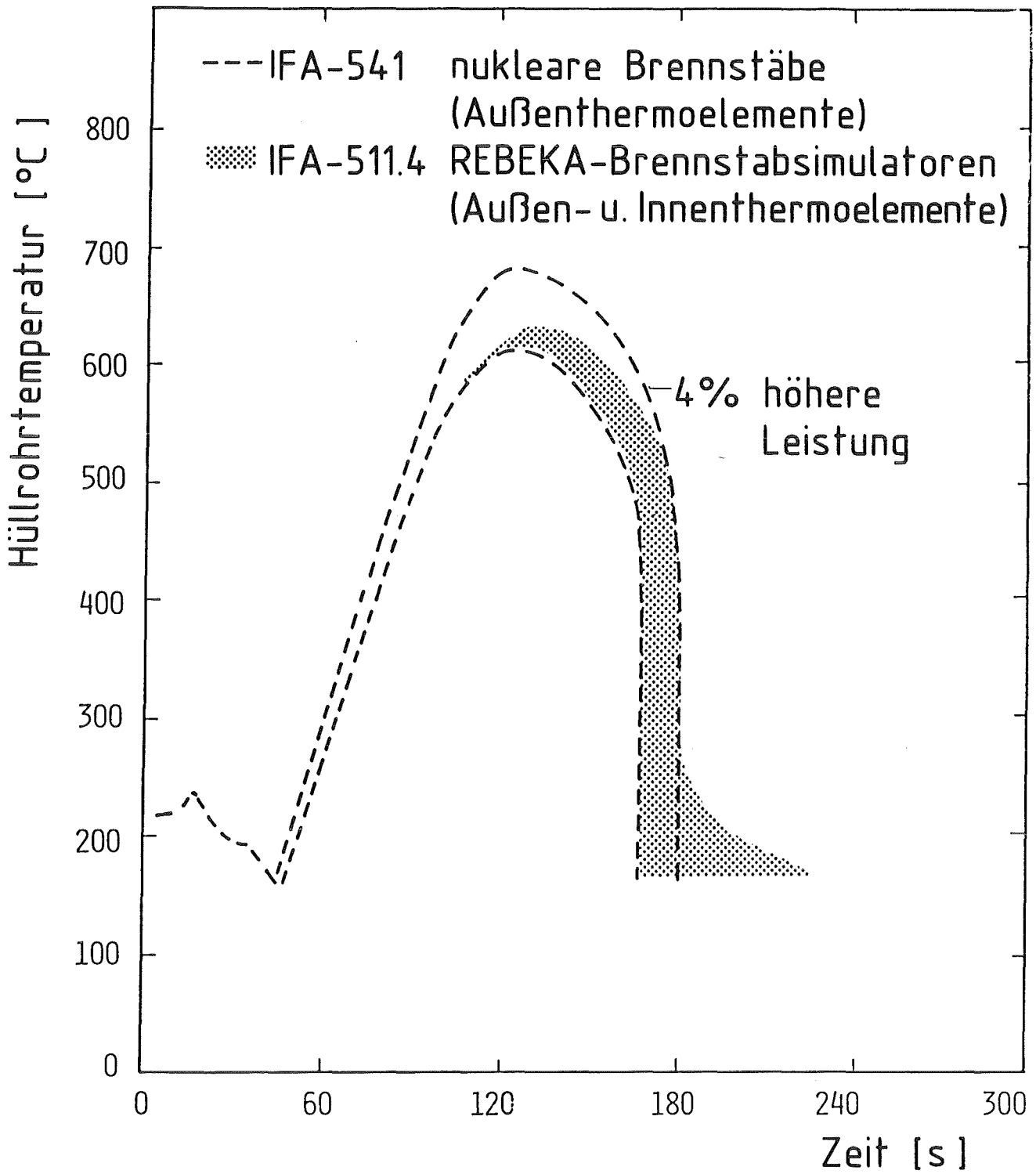


ABB. 15



Vergleich zwischen nuklearen Brennstäben und elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren

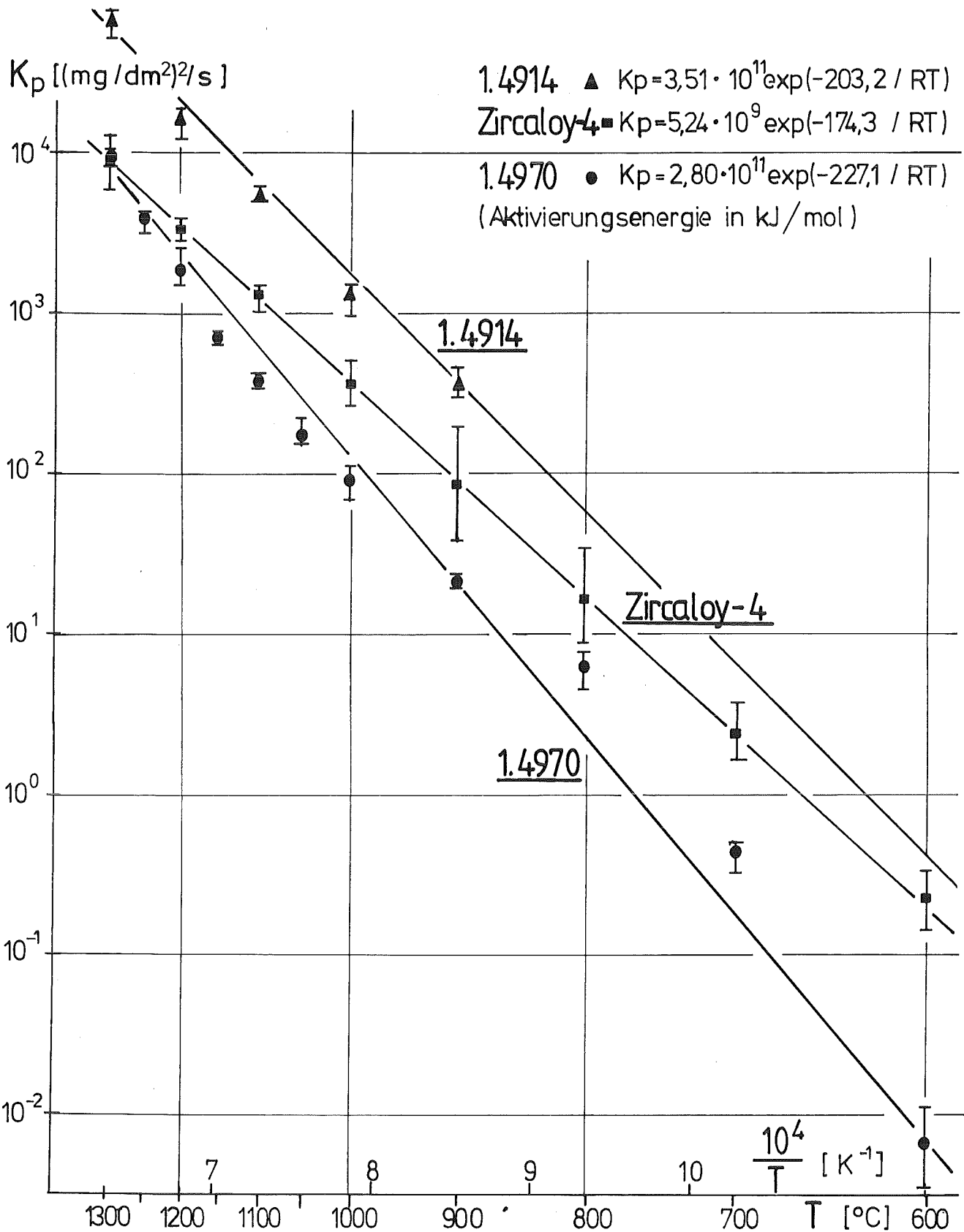


ABB. 16

Arrhenius-Diagramm der Massenzunahme von Stählen und Zircaloy-4 bei Hochtemperatur-Dampfoxidation

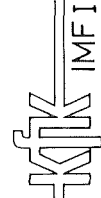
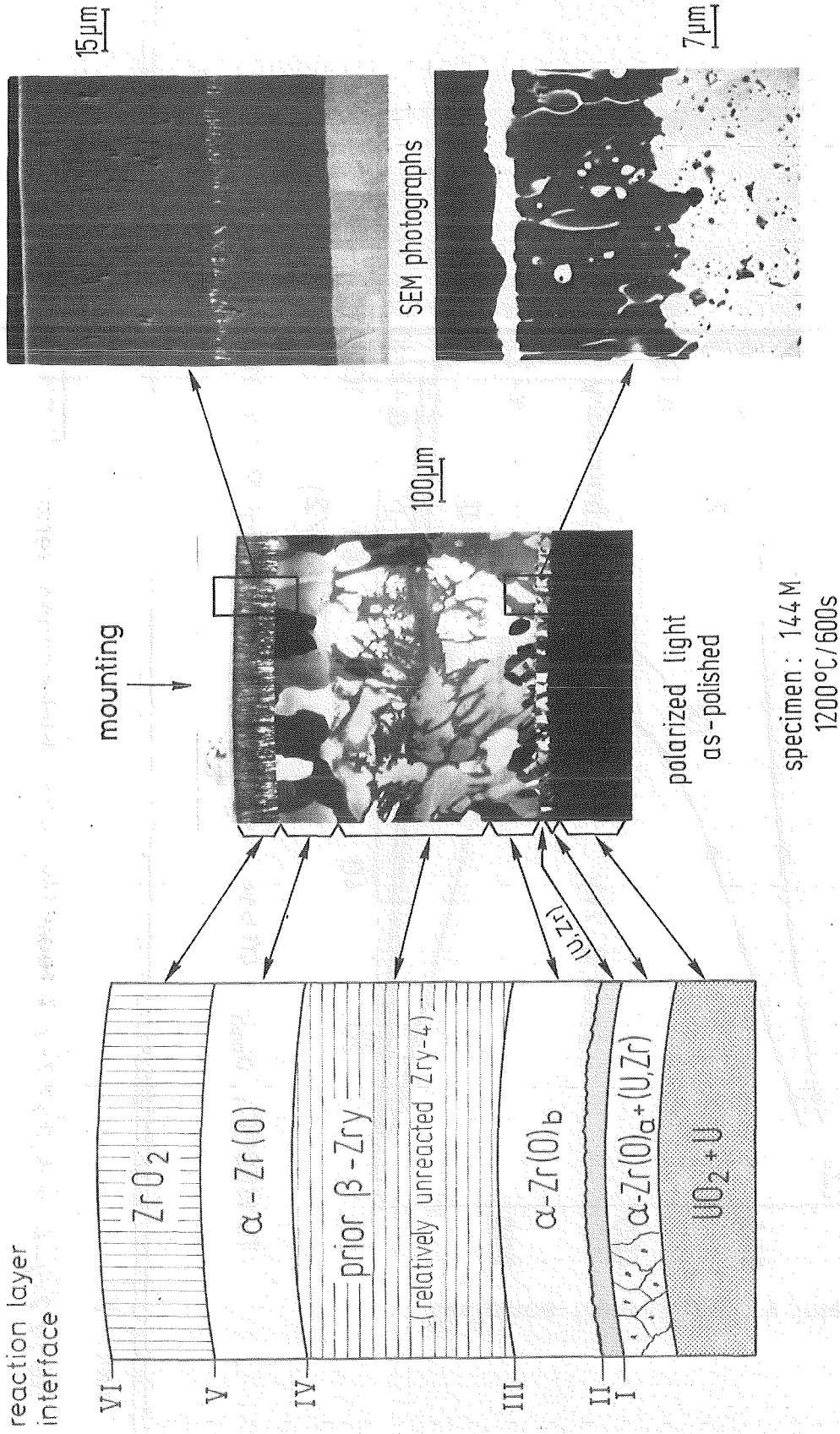
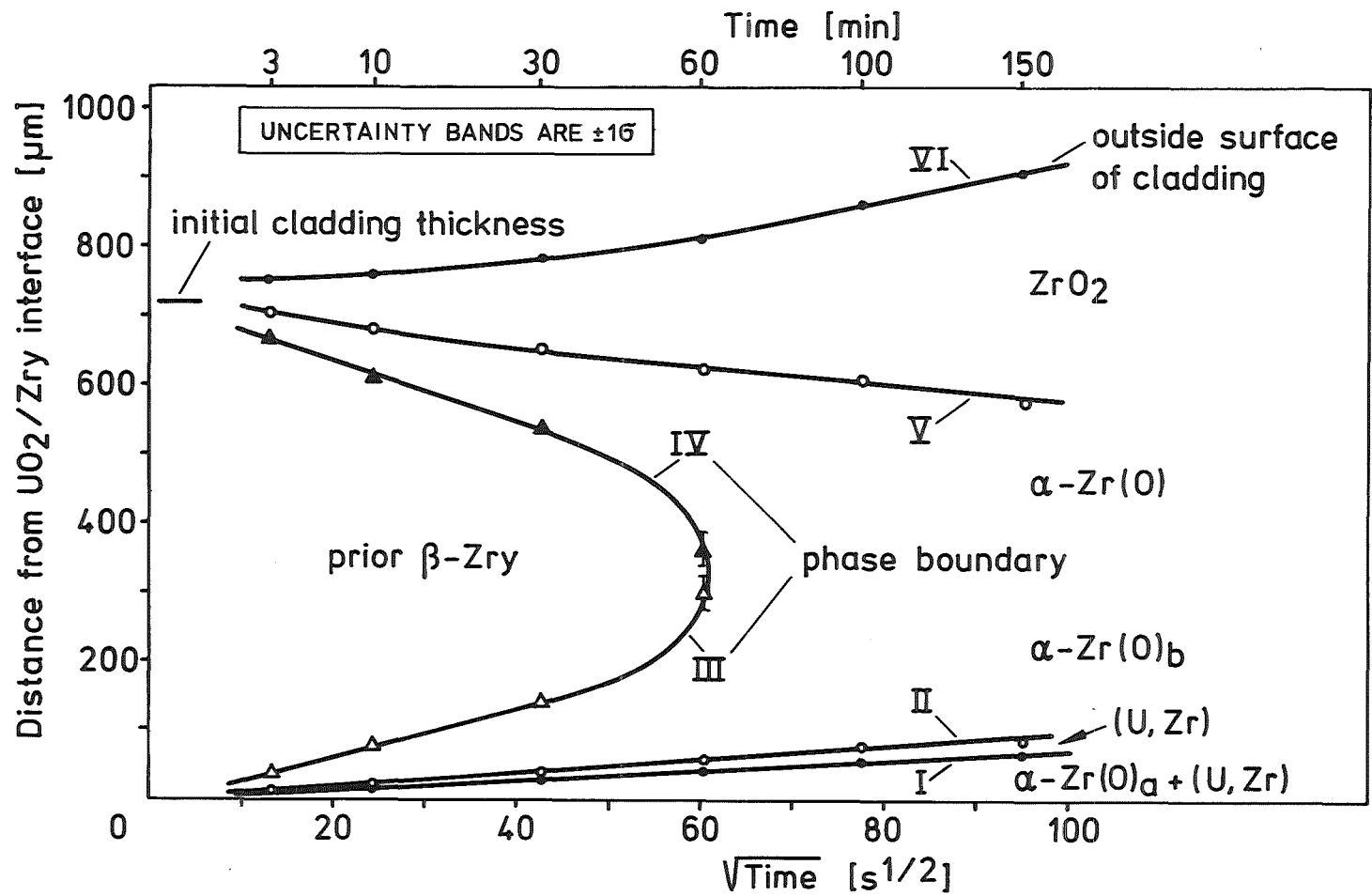


ABB. 17

Sequence of the external O<sub>2</sub>/Zry-4 and internal UO<sub>2</sub>/Zry-4 interaction layers



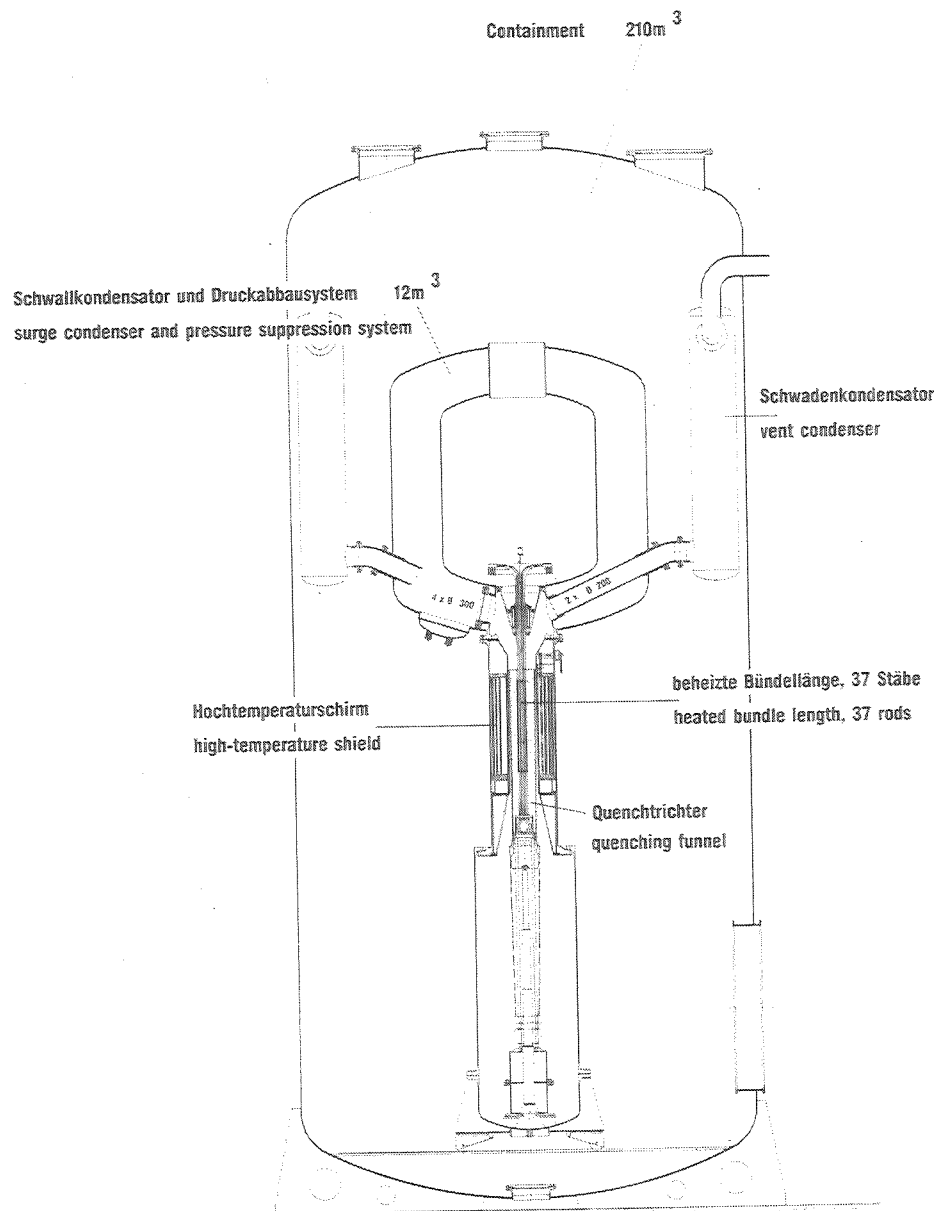
T = 1100 °C; P<sub>ext.</sub> = 40 bar; atmosphere = Ar + 25 vol.% O<sub>2</sub> (1.8 g O<sub>2</sub>/h)



ABB. 18

UO<sub>2</sub>/Zry-4 and O<sub>2</sub>/Zry-4 reaction zone thicknesses versus  $\sqrt{\text{time}}$  at 1100 °C.





Montagestand August 1983



Severe fuel damage - Versuchsanlage CORA

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT PNS

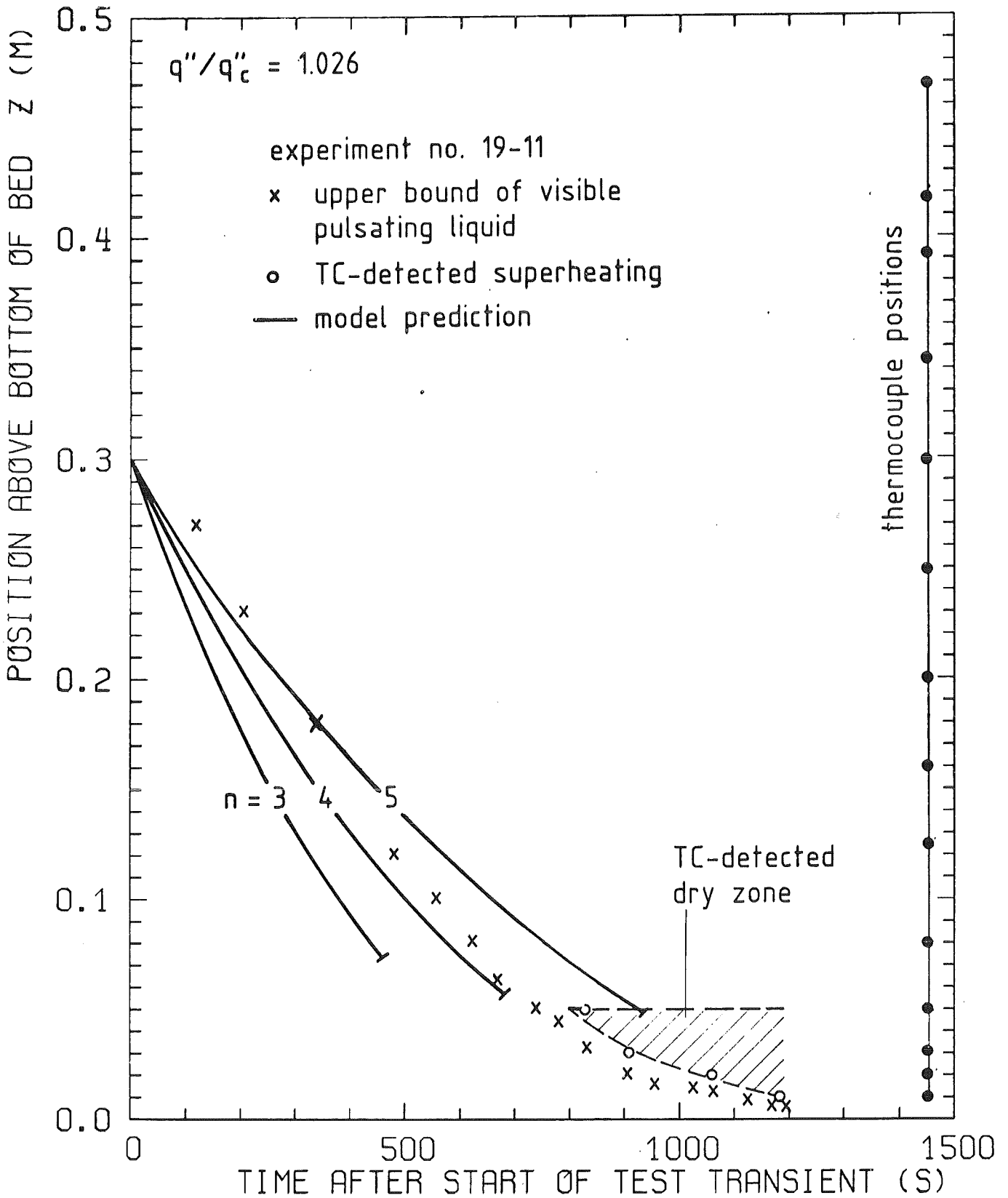
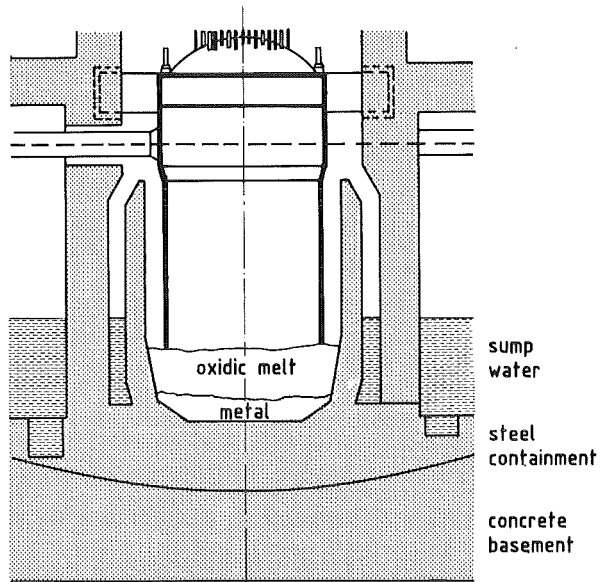


ABB. 20



Experimentally observed pre-dryout transient  
and model predictions



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

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

initial temperature of melt is  $2400^\circ\text{C}$



ABB. 21 : Starting Condition of Molten Core/Concrete Interaction

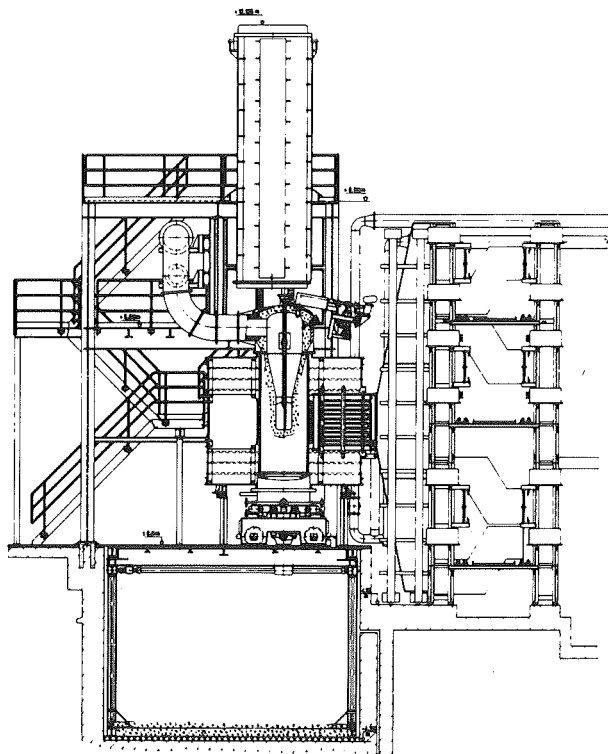
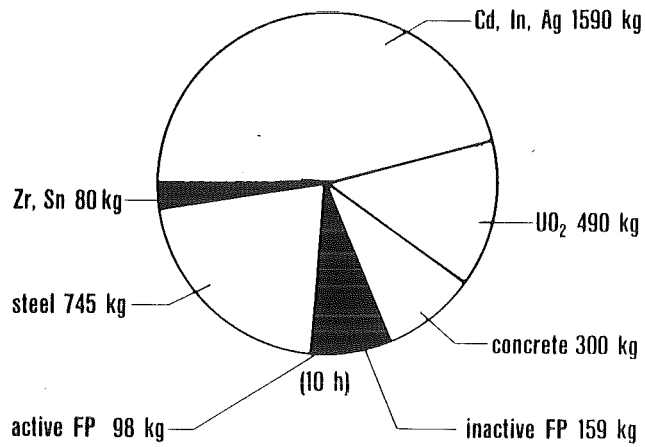


ABB. 22

BETA-Melt Facility

— 98 —  
 $t_{AB} = 1000 \text{ d}$   
 burn up = 37 GWd/t  
 fuel = 100 t  $\text{UO}_2$



$\Sigma: 3.46 \text{ t}$

ABB. 23: Integral Particle Mass Released into the Containment

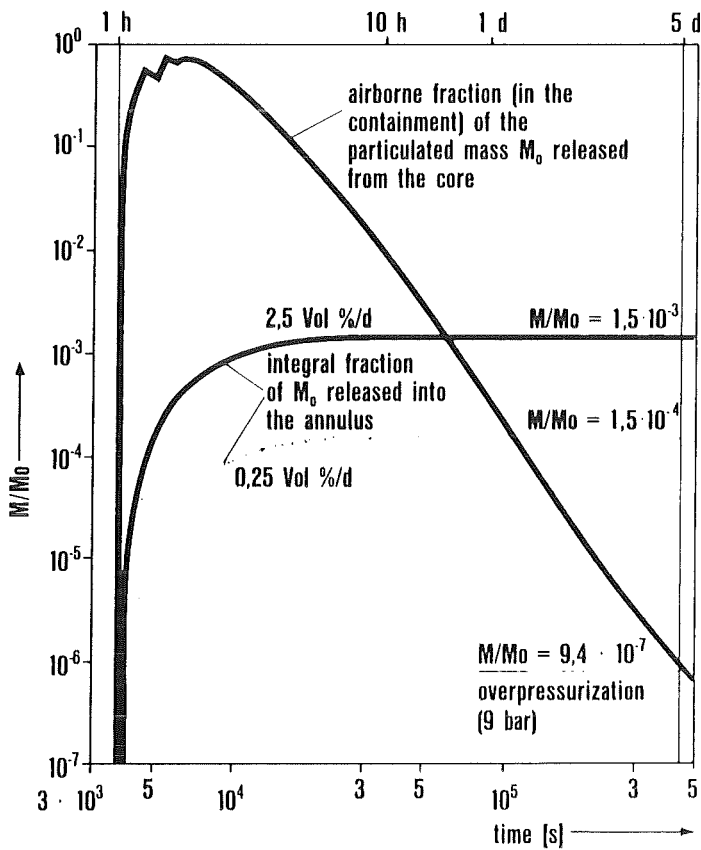
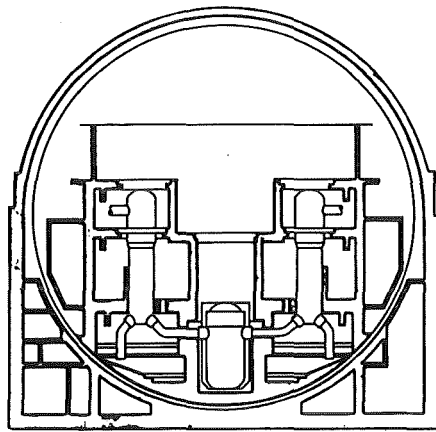


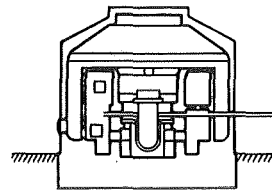
ABB. 24

FK6 (low pressure path): Aerosol Particles in the Containment  $M_0 = 3,46 \text{ t}$  (2,6 % Radioactive)

containment



model containment



linear scale 4 : 1



ABB. 25 : **Sizes of Biblis A and the Model Containment**

1. Kalibrierversuch, Thermodynamiktest ohne Aerosol
2. Trockenversuch, ohne Dampf
3. Basisversuch, FK6-analog
4. Versuch mit schwacher Aerosolquelle
5. Versuch mit transienter Thermodynamik
6. Versuch mit komplexer Geometrie
- 7.-9. Reserve, falls erforderlich
10. Demonstrationsexperiment

ABB. 26 :

## **DEMONA Versuchsmatrix**

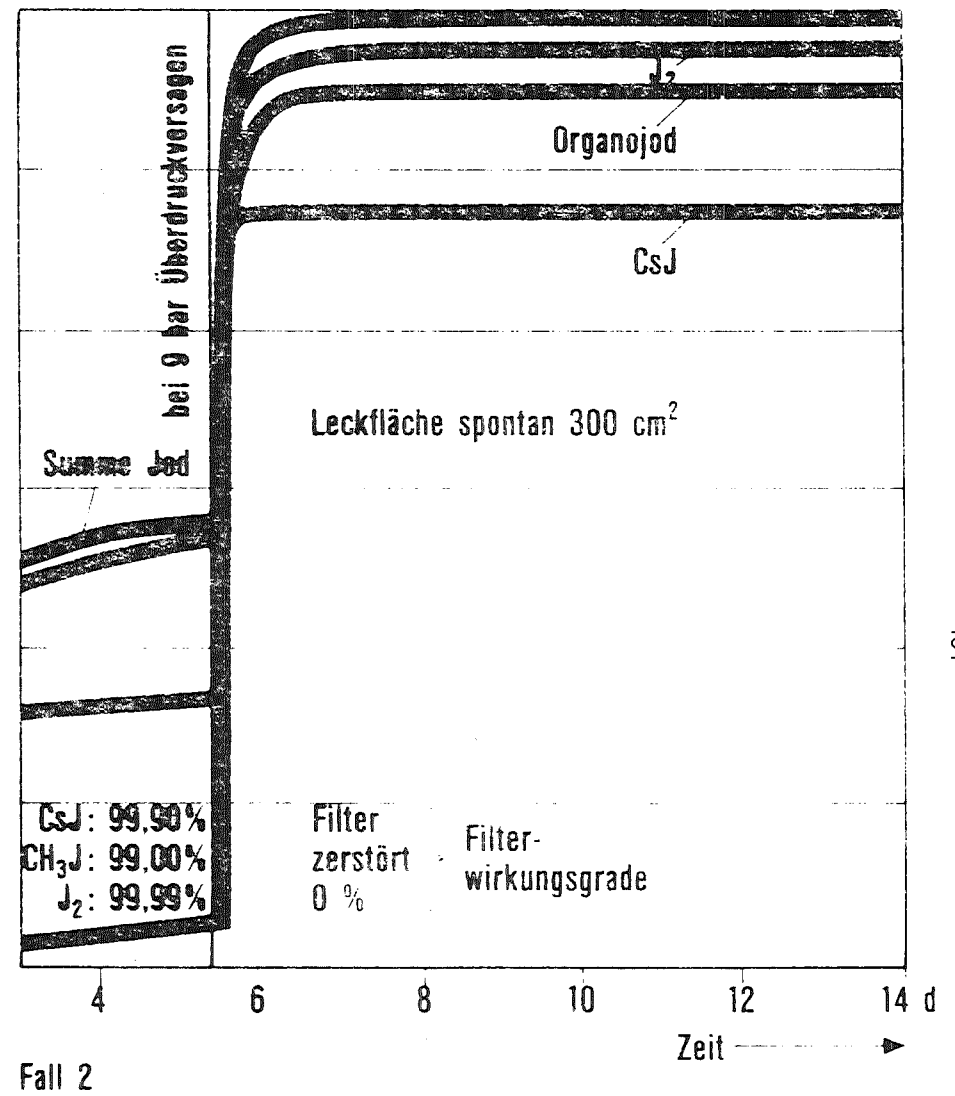
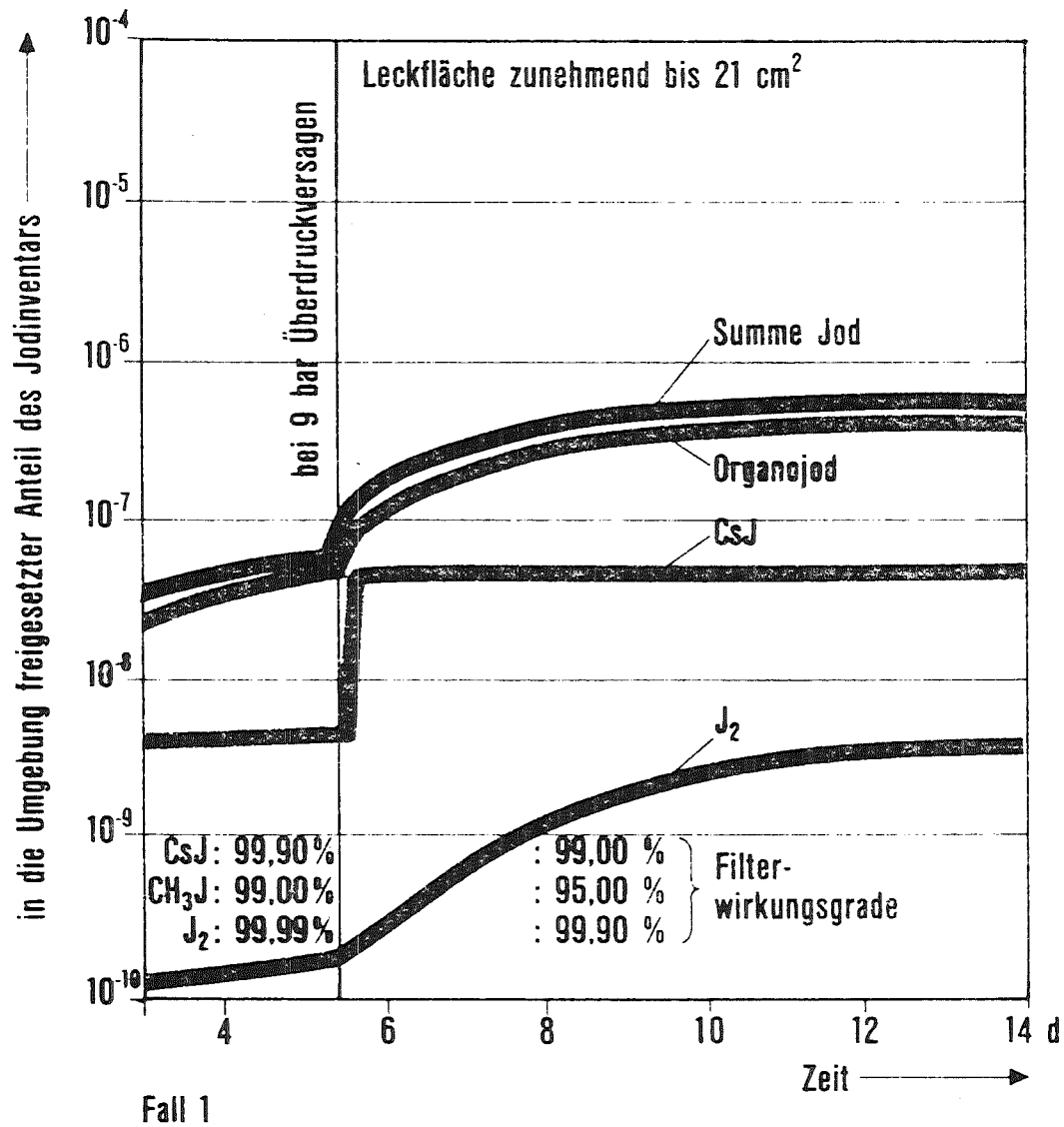


ABB. 27

1300 MWe DWR: Jodfreisetzung (mol J<sup>0</sup>); Leckage vor SB-Versagen: 0,25 Vol. %/d

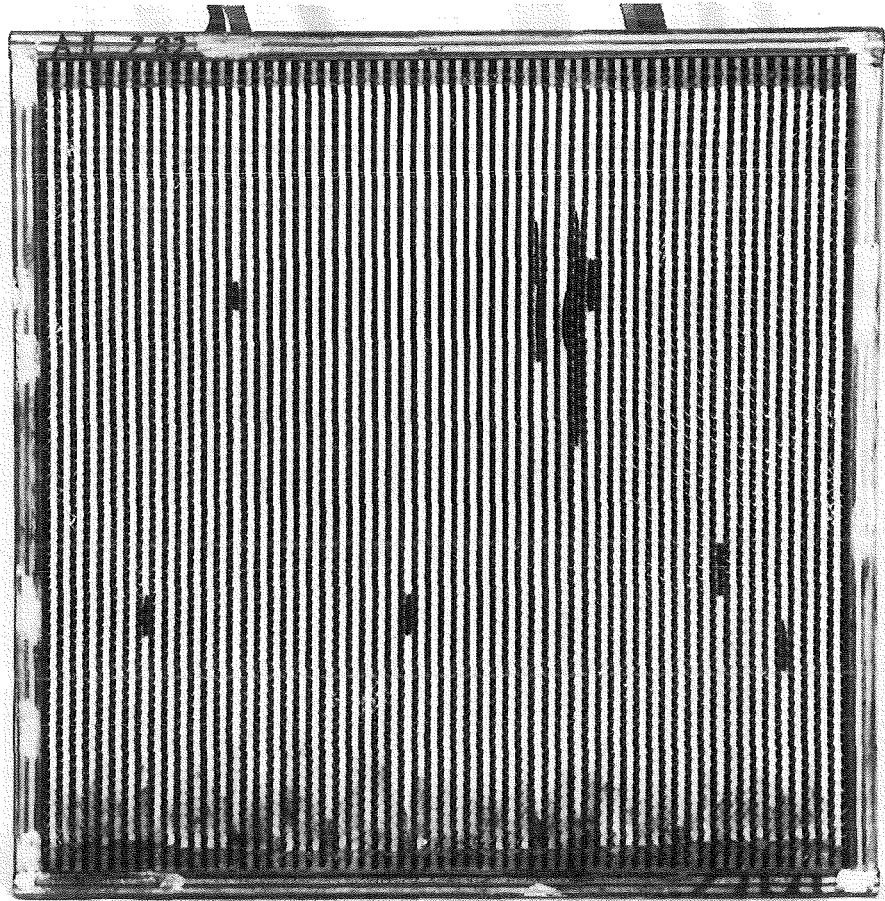


ABB. 28: BESCHÄDIGTE ABSTRÖMSEITE EINES  
SCHWEBSTOFFFILTERS NACH FEUCHTEVERSUCH



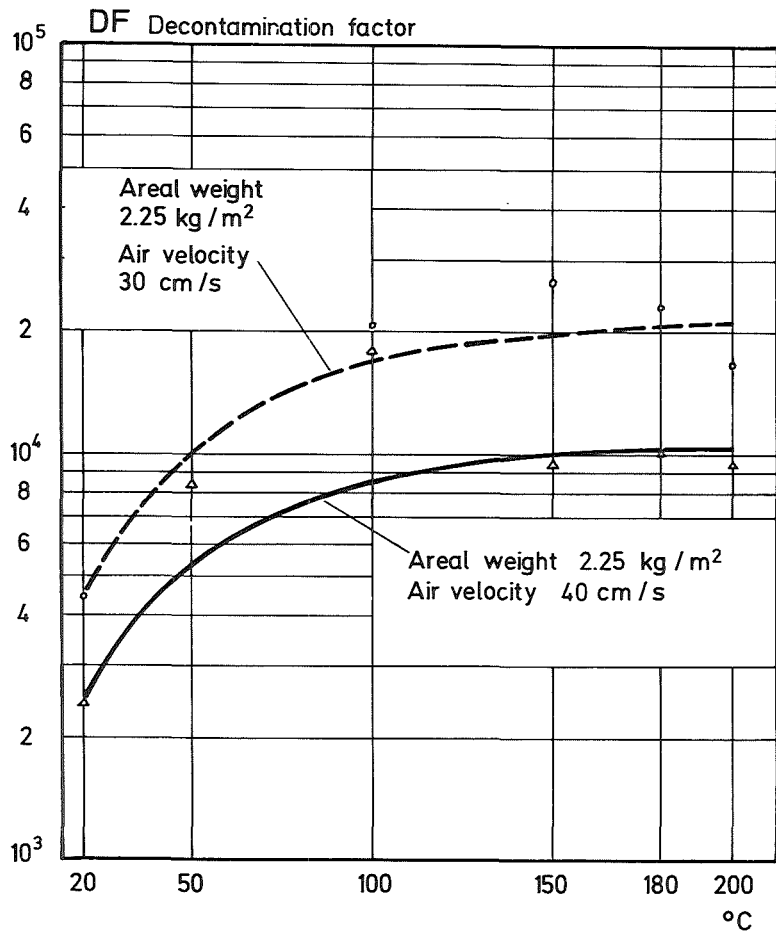


ABB. 29 DECONTAMINATION FACTOR AS A FUNCTION OF THE OPERATING TEMPERATURE OF A STAINLESS STEEL 2 μm FIBER FILTER

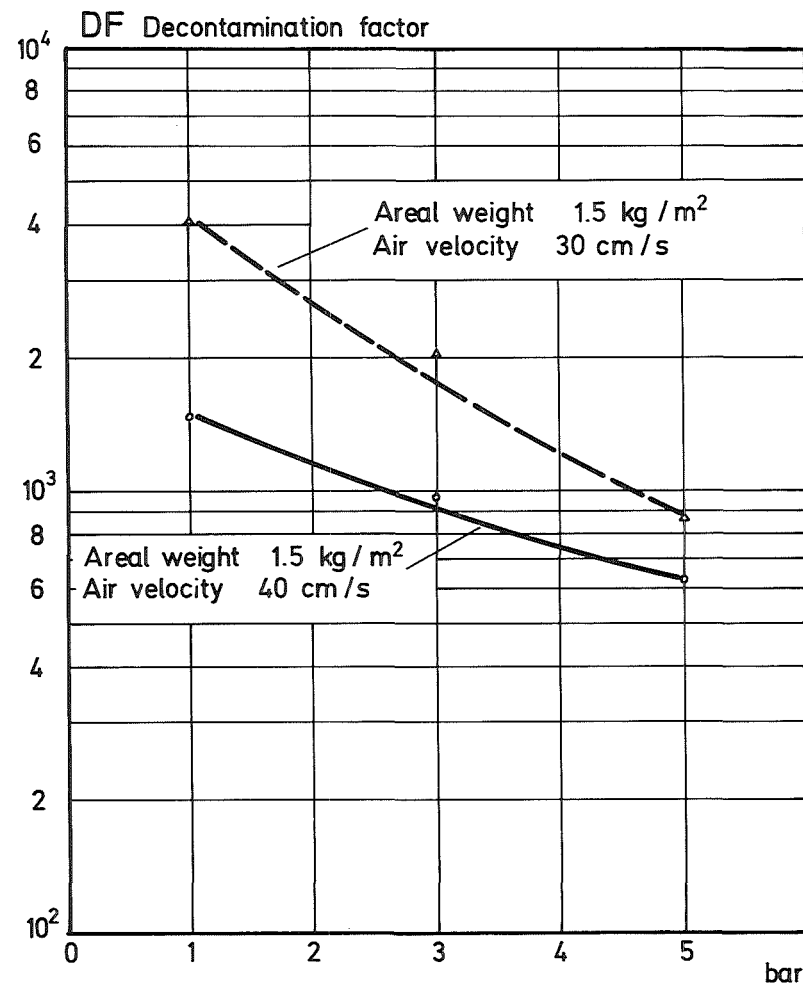


ABB. 30 DECONTAMINATION FACTOR OF 2 μm FIBER FILTERS AS A FUNCTION OF THE OPERATING PRESSURE AT 30 °C



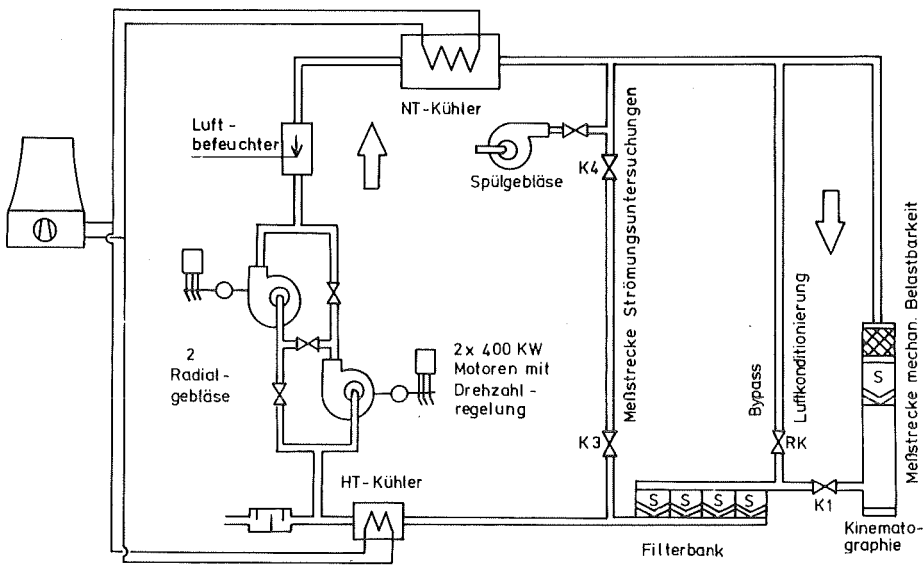


ABB. 31 SCHEMA DER FILTERPRÜFANLAGE BORA

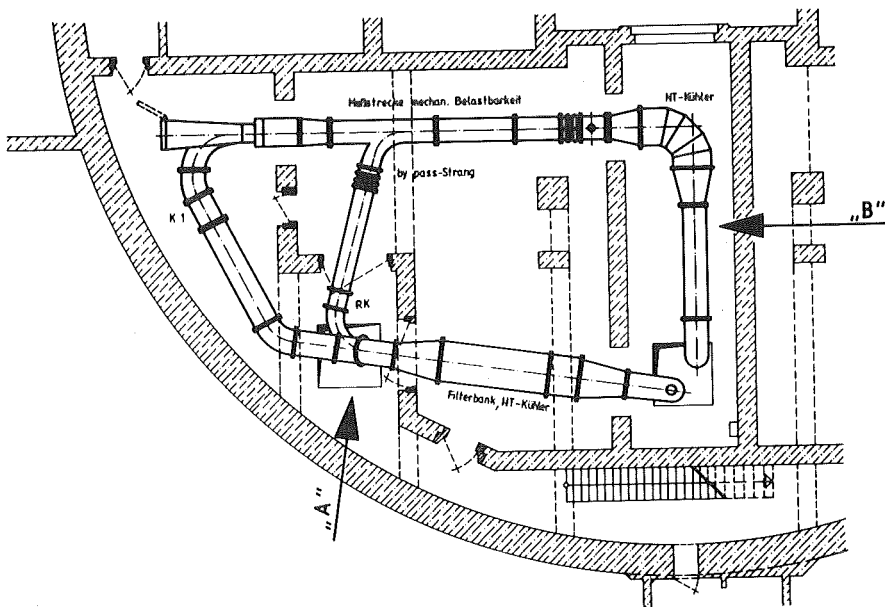


ABB. 32 ANPASSUNG DER ANLAGE BORA AN DIE RÄUME DES FR2

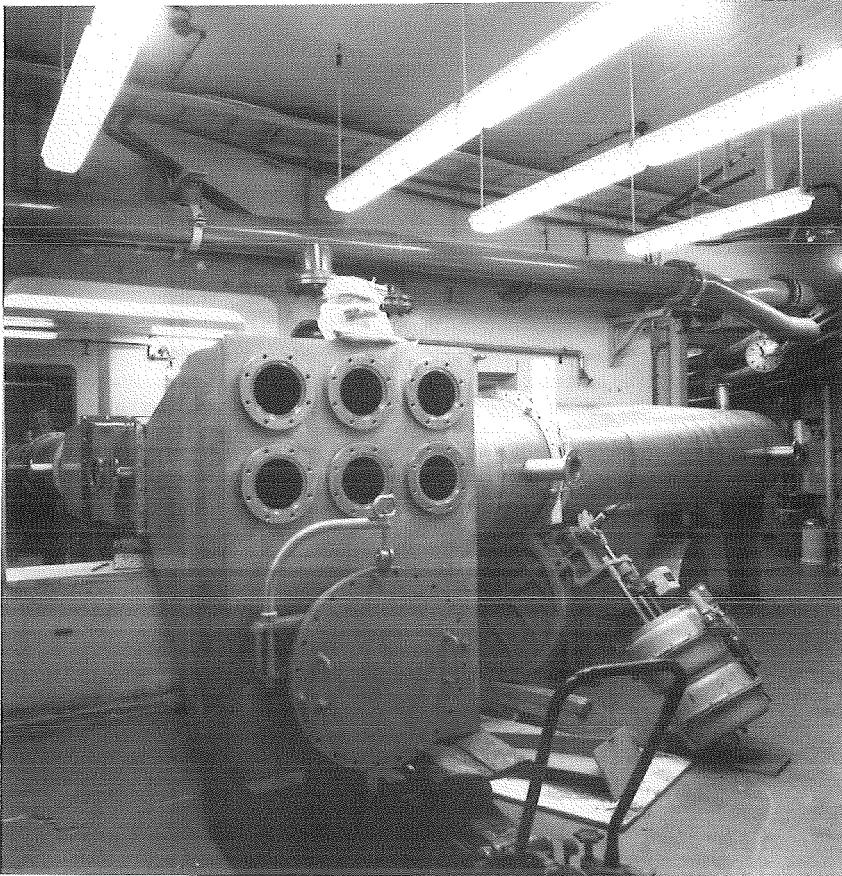


ABB. 33: PRÜFANLAGE BORA  
MESSSTRECKE MECHAN. BELASTBARKEIT UND TEILE DES  
KANALSYSTEMS WÄHREND DER MONTAGEPHASE

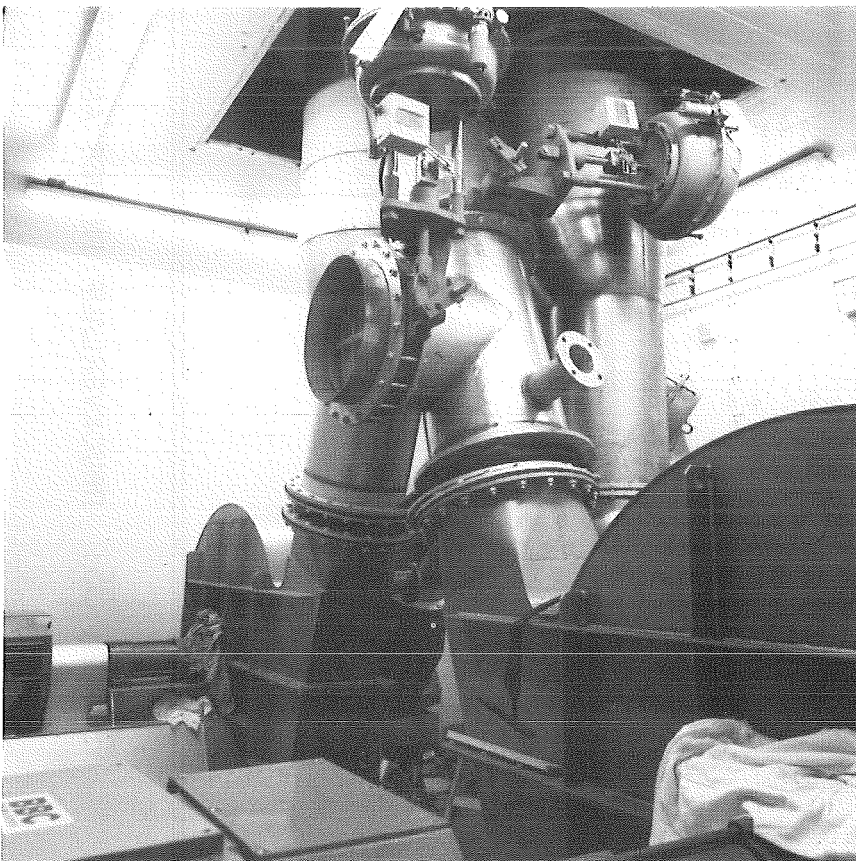


ABB. 34: PRÜFANLAGE BORA  
BEIDE RADIALGEBLÄSE MIT VERROHRUNG WÄHREND DER MONTAGEPHASE

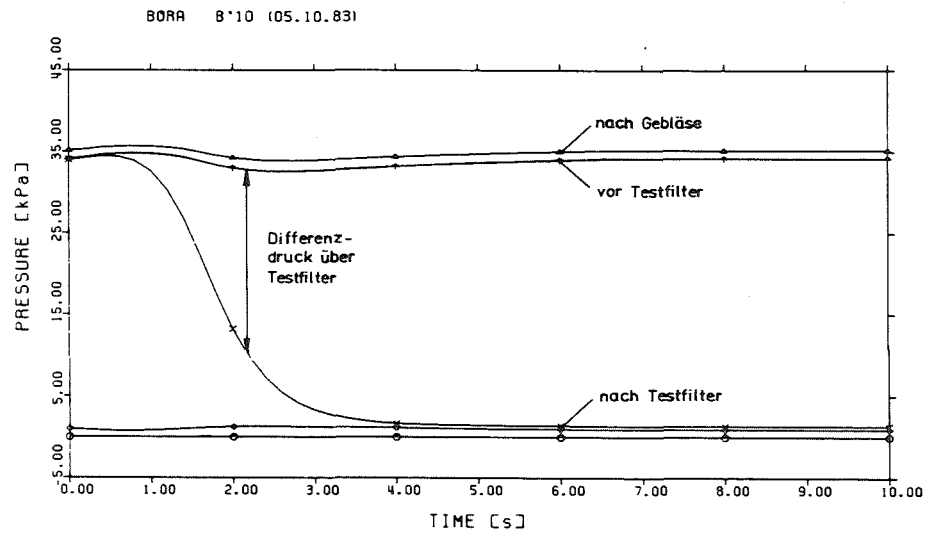


ABB. 35: DRUCKVERLAUF IN DER ANLAGE BORA, BERECHNET MIT TVENT NEU

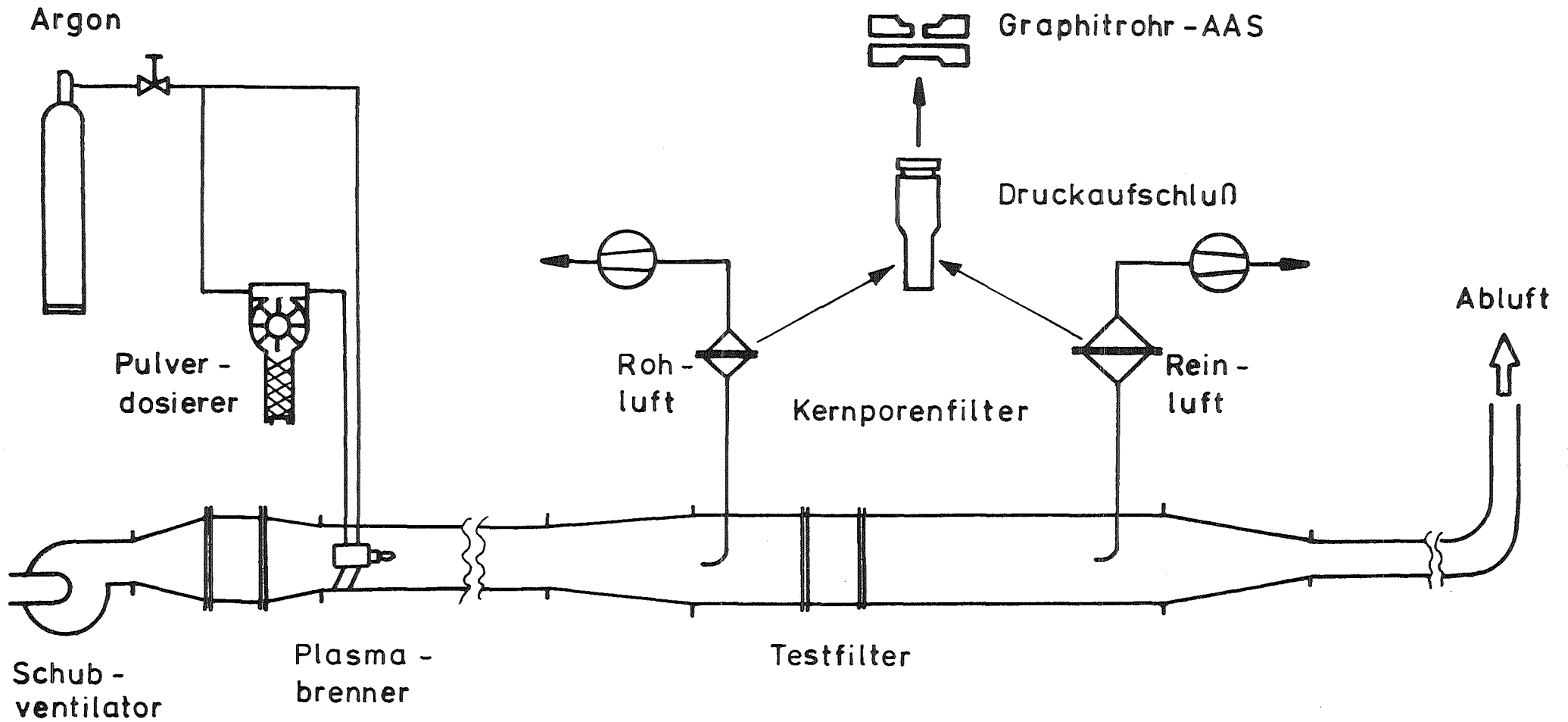


ABB. 36

Abscheidegradprüfverfahren für hohe Temperatur und hohe Feuchte

Säulenversuche mit  $^{125}\text{J}$  - markiertem Bodenmaterial (in Form von NaJ):

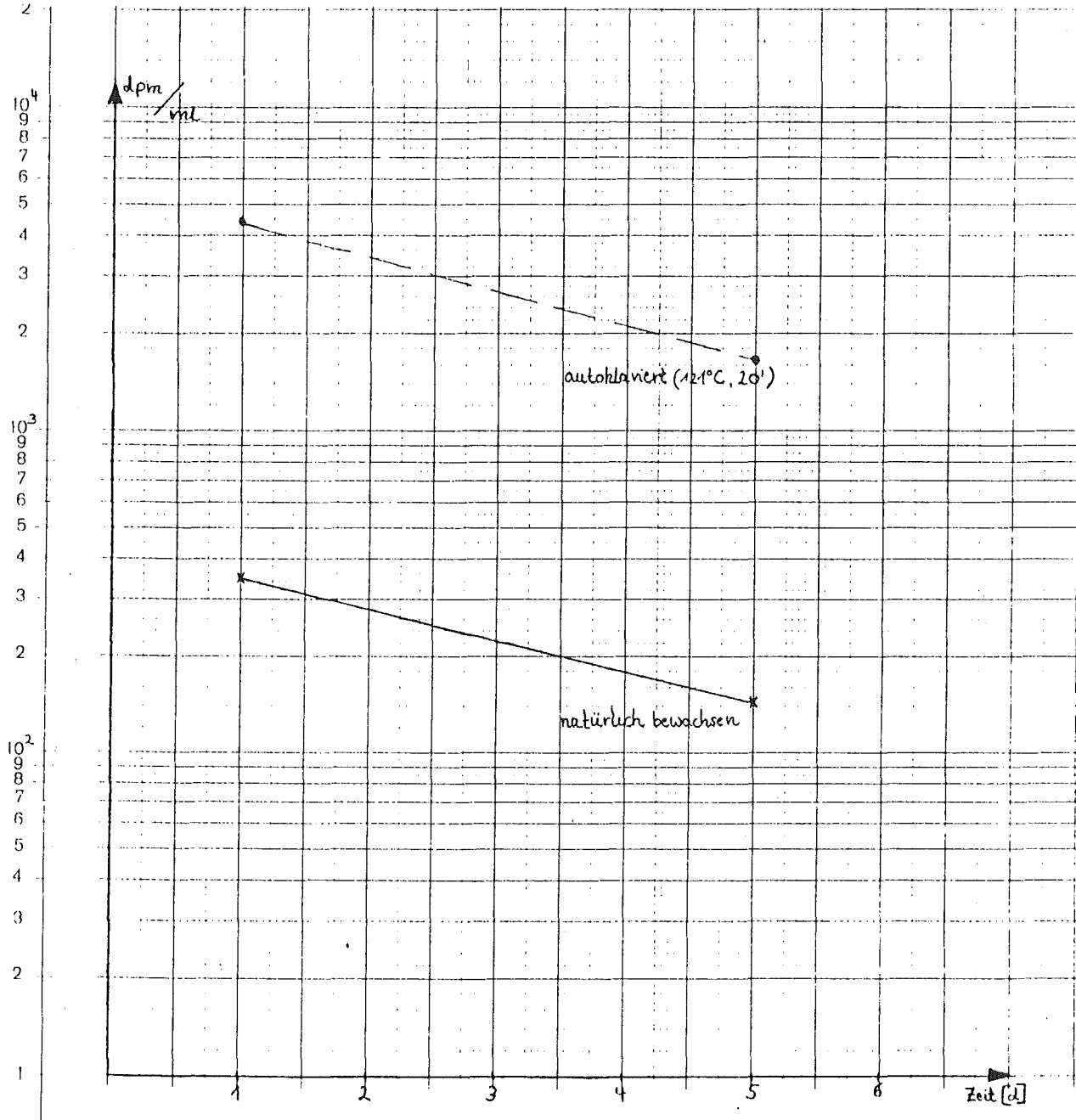


ABB. 37

Vergleich unbehandelter, natürlich bewachsener Boden - behandelter Boden (20 min. bei 120 °C autoklaviert). In 1 ml Elutionsflüssigkeit enthaltene, aus  $^{125}\text{J}$  - markiertem Bodenmaterial mit dest.  $\text{H}_2\text{O}$  (5ml) herauslösbare  $^{125}\text{J}$  - Menge bei unterschiedlichen Säulen - Standzeiten (1 und 5 Tage).

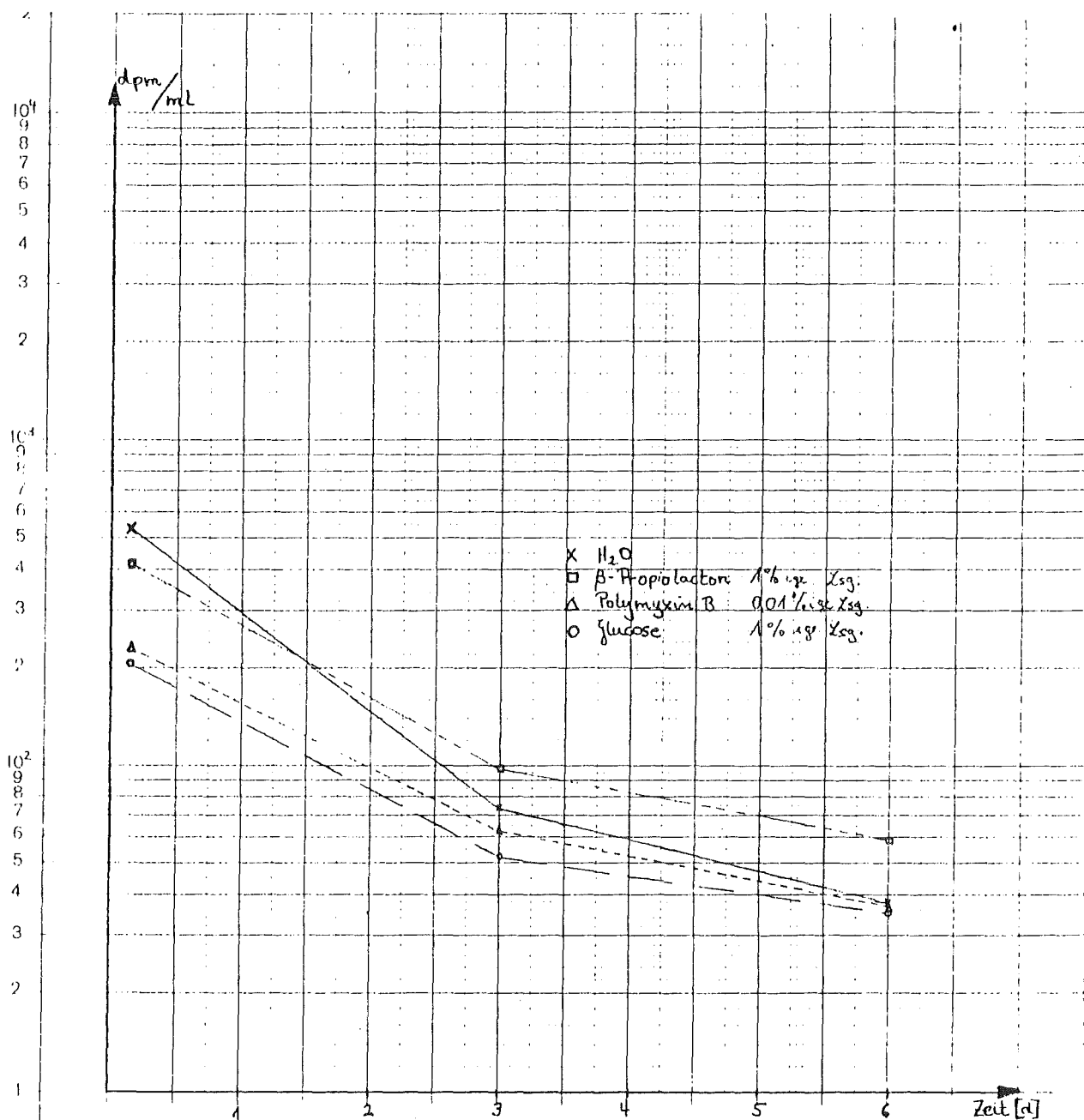
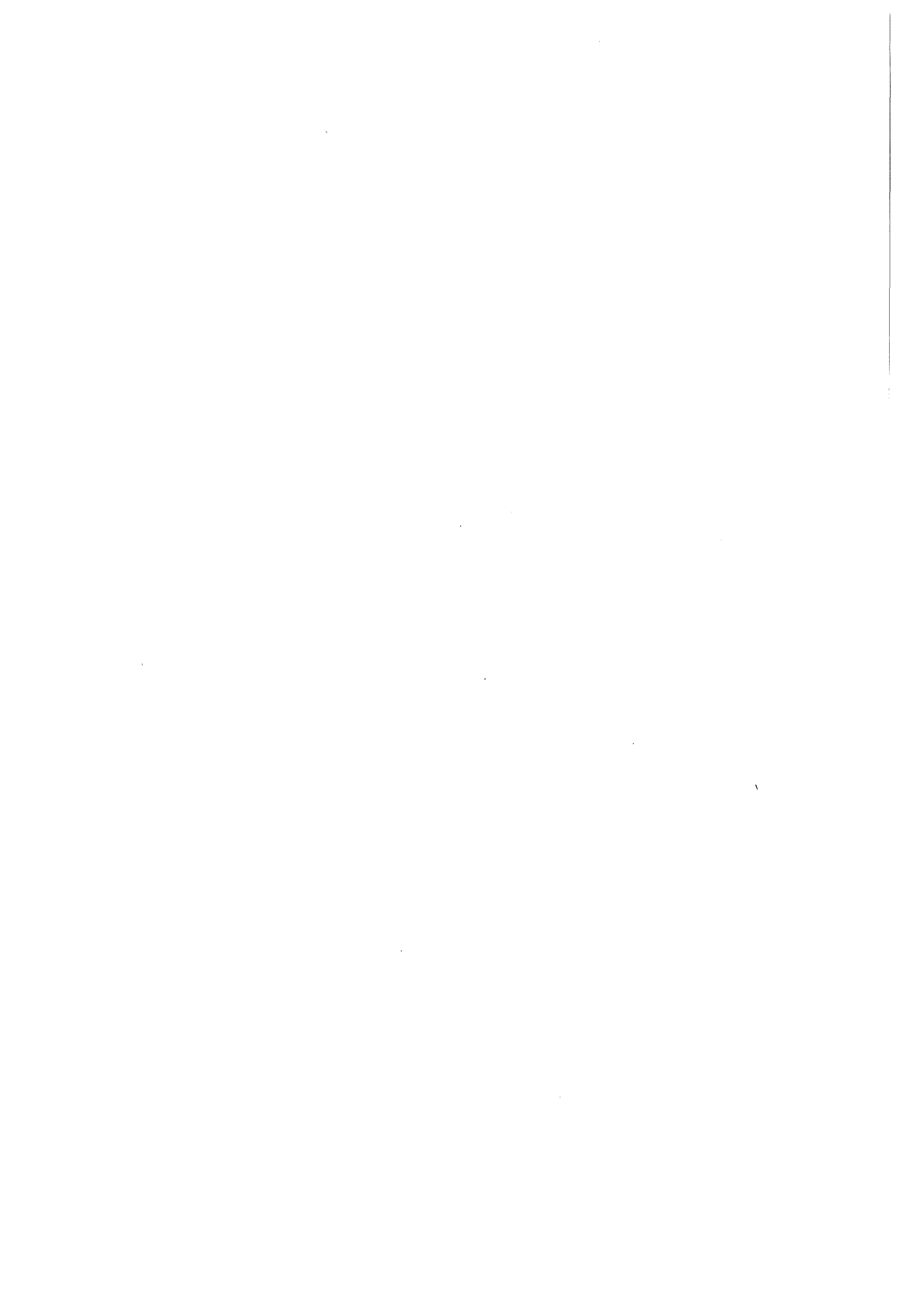


ABB. 38 Vergleich unbehandelter, natürlich bewachsener Boden - mit chemischen Substanzen (Antibiotika, Desinfektionsmittel, Substrat) behandelter Boden. Markierung:  $^{125}\text{J}$  in Form von  $\text{NaJ}$ . Künstlich gepackte,  $^{125}\text{J}$  - markierte Bodensäulen wurden mit 400  $\mu\text{l}$  Beregnungsflüssigkeit (0,01 % Polymyxin B - Lsg., 1 %  $\beta$ - Propiolacton-Lsg., 1 % Glucose - Lsg.) getränkt. Die in 1 ml Elutionsflüssigkeit enthaltene, aus markiertem Boden mit dest.  $\text{H}_2\text{O}$  (5 ml) herauslösbare  $^{125}\text{J}$  - Menge wurde nach unterschiedlichen Säulen - Standzeiten gemessen (3,5 Std., 3 und 6 Tage).





PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT  
JAHRESKOLLOQUIUM 1983

INTEGRITÄTSNACHWEIS FÜR DIE BEHÄLTEREINBAUTEN  
EINES DRUCKWASSERREAKTORS BEIM BLOWDOWN  
- ERGEBNISSE UND WERTUNG -

M. GEISS  
J. BENNER  
A. LUDWIG

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE  
INSTITUT FÜR REAKTORENTWICKLUNG

## Zusammenfassung

Bei der Sicherheitsanalyse von Druckwasserreaktoren spielt der Kühlmittelverluststörfall eine zentrale Rolle. Dabei wird ein plötzlicher Bruch einer kalten Hauptkühlmittelleitung nahe am Reaktordruckbehälter unterstellt. Die schnelle Druckentlastung des Primärsystems (Blowdown) führt zu hohen dynamischen Beanspruchungen der Reaktordruckbehältereinbauten. Die hierbei auftretenden Verformungen dürfen Abschaltbarkeit und Nachkühlbarkeit des Reaktors nicht in unzulässiger Weise beeinträchtigen.

Für diesen Nachweis wird eine Blowdown-Analyse für einen 1300 MW-Druckwasserreaktor durchgeführt. Diese Untersuchung wird durch eine detaillierte Festigkeitsanalyse für die am höchsten beanspruchte Kernbehältereinbaueinspannung ergänzt.

Die Ergebnisse zeigen, daß die Reaktordruckbehältereinbauten den Blowdownbelastungen standhalten. Selbst bei einem schnellen und vollständigen Bruch der Hauptkühlmittelleitung müßten die Belastungen doppelt so groß sein, um die Strukturintegrität zu gefährden.

## Assessment of Integrity for the Pressure Vessel Internals of PWRs under Blowdown Loadings-Results and Discussion

### Abstract

In safety analysis of pressurized water reactors the loss of coolant accident plays a central role. Thereby a sudden break of a cold primary coolant pipe close to the reactor pressure vessel is postulated. The sudden pressure release of the primary system (blowdown) causes high dynamic loading on the pressure vessel internals. The resulting deformations must not impair shut down of the reactor and decay heat removal in an inadmissible way.

For this assessment a blowdown analysis for a 1300 MW pressurized water reactor is carried out. These investigations are completed

with a detailed stress analysis for the highly loaded core barrel clamping.

The results show that the reactor pressure vessel internals are able to withstand blowdown loading. Even in case of a sudden and complete break of the primary coolant pipe the loading has to be twice as high to endanger the structural integrity.

## 1. Einleitung und Problemstellung

Seit mehreren Jahren werden umfangreiche experimentelle und theoretische Untersuchungen schwerer Kühlmittelverluststörfälle beim Druckwasserreaktor (DWR) durchgeführt. Dabei wird ein plötzlicher Bruch einer Primärkühlmittelleitung an einem Reaktoreinlaßstutzen postuliert. Die dadurch verursachte schnelle Druckentlastung des Primärsystems (Blowdown) führt zu einer transienten Beanspruchung der Reaktordruckbehälter-Einbauten. Die hierbei auftretenden Verformungen dürfen die Abschaltbarkeit und Nachkühlbarkeit des Reaktors nicht in unzulässiger Weise beeinträchtigen. Eine besondere Rolle spielt dabei der Kernbehälter. Hält er den Blowdown-Beanspruchungen stand, so sind im Reaktorkern keine größeren radialen Kühlmittel- und Brennelement-Bewegungen möglich. Kritische Biegebeanspruchungen der Brennstäbe sind dadurch ausgeschlossen.

Für diesen Nachweis wurden an verschiedenen Stellen - unter anderem auch im Kernforschungszentrum am Institut für Reaktorentwicklung - fortgeschrittene Rechenprogramme entwickelt, welche die dynamischen Vorgänge im flüssigen Kühlmittel und in den angrenzenden Strukturen während der ersten hochtransienten Phase des Blowdowns (ca. 100 ms) beschreiben. Die Analyse dieses Zeitbereichs ist für die Beurteilung der Strukturintegrität ausreichend, da in dieser Phase die größten Beanspruchungen auftreten.

Zur Verifikation der Rechenprogramme dienten Blowdownversuche, die am stillgelegten Heißdampfreaktor (HDR) in Karlstein in wirklichkeitsnahem Maßstab durchgeführt wurden /1/. Im Mittelpunkt dieses Untersuchungsprogramms stand das dynamische Verhalten des Kernbehälters aufgrund der im Kühlmittel laufenden Druckwellen. Besonderes Interesse galt dabei dem gekoppelten Schwingungsverhalten von Kernbehälter und Fluid (Fluid-Struktur-Wechselwirkung). Die Anwendung der neu entwickelten Rechen-

programme auf die HDR-Versuche zeigte, daß mit fortgeschrittenen Methoden die Vorgänge beim Blowdown in befriedigender Weise beschrieben werden können. Insbesondere können Eigenfrequenzen und Schwingungsamplituden des gekoppelten Systems Kernbehälter-Kühlmittel recht genau berechnet werden /2/.

Die mit Hilfe dieser Experimente gewonnenen Ergebnisse sind allerdings nicht unmittelbar auf die Verhältnisse in einem Druckwasserreaktor übertragbar, da die HDR-Anlage in einigen entscheidenden Punkten nicht für einen Druckwasserreaktor repräsentativ ist. Abb. 1 zeigt Schnittzeichnungen durch den HDR und einen 1300 MW-DWR. Die HDR-Versuchsanlage unterscheidet sich einmal rein geometrisch von einem DWR, zum anderen wurden bei der Planung der Einbauten bewußt vom DWR abweichende Bedingungen geschaffen, um die eigentlich interessierenden Phänomene (z.B. Fluid-Struktur-Kopplung) in ausgeprägter Form und möglichst ungestört von schwer faßbaren Randeffekten untersuchen zu können.

Die wichtigsten Unterschiede zwischen HDR und DWR sind:

- Der Einfluß des Reaktorkerns auf die Dynamik des Systems wurde bei den HDR-Versuchen nur näherungsweise mit Hilfe eines Masserings berücksichtigt, weil die Herstellung eines geometrisch ähnlichen Modellkerns zu aufwendig gewesen wäre und die vielen Freiheitsgrade eines realistischen Modellkerns die Interpretation der ohnehin komplexen Experimente zusätzlich erschwert hätten.
- Beim DWR-Blowdown haben Flexibilität und Lagerbedingungen des oberen Kernbehälterflansches erheblichen Einfluß auf die Dynamik des Systems. Dieser Effekt wurde bei den HDR-Versuchen durch eine speziell konstruierte, stülpsteife Flanschkonstruktion ausgeschlossen, um definierte Randbedingungen für den Kernbehälter zu realisieren.

- Die Lösung von Problemen mit Fluid-Struktur-Wechselwirkung macht erfahrungsgemäß erhebliche Schwierigkeiten. Bei den HDR-Versuchen war diese Wechselwirkung deshalb ein wesentliches Untersuchungsziel und wurde durch besondere konstruktive Gestaltung bewußt betont. Dies wurde mit dem Einbau eines dünnwandigen Modellkernbehälters erreicht.

Die anhand der HDR-Versuche überprüften Rechenprogramme wurden inzwischen so erweitert, daß sie auch die speziellen DWR-Gegebenheiten zu beschreiben gestatten. Unter anderem wurden detaillierte Modelle für den Reaktorkern und die flexible Einspannung des Kernbehälters im Reaktordruckbehälter (RDB) erstellt.

Unter Verwendung dieser Modelle wurde eine Blowdown-Analyse für einen 1300 MW-Druckwasserreaktor durchgeführt. Diese Untersuchung wurde durch eine detaillierte Festigkeitsanalyse für die hoch beanspruchte Kernbehältereinspannung ergänzt. Die Ergebnisse erlauben eine Quantifizierung der vorhandenen Versagensabstände.

## 2. Rechenmodelle

Für die Blowdown-Analysen wurde das Rechenprogramm FLUX /3/ eingesetzt. Es beschreibt die Reaktorgeometrie voll dreidimensional und erfaßt die Fluid-Struktur-Wechselwirkung explizit. Dazu berücksichtigt es die Belastung der Kernbehälterschale durch das Druckfeld und die Rückwirkung der Schalenbeschleunigung und Geschwindigkeit auf das Fluid unter der Annahme kleiner Verformungen. Das Fluidmodell beruht auf einem kompressiblen Potentialströmungsansatz. Die konvektiven Terme werden nichtlinear behandelt. Das Modell ist für die unterkühlte Blowdownphase konzipiert, daher ist die Beschränkung auf Fluide mit bereichsweise konstanter Schallgeschwindigkeit zulässig. Die komplexen Ausströmvorgänge an der Bruchstelle werden näherungs-

weise dadurch erfaßt, daß hier der Druck innerhalb einer charakteristischen Bruchöffnungszeit auf den Sattedampfdruck abgesenkt wird.

Speziell für die Anwendung auf den DWR wurde das Modell so erweitert, daß spielbehaftete Kernbehältereinspannung mit Anschlagen des Kernbehälters an den Reaktordruckbehälter berücksichtigt werden kann /4/. Außerdem wurden Modelle für den Reaktorkern und die verschiedenen Tragroste und Gitterplatten entwickelt /5/. Die heterogene Geometrie dieser Komponenten wird mit Homogenisierungsansätzen beschrieben, die z.B. das gekoppelte System Fluid-Brennstäbe als ein spezielles 2-Phasengemisch mit anisotropen Stoffeigenschaften behandeln. Die Wechselwirkung des Kühlmittels mit den (im Modell periodisch angeordneten) Brennstabbündeln wird mit einem Tensor der "virtuellen Fluidichte" beschrieben. Das Kernmodell berücksichtigt ferner die elastische Biege- und axiale Dehnsteifigkeit der Brennstäbe sowie die direkte, nichtlineare Wechselwirkung benachbarter Brennelemente.

Das von FLUX benötigte Strukturmodell für den Kernbehälter wurde mit dem Schalenprogramm CYLDY3 /6/ erstellt. Dieses Programm beschreibt das dynamische Verhalten dünner, elastischer Kreiszylinderschalen. Es berechnet die Eigenfrequenzen und entsprechenden Eigenschwingungsformen auf der Basis der Flügge'schen Schalendifferentialgleichungen. Diese partiellen Differentialgleichungen werden durch geeignete Reihenentwicklungen in gewöhnliche Differentialgleichungen überführt, deren quasi-exakte Lösung aus den Wurzeln einer nichtlinearen, algebraischen Gleichung folgt. Diese Wurzeln lassen sich aber mit hoher Genauigkeit bestimmen. Die Lösungen hängen wesentlich von den Randbedingungen der Schale ab, die vom Verhalten der Flansche bestimmt werden. Deshalb wurde zusätzlich ein Modell für den Kernbehälterflansch entwickelt. Es basiert auf einer einfachen

Ringtheorie mit gewissen Restriktionen der Verformungsfähigkeit. Das elastische Verhalten des Flansches wird dabei vollständig durch lineare Beziehungen zwischen den kinematischen Größen am Schalenrand beschrieben. Daneben wurde zusätzlich ein Finite-Element-Modell (Abb. 2) für den Kernbehälterflansch und den angrenzenden Schalenbereich erstellt. Mit Hilfe dieses Modells konnte das Ringmodell für den Flansch überprüft werden. Abb. 3 zeigt die berechneten Eigenfrequenzen des Kernbehälters.

Außerdem konnte mit dem Finite-Element-Modell für den Flanschbereich, in dem die größten Strukturbeanspruchungen auftreten, eine detaillierte Spannungsanalyse durchgeführt werden. Sie erlaubt eine exaktere Bestimmung der Beanspruchungsspitzen als dies mit den strukturmechanischen Globalmodellen bei der gekoppelten Analyse möglich ist. Für die Finite-Element-Analysen wurden das Programm ADINA /7/ eingesetzt. Es erlaubt die Berücksichtigung plastischer Verformungen. Damit konnte das Verhalten der Kernbehältereinspannung auch unter überhöhter Belastung untersucht werden, was für eine zuverlässige Aussage über die vorhandenen Versagensabstände notwendig ist.

Abb. 4 zeigt schematisch den Ablauf der Blowdown-Analyse. Das Modell besitzt insgesamt 233 Strukturfreiheitsgrade (Eigenlösungen bis 1000 Hz). Es enthält 3618 Fluidmaschen sowie 22 diskrete Anschlagpositionen. Damit hat es insgesamt 12821 Freiheitsgrade. Die Rechenzeit für die untersuchten 80 ms Realzeit betrug 136 min auf der SIEMENS-7890-Anlage des Kernforschungszentrums.

Bei der Rechnung wurde eine Bruchöffnungszeit von 5 ms bei vollständiger Öffnung des Rohrleitungsquerschnitts vorausgesetzt. Die Bruchstelle wurde 3 m von der RDB-Wand entfernt angenommen. Der Sattedampfdruck im Bruchstutzen beträgt 72 bar. Damit ergibt sich mit dem Systembetriebsdruck (160 bar) eine treibende Druckdifferenz von 88 bar. In Abb. 5 sind Position und Größe der axialen und radialen Spiele am oberen Flansch



sowie am unteren Rost gezeigt. Hierbei wurde angenommen, daß der Kernbehälter zu Beginn in einer extremen Position 3 mm exzentrisch vom Blowdownstutzen entfernt liegt. In der ersten Phase des Störfalls, in der er in Richtung des Blowdownstutzens beschleunigt wird, legt er deshalb einen größeren Weg bis zum erstmaligen Anschlagen zurück und kann hierbei viel kinetische Energie aufnehmen. Dies führt, zusammen mit der Vernachlässigung der Reibkräfte und der Abstützung an den Auslaßstutzen, zu einer gewissen Konservativität.

### 3. Ergebnisse

Abb. 6 und Abb. 7 zeigen den verformten Kernbehälter zu verschiedenen Zeitpunkten nach Blowdown-Beginn. Das Koordinatenkreuz gibt die Ausgangsposition der Kernbehälterachse an. In der allerersten Phase des Blowdowns dominieren die Schalenschwingungen des Kernbehälters, die durch die plötzliche lokale Druckabsenkung in dem Bereich des Blowdownstutzens angeregt werden. Sie sind vorwiegend mit Biegespannungen in der Struktur verbunden. Anschließend hebt der Kernbehälter am oberen Flansch auf der dem Blowdownstutzen gegenüberliegenden Seite ab und beginnt gegen den Blowdownstutzen zu kippen. Infolge dieser Kippbewegung schlägt er oben am Reaktordeckel an. In der Folge dominiert die translatorische Starrkörperbewegung des Kernbehälters in Richtung auf den Blowdownstutzen. Dabei eilt der obere Teil des Kernbehälters etwas voraus, so daß dieser trotz der unterschiedlichen Größe der Radialspiele nach 30 ms dort fast gleichzeitig oben und unten anschlägt. Hierbei löst er sich für kurze Zeit auf der gegenüberliegenden Seite vom axialen Anschlag. Im Zeitbereich von 30 ms bis 60 ms liegt der Kernbehälter auf der Seite des Blowdownstutzens an. Dabei schwingt er zunächst balkenartig durch. Im Anschluß daran dominieren wieder die hochfrequenten Schalenschwingungen. Nach 60 ms löst er sich von diesen radialen Anschlägen und hat nach 80 ms fast wieder die Ausgangsposition erreicht. Abb. 8 bis

Abb. 10 zeigen entsprechende Zeitverläufe der Verschiebungen an einigen diskreten Punkten des Kernbehälters. Abb. 9 und Abb. 10 veranschaulichen das Verhalten beim Anschlagen des Kernbehälters gegen den RDB.

Abb. 11 zeigt den zeitlichen Verlauf des globalen Biegemoments, das der Kernbehälter auf die Einspannung ausübt. Abb. 12 zeigt die berechneten Membranvergleichsspannungen, wobei der Maximalwert über alle diskreten Punkte des Kernbehälters als Funktion der Zeit dargestellt ist. Das Maximum der Vergleichsspannung tritt zum Zeitpunkt  $t = 45 \text{ ms}$  auf. Zu diesem Zeitpunkt liegt der Kernbehälter an der Seite des Blowdownstutzens an und biegt sich balkenartig durch. Das Maximum tritt am oberen Schalenrand auf. Es liegt in der Nähe der Werkstofffließgrenze von  $175 \text{ N/mm}^2$ .

An dieser Stelle sei jedoch betont, daß allein mit Kenntnis dieser Maximalspannung nur beschränkte Aussagen zum Versagensabstand möglich sind. Die Spannungsspitzen werden nämlich wesentlich von den Anfangs- und Randbedingungen des Problems bestimmt, die in Realität nicht exakt bekannt sind, weil sie von verschiedenen mehr zufälligen Faktoren (Montage, Betriebszustand etc.) abhängen. Die gezeigten Ergebnisse stellen aus diesem Grunde nur einen exemplarischen - und zwar recht konservativen - Störfallablauf dar. Sie demonstrieren bis in welches Detail diese Abläufe heute analysierbar sind.

Daneben ist zu berücksichtigen, daß die auf elastischer Basis ermittelten Spannungsspitzen ohnehin wenig aussagekräftig sind, da bei höheren Beanspruchungen plastische Verformungen auftreten, die diese Spannungsspitzen begrenzen. Für zuverlässige Aussagen hierzu sind Analysen notwendig, die das elastisch-plastische Werkstoffverhalten explizit berücksichtigen.

Eine solche Analyse wurde für den Einspannbereich des Kernbehälters, wo plastische Verformungen am ehesten zu erwarten sind, mit dem erwähnten Finite-Element-Modell durchgeführt. Dabei wurde auf eine detaillierte Beschreibung der Belastungsverteilung entlang des Kernbehälterumfanges durch die axialen Membranspannungen verzichtet, weil lediglich die erste Fourierordnung dieser Verteilung von wesentlicher Bedeutung ist. Sie ist nämlich proportional einer aufgeprägten Belastung, beschrieben durch das globale Biegemoment auf die Kernbehälter-einspannung. Dies ist in Abb. 13 angedeutet. Abb. 14 zeigt die ermittelte nichtlineare Einspanncharakteristik des Kernbehälterflansches, d.h. den Zusammenhang zwischen Biegemoment auf die Einspannung und einer charakteristischen Verschiebung (größte Axialverschiebung am Umfang des Flansches). Abb. 15 zeigt einen Radialschnitt durch die Einspannung an der Umfangsposition mit der höchsten Beanspruchung. Man erkennt die mit zunehmendem globalen Biegemoment  $M$  fortschreitenden plastischen Verformungen. Diese Ergebnisse wurden mit einer separaten zweidimensionalen Finite-Element-Analyse mit sehr feiner Nodalisierung über die Schalendicke gewonnen.

Es zeigt sich, daß bis zu einem Biegemoment von ca. 100 MNm nur kleinere plastische Verformungen am Übergang von der Kernbehälterschale zum Flansch auftreten. Bei weiterer Laststeigerung kommt es zu plastischen Verformungen auf der Flanschoberseite und am Übergang zur Schale bildet sich ein Fließgelenk. Bei 190 MNm Belastung hat sich der gesamte Einspannbereich in diesem Radialschnitt plastisch verformt. Weitere Tragreserven können dann nur noch aus der Werkstoffverfestigung geschöpft werden. Erst oberhalb 200 MNm Belastung wäre mit dem Versagen der Einspannung zu rechnen. Dabei wäre ein Abriß der Schale vom Flansch wegen der großen Dehnungskonzentration in diesem Bereich wahrscheinlich.

Wie Abb. 11 zeigt, beträgt beim Blowdown das maximale Biegemoment auf die Einspannung aber nur ca. 90 MNm. Der Vergleich mit den Ergebnissen der Finite-Element-Analyse ergibt, daß bei dieser Belastung zwar lokale plastische Verformungen am Übergang vom Kernbehälter zum Flansch auftreten. Allerdings ist erst bei mehr als dem doppelten dieser Belastung mit dem Versagen der Einspannung zu rechnen.

#### 4. Zusammenfassung

Die obigen Ausführungen zeigen, daß wir heute nach einigen Jahren intensiver Forschungsarbeit - sowohl theoretischer als auch experimenteller Arbeiten am HDR-Reaktor - in der Lage sind, die dynamischen Vorgänge beim Blowdown im Detail zu beschreiben. Insbesondere konnten wir die vorhandenen Versagensabstände abschätzen. Die Ergebnisse zeigen, daß selbst bei einem schnellen und vollständigen Bruch der Hauptkühlmittelleitung die Belastungen doppelt so groß sein müßten, um die Strukturintegrität zu gefährden.

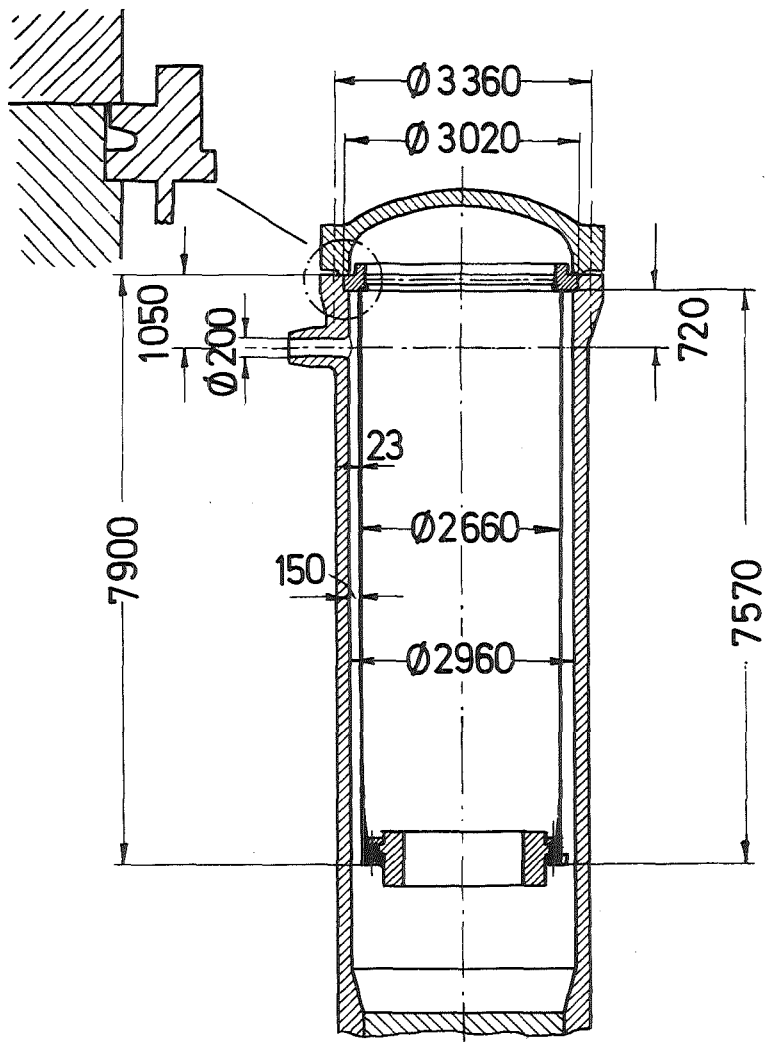
## 5. Literatur

- /1/ R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, K.-H. Scholl:  
Design of the HDR experimental program on blowdown loading and dynamic response of PWR-vessel internals,  
Nuclear Engineering Design 1977, 43, 419-435
- /2/ L. Wolf:  
Overview of the Experimental and Analytical Results for the HDR-RPV-I Main Test Series (V31.2 - V34), Proceedings 7th Int. Conf. on Structural Mechanics in Reactor Technology, Chicago, Illinois, USA, Aug. 22-26, 1983, Paper B6/1\*
- /3/ U. Schumann:  
Effektive Berechnung dreidimensionaler Fluid-Struktur-Wechselwirkung beim Kühlmittelverluststörfall eines Druckwasserreaktors - FLUX,  
KfK 2645 (1979)
- /4/ U. Schumann:  
Impacts and Fluid-Structure Interactions in Pressurized Water Reactor Safety Analysis,  
Nuclear Engineering Design 69 (1982), 313-326
- /5/ J. Benner:  
Numerical Simulation of Fluid-Structure Interactions in a Pressurized Water Reactor Core, in: P. Lascaux (Ed.):  
Proc. Third Int. Symp. on Numerical Methods in Engineering, Paris, 13.3. - 16.3.1983, 337-347
- /6/ A. Ludwig, R. Krieg:  
An Analytical Quasi-Exact Method for Calculating Eigen-vibrations of thin Circular Cylindrical Shells,  
Journal of Sound and Vibration 74 (1981) 2, 155-174

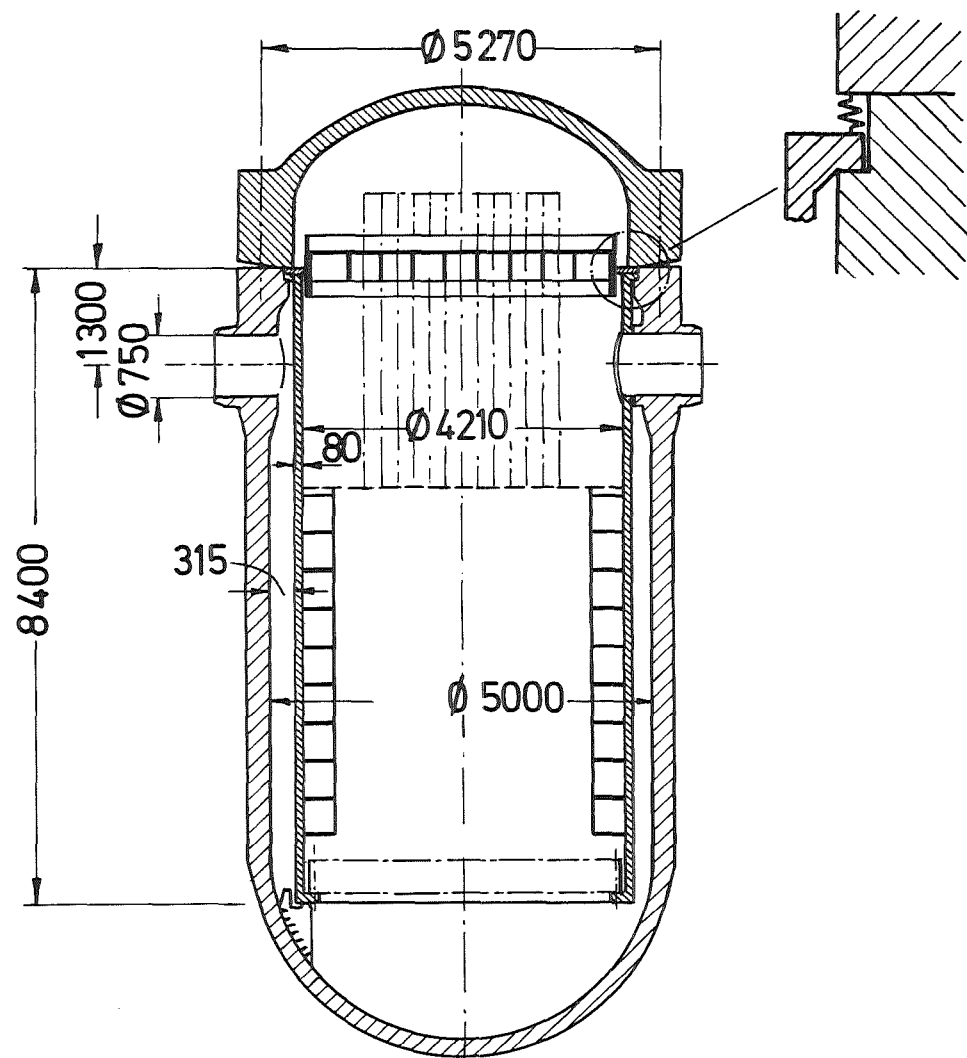
/7/ ADINA

A Finite Element Program for Automatic Dynamic Incremental Non-linear Analysis, 1981

ADINA Engineering, Inc., 71 Elton Avenue, Watertown, Mass. 02172, U.S.A.



HDR - Versuchsanlage



DWR der 1300 MW-Klasse



Abb.1: Grössenvergleich von HDR und DWR

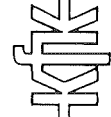
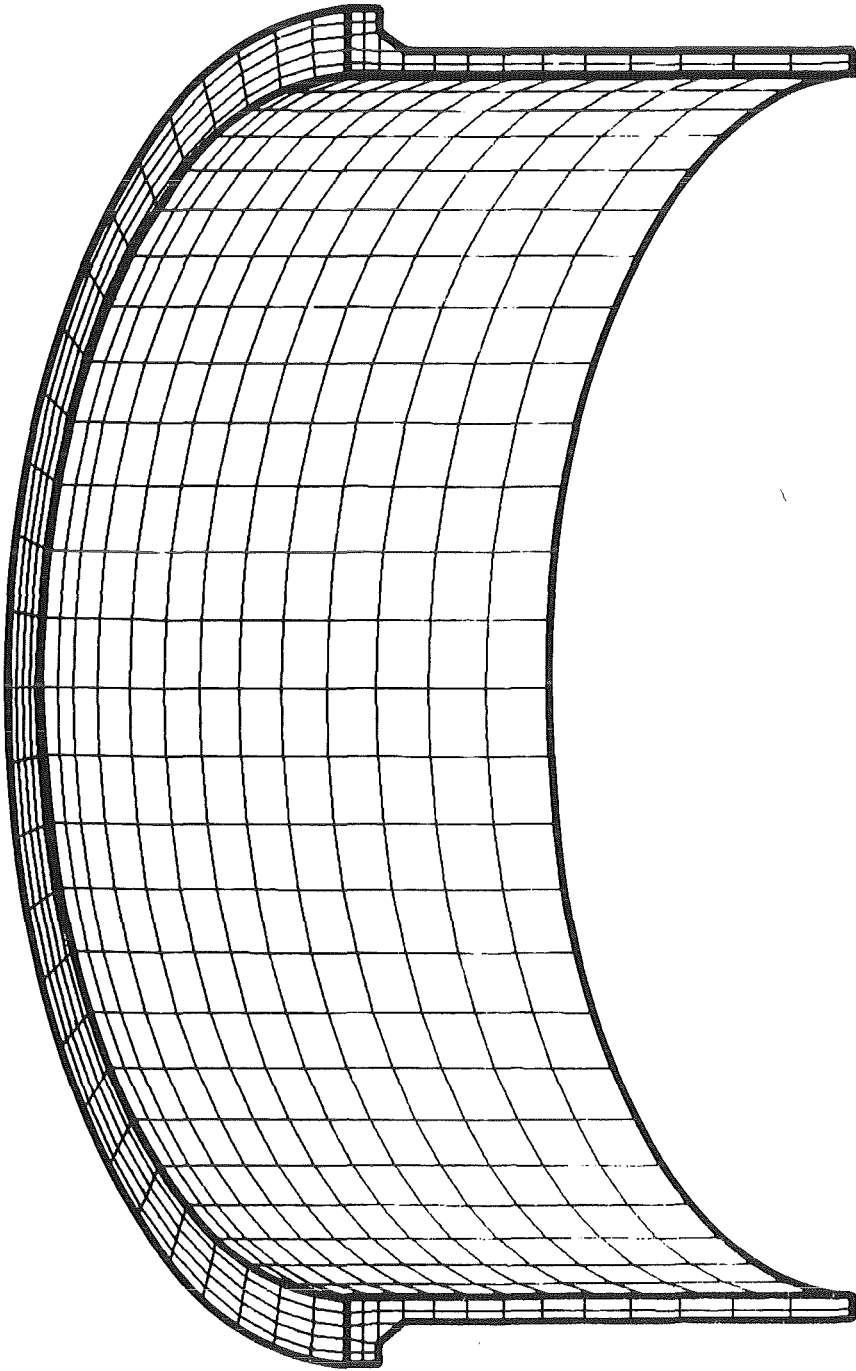


Abb. 2: Finite- Element Modell der Kernbehältereingspannung



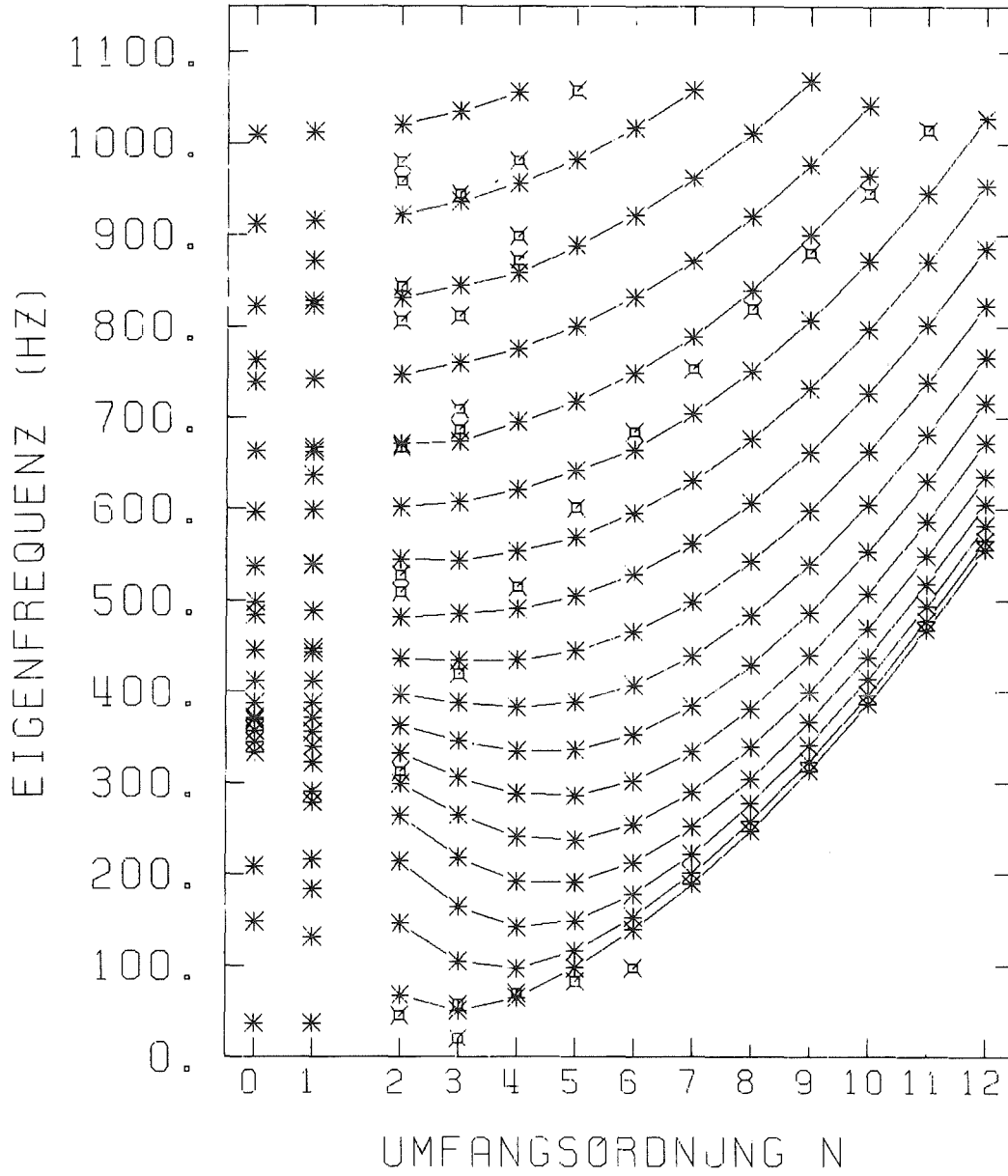


Abb.3: Eigenfrequenzen des Kernbehälters

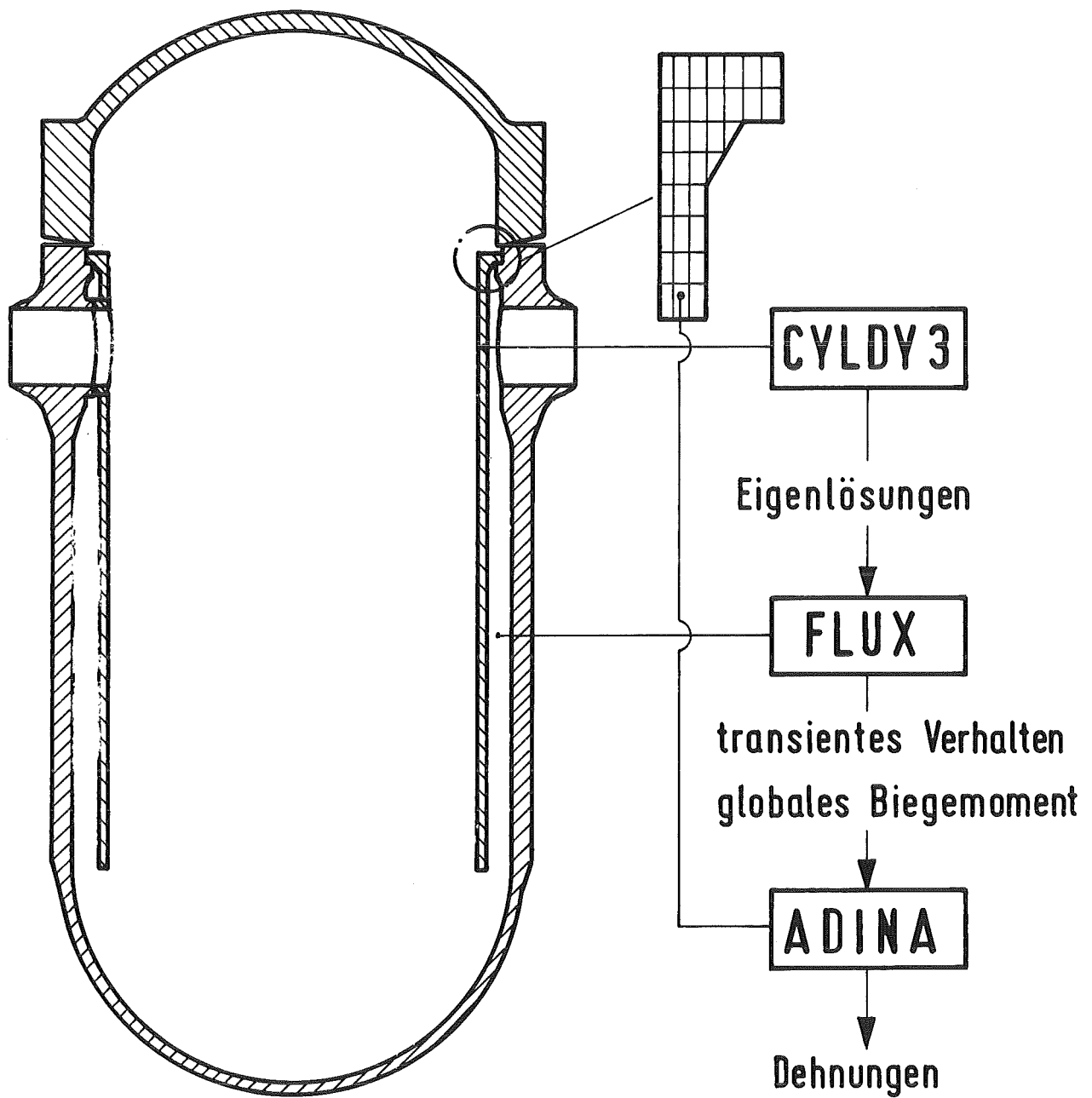
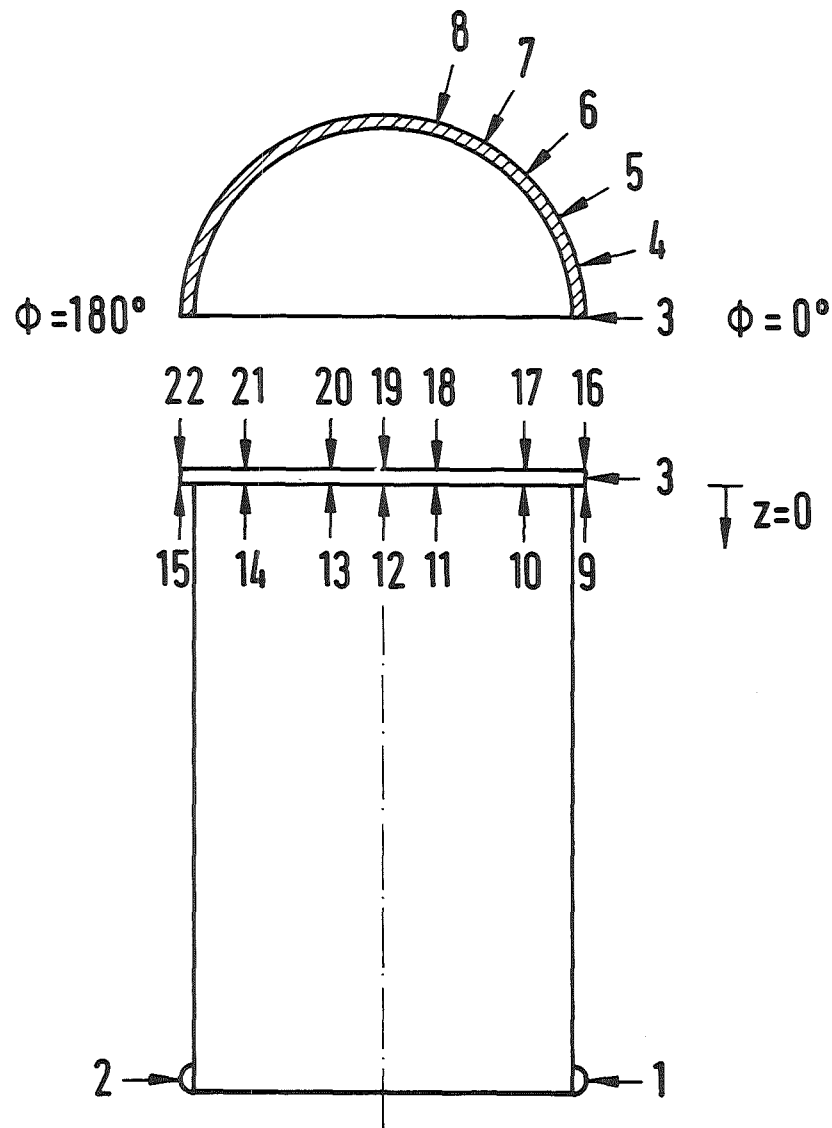


Abb.4: Ablauf der Blowdownanalyse

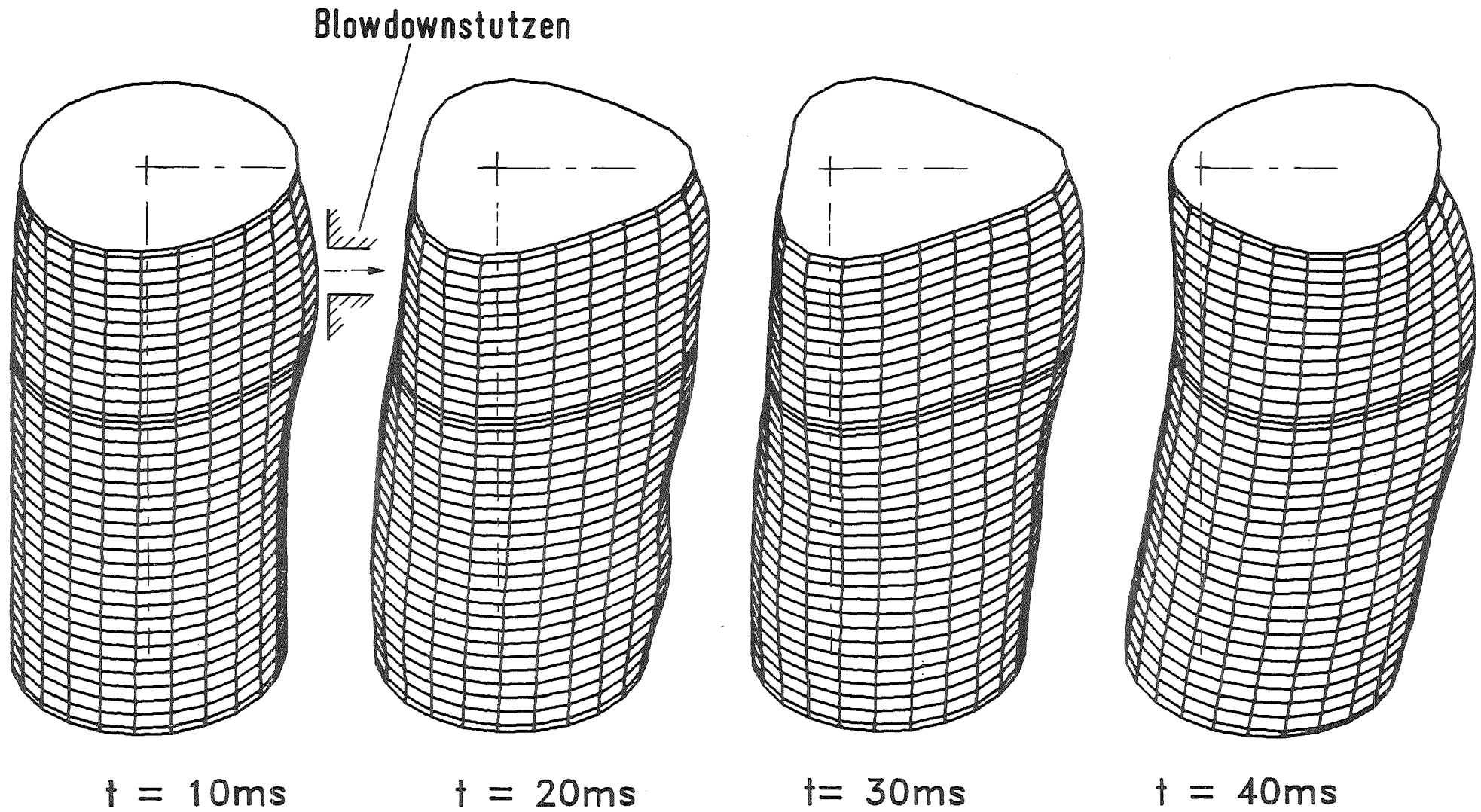


Anschlag	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
z	630	7630	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Anfangsspiel [mm]	6	0	10.5	10.45	10.2	9.85	9.36	8.77	0	0	0
Flexibilität [ $10^{-11}$ m/N]	5	5	5	5	5	5	5	5	0	0	0
Vorspannkraft [ $10^5$ N]	-	-	-	-	-	-	-	-	2.31	4.62	4.62
$\phi$	0	180	0	15	30	45	60	75	0	30	60

Anschlag	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22
z	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Anfangsspiel [mm]	0	0	0	0	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4
Flexibilität [ $10^{-11}$ m/N]	0	0	0	0	1	1	1	1	1	1	1
Vorspannkraft [ $10^5$ N]	4.62	4.62	4.62	2.31	-	-	-	-	-	-	-
$\phi$	90	120	150	180	0	30	60	90	120	150	180

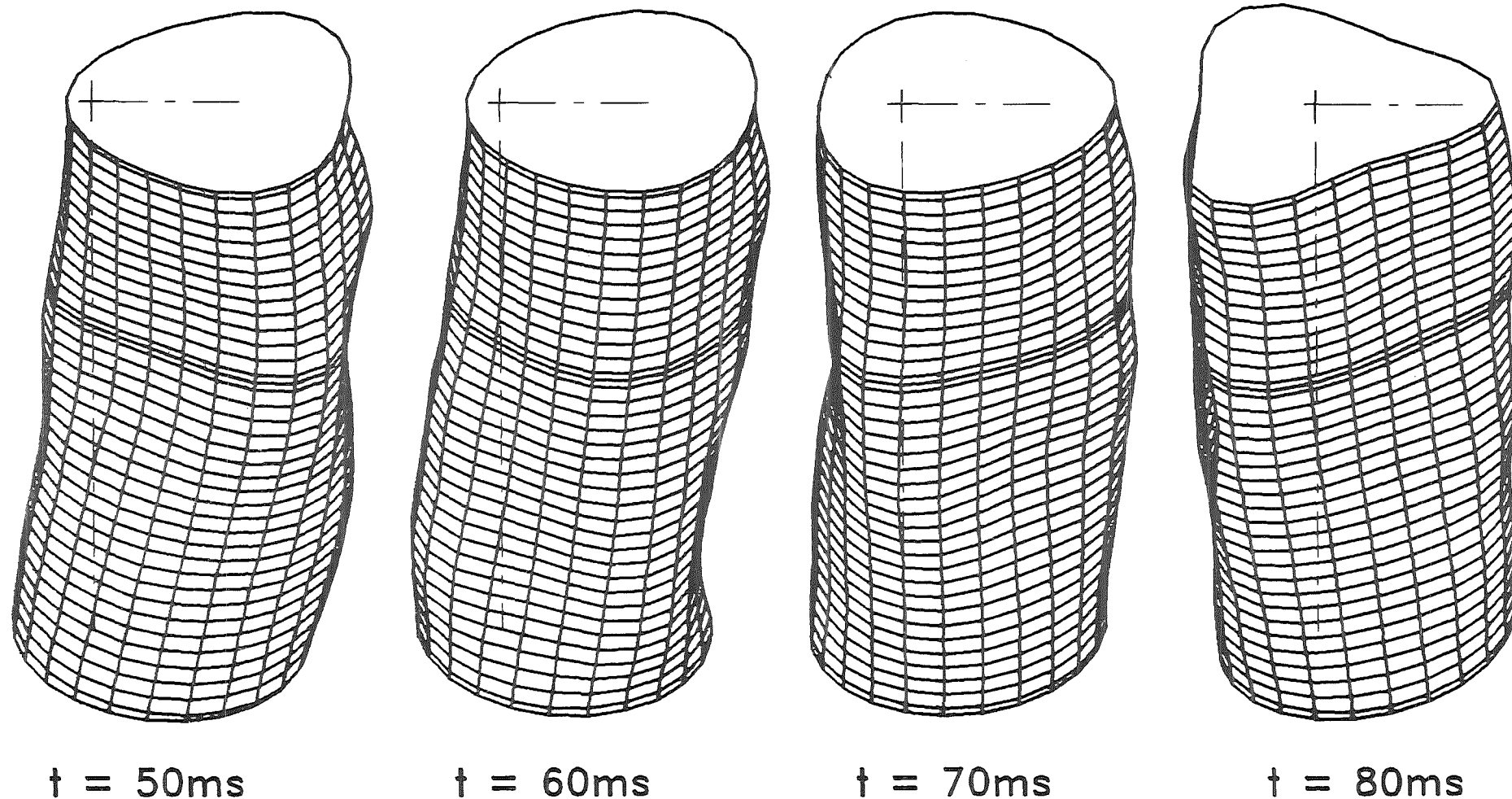


Abb. 5: Axiale und radiale Spiele



KfK

Abb.6: Verformung des Kernbehälters (150fach vergrössert)



kfk

Abb. 7: Verformung des Kernbehälters (150fach vergrössert)

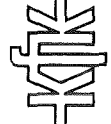
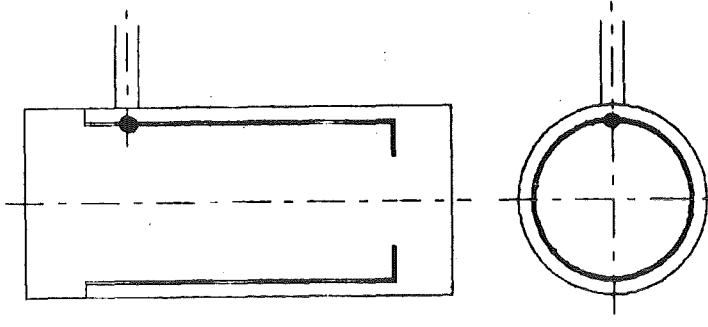
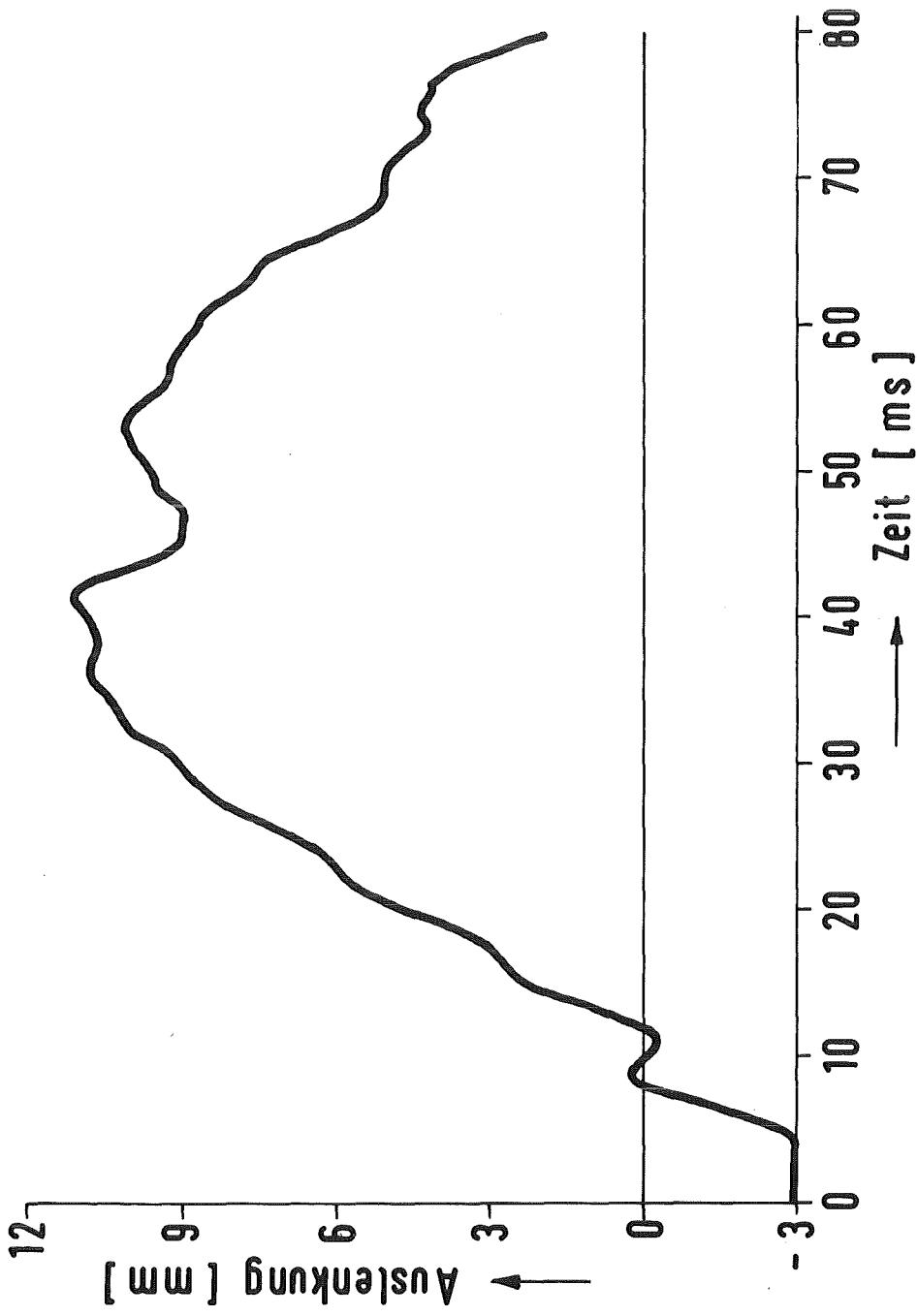


Abb.8: Radiale Kernbehälterauslenkung am Stutzen

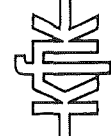
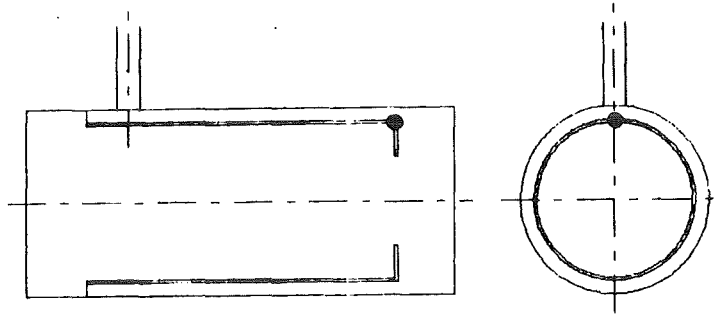
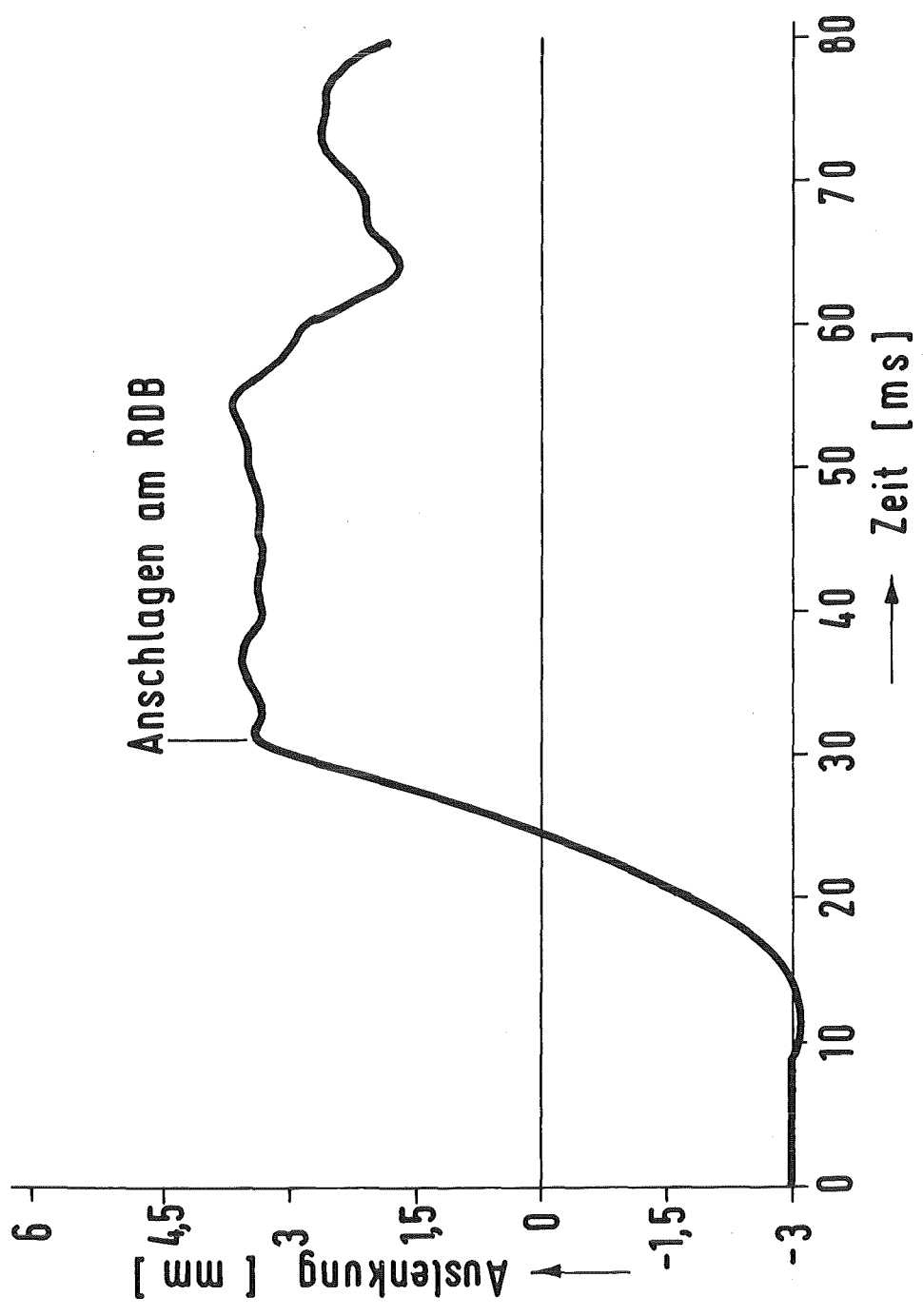


Abb.9: Radiale Kernbehälterauslenkung am unteren Rost

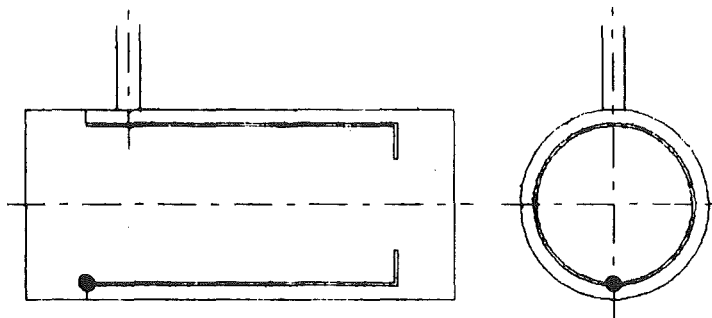
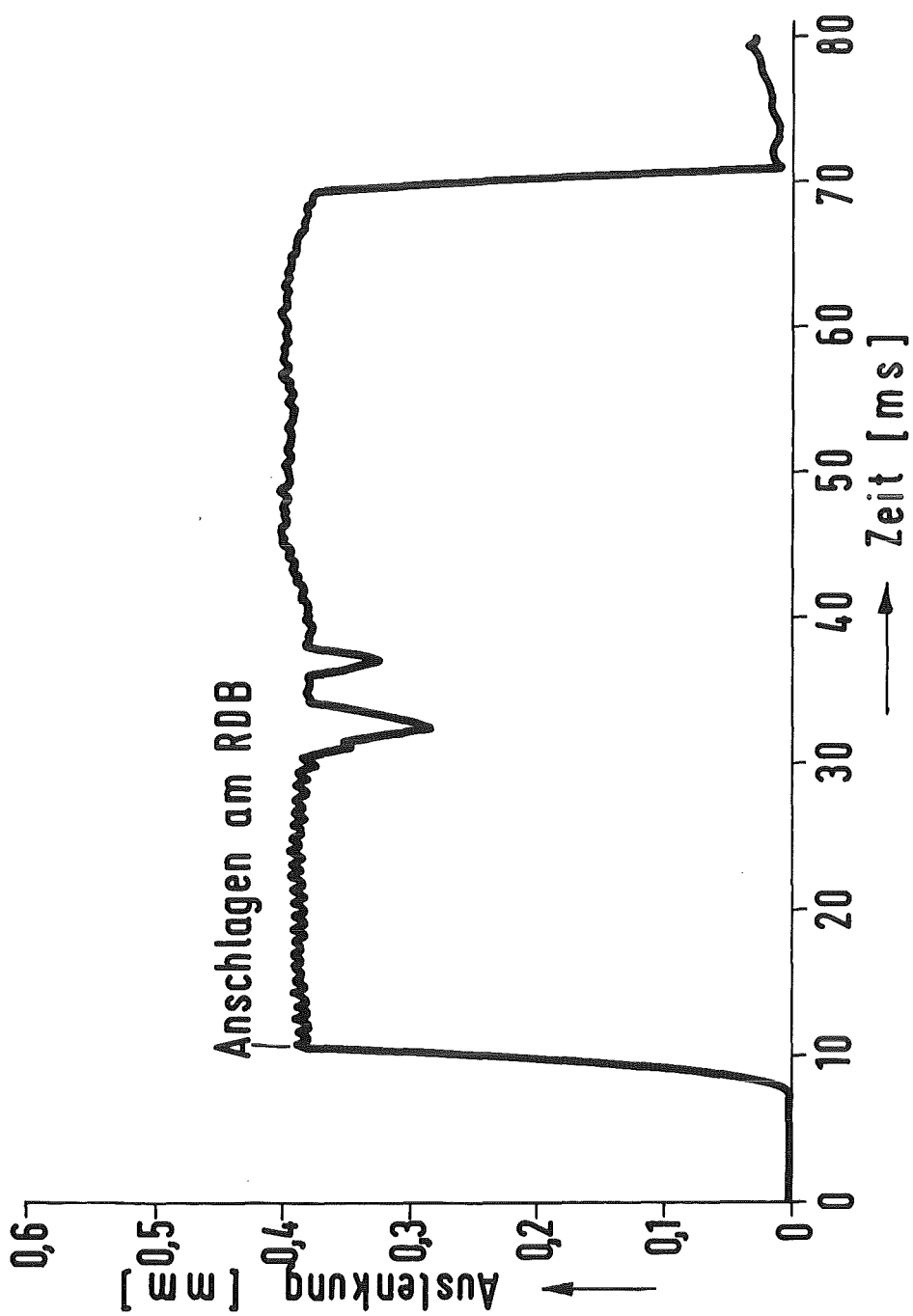
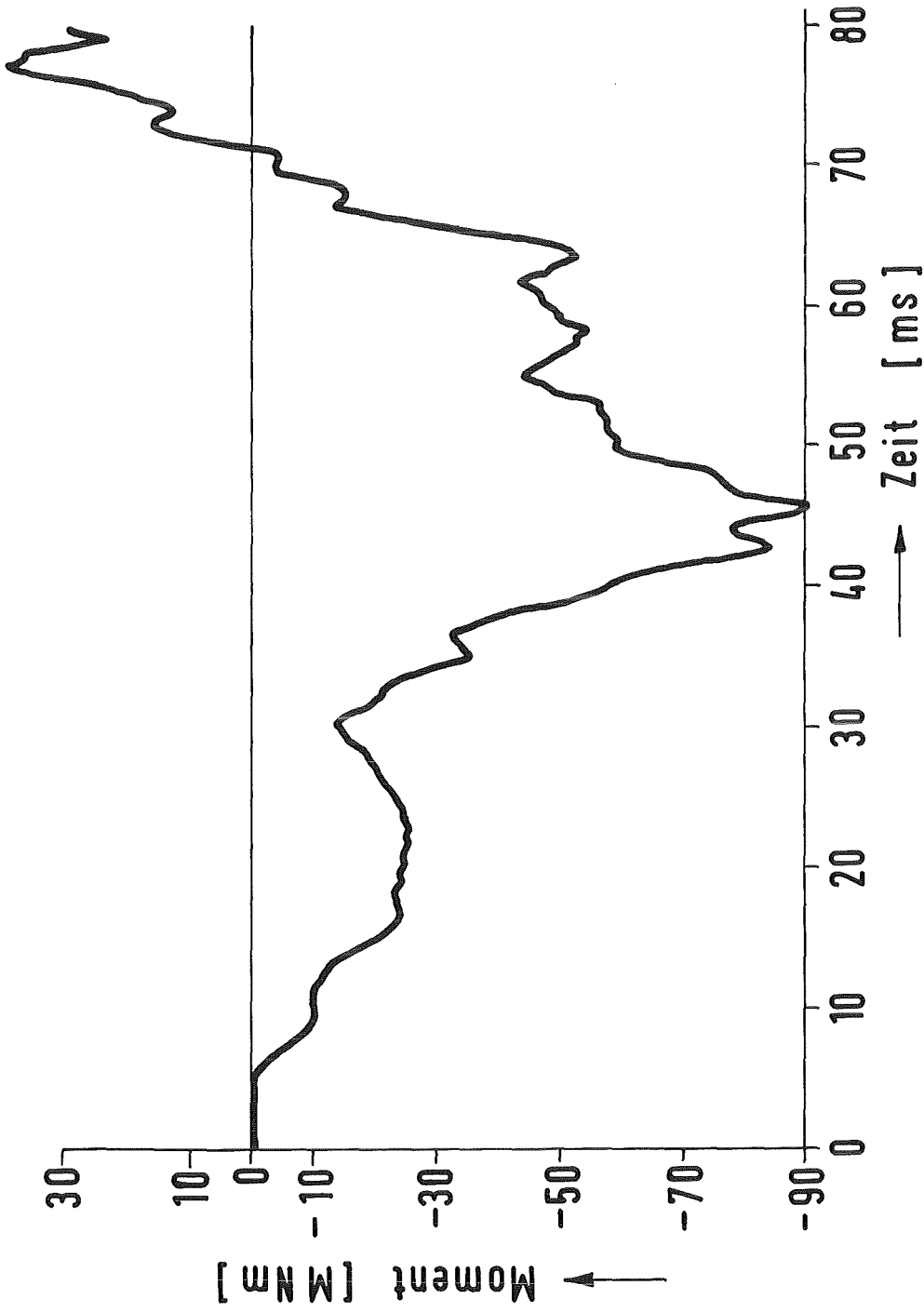


Abb.10: Axiale Auslenkung am Kernbehälterflansch





KfK

Abb.11: Integrales Biegemoment auf den Kernbehälterflansch

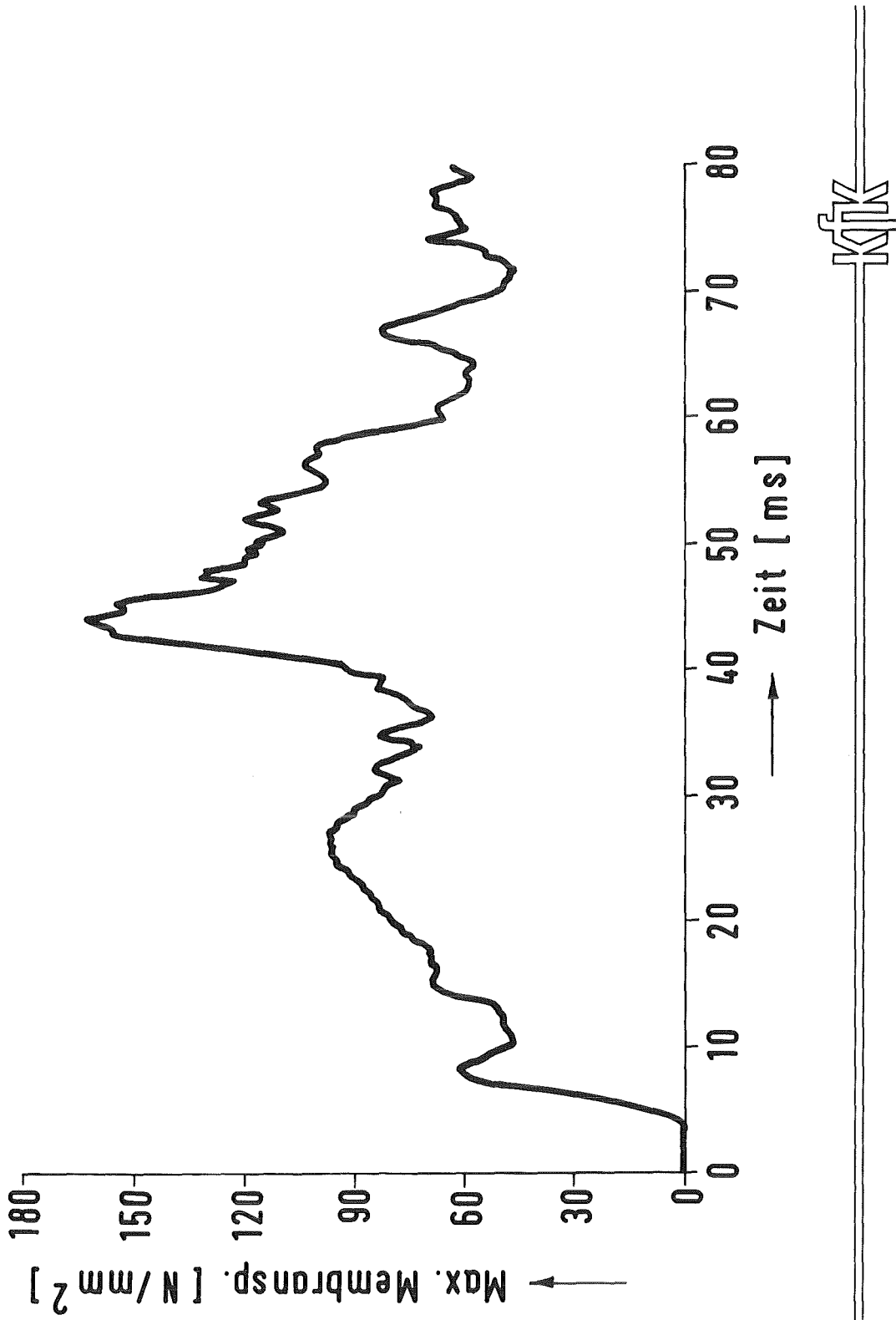


Abb.12: Maximale Membranvergleichsspannung

KfK

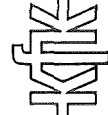
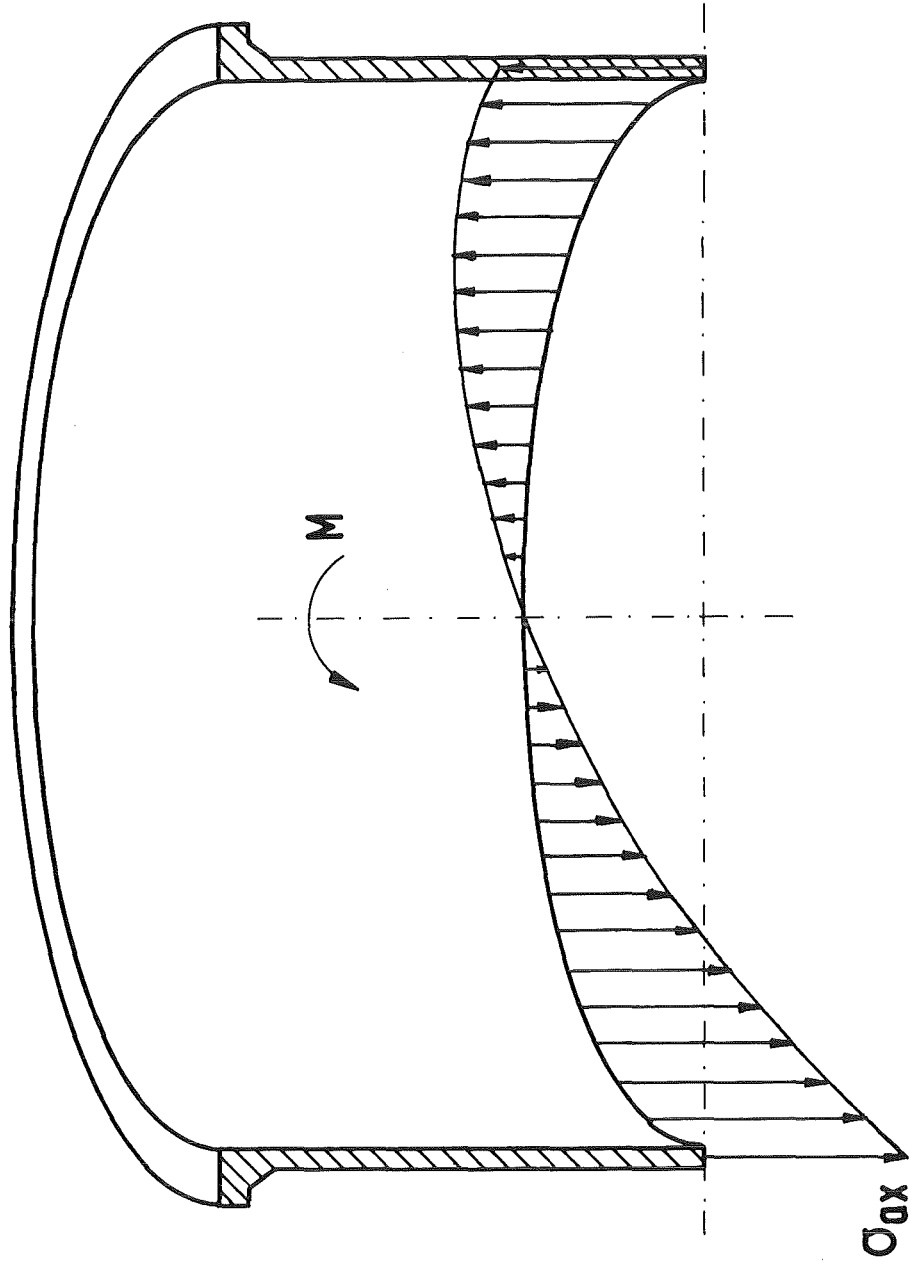


Abb.13: Belastung der Kernbehälterereinspannung

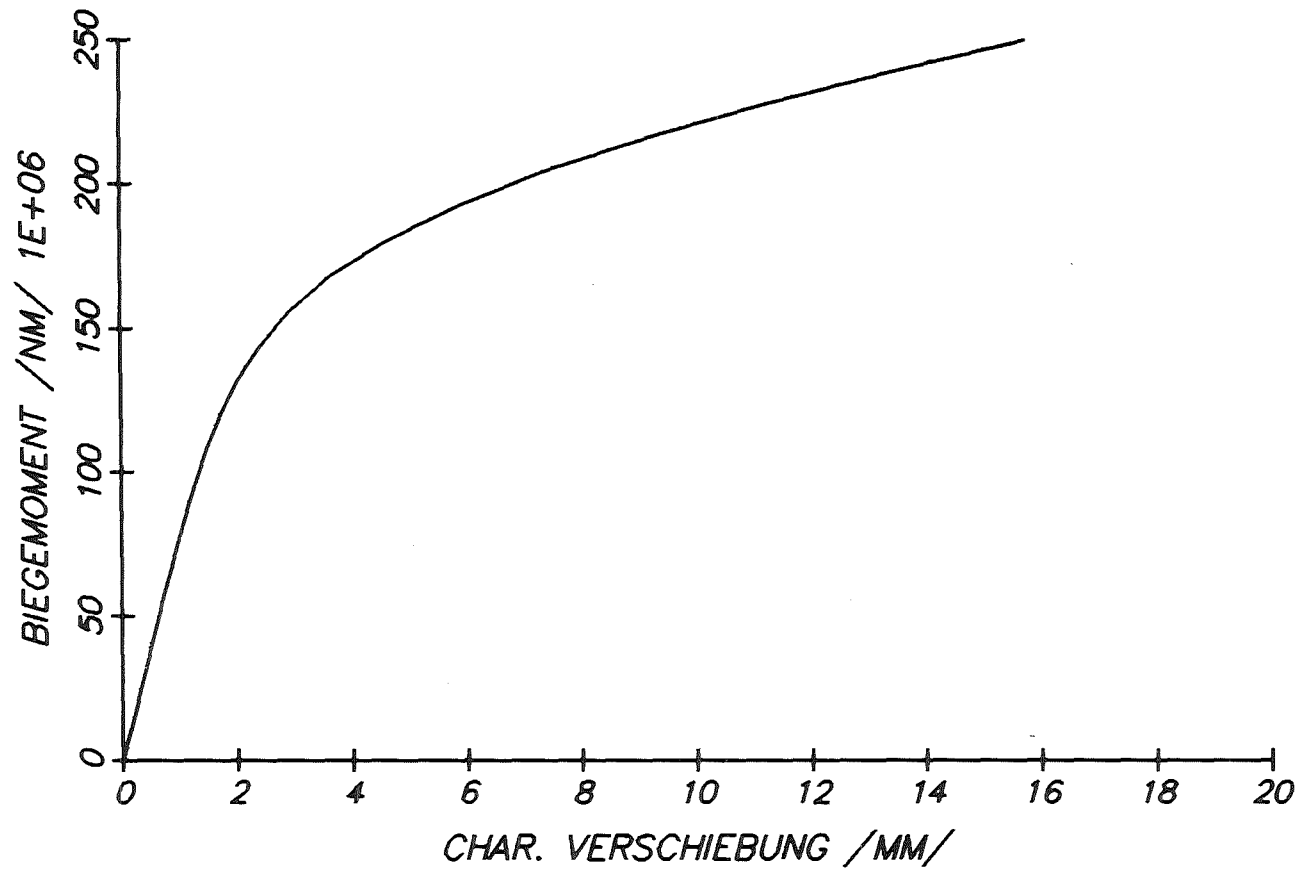


Abb.14: Einspannungscharakteristik des Kernbehälterflansches

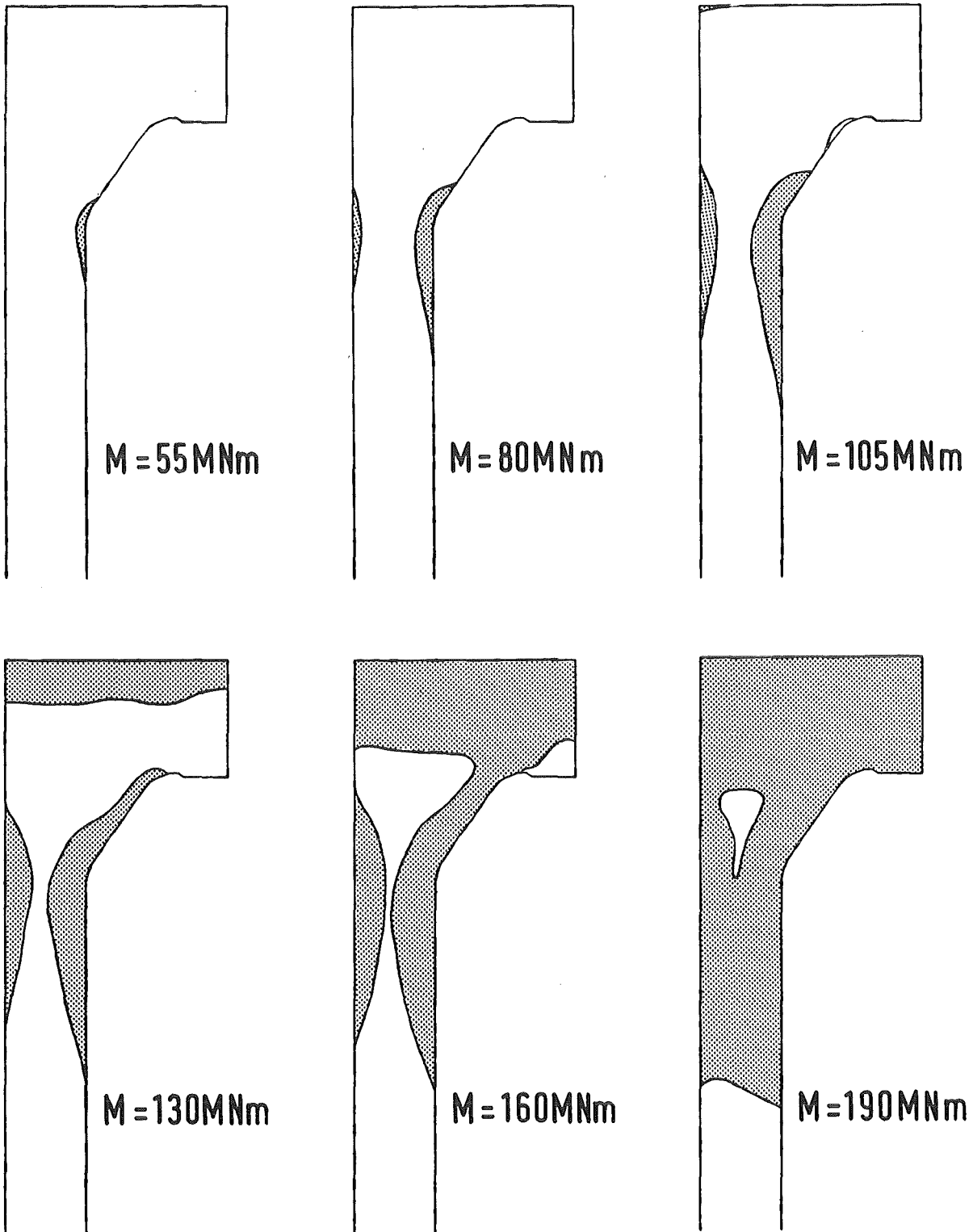
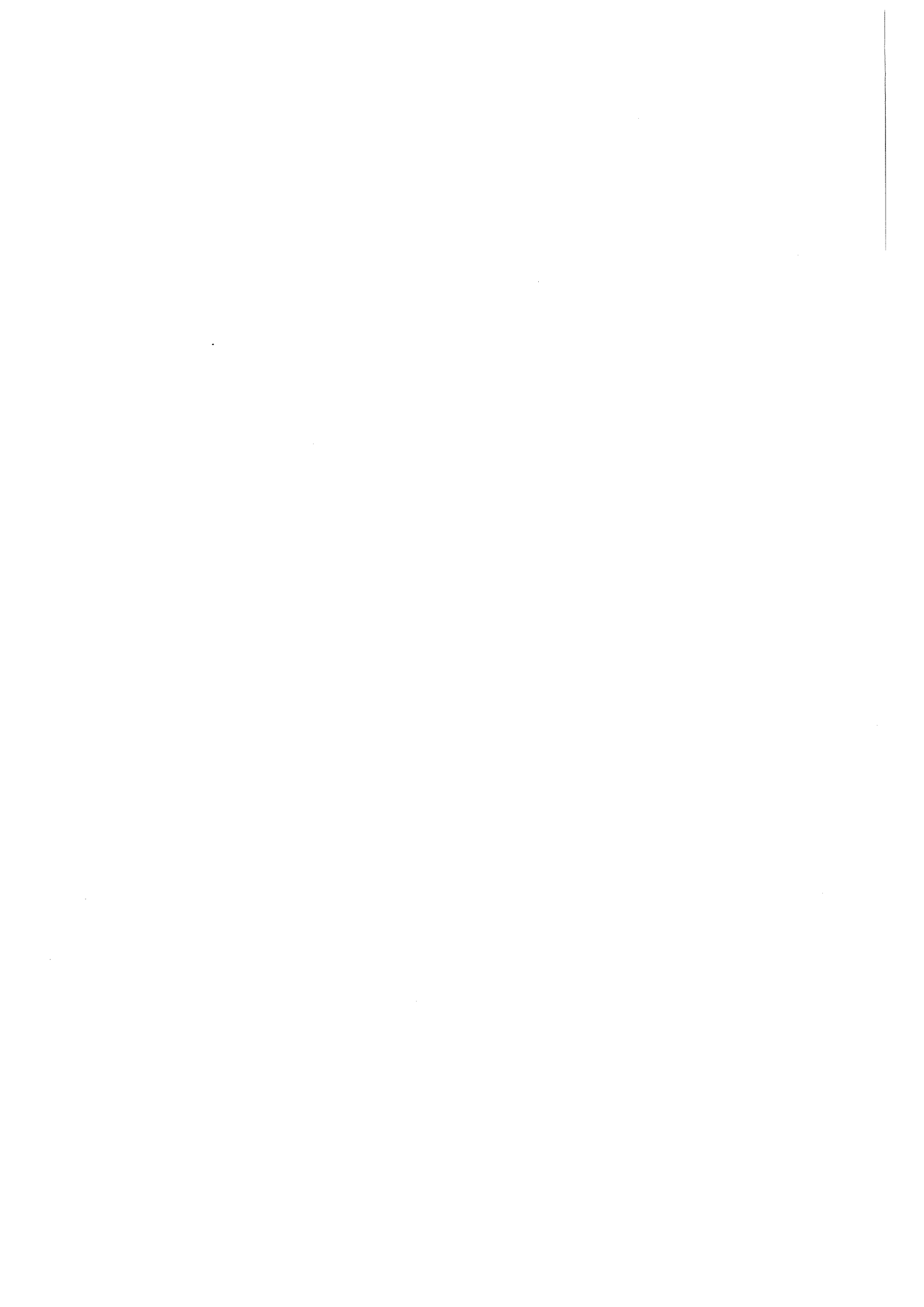


Abb. 15:  
Plastische Verformungen an der Einspannung



PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT  
JAHRESKOLLOQUIUM 1983

AUSWIRKUNG VON ZYKLISCHER THERMOSCHOCK-BELASTUNG  
AUF DAS RISSAUSBREITUNGSVERHALTEN

H. STAMM

G. CZUCK

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE  
INSTITUT FÜR REAKTORBAUELEMENTE/  
INSTITUT FÜR ZUVERLÄSSIGKEIT UND  
SCHADENSKUNDE IM MASCHINENBAU  
DER UNIVERSITÄT KARLSRUHE

Effect of Cyclic Thermal Shock Loading on Crack Growth Behavior

Abstract

Experimental and theoretical results of fatigue crack growth under cyclic thermal shock loading are presented. The experiments are performed by cooling hot steel plates with a water jet. Fatigue crack growth is predicted by means of linear elastic fracture mechanics. The single steps of the calculations are discussed and the results are compared with experimental data. The influence of overelastic loading on crack growth in the shakedown-region is shown for a simplified thermal load case.



## 1. EINLEITUNG

Störfälle in Leichtwasserreaktoren, bei denen eine Notkühlung erforderlich wird, führen dazu, daß die Oberfläche von Teilen der Reaktordruckbehälterwand bzw. des Rohrleitungssystems des Primärkreislaufs mit kaltem Speisewasser in Berührung kommt. Die damit einsetzende plötzliche Kühlung der entsprechenden Komponenten von Betriebstemperatur (ca. 300°C) auf die Speisewassertemperatur (ca. 20°C) wird als Thermoschock bezeichnet. Auch im Normalbetrieb treten bei bestimmten Reaktortypen aufgrund von Leistungsänderungen beim Einspeisen von kaltem Wasser durch die Ausbildung von Schichtenströmungen wiederholt derartige Thermoschocks auf. Die plötzliche Kühlung an der Oberfläche führt in der Druckbehälter- bzw. Rohrwand zu zeitlich veränderlichen Temperaturgradienten. Durch diese werden Wärmespannungen induziert, die zusammen mit der mechanischen Belastung aufgrund des Innendrucks zur Bildung und Ausbreitung von Rissen führen.

Eine Reihe von Forschungsprogrammen [1-6] beschäftigt sich zur Zeit mit der Auswirkung derartiger Thermoschocks auf Risse in besonders gefährdeten Komponenten des Reaktordruckbehälters und Rohrleitungssystems. Zum einen steht die Untersuchung des Rißwachstums im strahlungsversprödten Material der Behälterwand nahe des Corebereichs unter der Wirkung eines einmaligen Thermoschocks im Vordergrund des Interesses. Dabei soll die Gefahr eines Durchreißen der Behälterwand im Fall einer Kombination aus Thermoschock und mechanischer Innendruckbelastung ("pressurized thermal shock"), der bei der Notkühlung nach einem Kühlmittelverluststörfall auftritt, ausgeschlossen werden. Hierzu werden geeignete Simulationsexperimente zusammen mit begleitenden theoretischen Analysen durchgeführt.

Die zweite wichtige Fragestellung betrifft die Entstehung und Ausbreitung von Ermüdungsrissen unter zyklischer Thermoschockbelastung. Versuche zu diesem Problemkreis werden im Rahmen des Projekts Heißdampfreaktor (PHDR) an einem Stutzen des stillgelegten Reaktordruckbehälters in großem Maßstab und im Rahmen des PNS am IRB/ZSM im Labormaßstab durchgeführt. Der letztgenannte Versuch, der im folgenden

ausführlich beschrieben wird, soll zusammen mit den thermohydraulischen Untersuchungen am INR Grundlagen für die Phase II der HDR-Versuche bereitstellen.

Ein wichtiges Ziel aller Versuche ist, die bruchmechanischen Berechnungsverfahren zur Vorhersage des Rißwachstums zu verifizieren. Der Ablauf einer linear elastischen Rißfortschrittsberechnung für den Fall einer zyklischen Thermoschockbelastung wird am Beispiel des IRB/ZSM-Versuchs in seinen Einzelschritten erläutert. Dabei wird auf die für diesen Lastfall spezifischen Schwierigkeiten bei der Erfassung des Werkstoffverhaltens und der physikalischen Modellbildung eingegangen. Die Ergebnisse aus Theorie und Experiment werden einander gegenübergestellt.

Typisch für Thermoschockbelastungen sind hohe Zugspannungen, die im Bauteil nahe der gekühlten Oberfläche auftreten und in diesem Bereich die Fließgrenze übersteigen können. Die Auswirkung dieser überelastischen Beanspruchung auf die für den Rißfortschritt entscheidende Belastungsgröße wird im letzten Teil des Berichts diskutiert.

## 2. DAS THERMOSCHOCKEXPERIMENT

Zur Durchführung der Thermoschockexperimente wurde der Prüfstand THESPA [7] entworfen und aufgebaut. Als Probe wird eine kreisrunde Stahlplatte (22 NiMoCr 3 7) mit einem Durchmesser von 150 mm und einer Dicke von 20 mm (siehe Abb. 1) verwendet. Nach dem Einbringen einer Kerbe mittels Funkenerosion, wird durch mechanische Biegebelastung ein Ermüdungsriß erzeugt, der achsensymmetrisch bezüglich der Rotationsachse im Zentrum der Platte liegt. Die im Heißluftstrom auf eine Temperatur von 200°C ... 400°C homogen erhitzte Platte, wird während der Kühlphase eines Thermoschockzyklus auf der angerissenen Seite in einem kreisförmigen Bereich mit einem Durchmesser von 30 mm mittels eines kalten Wasserstrahls (20°C) bis zu 45 s lang gekühlt. Hierzu wird ein Spritzstempel, der den Wasserstrahl führt, über einen Linearversteller einseitig zentrisch gegen die Platte gedrückt (siehe Abb. 2). Es schließt sich eine Heizphase mit einer Dauer von 3 bis 5

Minuten (je nach Kühldauer) an, in der der Spritzstempel von der Probe weggefahren und die Platte durch Umströmen mit Heißluft auf ihre ursprüngliche Temperatur erhitzt wird. Danach beginnt ein neuer Zyklus.

Im hier beschriebenen Versuch wird die Rißausbreitung in Kleinproben untersucht. Sie unterscheiden sich von der üblichen bruchmechanischen Laborprobe zur Ermittlung des Werkstoffverhaltens dadurch, daß in ihnen räumlich und zeitlich veränderliche, mehrachsige Spannungszustände auftreten, die den Gegebenheiten im realen Bauteil sehr nahe kommen. Der Übergang von der Kleinprobe zum realen Bauteil ist daher leichter als der Übergang von der Laborprobe mit nahezu homogenem, einachsigem Spannungszustand zur Kleinprobe. Die Vorzüge von Versuchen an Kleinproben liegen in den vielfältigen Möglichkeiten der Variation von Versuchsparametern, z.B. der Ausgangsrißgeometrie, der äußeren Belastungsbedingungen und des untersuchten Werkstoffs. Damit werden gute Voraussetzungen geschaffen die theoretischen Modellvorstellungen zu überprüfen.

Ergebnisse von bereits durchgeführten Thermoermüdungsversuchen können den Abb. 3a bis 3c aus den hier dargestellten Bruchflächen entnommen werden. Die Bruchflächen - man erhält sie durch mechanische Wechselbelastung der Probe bis zum Bruch im Anschluß an die zyklische Thermoschockbelastung - werden unter einem Lichtmikroskop ausgewertet. Wie man sieht, hat sich der mechanische Ermüdungsriß (dunkle Fläche) entlang der gesamten Rißfront aufgrund der zyklischen Thermolast verlängert (heller Rand). Schwierigkeiten bereitet die Ermittlung des Rißfortschritts an der Oberfläche, da sich hier die Risse verzweigen. Auffallend ist außerdem das verglichen mit dem tiefsten Punkt wesentlich schnellere Rißwachstum im oberflächennahen Bereich. Die Möglichkeiten der Vorhersage derartiger Rißverlängerungen wird nun in den folgenden Abschnitten diskutiert.

### 3. RISSFORTSCHRITTSBERECHNUNGEN

Das in Abb. 4 gezeigte Schema gibt eine Übersicht über den Ablauf der Rißfortschrittsberechnungen für den Fall der Thermoermüdung.

Dabei sind die wichtigsten, das Ergebnis entscheidend beeinflussenden und mit gewissen Unsicherheiten behafteten Faktoren angegeben, die einerseits von seiten des untersuchten Werkstoffs, andererseits bedingt durch das verwendete mathematische Modell in die Berechnungen eingehen. Anhand der Rißfortschrittsberechnungen zum oben beschriebenen Versuch werden die Einzelschritte der Rechnung genauer erläutert.

#### a) Temperaturen

Zunächst wird der räumliche und zeitliche Temperaturverlauf während der relevanten Zeitspanne (Kühlphase und Beginn der Heizphase) eines Thermoschockzyklus ermittelt. Genauso wie bei der Spannungsberechnung ist auch bei der Temperaturberechnung der Einsatz numerischer Methoden im Fall realer Thermoschockprobleme häufig unumgänglich. Die im folgenden gezeigten Ergebnisse wurden mit dem Programmsystem ADINAT/ADINA gewonnen. Während die in der Wärmeleitungsgleichung auftretenden Werkstoffparameter im allgemeinen gut bekannt sind, bestehen häufig Schwierigkeiten, die im Experiment verwirklichten thermischen Randbedingungen hinsichtlich der Größe des gekühlten Bereichs als auch der Wärmeübergangszahl im Kühlbereich genau genug zu erfassen. In der Thermoschockanlage THESPA ist die Größe des gekühlten Bereichs durch die Abmessungen des Spritzstempels (siehe Abb. 2) eindeutig vorgegeben. Die zeitliche Temperaturverteilung wird an verschiedenen Stellen im Innern einer mit Thermoelementen bestückten Referenzprobe gemessen. Aus diesen Messungen gewinnt man Informationen über den Wärmeübergang Wasser-Stahlplatte im Kühlbereich. Stimmen der theoretisch berechnete und experimentell gemessene Temperaturverlauf gut überein - Abb. 5 zeigt einen Vergleich für verschiedene Thermoelementpositionen - so können die in der Probe auftretenden Temperaturspannungen zuverlässig berechnet werden.

#### b) Spannungen

Abb. 6 zeigt in der ungerissenen Struktur den Verlauf der für die Rißausbreitung wesentlichen Spannungskomponente senkrecht zur Rißoberfläche für verschiedene Zeiten nach Kühlbeginn. Die Schwierigkeiten bei der Spannungsberechnung liegen darin, im Werkstoff vorhandene, evtl. fertigungsbedingte Eigenspannungen, wie sie beispielsweise

in plattierten Proben auftreten, zu erfassen. Eigenspannungsverteilungen bilden sich auch dann aus, wenn die Probe aufgrund hoher Temperaturdifferenzen beim Thermoschock überelastisch beansprucht wird (siehe Abschnitt 5.). Bei den bisher im Experiment untersuchten Proben sind keine fertigungsbedingten Eigenspannungen vorhanden.

### c) Spannungsintensitätsfaktoren (SIF)

Das Ermüdungsrißwachstum wird auf der Grundlage der linear elastischen Bruchmechanik, bei welcher der Spannungszustand an der Rißspitze durch den Spannungsintensitätsfaktor (SIF) charakterisiert wird, berechnet. Die in die Platte eingebrachten Ermüdungsrisse werden durch halbelliptische Oberflächenrisse (siehe Abb. 7) der Tiefe  $a$  und Länge  $2c$  idealisiert. Der SIF hängt nun sowohl von der Rißgeometrie als auch von der Zeit ab, da die thermische Last zeitlich veränderlich ist. Aus dem zeitlichen Verlauf des SIF wird dessen Schwingbreite  $\Delta K$ , die Differenz zwischen maximalem und minimalem Wert während eines Belastungszyklus, entnommen.  $\Delta K$  ist diejenige von der äußeren Last abhängige Größe, die die Rißverlängerung pro Thermoschockzyklus bestimmt.

Die im folgenden skizzierte Berechnung der SIF mit der Methode der Gewichtsfunktionen ist besonders für komplexe Belastungsprobleme mit steilen räumlichen Spannungsgradienten, wie sie beim Thermoschock auftreten, geeignet. Ihr besonderer Vorzug liegt darin, daß es ausreicht, die Spannungen  $\sigma(x)$ , die in der ungerissenen Struktur im Bereich des prospektiven Risses wirken, zu berechnen. In einem ebenen Problem, wie es in Abb. 7 dargestellt ist, ergibt sich der SIF in Abhängigkeit von der Rißlänge  $a$ ,  $K(a)$ , aus der Beziehung

$$K(a) = \int_0^a \sigma(x)H(x,a) dx \quad (1)$$

Die Schwierigkeit besteht nun darin, die Gewichtsfunktion  $H(x,a)$  zu ermitteln. Eine wichtige Methode ist die Bestimmung von  $H(x,a)$  mit Hilfe eines für die gegebene Rißgeometrie gelösten Referenzproblems, bei dem der SIF  $K_r(a)$  und das Rißuferverschiebungsfeld  $u_r(a,x)$  für einen möglicherweise einfachen Lastfall bekannt sind. Für den Fall des ebenen Verzerrungszustandes gilt

$$H(x, a) = \frac{E}{(1-\nu^2)K_r(a)} \frac{\partial u_r(x, a)}{\partial a} \quad (2)$$

E ist der Youngsche Modul,  $\nu$  die Querkontraktionszahl.

Diese Methode kann auch zur Berechnung der SIF von Oberflächenrissen angewandt werden [8]. Mit dem in [9,10] beschriebenen Verfahren werden sowohl am tiefsten Punkt A der Halbellipse als auch am Oberflächenpunkt C im Sinne von [11] gewichtet gemittelte SIF  $\bar{K}_A(a, c, t)$  bzw.  $\bar{K}_C(a, c, t)$  berechnet, wodurch die Variation der K-Werte entlang der Rißfront näherungsweise berücksichtigt wird.

Abb. 8 zeigt den zeitlichen Verlauf von  $\bar{K}_A$  und  $\bar{K}_C$  für verschiedene Rißtiefen a während einer Kühlphase von 40 s Dauer und zu Beginn der Heizphase. Bei kleinen Rißtiefen ( $a = 2$  mm) weisen sowohl  $\bar{K}_A$  als auch  $\bar{K}_C$  unmittelbar nach Kühlbeginn ein zeitliches Maximum auf, während dies bei etwas tieferen Rissen nur noch für  $\bar{K}_C$  der Fall ist. Da bei einem Riß der Tiefe  $a = 10$  mm und Länge  $2c = 40$  mm ( $a/c = 0.5$ ) der Punkt C außerhalb des Kühlbereichs in einem Gebiet niedriger Zugspannungen liegt, verläuft die  $\bar{K}_C(t)$ -Kurve deutlich unterhalb der  $\bar{K}_A(t)$ -Kurve. Bemerkenswert ist das bei dieser Rißgeometrie geringfügige Ansteigen des  $\bar{K}_A$ -Wertes nach dem Abschalten der Kühlung, während bei kleineren Rißtiefen beide  $\bar{K}$ -Werte sofort stark abfallen.

Die zur Berechnung des Rißfortschritts  $\Delta a$  am Scheitelpunkt A und  $\Delta c$  am Oberflächenpunkt C benötigte Schwingbreite  $\Delta \bar{K}_A(a, a/c)$  bzw.  $\Delta \bar{K}_C(a, a/c)$  des Spannungsintensitätsfaktors wird den Abb. 8 entsprechenden  $\bar{K}(t)$ -Kurven für die verschiedenen Rißgeometrien entnommen. Man erhält damit z.B. die in Abb. 9 für einige Halbachsenverhältnisse  $a/c$  in Abhängigkeit von der Rißtiefe aufgetragenen  $\Delta \bar{K}_A$ -Kurven. Aus den mit abnehmendem  $a/c$ -Verhältnis zunehmenden  $\Delta \bar{K}_A$ -Werten kann man entnehmen, daß bei gegebener Rißtiefe a ein langer Riß im Vergleich zu einem kurzen ein größeres Wachstum in Tiefenrichtung aufweist. Die Werte der entsprechend bestimmten Schwingbreiten  $\Delta \bar{K}_C$  am Oberflächenpunkt C liegen etwas höher, nehmen

jedoch stark ab, wenn der Riß aus dem Kühlbereich heraus in die niedrig beanspruchten Zonen läuft.

d) Rißwachstum

Die Rißverlängerungen pro Lastwechsel  $da/dN$  am tiefsten Punkt und  $dc/dN$  am Oberflächenpunkt C werden mit Hilfe der Paris-Beziehungen

$$\begin{aligned} \frac{da}{dN} &= C (\Delta \bar{K}_A)^n \\ \frac{dc}{dN} &= C (\Delta \bar{K}_C)^n \end{aligned} \quad (3)$$

berechnet. Die Materialparameter C und n hängen einerseits vom verwendeten Werkstoff, andererseits aber auch vom Umgebungsmedium an der Rißspitze (Korrosionswirkung), dem Verhältnis  $R = K_{\min}/K_{\max}$  ( $K_{\max}$ : maximaler,  $K_{\min}$ : minimaler K-Wert während eines Zyklus) sowie von der Zyklenform bzw. -frequenz ab. Sie werden mit Hilfe von Standardbruchmechanikproben, die aus dem Plattenwerkstoff gefertigt wurden, unter den dem Thermoschockversuch entsprechenden Umgebungsbedingungen bestimmt.

Wie Versuche mit mechanischer Wechselbelastung gezeigt haben [12], werden mit der Beziehung (3) unter Verwendung der Schwingbreiten von gewichtet gemittelten SIF gute Ergebnisse bei der Rißfortschrittsvorhersage erzielt. Es wird angenommen [13], daß sich nach einem Lastwechsel ein neuer halbelliptischer Riß mit den Halbachsen  $a+da$  und  $c+dc$  einstellt, wobei  $da$  und  $dc$  aus (3) bestimmt werden. Nach der Bestimmung der SIF für diese neue Rißgeometrie wird entsprechend weiterverfahren und so der Rißfortschritt  $\Delta a$  und  $\Delta c$  für die durch den Versuch vorgegebene Zyklenzahl N berechnet.

Bei der Berechnung des Rißfortschritts unter Thermoschockbelastung treten die größten Unsicherheiten sowohl bezüglich des Werkstoffverhaltens als auch bezüglich der Modellbildung bei diesem letzten Teilschritt der Berechnung auf. Um an dieser Stelle durch den Vergleich von Theorie und Experiment Fortschritte im Berechnungsverfahren sowie bei der Bereitstellung der geeigneten werkstoffspezifischen Daten erzielen zu können, ist es unbedingt notwendig, in den ersten drei

Teilschritten die Spannungsintensitätsfaktoren möglichst genau zu bestimmen. Dazu müssen die Versuchsrandbedingungen sowie der Werkstoffzustand genau genug bekannt sein, was bei Experimenten an realen Bauteilen selten der Fall ist.

#### 4. VERGLEICH VON THEORIE UND EXPERIMENT

Da im Augenblick geeignete Rißwachstumskennwerte  $C$  und  $n$  für den Probenwerkstoff unter den entsprechenden Umgebungsbedingungen noch nicht zur Verfügung stehen, werden für die Rißfortschrittsberechnung die im ASME-Code [14] angegebenen Kennwerte eingesetzt. In den Abb. 10 und 11 werden die experimentellen und theoretischen Ergebnisse an zwei untersuchten Proben einander gegenübergestellt. Der dabei durch zyklische Thermoschockbelastung erzeugte Rißfortschritt wurde schraffiert eingezeichnet.

Die in Abb. 10 dargestellte Probe wurde insgesamt 3744 Thermoschockzyklen mit unterschiedlichen Differenzen  $\Delta T$  zwischen der Plattentemperatur zu Beginn der Kühlphase und der Kühlwassertemperatur (303 Zyklen mit  $\Delta T = 170,6$  K, 1000 Zyklen mit  $\Delta T = 195,9$  K, 2441 Zyklen mit  $\Delta T = 298,1$  K) ausgesetzt. Verwendet man zur Rißfortschrittsberechnung die Kennwerte der ASME-Wasser Kurve, die unter Druckwasserbedingungen für kleine  $R$ -Werte in ferritischen Stählen gilt, so erhält man für das Rißwachstum im Oberflächenpunkt  $C$  befriedigende Ergebnisse, wenn man dabei berücksichtigt, daß die ASME-Werte in Bezug auf unsere Versuchsführung als obere Grenzwerte aufzufassen sind. Am Scheitelpunkt  $A$  der Halbellipse wird jedoch ein viel zu starkes Rißwachstum vorhergesagt. Ein besseres Ergebnis wird erzielt, wenn man aufgrund der beim vorliegenden Versuch fehlenden mechanischen Belastung annimmt, daß die Rißspitze im Bereich des Punktes  $A$  von Luft umgeben ist, und das Kühlwasser wegen der im Vergleich zu Druckwasserrandbedingungen geringeren Rißöffnung nicht bis zum tiefsten Punkt des Risses vordringen bzw. dort seine korrosive Wirkung entfalten kann. Setzt man am Punkt  $A$  die ASME-Luft und am Oberflächenpunkt  $C$ , um die Korrosionswirkung des Wassers mitzuerfassen, nach wie vor die ASME-Wasser Kennwerte ein, so wird der Rißfortschritt am Punkt  $A$  gut, wenn auch geringfügig zu niedrig, vorhergesagt.



Entsprechendes gilt für die in Abb. 11 gezeigte Probe, die 4592 Zyklen mit  $\Delta T = 371,5$  K ausgesetzt war. Das maximale Rißwachstum an der Oberfläche wird recht gut vorhergesagt, sieht man einmal von der Bildung eines Anrisses am Rand des rechten Rißufers ab.

Die der Rißfortschrittsberechnung zugrunde liegende Theorie setzt einen homogenen und isotropen Werkstoff voraus. Daher können asymmetrisches Rißwachstum, wie es bei der Probe in Abb. 11 aufgetreten ist, Rißverzweigungen im oberflächennahen Bereich sowie lokale Anrißbildungen nicht vorhergesagt werden. Hierzu muß untersucht werden inwiefern Werkstoffinhomogenitäten vor allem nahe der Oberfläche ursächlich mit diesen Erscheinungen zusammenhängen. Begleitende Untersuchungen des Werkstoffzustands in der Probe sollen hierüber Aufschluß geben. In erster Linie werden jedoch weitere Thermoschockversuche unter Variation der Ausgangsrißgeometrie, des Plattenmaterials und der Belastungsbedingungen durchgeführt, um noch mehr experimentelle Fakten zur Klärung der offenen Fragen zur Verfügung zu stellen.

## 5. ÜBERELASTISCHE BEANSPRUCHUNG

Abb. 6 kann entnommen werden, daß die elastisch berechneten Temperaturspannungen je nach Beanspruchungshöhe und verwendetem Plattenmaterial die Fließgrenze des Werkstoffs übersteigen können. Damit stellt sich die Frage, wie eine derartige überelastische Beanspruchung in der Berechnung des Ermüdungsrißwachstums im Rahmen des üblichen, oben beschriebenen  $\Delta K$ -Konzeptes erfaßt werden kann.

Diese Fragestellung wurde am Beispiel eines etwas einfacheren Systems, bei dem nicht nur ein Teil, sondern die gesamte Platte einseitig gekühlt wird, untersucht [15]. Dabei wird angenommen, daß die Platte hinreichend groß ist, so daß die Temperaturen und Spannungen in der ungerissenen Platte im betrachteten Ausschnitt nur noch von der Dickenrichtung abhängen. Die thermischen Randbedingungen (Wärmeübergangszahlen) wurden so gewählt, daß sie im Fall einer Plattendicke von 20 mm annähernd dem oben beschriebenen Versuch entsprechen. Bei der Darstellung der Ergebnisse werden die dimensionslosen Größen

$$\begin{aligned} \tau &= \frac{\kappa}{w^2} t \\ \bar{Y} &= \frac{(1-\nu)Y}{E\alpha\Delta T} \end{aligned} \quad (4)$$

verwendet. Dabei ist  $\kappa$  die Wärmediffusionskonstante,  $w$  die Plattendicke,  $\alpha$  der Wärmeausdehnungskoeffizient und  $Y$  die Fließspannung im einachsigen Zugversuch. Die übrigen Größen wurden bereits eingeführt. Der dimensionslose Zeitparameter  $\tau$  bezieht sich jeweils auf einen Belastungszyklus, d.h. zu Beginn eines Zyklus gilt immer  $\tau = 0$ . Die hier angenommene Kühldauer von  $\tau = 0.1$  entspricht einer Realzeit von  $t \approx 4,3$  s. Diese kurze Kühldauer reicht aus, um die wesentlichen Phänomene zu erfassen.

In den Abb. 12 und 13 sind die Spannungen in der ungerissenen Struktur eines ideal plastischen Materials mit der Fließgrenze  $\bar{Y} = 0,2$  im Verlauf der ersten beiden Belastungszyklen dargestellt. Während der Kühlphase des ersten Zyklus (Abb. 12) tritt plastisches Fließen nahe der gekühlten Oberfläche auf. Aufgrund der damit verbundenen bleibenden plastischen Dehnungen bildet sich in der Platte ein Eigenspannungszustand aus, der weitere plastische Verformungen im zweiten und allen folgenden Zyklen verhindert (siehe Abb. 13). Damit verhält sich die Platte ab dem zweiten Zyklus vollkommen elastisch, d.h. die zyklische thermische Belastung liegt im sogenannten Shakedown-Bereich. In diesem Fall ist das  $\Delta K$ -Konzept der linear elastischen Bruchmechanik uneingeschränkt anwendbar. Überschreiten die Druckeigenspannungen während der Heizphase ebenfalls die Fließspannung, so liegt das Phänomen der Wechselplastizierung vor, bei der in jedem Zyklus erneut plastische Dehnungen mit wechselndem Vorzeichen auftreten. In diesem Fall können die beschriebenen Rechenverfahren der linear elastischen Bruchmechanik nur noch mit Einschränkungen angewendet werden.

Bei der Berechnung der Schwingbreite des SIF wird angenommen, daß negative  $K$ -Werte nicht zum Ermüdungsrißwachstum beitragen, d.h. es gilt

$$\Delta K = \begin{cases} K_{\max} - K_{\min} & \text{falls } K_{\min} > 0 \\ K_{\max} & \text{falls } K_{\min} < 0 \end{cases} \quad (5)$$

Als Beispiel sind in Abb. 14 für den zweiten und die folgenden Zyklen die Schwingbreiten  $\Delta\bar{K}_A$  und  $\Delta\bar{K}_C$  des SIF für einen halbkreisförmigen Oberflächenriß dargestellt. Dabei werden die Ergebnisse der ideal plastischen Rechnung mit denen einer rein elastischen Rechnung verglichen. Die  $\Delta\bar{K}_C$ -Werte liegen im ideal plastischen Fall für alle betrachteten relativen Rißtiefen deutlich niedriger, da die Spannungen nahe der Oberfläche aufgrund der im ersten Zyklus aufgetragenen plastischen Verformung stark abnehmen. Dies gilt auch für  $\Delta\bar{K}_A$ , dem SIF am tiefsten Punkt, jedoch hier nur für kleine relative Rißtiefen. Risse mit  $a/w > 0,13$  weisen im ideal plastischen Fall unter den angegebenen Belastungsbedingungen eine größere Schwingbreite des SIF auf als im rein elastischen Fall. Daraus ist ersichtlich, daß eine elastische Spannungsberechnung das Rißwachstum in Tiefenrichtung möglicherweise unterschätzt.

## 6. ZUSAMMENFASSUNG

Der Bericht gibt einen Überblick über den Stand der Versuche und Berechnungsverfahren zum Problem der Rißausbreitung unter zyklischer Thermoschockbelastung. Dabei werden erste experimentelle Ergebnisse mit den theoretisch ermittelten Rißfortschrittswerten verglichen, wobei bereits eine zufriedenstellende Übereinstimmung erzielt wurde. Zur Klärung der im Text angeschnittenen offenen Fragen sind weitere Thermoschockversuche sowie begleitende Werkstoffuntersuchungen notwendig. Dabei bietet die vorgestellte Thermoschockanlage THESPA den Vorteil, daß einerseits definierte Rand- und Anfangsbedingungen bezüglich der äußeren Belastung vorliegen, die rechnerisch gut erfaßt werden können, andererseits die Verwendung von Kleinproben die Variation von Versuchsparametern (Werkstoff, Belastungshöhe, Rißgeometrie) zuläßt. Der Einfluß überelastischer Beanspruchung auf die Rißausbreitung soll in einem verfeinerten theoretischen Modell bei der Berechnung des Rißfortschritts ebenfalls berücksichtigt werden.

## 6. LITERATURVERZEICHNIS

- [1] R.D. Cheverton, S.K. Iskander, G.D. Whitman; "Behaviour of Surface Flaws in Reactor Pressure Vessels under Thermal Shock Loading Conditions", Experimental Mechanics 155-162, April 1981
- [2] R.D.Cheverton, S.K.Iskander, G.D. Whitman; "The Integrity of PWR Pressure Vessels During Overcooling Accidents", NUREG/CP-0027, Vol. 1, R1, 644-658
- [3] T.U. Marston, K.E. Stahlkopf, V.K. Chexal; "Applied Research at EPRI on Reactor Vessel Integrity", Berichtsband des 9. MPA-Seminars Bruchsicherheit und Verfügbarkeit, Stuttgart, Oktober 1983
- [4] 5. Statusbericht des Projektes HDR-Sicherheitsprogramm des Kernforschungszentrums Karlsruhe, 10. Dezember 1981, PHDR-Arbeitsbericht 05.8/81
- [5] A. Pellissier-Tanon, P. Sollogoub, B. Houssin, F. Robisson; "Crack Initiation and Arrest in a SA 508 c1 3 Cylinder Under Liquid Nitrogen Thermal Shock Experiment", Transactions of the 7th SMIRT, Paper G/F1/8, Chicago 1983
- [6] J. Jansky, J.Föhl, A. Sauter, S.K. Iskander; "Einfluß der Werkstoffzähigkeit auf Schädigung durch Thermoschock", Berichtsband des 9. MPA-Seminars Bruchsicherheit und Verfügbarkeit Stuttgart, Oktober 1983
- [7] G. Czuck, H. Hitzig, D. Rackel; unveröffentlichter Bericht 1983
- [8] J.R. Rice; "Some Remarks on Elastic Crack Tip Stress Fields" Int. J. Solids Structures 8 (1972) 751-758

- [9] C. Mattheck, D. Munz, H. Stamm; "Stress Intensity Factor for Semi-Elliptical Surface Cracks Loaded by Stress Gradients"  
Eng. Fract. Mech. 18 (1983) 633-641
- [10] C. Mattheck, P. Morawietz, D. Munz; "Stress Intensity Factor at the Surface and at the Deepest Point of a Semi-Elliptical Surface Crack in Plates under Stress Gradients", to be published in Int. J. of Fract. 23 (1983) S. 201-212
- [11] T.A. Cruse, P.M. Besuner; "Residual Life Prediction for Surface Cracks in Complex Structural Details",  
J. of Aircraft 12 (1975) 369-375
- [12] F. Görner, S. Müller, D. Munz; "Ausbreitung von Oberflächenrissen in Platten unter Biege- und Zugwechselbelastung",  
DVM-Berichtsband der 14. Sitzung des Arbeitskreises Bruchvorgänge vom 11.-13.5.1982 in Mülheim/Ruhr
- [13] F. Görner, C. Mattheck, D. Munz; "Change in Geometry of Surface Cracks During Alternating Tension and Bending",  
Z. Werkstofftechnik 14 (1983) 11-18
- [14] ASME, Boiler and Pressure Vessel Code; Sec. XI, ed. 1980
- [15] H. Stamm, D. Munz; "Einfluß überelastischer Beanspruchung auf den Spannungsintensitätsfaktor im Fall thermischer Ermüdung",  
KfK-Bericht 3590, Oktober 1983

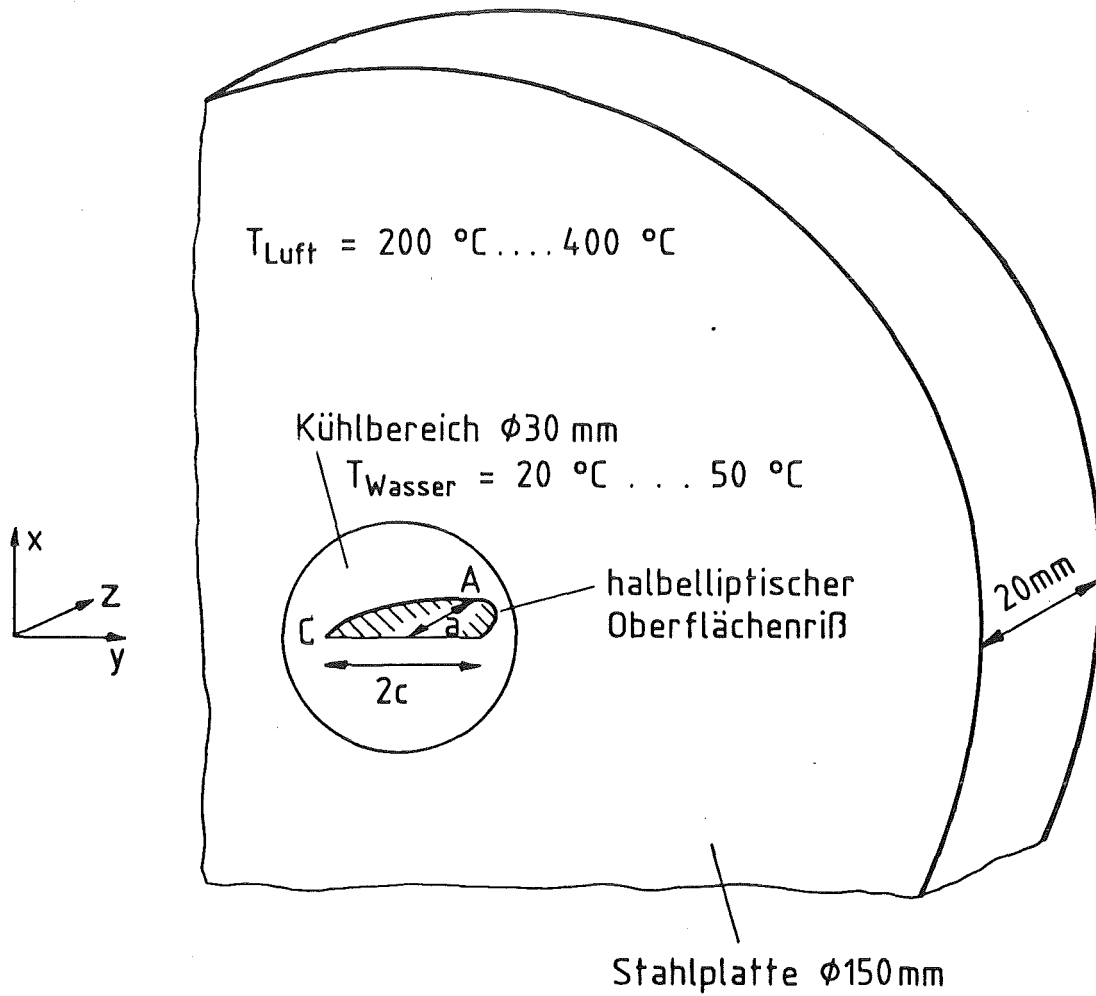


Abb. 1: Thermoschockprobe

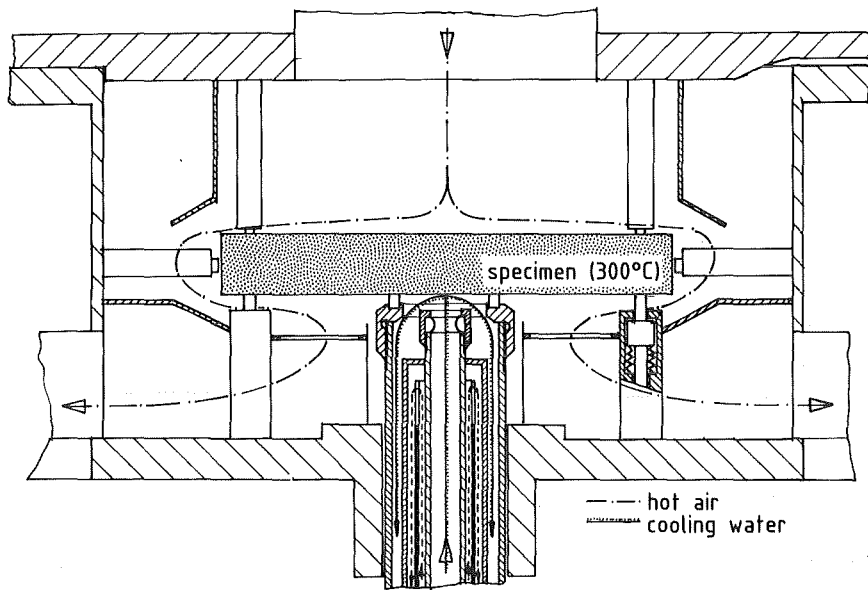
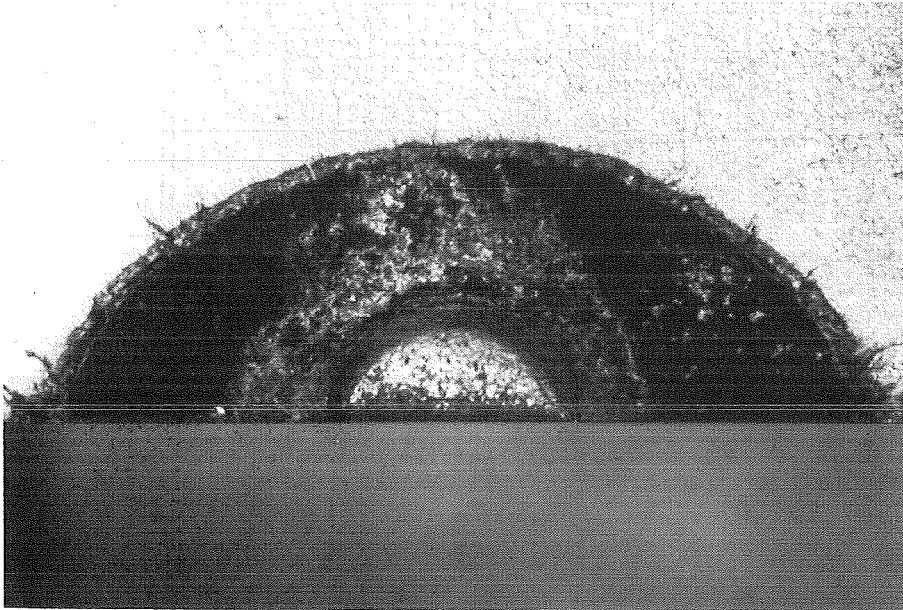
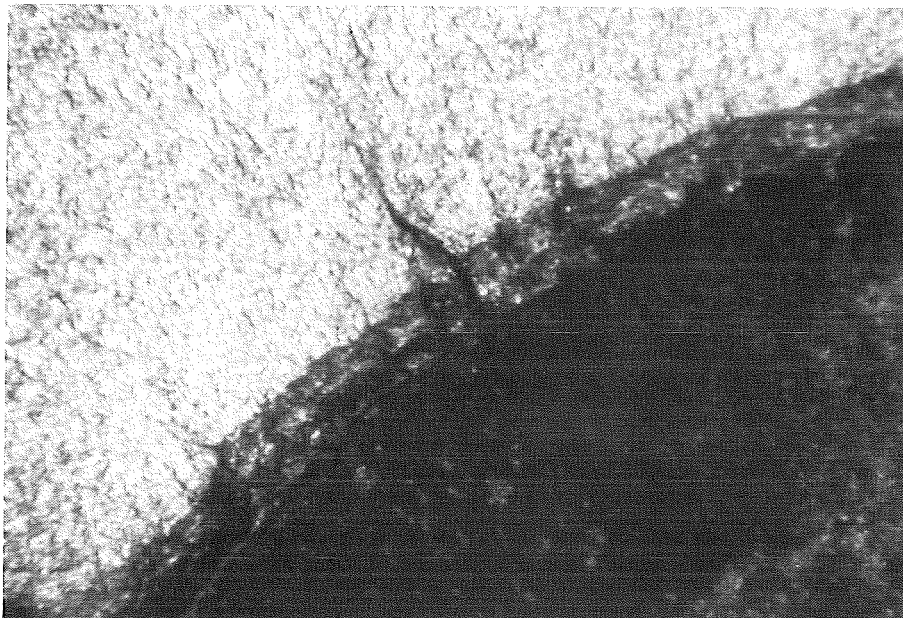


Abb. 2: Versuchsanordnung



a)



b)

Abb. 3: Lichtmikroskopische Bruchflächenaufnahme (Probe 35)



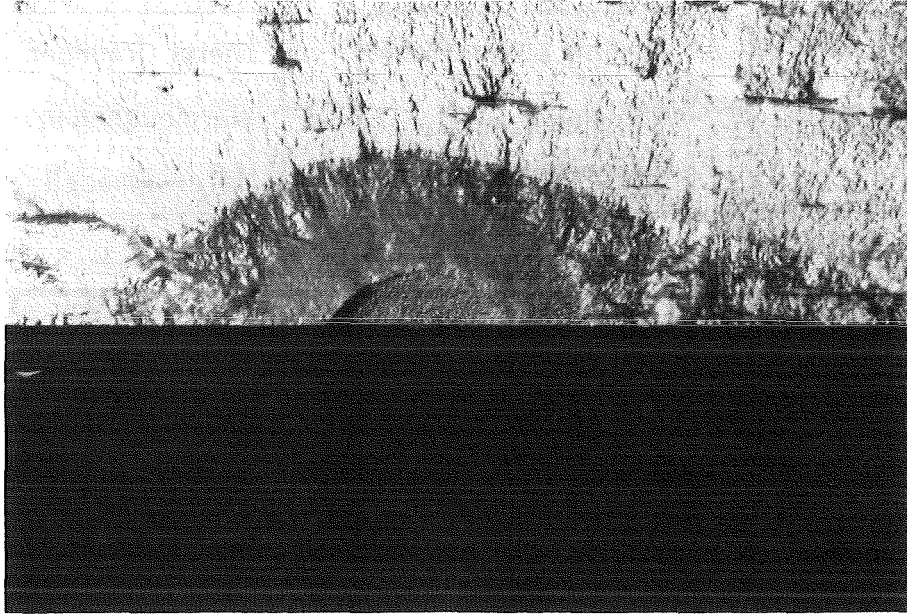


Abb. 3c: Lichtmikroskopische Bruchflächenaufnahme (Probe 50)

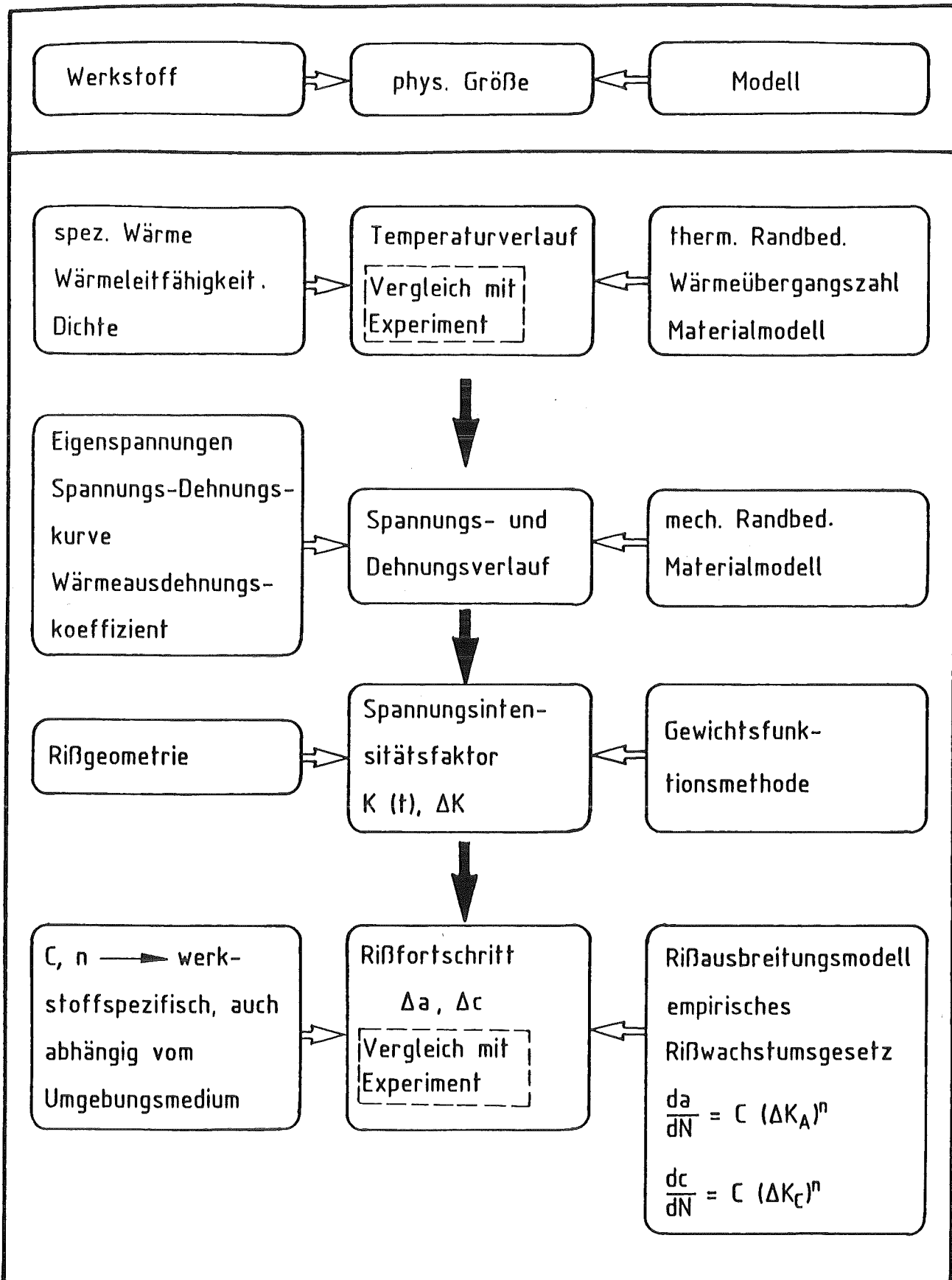


Abb. 4: Ablauf der Rißfortschrittsberechnung

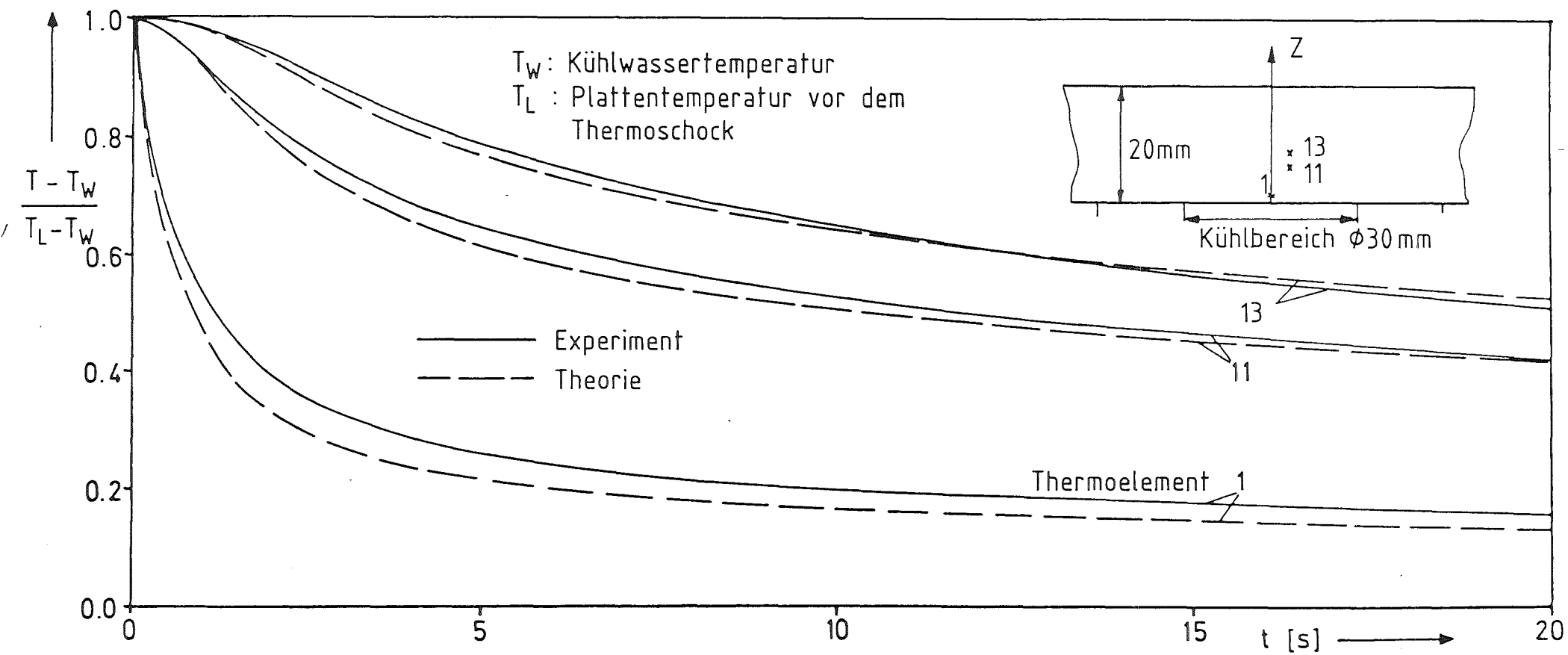


Abb. 5: Vergleich von gemessenem und berechnetem Temperaturverlauf

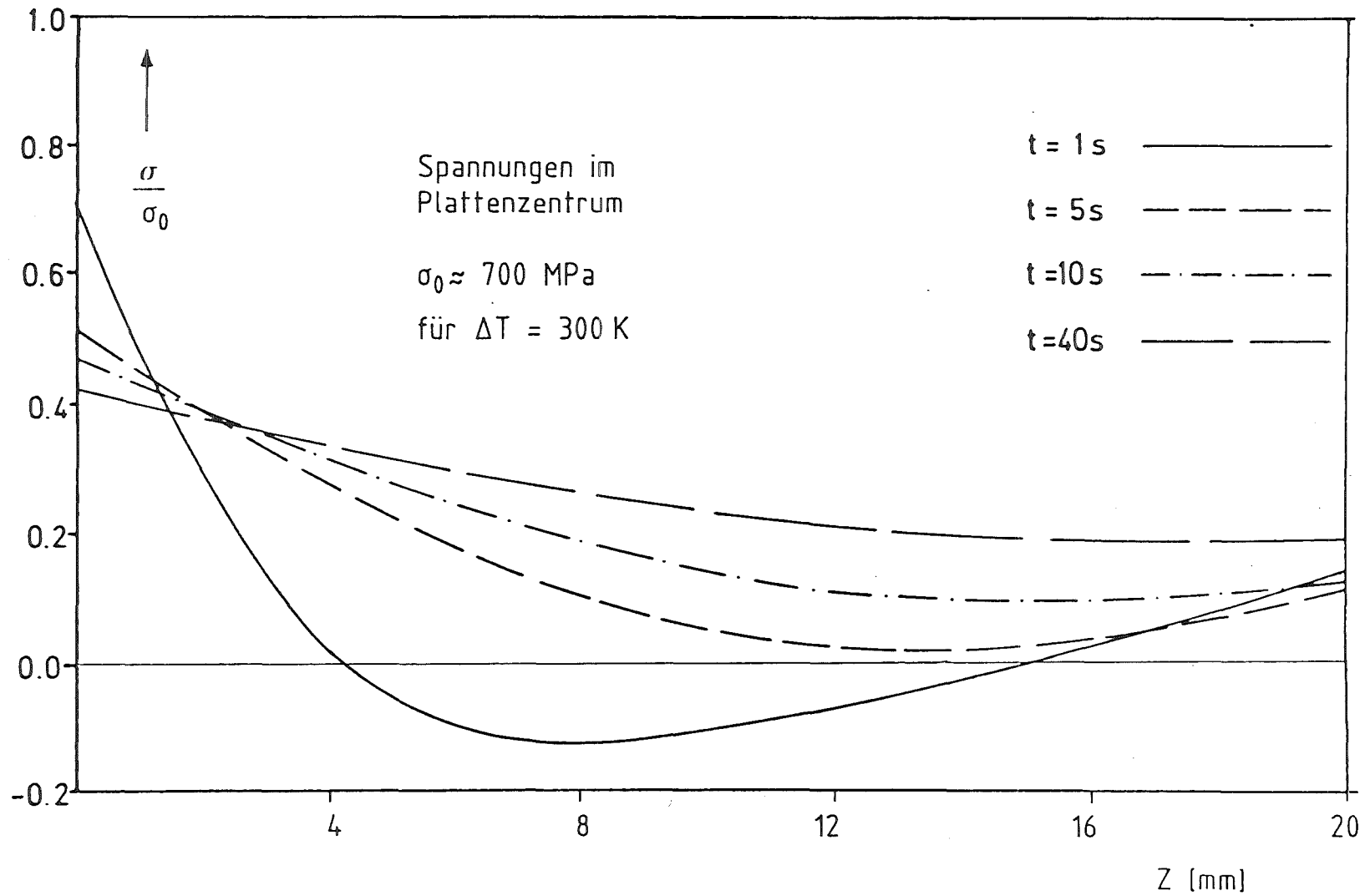
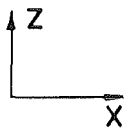
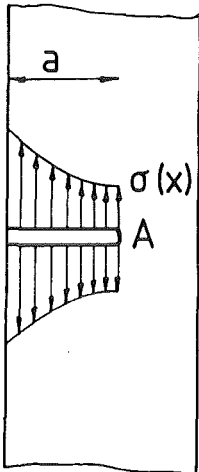


Abb. 6: Spannungsverteilung in der ungerissenen Struktur  $\sigma_0 = E\alpha\Delta T$

## Spannungsintensitätsfaktoren (SIF)



$$K_A = \int_0^a \sigma(x) H(x, a) dx \quad (2D)$$



$\sigma(x)$  : Spannungen in der ungerissenen Struktur im Bereich des prospektiven Risses

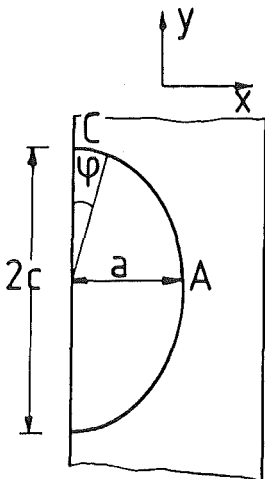
$H(x, a)$ : Gewichtsfunktion

$K_A = PH(a, x)$ : SIF aufgrund einer Einzelkraft  $P$  im Abstand  $x$  von der Oberfläche

$$H(x, a) = \frac{E}{(1-\nu^2)K_r(a)} \frac{\partial u_r(x, a)}{\partial a}$$

$K_r, u_r$  : SIF bzw. Rißuferverschiebungsfeld eines Referenzlastfalles

Anwendung auf halbelliptische Oberflächenrisse



$$K = K(a, c, \varphi)$$

Mit Hilfe Gewichtsfunktionsmethode werden gewichtet gemittelte SIF  $\bar{K}_A$  und  $\bar{K}_C$  an den Punkten A bzw. C berechnet



Abb. 7: Gewichtsfunktionsmethode

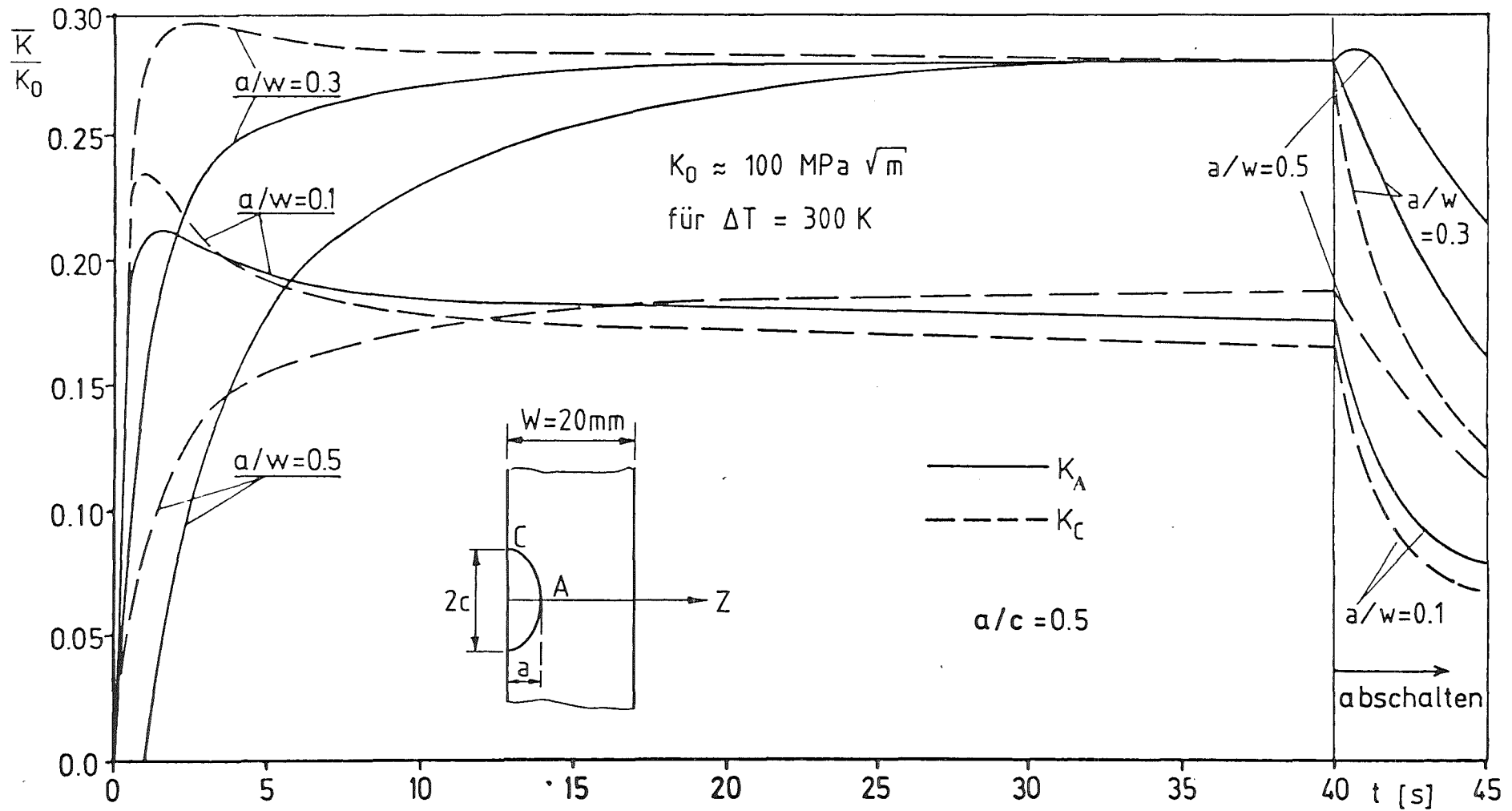


Abb. 8: Zeitlicher Verlauf der gewichtet gemittelten Spannungsintensitätsfaktoren,  $K_0 = E\alpha\Delta T\sqrt{W}$

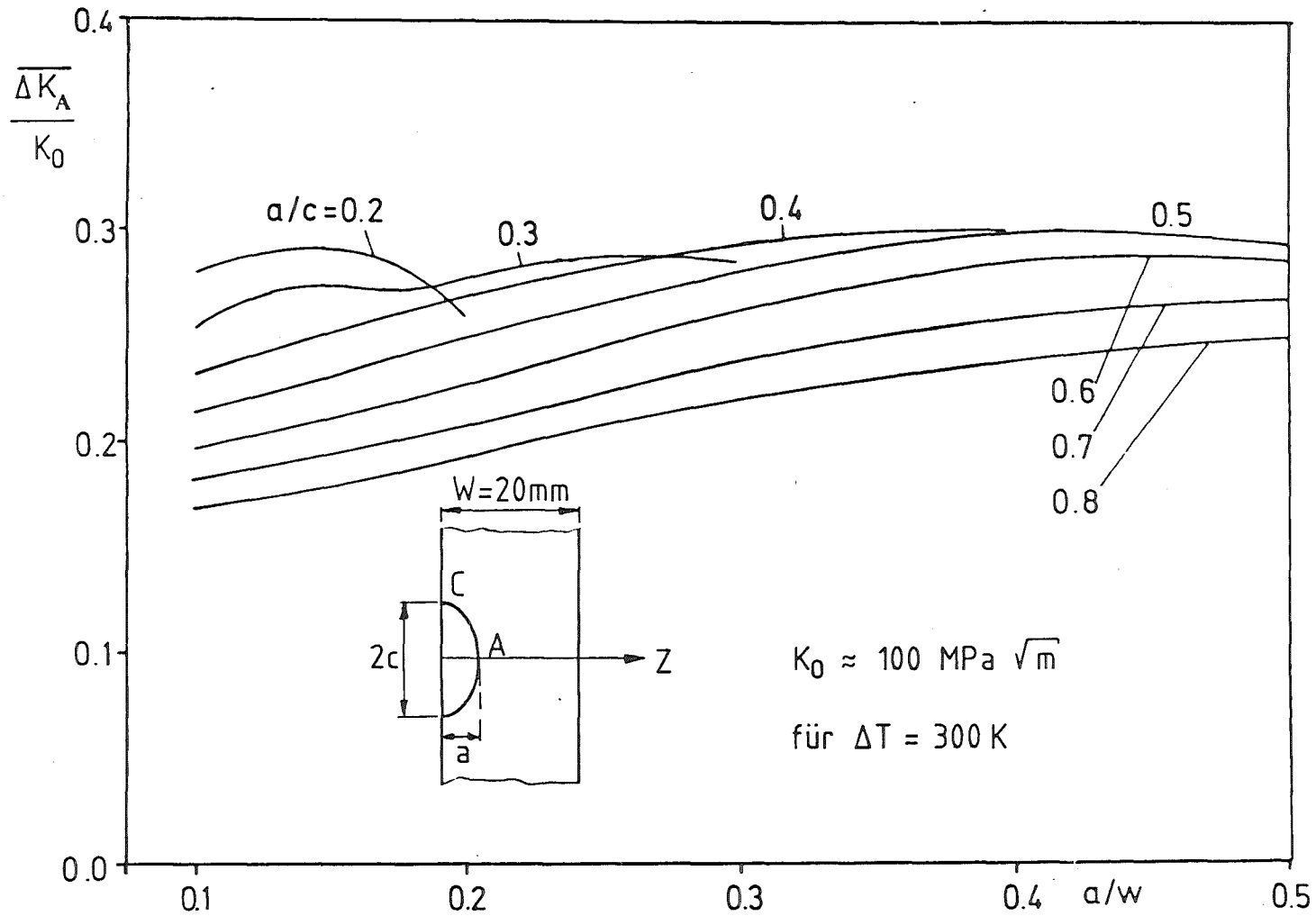
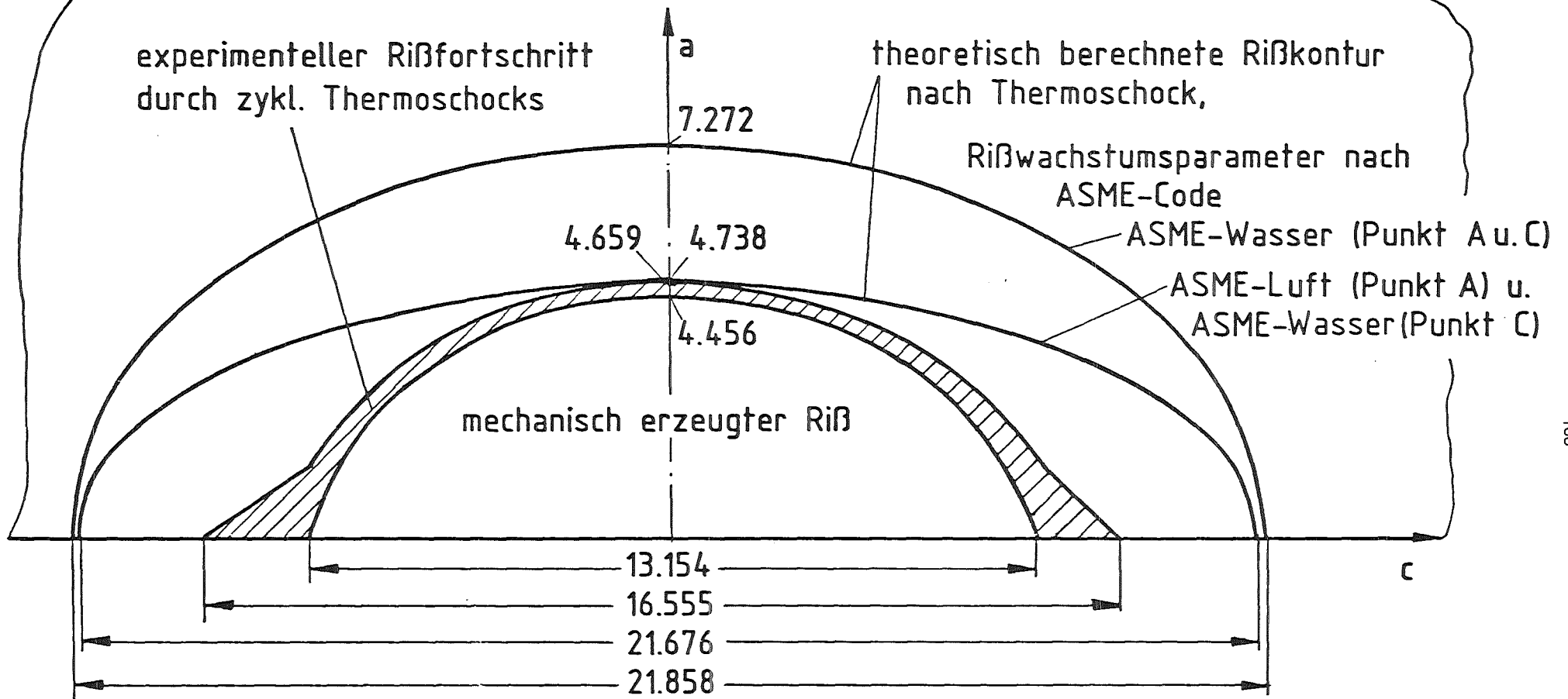


Abb. 9: Schwingbreite des Spannungsintensitätsfaktors am Punkt A

$$K_0 = E\alpha\Delta T\sqrt{W}$$

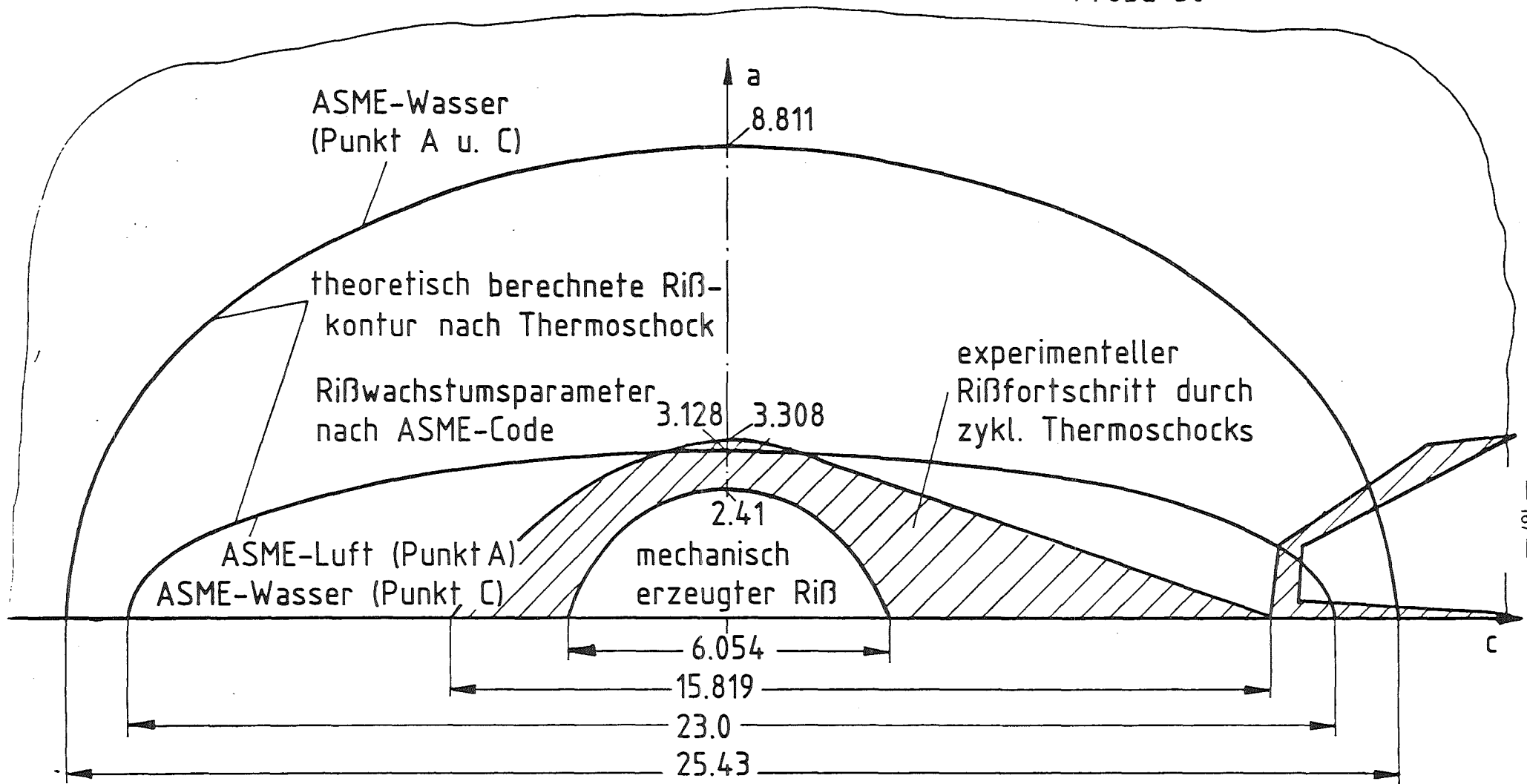


Angaben in mm



Abb. 10: Vergleich von experimentell und theoretisch ermitteltem Rißfortschritt





— 167 —



Abb. 11: Vergleich von experimentell und theoretisch ermitteltem RiBfortschritt

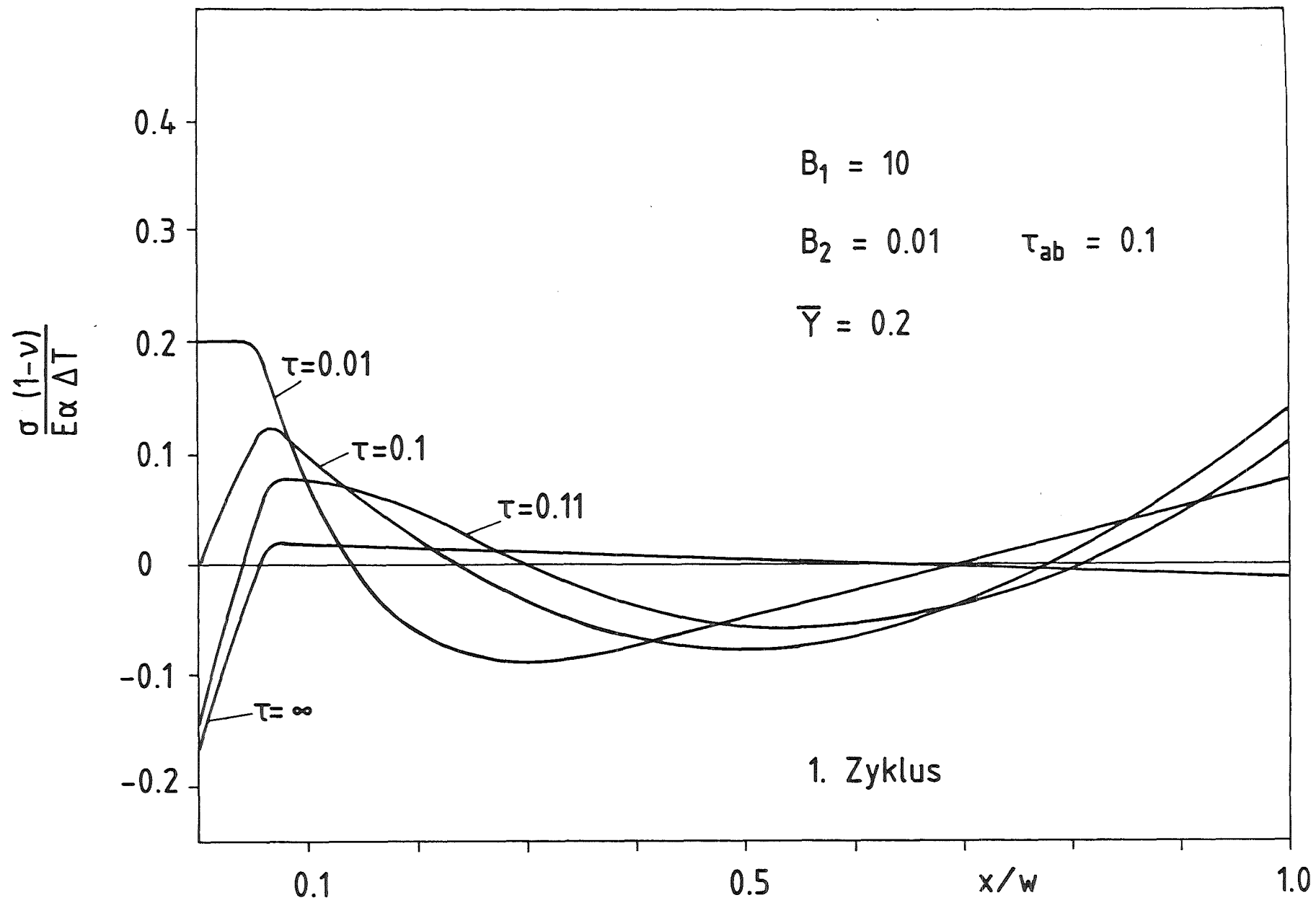


Abb. 12: Spannungsverlauf während des ersten Thermoschockzyklus in einem ideal plastischen Material



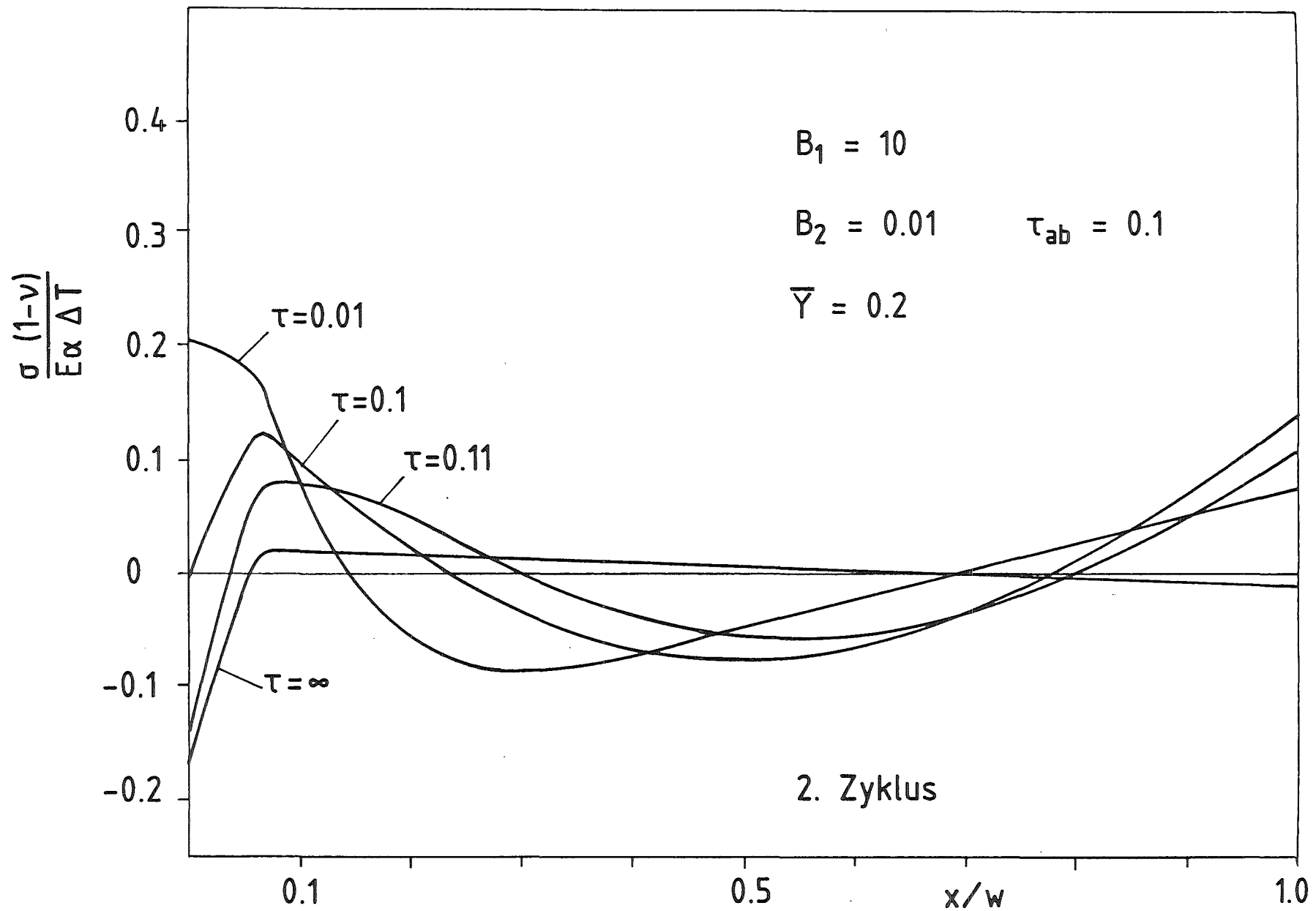


Abb. 13: Spannungsverlauf während des zweiten und der folgenden Thermoschockzyklen in einem ideal plastischen Material

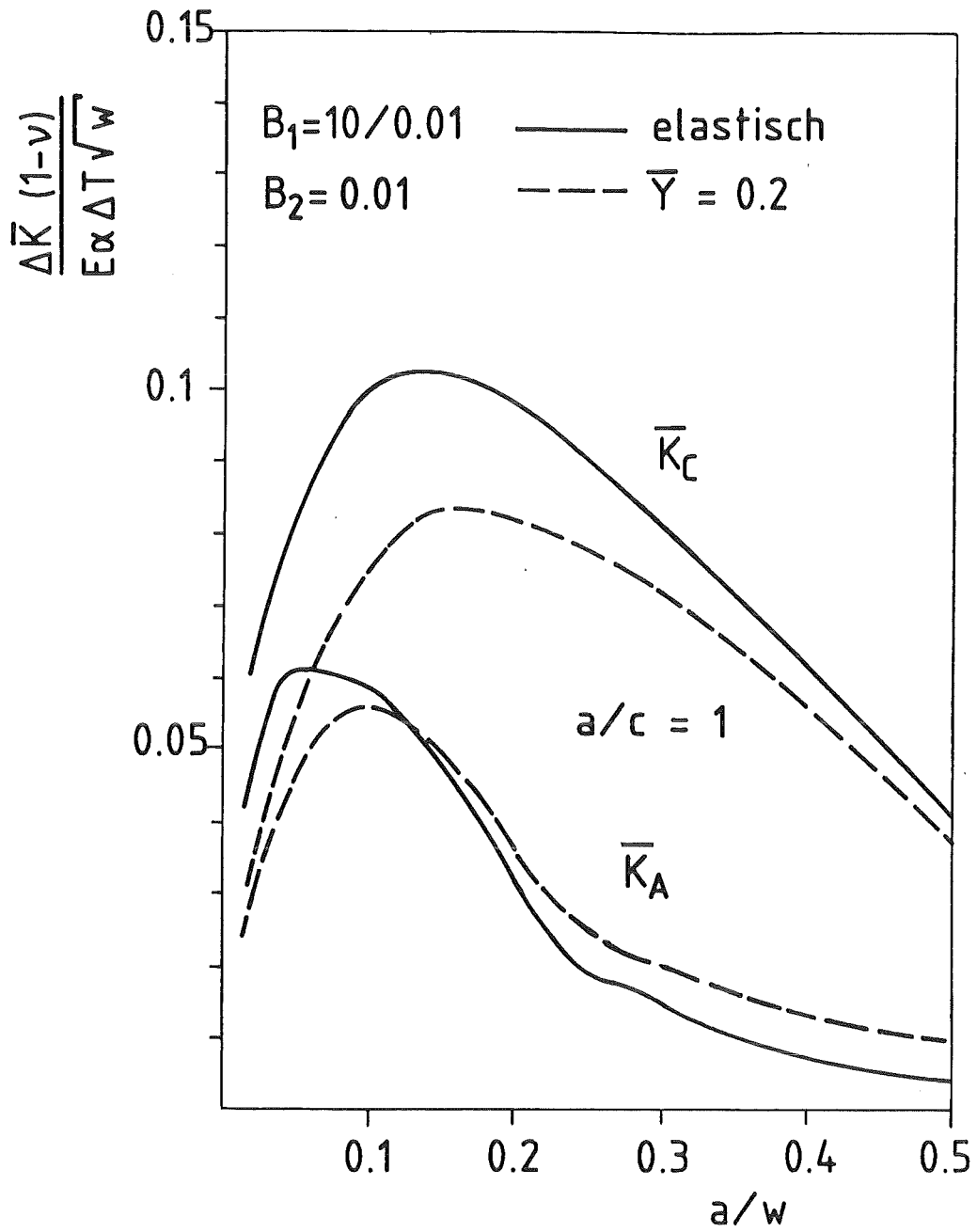


Abb. 14: Schwingbreiten des Spannungsintensitätsfaktors ab dem zweiten Thermoschockzyklus

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT  
JAHRESKOLLOQUIUM 1983

UNTERSUCHUNGEN ZUR TEMPERATURESKALATION  
BEI HOCHTEMPERATURTRANSIENTEN

S. HAGEN  
S.O. PECK<sup>+</sup>)

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE  
HAUPTABTEILUNG INGENIEURTECHNIK

<sup>+</sup>) Del. von EG&G, Idaho

## Investigations on Temperature Escalation under Severe Fuel Damage Conditions

### Summary

These experiments are part of an out-of-pile program using electrically heated fuel rod simulators to investigate PWR fuel element behavior under severe fuel damage conditions. A temperature escalation can be caused by the exothermic zircaloy/steam reaction, whose reaction rate increases as an Arrhenius function of temperature. The tests were performed with different heatup rates and therefore different initial oxide layer thicknesses as a major parameter. Single rod and bundle geometries have been investigated.

A temperature escalation was observed in every test. The maximum cladding surface temperature in the single rod tests never exceeded 2200°C. The escalation began in the upper region of the rods and moved down the rods, opposite to the direction of steam flow. For fast initial heatup rates, the runoff of molten zircaloy was a limiting process for the escalation. For slow heatup rates, the formation of a protective oxide layer reduced the reaction rate.

The posttest appearance of the fuel rod simulators showed that at slow heatup rates oxidation of the cladding was complete, and the fuel rod was relatively intact. Conversely, at fast heatup rates, relatively little cladding oxidation with extensive dissolution of the UO<sub>2</sub> pellets and runoff of molten cladding was observed.

The center rod of the nine-rod ESBU-1 bundle reached a maximum temperature of 2250°C. Melt runoff apparently limited the escalation in both the ESBU-1 and 2A bundles. Posttest visual examination of the bundles showed that cladding from every rod had melted, liquefied some fuel, flowed down the rods, and frozen in a solid mass that substantially blocked all flow channels. A large amount of powdery rubble, fuel that fractured during cooldown, was found on top of the blockages.

Metallographic, EMP, and SEM examinations showed that the melt had dissolved both fuel and oxidized cladding, and had itself been oxidized by steam. Depending on the overall oxygen content, the melt at room temperature contained: (a) three phases (low oxygen content), metallic  $\alpha$ -Zr(O), a uranium-rich metallic (U,Zr) alloy, and a (U,Zr)O<sub>2</sub>; or (b) two phases (high oxygen content),  $\alpha$ -Zr(O) and (U,Zr)O<sub>2</sub>. The higher oxygen content indicates dissolution of ZrO<sub>2</sub> as well as UO<sub>2</sub>. In melt regions where the local oxidation was very severe, such as in steam contact, only the (U,Zr)O<sub>2</sub> phase was found.

## 1. Einleitung

Die Risikobetrachtungen (WASH 1400, Deutsche Risikostudie) weisen aus, daß der Hauptbeitrag zum Risiko eines Kernschmelzunfalles durch kleine Lecks gegeben ist. Auch die Transientenstörfälle würden bevorzugt über kleine Lecks zum Kernschmelzunfall übergehen. Hierbei ist vorausgesetzt, daß ein teilweises oder zeitweises Versagen der Notkühleinrichtung stets zum Kernschmelzen führt.

Der Störfall am TMI-2 Reaktor hat aber gezeigt, daß selbst ein deutliches Überschreiten der üblicherweise angenommenen Temperatursicherheitsgrenze von 1200 °C bei einem kleinen Leck mit zeitweisem Ausfall der Notkühlung nicht zwangsläufig zum unkontrollierten Kernschmelzunfall führen muß. Trotz der schweren Schäden an den Brennelementen konnte der Kern in einen kühlbaren Zustand überführt werden. Dieser Störfalldemonstriert, daß noch ein beachtlicher Sicherheitsspielraum zwischen voll funktionierender Notkühlung und dem unkontrollierten Kernschmelzunfall vorhanden ist.

Es ist daher wichtig, die Schadensmechanismen, die an einem überhitzten Kern bis zum Beginn des unkontrollierbaren Schmelzens wirksam sind, genau zu untersuchen. Dann lassen sich Aussagen darüber machen, wie lange der Kern bei steigender Temperatur noch eine kühlbare Geometrie besitzt. Eine sorgfältige Analyse der möglichen Schäden ist für eine verbesserte Ausbildung der Operateure als Vorbereitung für das Verhalten in Unfallsituationen und für Entscheidungen beim Unfallmanagement notwendig. Es sind daher in mehreren Ländern Programme zur Untersuchung schwerer Kernschäden (Severe Fuel Damage) gestartet worden.

In der Bundesrepublik sind bei KfK schon seit 1976 Untersuchungen zum Verhalten der Brennstäbe jenseits der 1200 °C-Grenze durchgeführt worden /1/. Nach dem TMI-2 Störfall wurde auch bei KfK durch das Projekt Nukleare Sicherheit (PNS) ein stark erweitertes Programm zur Untersuchung schwerer Kernschäden gestartet /2/.

Dieses Programm wird in fünf Vorhaben bearbeitet:

- Einzeleffektuntersuchungen zur
  - Wechselwirkung zwischen Zircaloy/UO<sub>2</sub> und
  - Hochtemperaturoxidation von Zircaloy und Edelstahl.

- Out-of-pile Einzelstab- und Bündelexperimente mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren unter realistischen Abkühlbedingungen.
- Untersuchungen zur Langzeit Kühlbarkeit schwer beschädigter Reaktorkerne.
- Untersuchung zur Freisetzung von Spaltgasen aus schwer beschädigten Brennstäben.
- Codeentwicklung.

Dieser Bericht befaßt sich mit den Out-of-pile Experimenten mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren. Diese Experimente untersuchen die Schadensmechanismen an DWR-Brennelementen im Temperaturbereich bis 2200 °C. Sie sollen das Zusammenwirken der in den Einzeleffektuntersuchungen im Detail unter gut definierten Bedingungen betrachteten Prozesse klären. Die Experimente dienen ebenfalls zur Überprüfung der Fähigkeit der Rechenprogramme, das integrale Verhalten der Brennstäbe bei schweren Kernschäden zu beschreiben.

Die Zielsetzung der Out-of-pile Experimente ist in 6 Schwerpunkte gegliedert:

- Auflösung des UO<sub>2</sub> durch flüssiges Zircaloy
- Fragmentierung der Brennelementestäbe durch Versprödung infolge Oxidation
- Einfluß der exothermen Zirkon/Wasserdampf-Reaktion auf das Temperaturzeitverhalten (Temperatureskalation)
- Oxidationsverhalten von flüssigem Zircaloy
- Einfluß der Absorbermaterialien
- Referenzversuche zu den international durchgeführten Inpile-Experimenten zum Severe Fuel Damage.

Der starke Einfluß der unterschiedlichen Randbedingungen auf das Verhalten des Brennelements erfordert eine möglichst realistische Simulierung dieser Bedingungen im Experiment. Hierfür wird in der Hauptabteilung Ingenieurtechnik die Versuchsanlage CORA aufgebaut. In ihr können insbesondere die Druckverhältnisse und das Quenchen des Bündels simuliert werden. Die Cora-Versuchsanlage wird Ende nächsten Jahres zur Verfügung stehen. In der Zwischenzeit wird der Teil des Out-of-pile Versuchsprogrammes, der die Drucksimulierung und das Quenchen nicht erfordert, in der NIELS-Anlage durchgeführt. Über Experimente zum Temperatur-Eskalationsverhalten in dieser Anlage wird in diesem Beitrag zum PNS-Jahreskolloquium berichtet.



Frühere Experimente hatten gezeigt, daß das Verhalten der Brennstäbe bei hohen Temperaturen infolge der Wechselwirkung zwischen Zry und  $UO_2$  im wesentlichen durch den Oxidationsgrad der Hülle festgelegt wird. Die Oxidation bei einer vorgegebenen Temperatur wird durch die Temperaturanstiegsrate bestimmt. Bei zircaloyumhüllten Brennstäben hängt die Temperaturanstiegsrate selbst wiederum von der Oxidationsrate ab. Dies wird durch die exotherme Wärmetönung der Zirkon/Wasserdampf-Reaktion bedingt. Die Reaktionsrate der Zirkonoxidation steigt exponentiell mit der Temperatur an. Ein Temperaturanstieg der Hülle hat also eine Erhöhung der Reaktionsrate und damit einen weiteren verstärkten Temperaturanstieg zur Folge. Der Temperaturanstieg eskaliert. Die Temperatur nimmt solange zu, bis die Reaktionsrate durch andere Prozesse wieder abnimmt oder die mit der Temperatur stark ansteigenden Wärmeverluste überwiegen. Die Temperatureskalation hat also einen wesentlichen Einfluß auf das Schadensverhalten der Brennstäbe bei hohen Temperaturen.

Die Durchführung der Eskalationsversuche kommen auch den Inpile-Versuche in der Power Burst Facility in Idaho /7/ zugute. Vorbereitende Rechnungen mit dem TRAC-B Code sagten Temperatur-Eskalationen mit maximalen Temperaturen von ca. 3000 °C voraus. Derart hohe Temperaturen wären im Inpile-Experiment nicht zu beherrschen. Für die inpile-Versuche war es daher wichtig herauszufinden, welche Temperaturen im Experiment wirklich erreicht werden.

Für die Untersuchung der Temperatureskalation und der Prozesse, die eine Beschränkung der Temperatureskalation bewirken, haben wir 11 Einzelstabversuche und 2 Bündelversuche durchgeführt /3,4,5,6/.

Die Einzelstabversuche werden im folgenden mit ESSI und die Bündelversuche mit ESBÜ abgekürzt. Die folgende Tabelle gibt eine Übersicht über die Versuche.

Test	Anfängliche Aufheizrate (°C/s)	Dampf- fluß (g/min)	Isolations- stärke (mm)	Spalt Dampfrohr/ Isolation	Maximale Temperatur (°C)
<u>Einzelstabversuche</u>					
ESSI 1	in Ar	35.	100.	ja	2200.
ESSI 2	2.0	23.	100.	ja	2100.
ESSI 3	0.5	17.	100.	ja	-----
ESSI 4	0.3	21.	100.	ja	2050.
ESSI 5	0.8	20.	100.	ja	1900.
ESSI 6	1.1	20.	100.	ja	2100.
ESSI 7	2.3	22.	100.	ja	1925.
ESSI 8	3.6	25.	100.	ja	1970.
ESSI 9	~E6	25.	12.5	ja	1950.
ESSI 10	~E6	25.	6.2	nein	2025.
ESSI 11	~E5	25.	6.2	nein	1900.
<u>Bündelversuche</u>					
ESBU 1	2.0	58.	6.2	nein	2250.
ESBU 2A	0.5	43.	6.2	nein	2175.

Tabelle 1: Anfängliche Aufheizrate, Dampffluß und maximale Stabtemperatur.

## 2. Versuchsaufbau

### 2.1 Einzelstabversuche

Die Anordnung der Einzelstabversuche gibt Abb. 1 wieder. Der Brennstabsimulator hat die übliche Anordnung: Zentraler W-Heizer von 6 mm Durchmesser,  $UO_2$  Ringpellets und Zircaloy-Hüllrohr mit einem äußeren Durchmesser von 10,75 mm. Die Länge des Hüllrohres betrug 370 mm. Um die Wirkung der Nachbarstäbe im Reaktor zu simulieren, deren Oberflächentemperatur ebenfalls eskaliert, wurde der Brennstabsimulator mit einem Zircaloyrohr umgeben. Dieses wiederum befand sich innerhalb einer Keramikfaserisolierung von 10 cm Stärke. Die Keramikfaserwandung ist wegen ihrer hohen Porosität von 92% ein ausgezeichneter Isolator. Dampf strömt am unteren Ende in den Ringraum um den Brennstabsimulator. Das Dampfverteilungssystem besteht aus zwei Rohren. Dieses Verteilungssystem ist rechts unten in der Abb. 1 getrennt wiedergegeben. Die Temperatur auf dem Stab- und dem Dampfführungsrohr wurde mit Quotientenpyrometern durch Löcher in der Isolierung und im Dampfführungsrohr gemessen.

### 2.2 Bündelversuche

Abb. 2 zeigt die Bündelanordnung. Eine Gruppe von 3x3 Brennstabsimulatoren wird von einem Zircaloykasten umgeben. Dieser wiederum ist durch eine Schicht aus 6 mm  $ZrO_2$ -Fasermaterial umhüllt. Dies entspricht der Isolation der Inpile-Experimente in der Power Burst Facility. Die Brennstabsimulatoren sind mit denen der Einzelstabversuche identisch, haben aber eine Länge von 400 mm. Dampf wird durch 16 Löcher im Dampfverteilungssystem gleichmäßig in das untere Ende des Bündels gespeist. Die Temperatur am Zentralstab, an einem Nebenstab und am Dampführungskasten wurde in 145 mm Abstand vom oberen Ende mit Quotientenpyrometern gemessen.

### 3. Versuchsführung

Die Oxidschicht, die sich bildet wirkt als Barriere gegen weitere Oxidation. Die Reaktionsrate fällt daher mit dem Kehrwert der Oxidschichtdicke ab. Wir haben die Versuche derart geführt, daß die Oxidschicht beim Einsetzen der Oxidation der Hauptparameter war. Das wurde auf zwei Arten erreicht:

Beim ersten Einzelstabversuch wurden die Bedingungen für die Eskalation optimal gewählt: Die anfängliche Schichtdicke sollte so dünn wie möglich sein. Daher wurde die Versuchsanordnung (Abb. 3) bis zu einer Stabtemperatur von 1700 °C in Argon aufgeheizt. Dann wurde schlagartig ein Dampfdurchsatz von 35 g/min zugeschaltet. Bei allen anderen Versuchen wurde von Anfang an ein Dampfstrom von ca. 20 g/min eingestellt.

Hier wurde die elektrische Leistung linear mit unterschiedlicher Anstiegsrate erhöht (Abb. 4). Damit konnte sich die Oxidschicht bis zum Beginn der Eskalation entsprechend dem Temperaturanstieg entwickeln.

### 4. Versuchsergebnisse

Die Abbildungen 3-5 zeigen einige typische Temperaturkurven. Sie werden zuerst beschrieben und danach gemeinsam diskutiert. Abb. 3 zeigt die Ergebnisse für den Versuch ohne Oxidschicht zu Beginn der Eskalation ESSI-1. Der Brennstab wurde in Argon aufgeheizt, und erst dann wurde der Dampf eingebracht. Die elektrische Leistung des Brennstabsimulators wurde stufenweise erhöht und dann bei 1,2 KW konstant gehalten. Die Oberflächentemperatur des Stabes betrug ca. 1700 °C während der konstanten elektrischen Leistung. Die Temperatur auf der Oberfläche des Dampfführungsrohres erreichte eine Temperatur von ca. 1200 °C.

Nach Einbringen des Dampfes stieg die Temperatur des Brennstabsimulators schlagartig auf ungefähr 2200 °C. In weniger als 1 Minute verringerte sie sich aber wieder unter die ursprünglichen 1700 °C bis zur Meßgrenze des Quotientenpyrometers. Die Temperatur auf dem umgebenden Zircaloyrohr zeigte ein ähnliches Verhalten. Das zusätzliche Zircaloyrohr simuliert also relativ gut den Einfluß der umgebenden Stäbe.

Abb. 4 zeigt die Temperaturkurven der Einzelstabserie mit verschiedenen anfänglichen Aufheizraten bei Dampfeinspeisung seit Beginn des Versuchs. Für diese Experimente wurde die elektrische Leistung nahezu linear mit verschiedenen Anstiegsraten gesteigert und dann konstant gehalten. Die durch die verschiedenen Heizleistungsänderungen verursachten anfänglichen Temperaturanstiege lagen zwischen 2,5 °C/sec für ESSI-7 und 0,3 °C/sec für ESSI-4. Bei allen Versuchen hat sich ein Eskalationspeak ausgebildet. Die Temperatur, bei welcher der steile Anstieg einsetzt, nimmt von ca. 1200 °C bei ESSI-7 auf ca. 1600 °C bei ESSI-4 zu. Die Endanstiegsrate war bei allen Versuchen ähnlich und lag bei ca. 6 °C/sec. Bei den Versuchen wurden maximale Temperaturen zwischen 1900 und 2100 °C erreicht. Nach Überschreiten des Maximums nimmt die Temperatur mit ungefähr 1 °C/sec ab, obwohl die elektrische Leistung konstant gehalten wird.

Abb. 5 zeigt das Temperaturverhalten des Bündelversuchs ESBÜ-1. Zum Vergleich ist die eingespeiste Leistung wiedergegeben. Der Zentralstab weist den ausgeprägtesten Eskalationspeak auf. Er erreicht eine maximale Temperatur von ca. 2250 °C. Die Temperaturen am Seitenstab und am Dampfkasten zeigen nur einen kleinen Beitrag der Reaktionsenergie. Wegen der dünnen Isolation sind hier die Wärmeverluste stärker wirksam. Dadurch konnte sich die Eskalation nur schwer ausbilden.

## 5. Diskussion der Versuchsergebnisse

Die Ergebnisse der geschilderten Versuche haben gezeigt, daß durch den Einfluß der exothermen Reaktion die Temperatur des Brennstabes steil ansteigt, eine maximale Temperatur von ca. 2200 °C erreicht und dann wieder relativ schnell abfällt, während die elektrische Leistung konstant gehalten wird oder sogar ansteigt.

In der Power Burst Facility sind in der Zwischenzeit 2 Experimente mit Bündeln aus 32 Stäben von ca. 1 m Länge durchgeführt worden.

Auch diese Experimente zeigten das gleiche Verhalten, wie wir es in den out-of-pile Experimenten beobachtet haben: Eskalierender Anstieg der Temperatur, maximal gemessene Temperaturen von ca. 2200 °C und anschließender Abfall der Temperatur, obwohl konstante nukleare Leistung eingespeist wird.

Die gemessenen maximalen Temperaturwerte sind geringer als die Rechenwerte, die unter Verwendung der gängigen Annahmen erhalten werden.

Diese Annahmen sind:

- Ausreichendes Dampfangebot
- Berücksichtigung der Wärmeverluste
- Verwendung der üblichen Formeln, die auf der Diffusion des Sauerstoffs im Zirkonoxid basieren.

Es müssen also weitere inhärente Prozesse ablaufen, welche die Eskalation limitieren. Ein limitierender Vorgang, der sich bei den Versuchen deutlich gezeigt hat, ist das Abfließen des geschmolzenen Zircaloy aus der Reaktionszone. Das Abfließen konnte bei allen Versuchen beobachtet werden, bei denen sich zu Beginn der Eskalation auf den Stäben nur eine dünne Oxidschicht ausgebildet hatte. Als Beispiel für dieses Verhalten zeigt die Abb. 7 auf der rechten Seite eine Aufnahme des Versuchs ESSI-7. Man kann erkennen, daß Material aus dem oberen Bereich des Brennstabes in die untere Hälfte geflossen ist. Das untere Bild der Abb. 7 ist ein Querschnitt im oberen Bereich des Stabes ESSI-7. Man sieht deutlich, daß in dieser Höhe nur eine dünne Schicht  $ZrO_2$  als Haut stehengeblieben ist. Das geschmolzene Zircaloy hat auch einen großen Teil des  $UO_2$ -Pellets aufgelöst und mit in den unteren Bereich des Stabes geschwemmt.

Zum Vergleich ist auf dieser Abbildung in der oberen Hälfte der entsprechende Querschnitt des Stabes vom Versuch ESSI-4 mit der langsamsten ursprünglichen Aufheizung wiedergegeben. Hier sehen Sie eine voll ausgebildete Oxidschicht. Eine Auflösung des  $UO_2$  hat nicht stattgefunden. Da die Reaktionsrate proportional zum Kehrwert der Oxidschichtdicke ist, begrenzt die wachsende Oxidschicht die Eskalation. Diese Limitierung ist in der üblichen Formel für die Reaktionsrate aber enthalten.

Eine weitere Möglichkeit für die Begrenzung der Eskalation liegt in der Beschränkung der Sauerstoffzufuhr. Der Dampfstrom in unseren Versuchen war so gewählt, daß der Sauerstoffbedarf selbst im Peak des schnellsten Aufheizversuches ESSI-7 deutlich kleiner als die im Dampf vorhandene Sauerstoffmenge war. Nach der Formel für die Reaktionsrate der Zircaloyoxidation, die durch die Diffusion des Sauerstoffs im Zirkonoxid bestimmt ist, nimmt der Sauerstoffverbrauch von 1000 °C bis 2400 °C um den Faktor 100 zu. Um diesem Bedarf zu genügen, müßte der Wasserdampftransport aus den äußeren Schichten des Kühlkanals zur Oberfläche des Stabes und die Dissoziation um denselben Faktor zunehmen. Dabei ist zu berücksichtigen, daß gleichzeitig die Wasserstoffkonzentration an der Oberfläche des Stabes stark zunimmt. Wir vermuten, daß durch diese Vorgänge der durch die Oxidschicht wegdiffundierende Sauerstoff in hohen Temperaturbereichen nicht nachgeliefert werden kann und die Vorgänge in der Gasphase damit zum begrenzenden Faktor der Temperatureskalation werden.

## 6. Nachuntersuchungen zum Brennstabverhalten

Das Hauptziel der Versuche war die Untersuchung des Eskalationsverhaltens. In den Nachuntersuchungen haben wir aber ebenfalls Informationen über die Prozesse erhalten, die wichtig für das Schadensverhalten sind. Wir möchten dies an den Ergebnissen der Bündelversuche demonstrieren.

### 6.1 Bündelverhalten

Die Isolation und der Dampfkasten haben den Versuch überstanden. Sie sind aber stark versprödet. Bei der Demontage zerbrachen beide in viele Stücke.

Abb. 7 zeigt das Bündel von vier Seiten, nach vorsichtiger Entfernung des Dampfleitungskastens. Im unteren Bereich konnte der Kasten nicht entfernt werden. Er war dort mit erstarrter Schmelze verklebt. Im mittleren Bereich fehlt die Hülle und der größte Teil der Pellets. Nur noch eine dünne Schicht  $UO_2$  haftet am Wolfram-Stab.

Der Zustand des unteren Bereichs ist auf Abb. 8 besser zu erkennen. Die herabgeflossene Schmelze ist hier zu einem zusammenhängenden Klumpen verschmolzen, der den Raum zwischen den Stäben ausfüllt. Die erstarrte Schmelze hat eine glatte Oberfläche und benetzt die verbleibenden Brennstabreste sehr gut. Das erkennt man an den kleinen Benetzungswinkeln. Auf dem Schmelzklumpen hatte sich ein Haufen schwarzen puderförmigen Materials angesammelt. Auf der für diese Abbildung benutzten Photographie war diese Schicht schon entfernt.

Abb. 9 zeigt eine Aufnahme des unteren Bündelbereiches vom Versuch ESB 2A mit vollkommen entfernter Vorderwand des Dampfführungskastens. Hier ist die Ablagerung von fragmentiertem Stabmaterial gut zu erkennen. Röntgenstrukturaufnahmen zeigen, daß dieses Puder vorwiegend aus Uranoxyd besteht.

Abb. 10 gibt die Ergebnisse der Siebanalyse dieses Puders wieder. Wir fanden praktisch keine Teilchen unter  $20 \mu$ . Von 20 bis  $200 \mu$  haben wir den Hauptanteil der Körnung, d.h. 65% der Gesamtmasse gefunden.

Aus dem Erscheinungsbild des Bündels nach dem Versuch können wir auf den Ablauf des Versuches schließen. Beim Erreichen seines Schmelzpunktes begann der innere Bereich des nicht oxidierten Zircaloy zu schmelzen. Das flüssige Zircaloy entzog dem  $UO_2$  Sauerstoff und begann damit das Pellet aufzulösen. Die beim Aufheizen entstandene  $ZrO_2$ -Schicht war offensichtlich zu dünn, um das Schmelzgut zu halten und wurde damit in den unteren Bereich des Bündels gespült. Im unteren kälteren Bereich des Bündels ist die Schmelze erstarrt. Wie man aus den späteren Querschnitten sehen kann, erfolgte das Erstarren der Schmelze im unteren Bereich schubweise. Die glatte Oberfläche des Schmelzklumpens mit dem lose darauf liegenden Pulver, deutet darauf hin, daß das Pulver sich erst nach dem Erstarren der Schmelze dort abgesetzt haben muß, d.h. während der Abkühlung des Bündels.



## 6.2 Untersuchung der Querschnitte

Nach der photographischen Registrierung wurde das Bündel in Epoxid-Harz eingegossen, Querschnitte von den blockiertem Bereich wurden angefertigt. Diese Querschnitte wurden mit dem Metallmikroskop, dem Raster-Mikroskop und der Mikrosonde untersucht.

Abb. 11 zeigt Photographien des Bündelquerschnitts vom Versuch ESBÜ-1 aus dem oberen Bereich des Schmelzklumpens 116 und 106 mm über dem Bündelboden. Die Querschnitte zeigen, daß das Bündel nahezu vollkommen von der Schmelze blockiert war. Der Dampf konnte nur noch in einem Loch das Bündel durchströmen. Der schwarze Saum am Rand dieses Loches wurde durch die Oxidation der angrenzenden Schmelze hervorgerufen. Die hellen Kreisflächen sind die Querschnitte der Wolframstäbe. Sie sind von den dunklen Ringpellets umgeben. Diese wiederum sind von der erstarrten Schmelze eingeschlossen. In 116 mm Querschnitt kann man keine Hüllrohre mehr erkennen. In diesem oberen Bereich des Klumpens ist auch der äußere Oxidrand der Zircaloy-Hülle von der Schmelze aufgelöst. Das rechte Bild auf der Abbildung zeigt den Querschnitt 10 mm tiefer. Hier sieht man im linken oberen Bereich noch einige Reststücke von oxidierten Hüllrohren. In tieferen Höhenlagen kann man an vielen Stellen die äußere Oxidation der Hüllrohre erkennen.

Je tiefer man das Bündel betrachtet, je geringer ist der von erstarrter Schmelze ausgefüllte Bereich. Die Schmelze ist also tropfenweise erstarrt und hat den Bereich zwischen den Stäben ausgefüllt bis im oberen Bereich sich ein zusammenhängender Schmelzsee gebildet hat.

Im Querschnitt in 106 mm Höhe der Abb. 11 sind typische Positionen markiert, an denen verschiedene Schadensprozesse untersucht werden konnten. An der Stelle 2, also an der Grenze zwischen Pellet und Schmelze können Aussagen über den Auflösungsprozeß des  $UO_2$  durch das flüssige Zircaloy gewonnen werden. An der Stelle P, in der Mitte zwischen den Stäben, wurden die in der Schmelze auftretenden Phasen untersucht. An der Stelle 3 kann man ein Reststück vom oxidierten Hüllrohrbereich erkennen.

Es liefert uns Informationen über die Auflösung des  $ZrO_2$  durch die Schmelze. Die Bereiche 4 und 5 liegen in unmittelbarer Nähe des Dampfkanals. Hier können wir Aussagen über das Oxidationsverhalten gewinnen.

### 6.3 Auflösung von $UO_2$ durch $Zr$ und entstehende Phasen

Die Ergebnisse zum Auflösungsprozeß des  $UO_2$  durch flüssiges Zircaloy und der dabei entstehenden Phasen sind in guter Übereinstimmung zu den Einzeleffektuntersuchungen zur Wechselwirkung zwischen  $UO_2$  und Zircaloy, die im IMF I durchgeführt werden /8,9/. Auch aus unseren Versuchen ergibt sich der gleiche Verlauf für den Auflösungsprozeß: Das Zircaloy entzieht dem  $UO_2$  Sauerstoff. Es bildet sich bevorzugt an den Korngrenzen metallisches Uran, das bei der Versuchstemperatur flüssig ist und sich in der Zircaloy-Schmelze löst. Durch die Bildung von flüssigem Uran an der Korngrenze werden  $UO_2$ -Partikel aus dem Pelletverband herausgebrochen und in das flüssige Zircaloy geschwemmt. Dort werden auch diese Partikel durch Sauerstoffabgabe an die Schmelze aufgelöst.

Ebenso wie in den Einzeleffektuntersuchungen finden wir in unseren Einzelstab- und Bündelexperimenten in der erstarrten Schmelze maximal 3 Phasen:  $\alpha$ -Zr(O), eine U-reiche (U,Zr)Legierung und ein (U,Zr) $O_2$ -Mischoxid.

### 6.4 Auflösung von $ZrO_2$ durch die Schmelze

Beim anfänglichen Aufheizen entstandenes  $ZrO_2$  wird bei späterem Einschluß durch herablaufende sauerstoffarme Schmelze wieder aufgelöst. Dieser Prozeß vollzieht sich durch Abgabe von Sauerstoff aus dem Oxid an die Schmelze. Dabei wandelt sich das Oxid wieder in  $\alpha$ -Zr(O) zurück, wie die in den Querschnitten untersuchten  $ZrO_2$ -Reststücke gezeigt haben. So besteht das in Abb. 12 an der Position 3 erkennbare Reststück nur noch im Kern aus  $ZrO_2$ . Der äußere Bereich hat sich in  $\alpha$ -Zr(O) zurückverwandelt.

## 6.5 Oxidationsverhalten der Schmelze

Zum Oxidationsverhalten der Schmelze erhalten wir aus den rastermikroskopischen Vergrößerungen der Bereiche 4 und 5 der Abb. 12 Informationen. Diese Bereiche liegen am Rande des dampfdurchströmten Kanals. Die vom Kanal ausgehende Oxidationszone macht sich auf diesem Querschnitt als schwarzer Saum bemerkbar. Man sieht, daß die Grenze des Kanals abwechselnd durch die Außenkante der oxidierten Hüllrohre und die dazwischenhängende erstarrte Schmelze gebildet wird. Der Bereich 4 grenzt mit einer oxidierten Hüllrohrschiicht gegen den Dampfkanal, während im Bereich 5 die Schmelze unmittelbaren Kontakt zum Dampf hatte.

Abb. 13 zeigt den Bereich 4. Das Balkendiagramm in der oberen Hälfte gibt die mit der Mikrosonde gewonnenen Analysewerte für die entsprechend gekennzeichneten Positionen im Rasterbild. Auf dem Rasterbild ist links als schmaler dunkler Bereich der Rand des  $UO_2$ -Pellet zu erkennen. Auf der rechten Seite gibt die weiße große Fläche den oxidierten Hüllrohrbereich wieder. Dazwischen liegt die Zone in der das nicht oxidierte Zircaloy beim Erreichen seiner Schmelztemperatur geschmolzen ist. Durch Wechselwirkung mit dem  $UO_2$  hat sich eine  $(U,Zr,O)$ -Schmelze gebildet. Durch Sauerstoffdiffusion durch die Zirkonoxidschicht wird der Sauerstoffgehalt in der an das Zirkonoxid angrenzenden Schmelzschicht so hoch, daß ihr Gefrierpunkt über die Versuchstemperatur gehoben wird. Die Abbildung zeigt, daß sich eine homogene Schicht ausgebildet hat. Die Analysenwerte an den Stellen 2 u. 3 zeigen, daß diese keramische Phase als  $(U,Zr)O_2$ -Mischoxid aufgebaut ist.

Abb. 14 zeigt den Bereich 5, bei dem die Schmelze direkten Kontakt zum Dampfkanal hatte. Der Dampfkanal liegt in dieser Vergrößerung auf der rechten Seite. Die linke Seite zeigt den Mehrphasenbereich der beim Abkühlen erstarrten Schmelze. In den am Dampfkanal angrenzenden Teil hat sich durch Sauerstoffaufnahme eine homogene, keramische Schicht aus  $(U,Zr)O_2$ -Mischoxid aufgebaut. Diese Schicht entspricht dem schwarzen Saum, den wir in der Übersichtsaufnahme am Rande des Dampfkanals erkennen konnten.

## 7. Zusammenfassung

Bei allen Einzelstab und Bündelversuchen zum Eskalationsverhalten blieb die maximale Temperatur unter  $2250\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Für diese Beschränkung sind mit dem Aufheizvorgang verbundene Prozesse verantwortlich. Die Versuche haben gezeigt, daß der Aufbau der Oxidschicht und das Abfließen des geschmolzenen Zircaloy aus der Reaktionszone eine Beschränkung der Temperatureskalation hervorriefen. Im höheren Temperaturbereich wird vermutlich der Transportprozeß in der Gasphase eine merkliche Rolle spielen.

Bei den Bündelversuchen haben wir gesehen, daß die Zircaloy- $\text{UO}_2$  Schmelze als zusammenhängender Klumpen im unteren Bereich des Bündels erstarrt. Auf diesem Klumpen hat sich eine Schicht aus feinpudrigem  $\text{UO}_2$  während der Abkühlphase abgesetzt.

Die Nachuntersuchungen mit dem Rasterelektronenmikroskop und der Mikrosonde gaben Informationen über den Auflösungsprozeß des  $\text{UO}_2$  durch flüssiges Zircaloy und die bei der Abkühlung der Schmelze entstehenden Phasen. Die Ergebnisse zum Auflösungsprozeß und über die entstehenden Phasen sind in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Einzeleffektuntersuchungen des IMF. Von der Schmelze eingeschlossenes in der Anfangsphase des Versuchs entstandenes  $\text{ZrO}_2$  wird von der Schmelze durch Sauerstoffentzug aufgelöst. In Kontakt mit Dampf oxidiert die Schmelze aber selber zu einem  $(\text{U,Zr})\text{O}_2$ -Mischoxid.

## 8. Literaturverzeichnis

- /1/ S. Hagen et al.,  
Phenomena and Material Behavior during Meltdown of PWR Fuel Rods;  
OECD/NEA Specialists' Meeting, Spatind, Norway, Sept. 13-16, 1976
- /2/ A. Fiege,  
Severe Fuel Damage Investigations of KfK/PNS;  
KfK 3431B, Jan. 1983
- /3/ S. Hagen, H. Malauschek, K.P. Wallenfels, S.O. Peck,  
Temperature Escalation in PWR Fuel Rod Simulators due to the  
Zircaloy/Steam Reaction: Tests ESSI 1-3, Test Results Report;  
KfK 3507, 1983
- /4/ S. Hagen, H. Malauschek, K.P. Wallenfels, S.O. Peck,  
Temperature Escalation in PWR Fuel Rod Simulators due to the  
Zircaloy/Steam Reaction: Tests ESSI 4-11, Test Results Report;  
KfK 3557, 1983
- /5/ S. Hagen, H. Malauschek, K.P. Wallenfels, S.O. Peck,  
Temperature Escalation in PWR Fuel Rod Simulators due to the  
Zircaloy/Steam Reaction: Bundle Test ESBU 1, Test Results Report;  
KfK 3508, 1983
- /6/ S. Hagen, S.O. Peck,  
Out-of-pile Bundle Temperature Escalation under Severe Fuel  
Damage Conditions;  
KfK 3568, 1983
- /7/ P.E. MacDonald, G.P. Marino,  
Power Burst Facility Severe Fuel Damage Test Program;  
EG&G Idaho, Inc., EGG-J-04282, October 1982
- /8/ P. Hofmann, D.K. Kerwin-Peck, P. Nikolopoulos,  
"Physical and Chemical Phenomena Associated with the Dissolution  
of Solid  $UO_2$  by Molten Zircaloy-4,"  
6th Int. Conf. on Zirconium in the Nuclear Industry,  
Vancouver, British Columbia, Canada, June 28 - July 1, 1982.
- /9/ P. Hofmann, D.K. Kerwin-Peck,  
"Chemical Interaction of Solid and Liquid Zry-4 with  $UO_2$  Under  
Transient Nonoxidizing Conditions,"  
Paper presented at the Int. Meeting on Light Water Reactor Severe  
Accident Evaluation; Cambridge, Massachusetts, USA,  
August 28 - September 1, 1983.

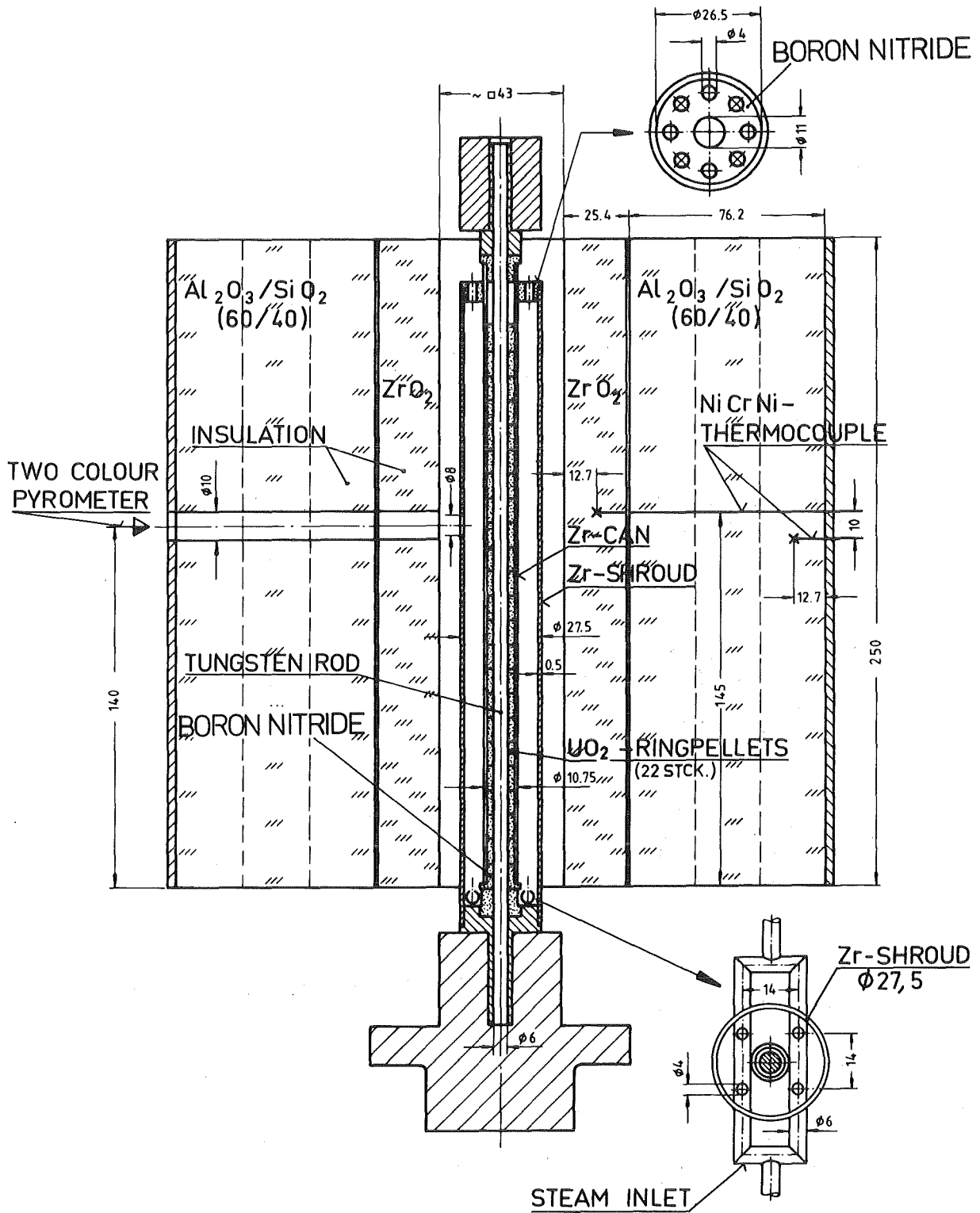


ABB. 1: VERSUCHSANORDNUNG DER EINZELSTABVERSUCHE

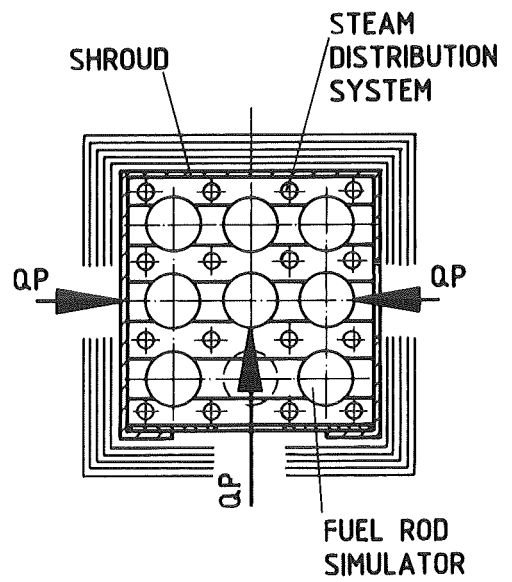
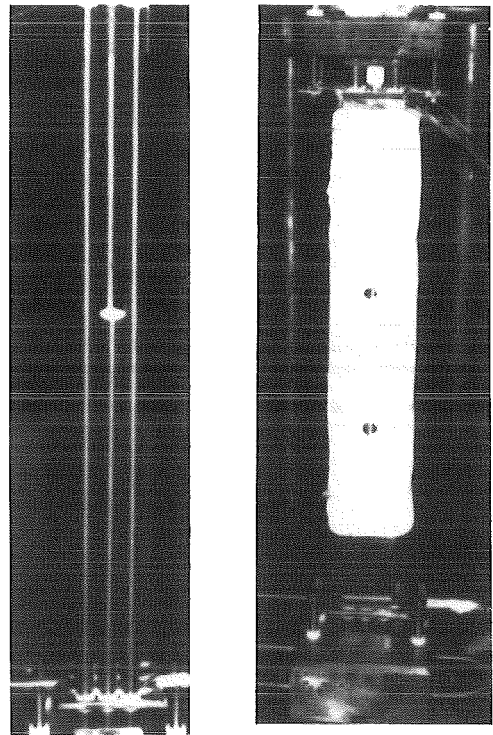
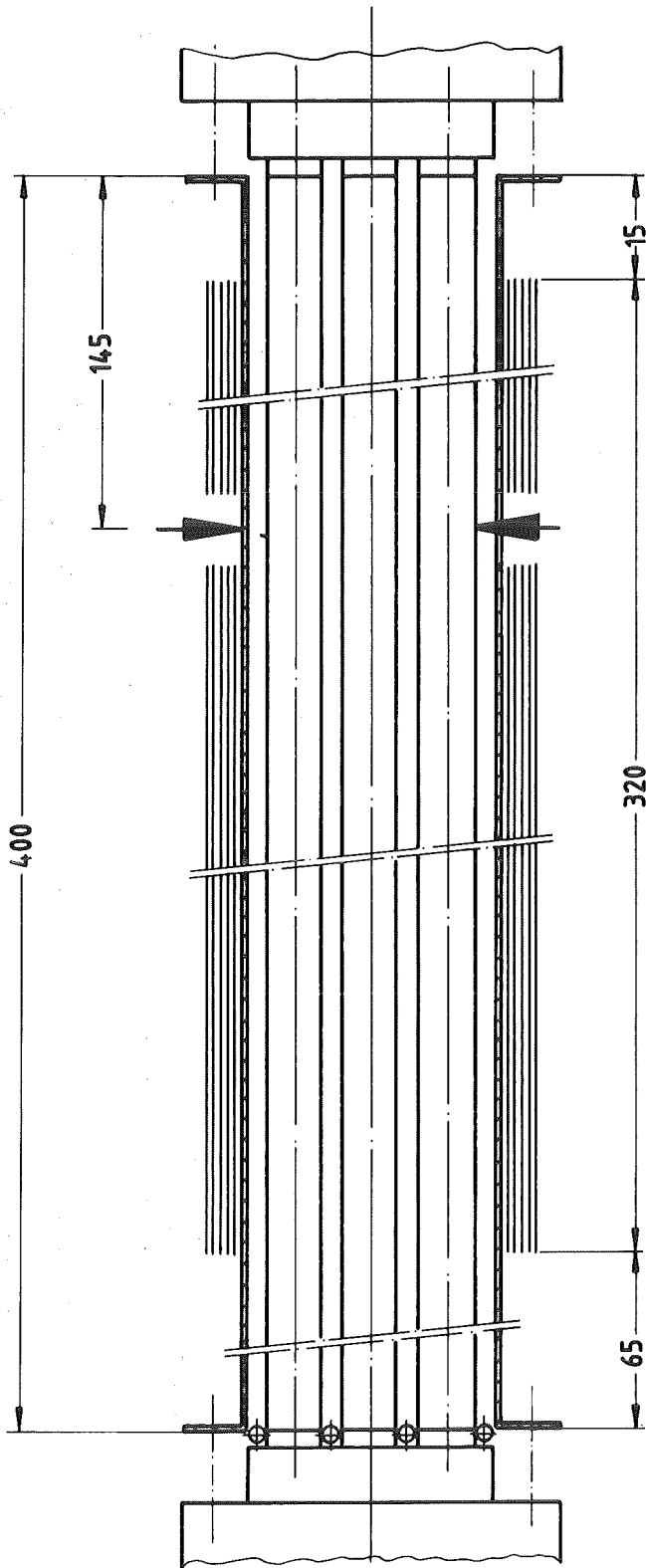


ABB. 2: VERSUCHSANORDNUNG DER BUENDELVERSUCHE

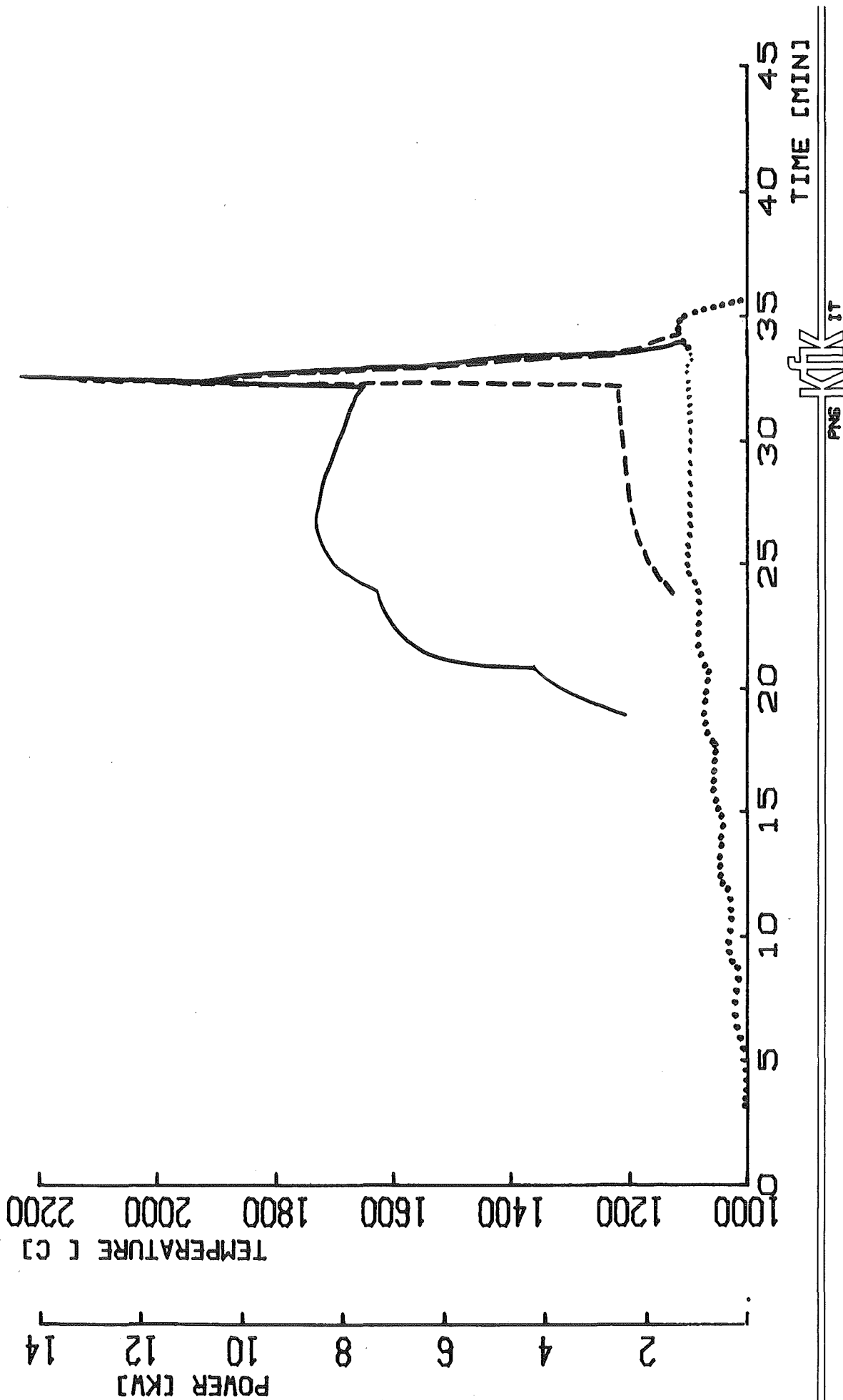
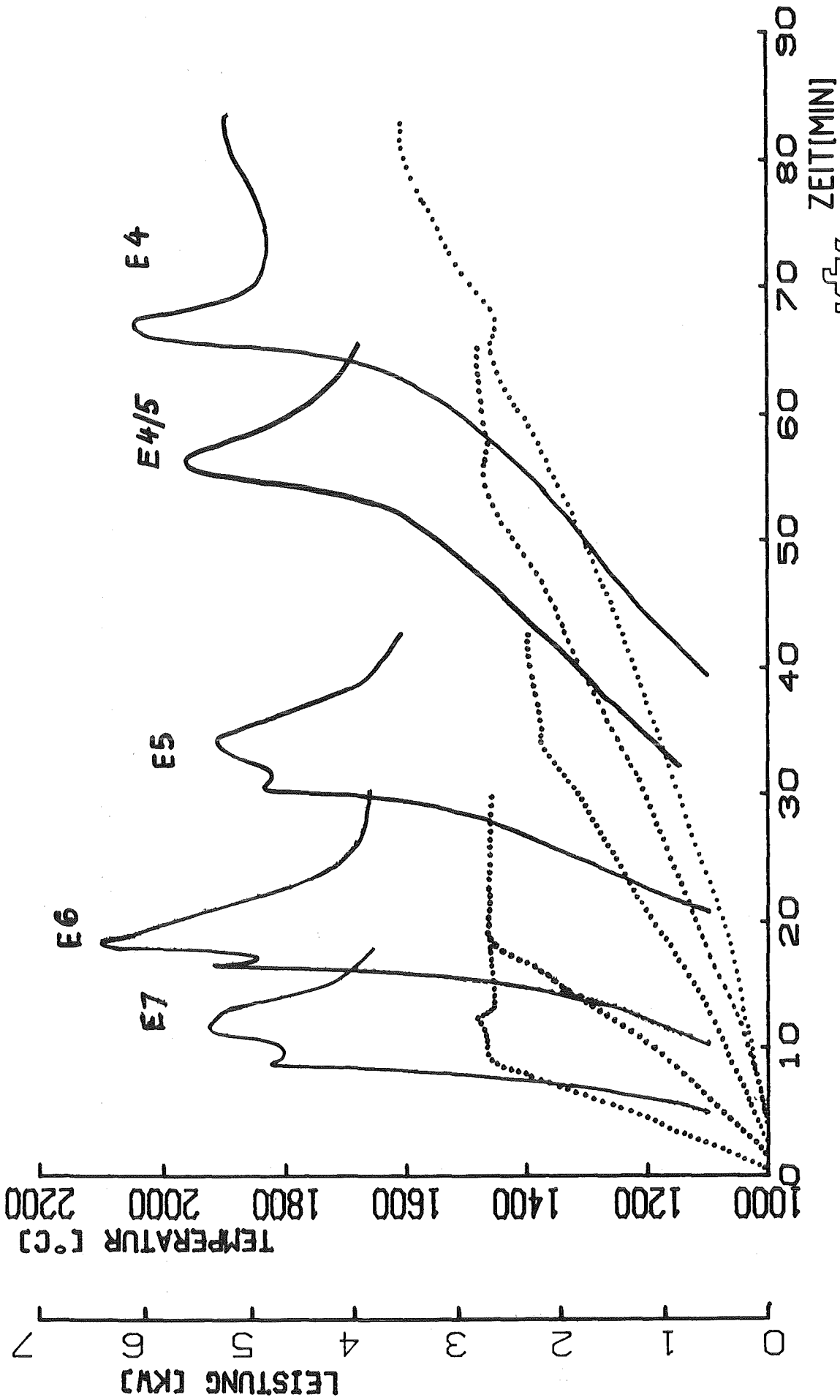


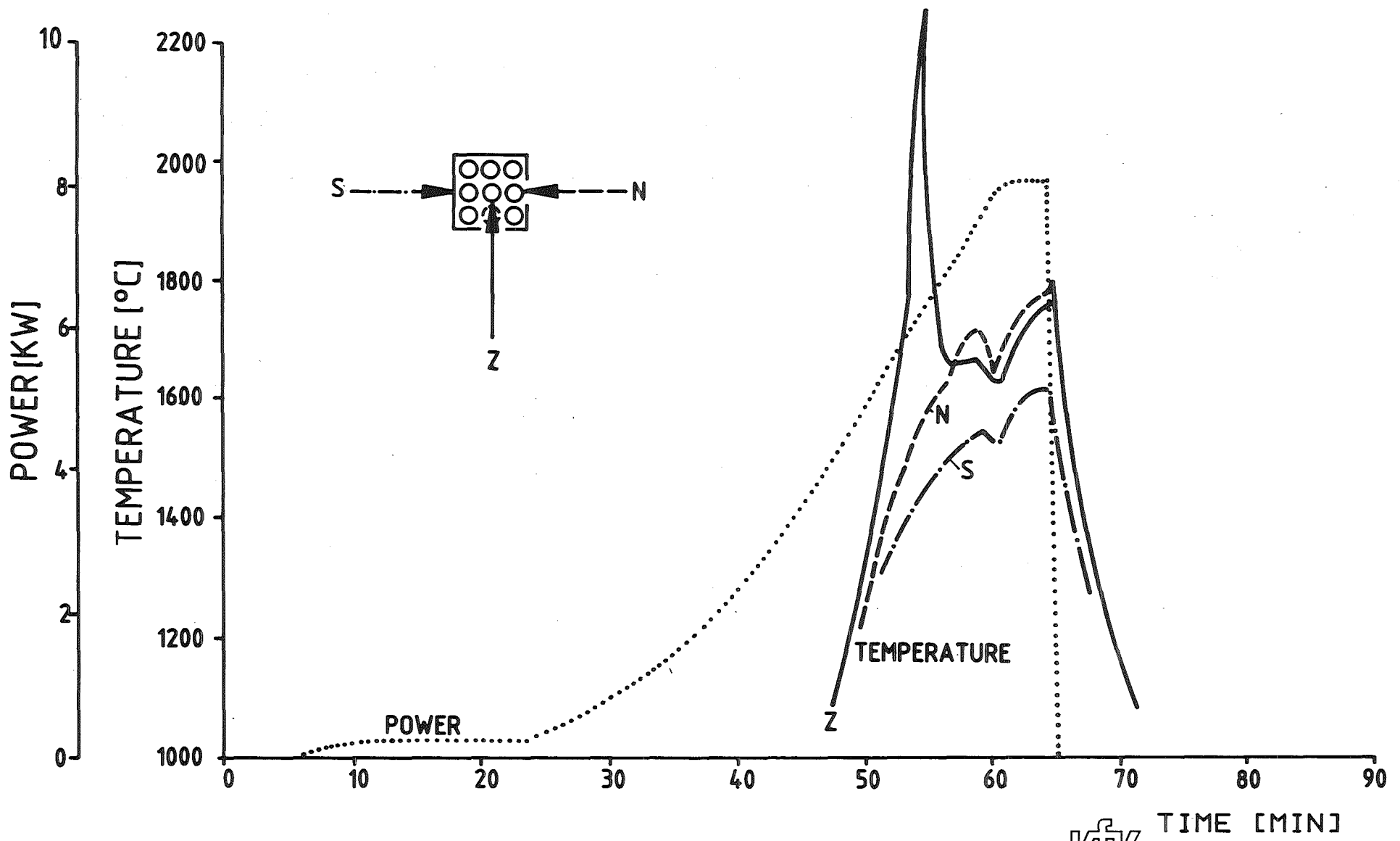
ABB. 3: TEMPERATURVERLAUF DES STABES (—) UND DES DAMPFUEHRUNGSROHRES (---) IM VERGLEICH ZUR ELEKTRISCHEN LEISTUNG (.....) FUER EINZELSTABVERSUCH ESS1-1





PNS KJK IT

ABB. 4: TEMPERATURVERLAUF (—) DER STABOBERFLÄCHE 140 MM VON DER DAMPFROHROBERKANTE IM VERGLEICH ZUR ELEKTRISCHEN LEISTUNG (.....)

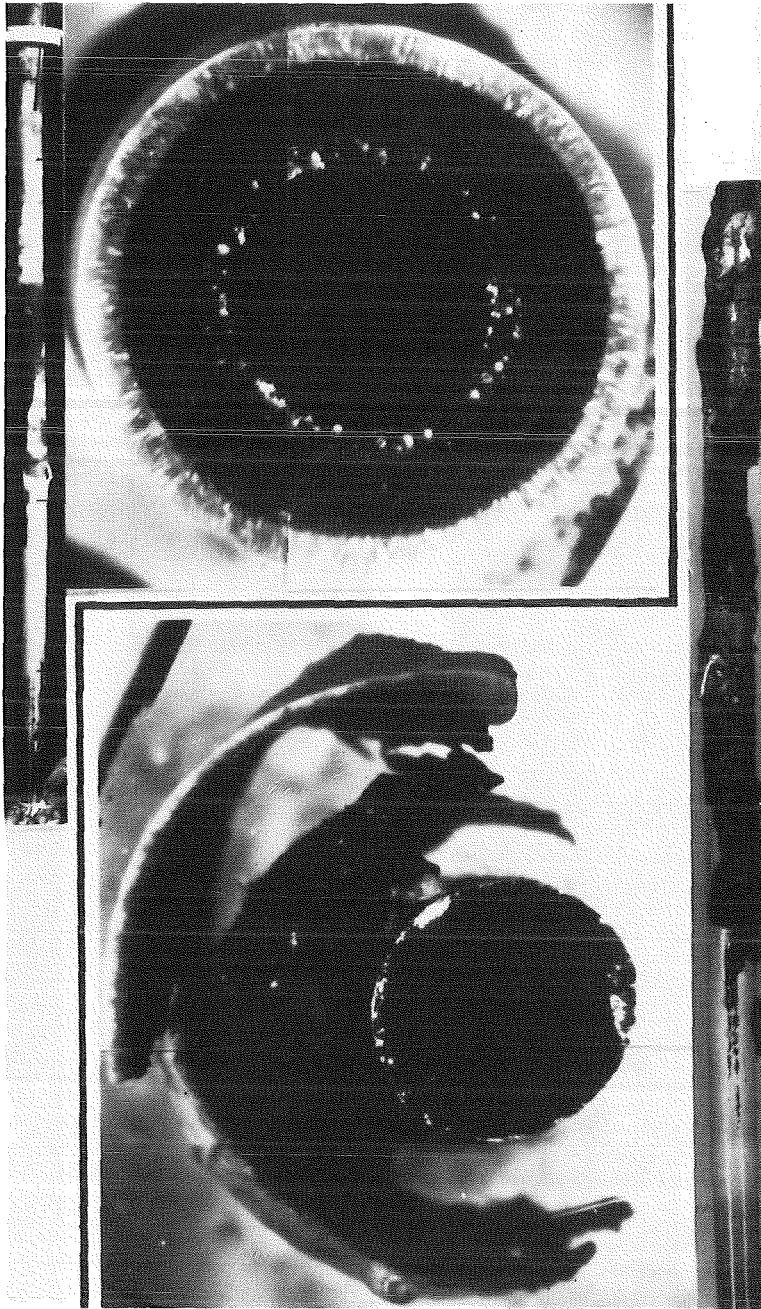


HAGEN ET AL., KFK-REPORT 3508

PNS **KfK** IT  
TIME [MIN]

ABB. 5: TEMPERATURVERLAUF DES ZENTRALSTABES (Z), EINES NEBENSTABES (N) UND DES DAMPFUEHRUNGSRÖHRES (S) IM VERGLEICH ZUR EINGESPEISTEN ELEKTRISCHEN LEISTUNG FÜR DEN BÜNDELVERSUCH ESBÜ-1

E4

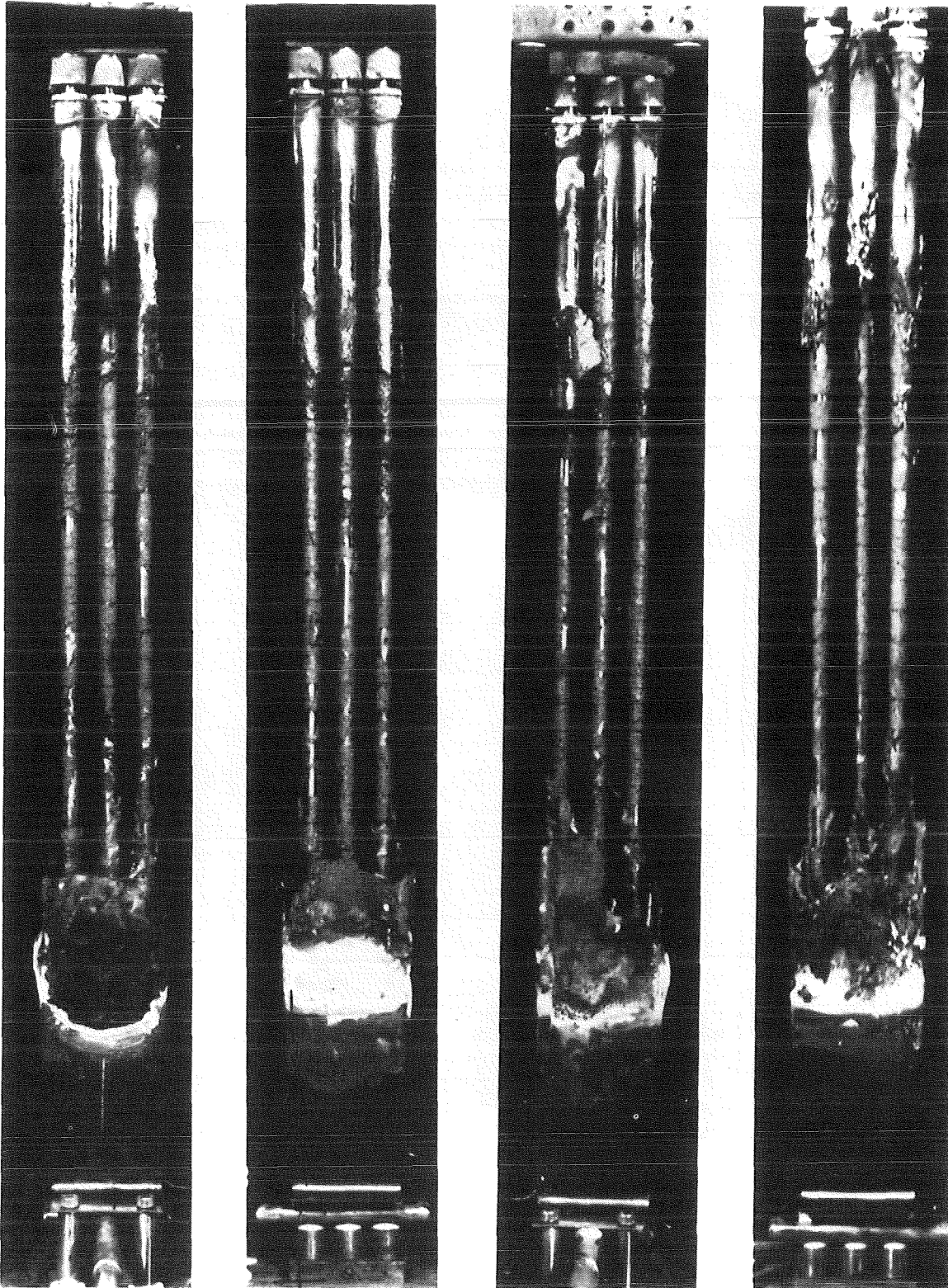


E7

---

kfk

ABB. 6: VERGLEICH DER QUERSCHNITTE DER EINZELSTABVERSUCHE  
ESSI-4 (OBEN) UND ESSI-7 (UNTEN)



KfK

ABB. 7: WIEDERGABE DES BUENDELS ESBU-1 VON VIER SEITEN NACH ENTFERNUNG  
DES DAMPFUEHRUNGSROHRES IM OBEREN BEREICH

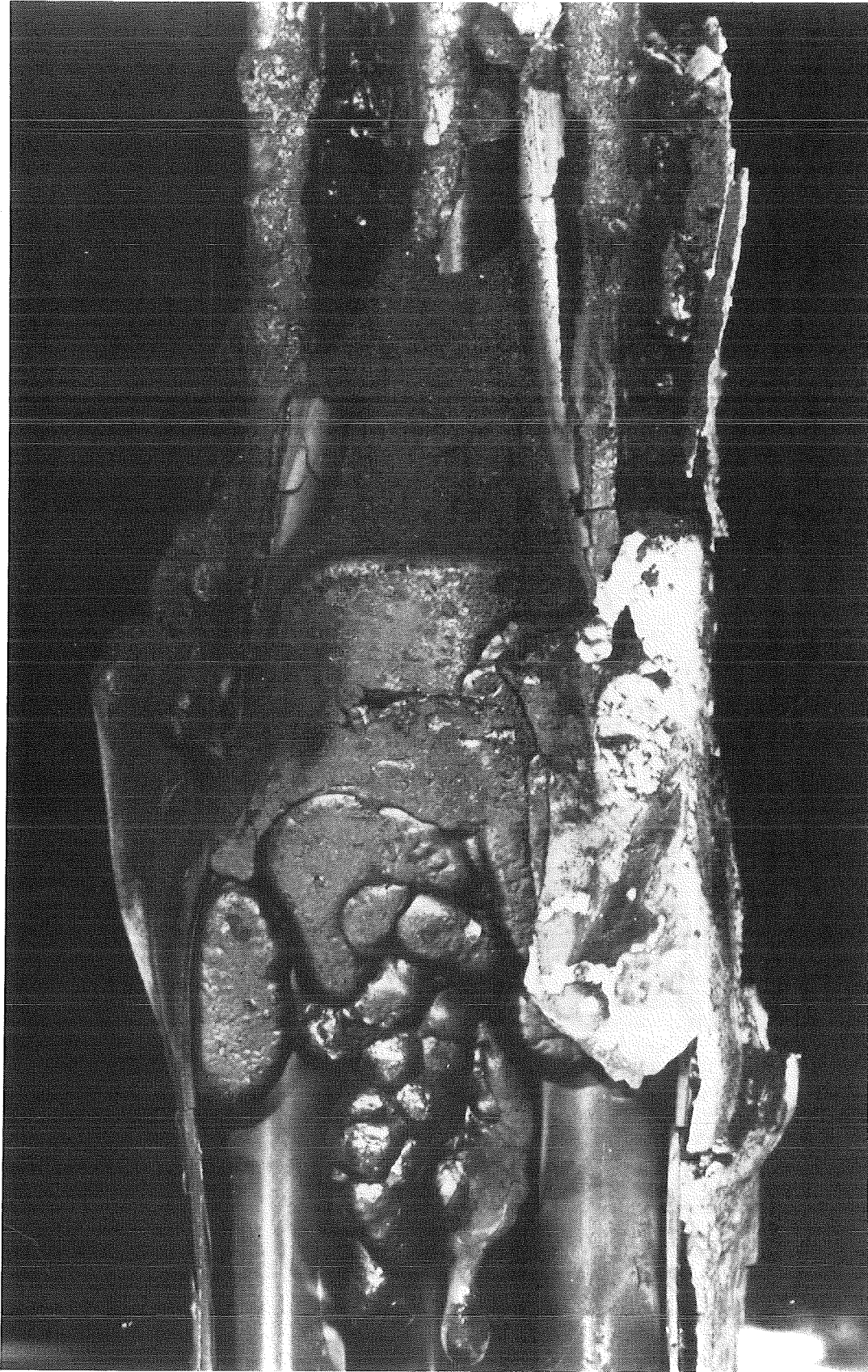




---

KJK

ABB. 8: ERSTARRTE SCHMELZE IM UNTEREN BEREICH DES BUENDELS ESBU-1



kfk

ABB. 9: ERSTARRENDE SCHMELZE UND ABGELAGERTE BRENNSTABFRAGMENTE BEIM VERSUCH ESB-2A

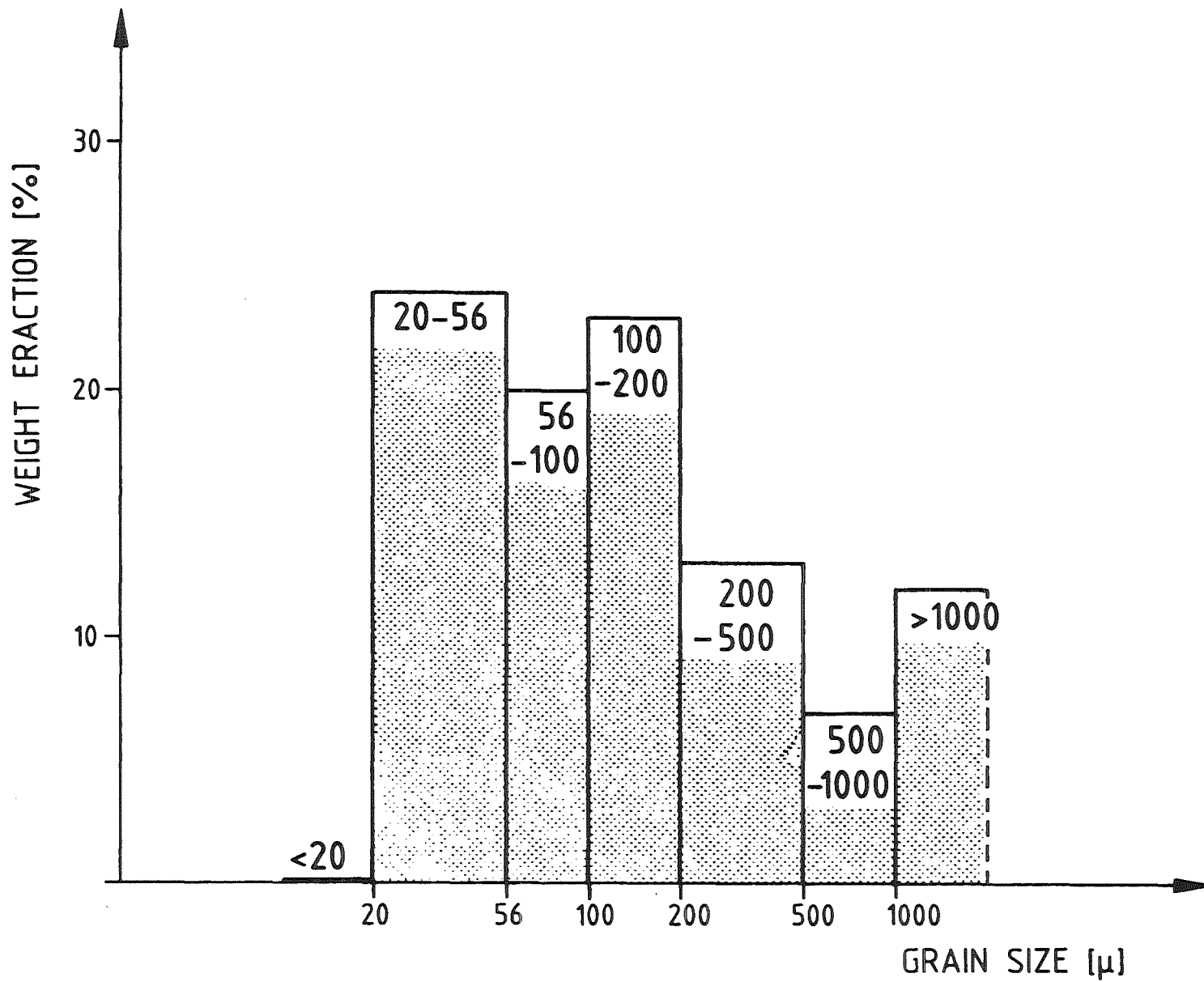
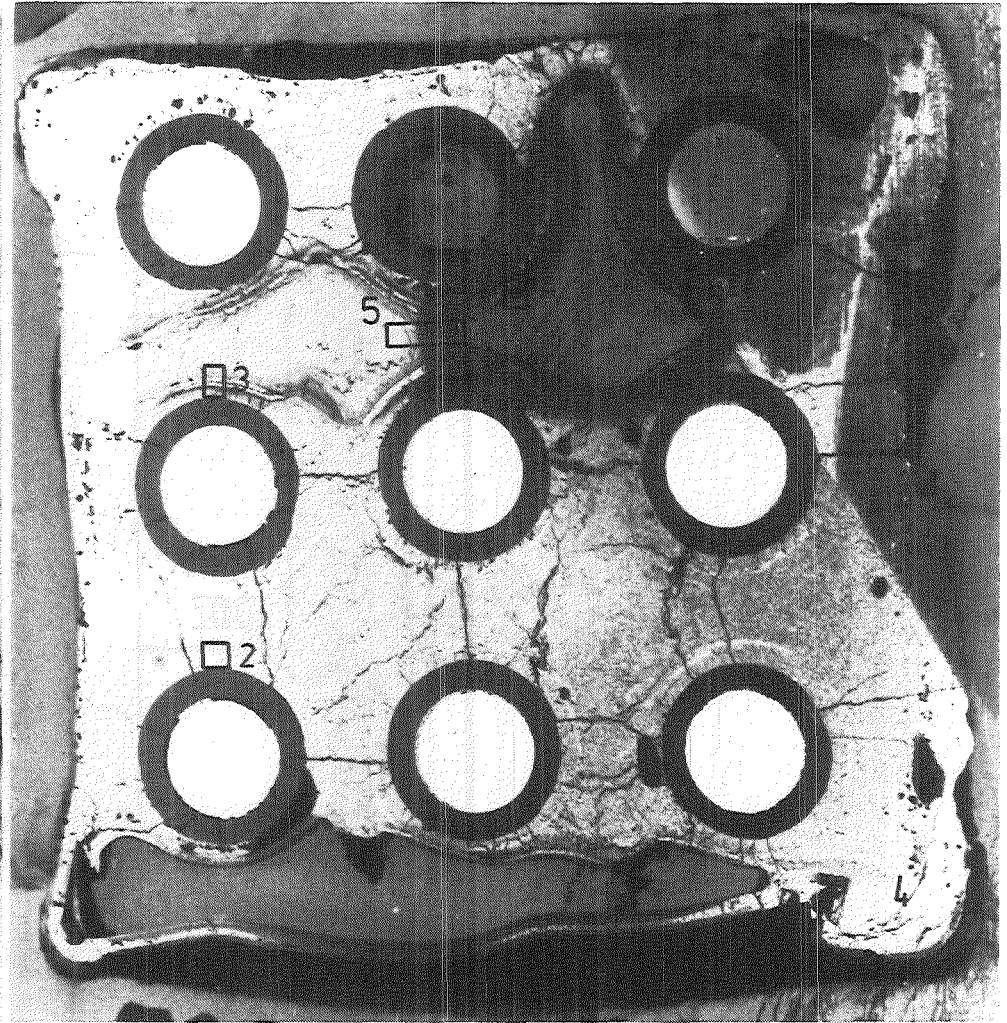
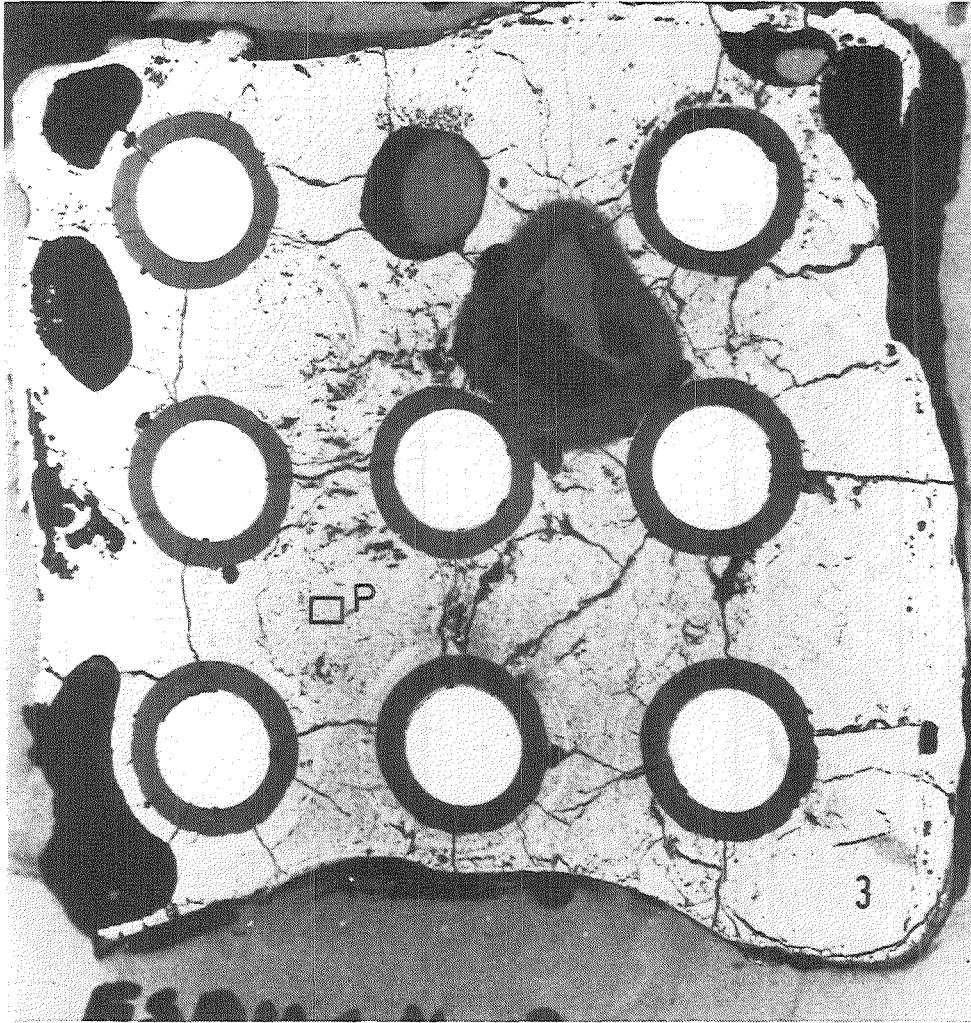


ABB. 10: SIEBANALYSE DES FRAGMENTIERTEN BRENNSTABMATERIALS



116 mm

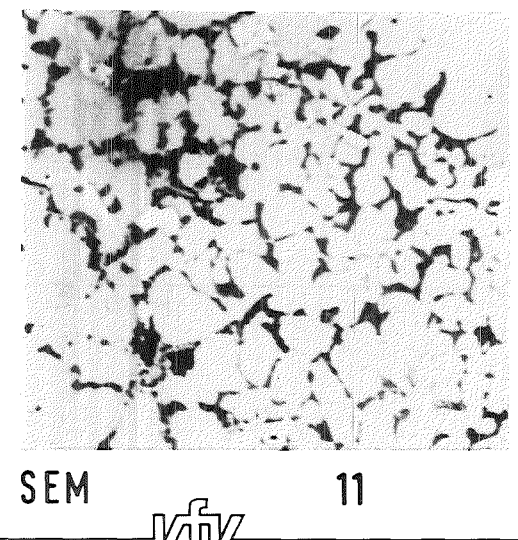
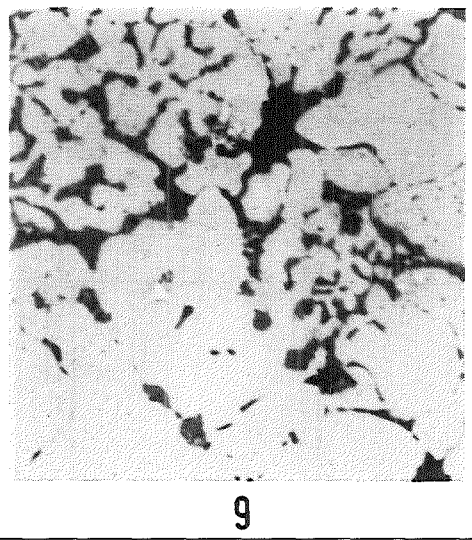
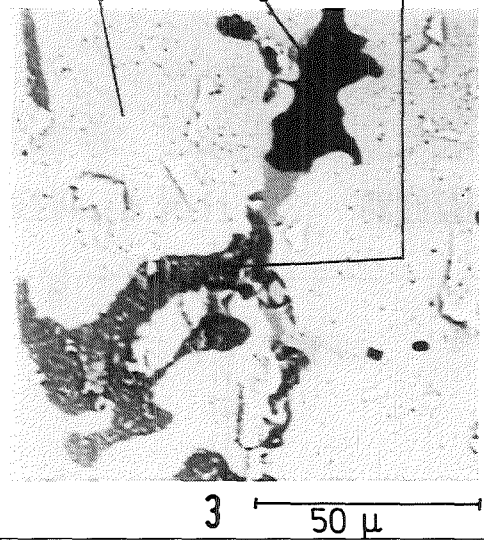
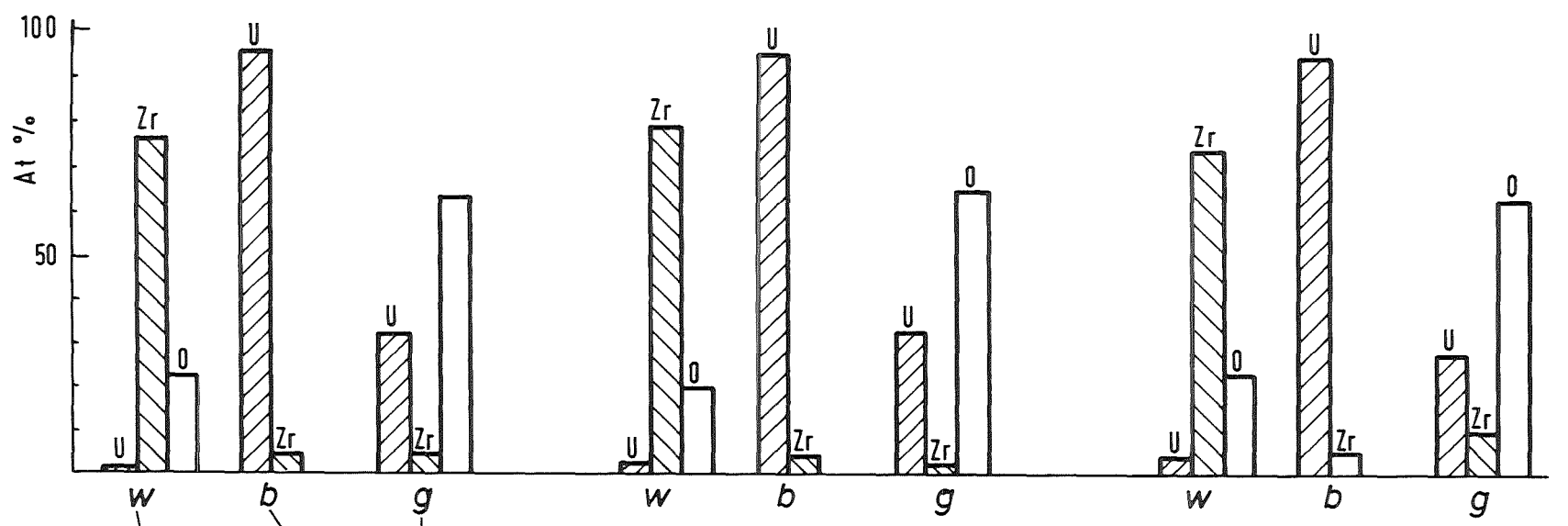
106 mm



KfK

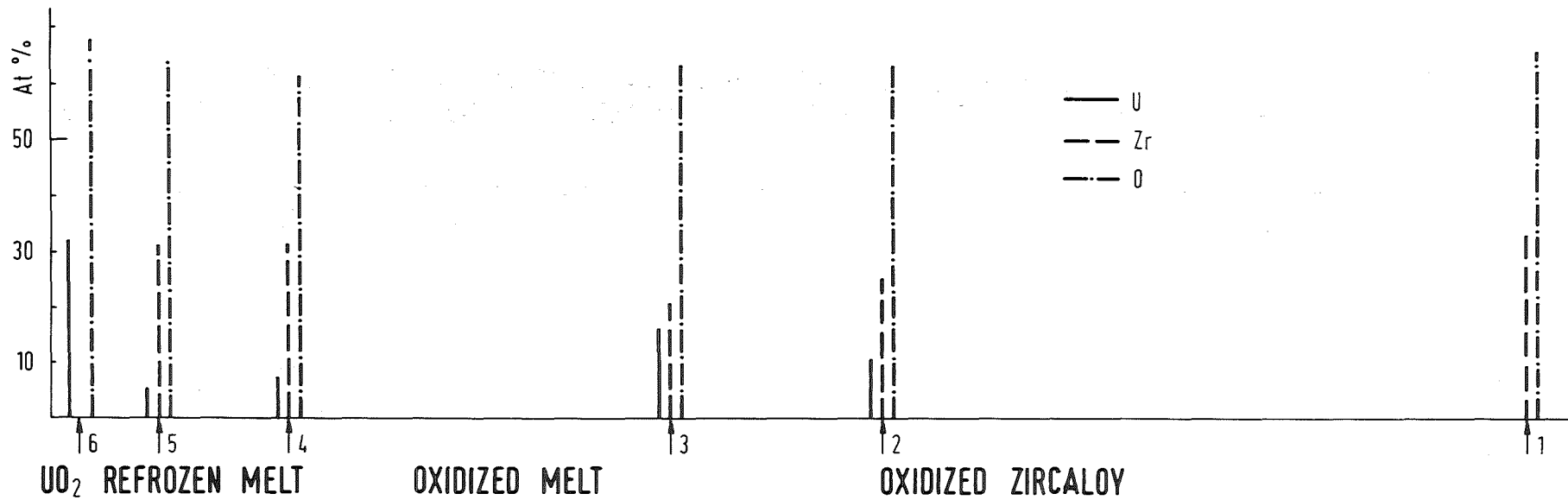
ABB.11: QUERSCHNITTE DER ERSTARRTEN KLUMPEN 116 MM UND 106 MM UEBER BUENDELBODEN BEIM VERSUCH ESB-1





SEM 11  
 PNS KIK IT

ABB. 12: MIKROSONDENANALYSE DER DREI PHASEN IN DER ERSTARTE SCHMELZE VON VERSUCH ESBU-1 116, 51 UND 7 MM UEBER DEM BUENDELBOEDEN



KfK

ABB. 13: OXIDATION DER (U,ZR.O) SCHMELZE, DIE VOM DAMPFKANAL DURCH EINE ZIRKONOXYDSCHICHT GETRENNT IST

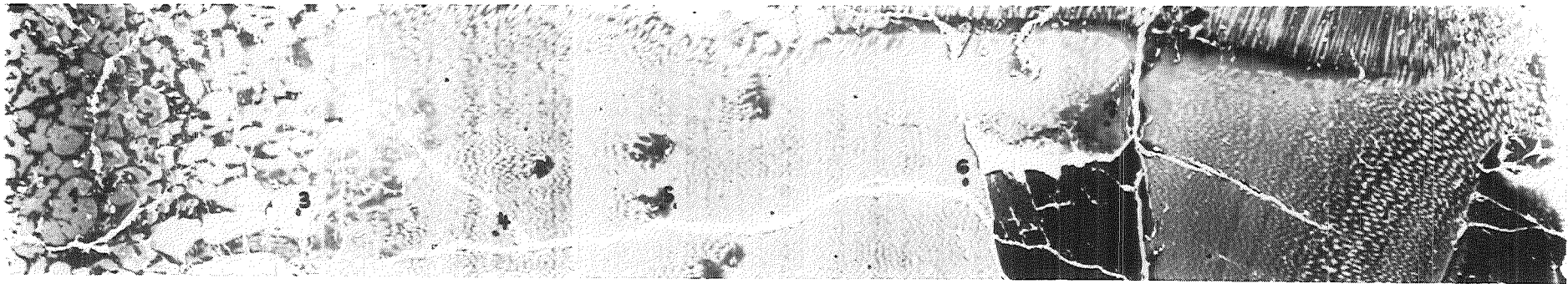
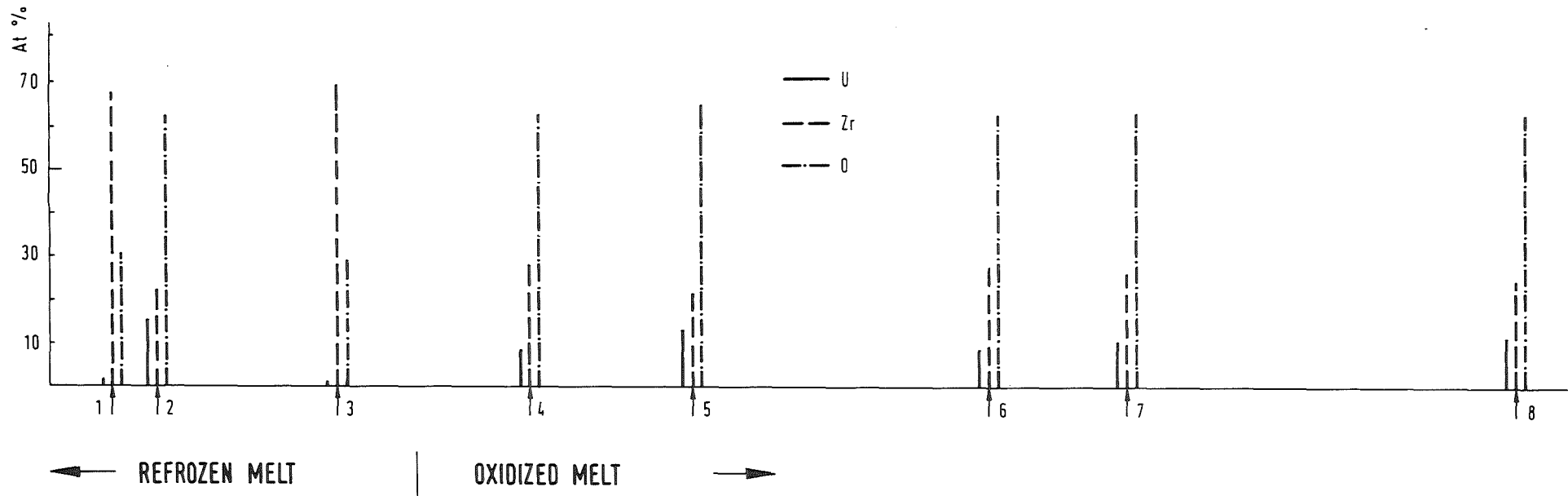


ABB.14: OXIDATION DER (U.ZR.O) SCHELZE IN DIREKTEM KONTAKT ZUM DAMPFKANAL



PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT  
JAHRESKOLLOQUIUM 1983

AKTIVITÄTSFREISETZUNG UND AEROSOLBILDUNG  
BEIM LWR-KERNSCHMELZEN

H. ALBRECHT

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE  
INSTITUT FÜR RADIOCHEMIE

Release of Radioactivity and Formation of Aerosols during LWR Core Meltdown

H. Albrecht  
Institut für Radiochemie

Abstract

At the SASCHA facility, melting experiments were carried out to determine fractional release rate coefficients for all relevant elements in the core at two temperatures, 2200 and 2400 °C. By use of a simplified time dependence of the average core temperature, integral amounts of the released nuclide activities and of the aerosol masses were calculated. The results are applicable to the reference reactor Biblis B of the German Risk Study for which a large pipe break in the primary system and a medium burnup of 21 GWd/t was assumed. The main findings are:

1. The integral activity release from the core is  $16 \pm 2$  % of the radioactive inventory two hours after the reactor shutdown. The integral aerosol mass emerging from the primary system is about 1560 kg with an uncertainty factor of two.
2. About 99 % of the released activity results from the nuclides of only 6 elements: Kr, Xe, I, Cs, Te, and Sb. The highest contribution to the aerosol mass is due to the element Ag, the main component of the absorber material.
3. The contributions of Te, Ba (Sr), and Ag depend strongly on the degree of the Zircaloy oxidation and on the time/temperature function assumed for the core. A potential overestimation of the release of Te and Ag prior to the RPV failure will be compensated by the fact that these elements are also strongly released during the melt/concrete interaction.

## Einleitung

In den letzten Jahren wurde im Rahmen des PNS-Kolloquiums schon mehrfach über das an der Schmelzanlage SASCHA durchgeführte Versuchsprogramm zur Spaltproduktfreisetzung berichtet /1/. Die erste Serie von Experimenten, in der eine Schmelzgutmasse von 30 g Corium ( $\text{UO}_2$  + Zircaloy + Stahl) eingesetzt wurde, diente hauptsächlich der Entwicklung der Heiztechnik, der Auswahl von Tiegelwerkstoffen und Temperaturmeßverfahren sowie der Erprobung verschiedener Analysenmethoden für die in sehr unterschiedlichem Umfang freigesetzten Elemente.

In der 2. Phase konnten dank einer erhöhten Leistung der Schmelzanlage auch kurze Brennstabprüflinge mit geschlossener Zircaloy-Hülle und einem simulierten Abbrandgemisch (Fissium) geschmolzen werden. Diese Experimente erfolgten zunächst unter Luft, seit 1980 aber auch unter Wasserdampf.

Das seit dieser Zeit durchgeführte Versuchsprogramm läßt sich in vier Schwerpunkte einteilen:

1. Bestimmung der Freisetzungsraten der wichtigen Spalt- und Aktivierungsprodukte sowie der Strukturmaterialien im Temperaturbereich 2000 - 2500 °C;
2. Untersuchung des Einflusses der Zircaloy-Oxidation auf das Freisetzungsverhalten einiger wichtiger Elemente wie Te, Ba und Ag;
3. Bestimmung einer Zeitfunktion für die Freisetzung der Aktivität und der Aerosolmasse aus dem Primärkreis in den Sicherheitsbehälter;
4. Untersuchung der Frage, für welche Spaltprodukte die Freisetzung während der Schmelze/Beton-Wechselwirkung von Bedeutung sein kann.

Der vorliegende Bericht gibt eine Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse zu diesen vier Programmpunkten. Auf die Versuchsanordnung wird hier nicht näher eingegangen; sie ist in den PNS-Jahresberichten /2/ und an anderer Stelle /3,4/ schon mehrfach beschrieben worden.

## 1. Bestimmung von Freisetzungsraten

Die Freisetzungsversuche wurden in der Regel so durchgeführt, daß das Schmelzgut nach einer schnellen Aufheizung (2-5 °C/sec) für 10-15 min auf einem konstanten Temperaturniveau gehalten wurde. Durch mehrfachen Wechsel der Aerosolfilter, die zur Sammlung der Freisetzungserzeugnisse dienen, ergaben sich mehrere Punkte für den Zeitverlauf der Freisetzung (vgl. Abb. 1) und damit eine Möglichkeit, zu der betreffenden Temperatur für jedes Element eine Freisetzungsrates zu bestimmen.

Wir gingen dabei von der Annahme aus, daß die pro Zeiteinheit freigesetzte Aktivität eines Nuklids (Elements) berechenbar ist nach

$$\frac{dA}{dt} = -k(T) \cdot A$$

wobei  $k(T)$  = temperaturabhängige Freisetzungsrates\*)

und  $A$  = gegenwärtig vorhandene Aktivität eines Nuklids (Elements).

Durch Integration über ein längeres Zeitintervall  $\Delta t$  bei konstanter Temperatur folgt für die freigesetzte Aktivität

$$\Delta A = A_0 (1 - e^{-k \cdot \Delta t})$$

und daraus schließlich

$$k = -\frac{1}{\Delta t} \ln \left( 1 - \frac{\Delta A}{A_0} \right)$$

mit  $A_0$  = Aktivität zu Beginn des Zeitintervalls  $\Delta t$ .

Bei der experimentellen Ermittlung der Freisetzungsrates zeigte es sich, daß die leichtflüchtigen Spaltprodukte J, Cs und Cd schon bei Temperaturen unterhalb von 2000 °C weitgehend freigesetzt werden, d.h. noch bevor in stärkerem Umfang Kernschmelzerscheinungen auftreten (vgl. Abb. 2). Aus diesem Grunde wurde auf

---

\*) Die hier verwandte Nomenklatur entspricht weitgehend derjenigen von NUREG-0772; die Dimension der Freisetzungsrates (fractional release rate coefficients) ist dort [1/min] im Gegensatz zu der bisher von uns benutzten Dimension [%/min].



eine detaillierte Bestimmung der Freisetzungsraten dieser Elemente verzichtet und für Kernschmelzbedingungen ein Integralwert von 100 % Freisetzung angenommen. Für die übrigen relevanten Spalt- und Aktivierungsprodukte sowie für die wichtigsten Strukturmaterialien wurde für 2400 °C ein kompletter Satz von Freisetzungsraten bestimmt, vgl. Tabelle 1.

Die Elemente Te, Sb und Ag erwiesen sich auch im Temperaturbereich 1900 - 2200 °C schon als relativ flüchtig, so daß hier auch die Temperaturabhängigkeit der Freisetzungsraten gemessen werden konnte. Die Ergebnisse sind in Abb. 3 als durchgezogene Linien dargestellt. Diese Abbildung enthält zum Vergleich auch berechnete Kurven aus dem Bericht NUREG-0772, in dem die gesamte Datenbasis zur Spaltproduktfreisetzung sehr gründlich analysiert wurde /5/. Dabei ist festzustellen, daß unsere Freisetzungsraten für Te und Sb um einen Faktor 2-3 niedriger liegen als nach dem NUREG-Report. Noch größere Diskrepanzen ergeben sich bei den Ergebnissen für die Spaltprodukte Ba, Zr und Ru. Die Barium-Freisetzung kann bei sehr geringer Oxidation der Zircaloy-Hüllen zwar um bis zu 2 Größenordnungen höher liegen als der Wert  $10^{-4} \text{ min}^{-1}$ , der einer starken Oxidation entspricht; doch dieser Fall ist sicher nicht für den gesamten Kern typisch; näheres hierzu im nächsten Abschnitt.

Die Freisetzungsraten für Zr und Ru sind nach unseren Messungen um mindestens 2 Größenordnungen niedriger; dies erscheint aufgrund der geringen Dampfdrücke von  $\text{ZrO}_2$  und metallischem Ruthen auch eher plausibel. (Eine Oxidation des Ruthens innerhalb des Brennstoffs zu dem relativ leichtflüchtigen  $\text{RuO}_2$  ist für eine Wasserdampf-atmosphäre aus thermodynamischen Gründen auszuschließen.)

## 2. Einfluß des Zircaloy-Oxidationsgrades auf die Freisetzung einzelner Spalt-elemente

Die oben angesprochene Abhängigkeit der Barium-Freisetzung von der Oxidation der Zircaloy-Hüllrohre ist ein Effekt, den wir erst zu Beginn dieses Jahres systematisch untersucht haben /6/. Ein Vergleich unserer Freisetzungsergebnisse mit neueren Arbeiten aus Oak Ridge /7/ hatte nämlich für die 3 Elemente Ba, Te und Ag Abweichungen um bis zu 2 Größenordnungen ergeben. Als wir daraufhin die experimentellen Randbedingungen verglichen, ergab sich, daß die Erklärung für diese Diskrepanz möglicherweise in dem unterschiedlichen Wasserdampfangebot für das Schmelzgut lag.

Tabelle 1: Experimentell bestimmte Freisetzungsraten  $k$  [ $\text{min}^{-1}$ ] bei  $2400\text{ }^\circ\text{C}$  in einer Wasserdampfatosphäre

Element	k		Element	k
I, Cs, Cd	> 0,5	a)	Zr	$10^{-5}$
In	0,2	b)	U	$2 \cdot 10^{-4}$
Ag	0,14	c)	Np	$10^{-5}$
Te	0,071	c)	Fe	$10^{-3}$
Sb	0,043	c)	Cr	$10^{-3}$
Ba	$10^{-4}$	c)	Co	$10^{-3}$
Mo	$10^{-4}$		Mn	0,01
Ru	$10^{-6}$		Sn	0,014
Ce,Nd	$10^{-5}$			

- a) geschätzter Wert, da bereits bei  $1800\text{ }^\circ\text{C}$  gilt:  $k > 0,1$
- b) extrapoliert von  $2250\text{ }^\circ\text{C}$
- c)  $k$  hängt vom Umfang der Zircaloy-Oxidation ab, die angegebenen Werte gelten für vollständige Oxidation

Bemerkung: In den meisten Fällen handelt es sich um gerundete Mittelwerte aus 2-3 Versuchen. Die Reproduzierbarkeit der Werte war besser als  $+100/-50\%$  bei  $k \geq 10^{-2}\text{ min}^{-1}$  und besser als  $+200/-65\%$  bei  $k < 10^{-2}\text{ min}^{-1}$ .

Um einen guten Transport der Aerosolpartikeln aus dem Schmelztiegel auf die Meßfilter zu erreichen, benutzen wir in der Regel einen Wasserdampfdurchsatz von 30 l/min. Die Zircaloy-Hüllen der Brennstabprüflinge werden dadurch schon vor dem Schmelzen weitgehend oxidiert. Beim ORNL lag das Dampfangebot dagegen um einen Faktor 10-30 niedriger, so daß dort die Freisetzung aus Brennstäben mit nur schwach oxidierten Hüllrohren erfolgte.

Es lag daher nahe, auch an der SASCHA-Anlage Versuche mit einem reduzierten Wasserdampfangebot durchzuführen. Dies geschah einmal mit einem Durchsatz von 28 l Argon + 1,5 l Wasserdampf pro min und einmal mit einer rein reduzierenden Atmosphäre, nämlich 28 l Argon + 1,5 l Wasserstoff pro min.

Die Ergebnisse sind in den Abbildungen 4, 5 und 6 dargestellt. Man sieht, daß die Freisetzung unter reduzierenden bzw. schwach oxidierenden Bedingungen für Te und Ag deutlich niedriger ist, für Ba dagegen deutlich höher. Der Grund dafür liegt im chemischen Reaktionsverhalten der Zircaloy-Hüllen: bei geringer oder fehlender Oxidation kann das Zircaloy die relativ leichtflüchtigen Elemente Te und Ag binden und gleichzeitig das gering flüchtige BaO zu dem stärker flüchtigen Ba-Metall reduzieren (BaO ist die stöchiometrisch wahrscheinlichste Form des Spaltelements Barium im Brennstoff). Dadurch ist die Freisetzung im Falle von Te und Ag zunächst gering, von Ba dagegen relativ hoch.

Sobald das Zircaloy aber eine hinreichend starke Oxidschicht aufweist, geht die Tendenz zur Rückhaltung von Te und Ag sowie zur Reduktion des BaO verloren. Die Freisetzung entspricht dann den SASCHA-Versuchen mit hohem Wasserdampfangebot.

Die ursprüngliche Diskrepanz zwischen den Freisetzungsergebnissen in Oak Ridge und bei PNS ist somit als nur scheinbar existierend geklärt. Außerdem haben diese Versuche gezeigt, daß bei der theoretischen Behandlung verschiedener Kernschmelzszenarios die Abhängigkeit der Freisetzung vom Oxidationszustand der Zircaloy-Hüllen zu berücksichtigen ist.

### 3. Berechnung der Aktivitätsfreisetzung aus dem Kern

Im folgenden wird beschrieben, wie man mit Hilfe der experimentell bestimmten Freisetzungsraten für einen Kernschmelzenunfall mit vorgegebener Aufheizcharakteristik des Kerns die integrale Aktivitätsfreisetzung berechnen kann. Zu diesem

Zweck wird zunächst der Temperaturverlauf im Kern beschrieben, der sich nach Energiebilanzrechnungen der KWU ergibt, wenn nach dem Bruch einer Hauptkühlmittelleitung zwar die Hochdruck- und Niederdruckeinspeisesysteme der Notkühlung funktionieren, dann aber die Umschaltung auf den Sumpf-Umwälzbetrieb versagt. In diesem Fall ergibt sich der in Abb. 7 dargestellte Zeitverlauf für die mittlere Kerntemperatur und die Höhe des Wasserspiegels im RDB.

Mit fortschreitender Kernfreilegung steigt die mittlere Kerntemperatur zunächst bis 2200 °C an. Obwohl der Schmelzpunkt von reinem UO<sub>2</sub> bei 2800 °C liegt, treten in dieser ersten Aufheizphase aufgrund der Brennstoff/Hüllrohr-Wechselwirkung bereits bei 1900 - 2200 °C Schmelzphasen auf, die sich in einer Art Stop-and-Go-Prozeß auf die untere Gitterplatte zu bewegen. Das heißt: die flüssigen Phasen laufen außerhalb oder innerhalb der Brennstabhüllen nach unten, erstarren zwischenzeitlich und schmelzen später wieder auf. Die Kerntageplatte versagt spätestens dann, wenn sie nicht mehr vom Restwasser gekühlt wird. Der Kern stürzt nun in die untere RDB-Kalotte ab, die zu diesem Zeitpunkt noch mit Restwasser gefüllt ist. In ca. 30 min dampft auch dieses Wasser aus. Dabei erfolgt ein erneutes Aufschmelzen des Kerns und schließlich ein Durchschmelzen des RDB bei einer Temperatur von ca. 2400 °C.

Für die Berechnung der integralen Freisetzung haben wir die beiden Aufheizphasen bis zum RDB-Versagen durch 2 Zeitintervalle von jeweils 15 min ersetzt. Aus Abb. 7 wird deutlich, daß durch dieses Vorgehen die Gesamtfreisetzung eher über- als unterschätzt wird. Das gilt insbesondere auch deshalb, weil wir unterstellen, daß die beiden Temperaturintervalle für die gesamte Kernmasse gelten sollen.

Anhand der in Abschnitt 1 angegebenen Gleichungen läßt sich die integrale Aktivitätsfreisetzung für jedes Element (Nuklid) berechnen nach

$$\frac{\Delta A}{A} (\%) = 100 (1 - \exp^{-15(k_{2200} + k_{2400})}),$$

wobei  $k_{2200}$  und  $k_{2400}$  die für 2200 °C und 2400 °C gültigen elementspezifischen Freisetzungsraten bedeuten.

Tabelle 2 zeigt das Ergebnis einer Rechnung für die Aktivitätsfreisetzung, die sich aus der Betrachtung 11 verschiedener Gruppen von Spaltprodukten und Transuranen

Tabelle 2: Aktivitätsfreisetzung bis zum RDB-Versagen

Elemente	Inventar *)		Freisetzung	
	Aktivität (Ci)	(t = 2 h)	rel. (%)	abs. (Ci)
Kr, Xe	3,4 E8		100	3,4 E8
I, Br	6,8 E8		100	6,8 E8
Cs, Rb	1,0 E8		100	1,0 E8
Te, Se	1,1 E8		80	8,8 E7
Sb	4,5 E7		53	2,4 E7
Sr, Ba	5,6 E8		0,2	1,1 E6
Mo, Tc	3,3 E8		0,2	6,6 E5
Ru, Rh, Pd	5,9 E8		0,002	1,2 E4
Y, Zr, Nb	1,2 E9		0,02	2,4 E5
La, Ce, Pr, ...	1,5 E9		0,02	3,0 E5
Np, Pu, Am, Cm	2,2 E9		0,02	4,4 E5
Summe	7,7 E9			1,2 E9

\*) Inventar-Berechnung mit ORIGEN für Biblis B;

Abbrand: je 1/3 des Kerns 10 000 / 19 000 / 33 500 MWd/t Uran

ergibt. Aus der letzten Zeile der Tabelle geht hervor, daß nach 2 Std. insgesamt 16 % des radioaktiven Inventars aus dem Kern freigesetzt werden; der weitaus größte Teil davon, nämlich über 15,9 %, entfällt auf die leichtflüchtigen Elemente, d.h. die ersten fünf Gruppen der Tabelle. (Die Aktivitätsfreisetzung aus den aktivierten Strukturmaterialien wurde in diesem Zusammenhang vernachlässigt; sie ist sehr klein gegenüber der freigesetzten Aktivität der eben genannten fünf Elementgruppen.)

Diskussion des Realitätsgrades der angegebenen Aktivitätsfreisetzung: Es gibt sicher eine Reihe von Unsicherheitsfaktoren, die außer den üblichen experimentellen Meßfehlern in den berechneten Wert für die Aktivitätsfreisetzung eingehen. Besonders zu nennen ist hierbei der Einfluß der Extrapolation der Ergebnisse aus den Laborexperimenten mit ca. 200 g Schmelzgut auf einen Reaktorkern mit einer Masse von fast 200 t. Daneben sind aber auch folgende Einflüsse zu diskutieren:

- die Verwendung von Brennstoff mit einem simulierten Abbrand,
- die Höhe des Abbrandes,
- die Annahmen über den Temperaturverlauf des Kerns bis zum RDB-Versagen.

Da es vermutlich aussichtslos ist, alle diese Punkte in realistischer Weise zu berücksichtigen, haben wir versucht, mit einigen einfachen Überlegungen den möglichen Fehler der von uns berechneten integralen Aktivitätsfreisetzung abzuschätzen. Als Ergebnis dieser Abschätzung erhält man - wie ich im folgenden zeigen werde - eine Unsicherheit von nur etwa  $\pm 10$  %.

Betrachten wir zunächst die leichtflüchtigen Spaltprodukte: Sie werden hauptsächlich im ersten der beiden Freisetzungsintervalle von 15 min Dauer bei 2200 °C freigesetzt, bei genauerer Betrachtung sogar schon bei Temperaturen zwischen 1600 und 2200 °C. Unter diesen Bedingungen sind die Brennstäbe noch weitgehend ungeschmolzen, und deshalb spielt es für das Oberflächen/Volumen-Verhältnis keine Rolle, ob die Freisetzung aus 30 000 Stäben von 4 m Länge oder aus 3 Stäben von 7 cm erfolgt wie bei den SASCHA-Versuchen. Für das integrale Ergebnis sind auch die inhomogene Temperaturverteilung im Kern (axial und radial) sowie die physikalische Struktur des Brennstoffs mit einem simulierten Abbrand ohne wesentliche Bedeutung, weil der Dampfdruck dieser Elemente so hoch ist, daß sie spätestens dann in der angegebenen Weise freigesetzt werden, wenn der

Brennstoff schmilzt und so die für einen echten Abbrand typischen Festkörpereigenschaften ohnehin verloren gehen.

Eine wesentliche Überschätzung der integralen Freisetzung der leichtflüchtigen Spaltprodukte kommt daher nur in Frage, wenn bei einem Kernschmelzenunfall größere Teile des Kerns gar nicht am Abschmelzprozeß teilnehmen. Dies wollen wir hier jedoch ausschließen, weil wir das Ziel verfolgen, eine "Einhüllende" für die Freisetzung zu ermitteln, die für möglichst viele Varianten eines Kernschmelzenunfalls gilt.

Genauso wenig besteht aber auch die Gefahr einer generellen Unterschätzung der Freisetzung, denn die in Tabelle 2 angegebenen Werte liegen ja bereits bei oder nahe bei 100 %.

Bei den schwerflüchtigen Elementen, z.B. Ba, Ru, Ce, Pu, erfolgt die Freisetzung vorwiegend bei den höchsten Temperaturen, d.h. aus der flüssigen Schmelze. Diese hat bei den SASCHA-Versuchen ein hohes Oberflächen/Volumen-Verhältnis, wodurch sich eher eine zu hohe als eine zu geringe Freisetzung ergibt. Der Spaltproduktaustritt wird außerdem dadurch begünstigt, daß die induktive Schmelzgutheizung im Schmelztiegel der SASCHA-Anlage stets für eine starke Bewegung und Durchmischung der flüssigen Schmelze sorgt.

Schließlich ist auch die Annahme, daß sich der gesamte Kern für 15 min auf einem Temperaturniveau von 2400 °C befindet, in starkem Maße konservativ, da der Temperaturverlauf in der 2. Kernaufheizphase (vgl. Abb. 7) ja deutlich von der benützten Rechteckfunktion abweicht.

Unterstellt man aber trotz dieser konservativen Berechnungsmethode für die Freisetzungswerte einen Unsicherheitsfaktor 5 nach unten und oben, so ergibt sich für die freigesetzte Aktivität der schwerflüchtigen Elemente ein möglicher Unsicherheitsbereich, der von  $5,5 \cdot 10^5$  bis  $1,4 \cdot 10^7$  Ci reicht. Selbst der obere Grenzwert dieses Bereiches beträgt nur ca. 1/100 des Beitrages der fünf leichtflüchtigen Elementgruppen zur Aktivitätsfreisetzung. Da dieser Beitrag der leichtflüchtigen Elemente aber nur eine Unsicherheit von  $\pm 10$  % aufweisen kann, ergibt sich, daß auch die integrale Aktivitätsfreisetzung bis auf ca.  $\pm 10$  % genau sein muß.

#### 4. Berechnung der gebildeten Aerosolmasse

Sobald die Freisetzungsprodukte den hoch erhitzten Kernbereich verlassen, bilden sich durch Kondensation und nachfolgende Koagulation Aerosolpartikeln, die dann im Wasserdampfstrom zum Leck im Primärsystem und schließlich in den Sicherheitsbehälter transportiert werden. Für den dort stattfindenden Aerosolabbau spielt nun die Gesamtmasse der kondensierbaren Freisetzungsprodukte eine wichtige Rolle.

Den Ausgangspunkt für eine entsprechende Berechnung bildet das in die Kernschmelze eingehende Masseninventar des Kerns. Es setzt sich gemäß Tabelle 3 aus folgenden Werkstoffen zusammen:

Tabelle 3: Zusammensetzung der Kernschmelze eines DWR vom Typ Biblis B mit 1300 MWel

Brennstoff (UO <sub>2</sub> )	115 t
Zircaloy (zu 75 % oxidiert)	36 t
Stahl	30 t
Inconel	1.7 t
Absorber (Ag-In-Cd)	2.3 t

Zur Freisetzungsberechnung wird die Annahme verwendet, daß sich die Kernschmelze für 15 min auf 2400 °C befindet. Das in Abb. 7 dargestellte erste Temperaturintervall von 15 min bei 2200 °C wird nur für den Massenbeitrag der leichtflüchtigen Spaltprodukte berücksichtigt, denn die aus den Absorberstäben und den Abstandshaltern gebildete Schmelze wird zunächst größtenteils bis zur unteren Gitterplatte herablaufen, so daß nur ein Teil dieses Materials eine Temperatur von 2200 °C annehmen kann. Ebenso wird auch der geschmolzene Stahl erst nach dem Kernabsturz und der Restwasserverdampfung wesentlich zur Freisetzung und Aerosolbildung beitragen.

Mit den in Tabelle 1 angegebenen Freisetzungsraten  $k_{2400}$  kann man nun die relative Freisetzung berechnen nach



$$\frac{\Delta m}{m} (\%) = 100 (1 - e^{-15 \cdot k_{2400}}),$$

wobei m das Inventar der einzelnen Elemente bedeutet (vgl. Tabelle 3).

Das Ergebnis dieser Rechnung ist in Tabelle 4 wiedergegeben. Bei Berücksichtigung der chemischen Form der Freisetzungsprodukte ergibt sich eine Partikelmasse von ca. 3,5 t. Aus den bereits im vorigen Abschnitt erläuterten Gründen stellt dieser Wert mit Sicherheit wieder einen oberen Grenzwert dar.

Um auch hier eine Vorstellung über den Realitätsgrad des Ergebnisses zu erhalten, soll mit Hilfe einer Plausibilitätsbetrachtung ebenfalls ein unterer Grenzwert für die Partikelmasse ermittelt werden: Als realistisch erscheint zunächst der Beitrag des sehr flüchtigen Elements Cadmium (131 kg) sowie derjenige der 6 Spaltelemente im unteren Teil der Tabelle 4 (zusammen 256 kg). Wenn man weiterhin annimmt, daß zusätzlich nur noch jeweils 10 % der Elemente Mn, Sn, Ag und In, deren Siedepunkte sämtlich unter 2300 °C liegen, freigesetzt werden, so erhält man insgesamt 704 kg als Mindestwert für die integrale Partikelmasse. (Wohlgedenkt: die Freisetzung von UO<sub>2</sub>, Fe und Cr wurde hierbei völlig vernachlässigt.) Aus beiden Grenzwerten kann man nun durch Bildung des geometrischen Mittelwertes einen wahrscheinlichsten Wert für die Partikelmasse ableiten. Dieser Wert beträgt 1565 kg, und von ihm läßt sich beim Vergleich mit dem oberen und dem unteren Grenzwert sagen, daß er sicher bis auf einen Faktor 2 als realistisch anzusehen ist.

Anmerkung: In weiterführenden Analysen zum Aerosolverhalten im Containment wird in vielen Fällen mit einer maximalen Aerosolmasse von 3,5 t gerechnet, d.h. mit einem Wert, der der linearen Extrapolation unserer SASCHA-Daten bis zum RDB-Versagen entspricht. Diese Vorgehensweise ist deshalb berechtigt, weil man davon ausgeht, daß die betrachtete Aerosolmasse zwei weitere bisher schwer kalkulierbare Massenanteile einschließt, nämlich

- den additiven Beitrag aus der Schmelz/Beton-Wechselwirkung und
- den abzuziehenden Beitrag einer eventuellen Primärkreisrückhaltung.

Nach neueren Untersuchungen von D.A. Powers /8/ soll der erste dieser beiden Massenbeiträge in der Größenordnung einiger Tonnen liegen, was allerdings durch die BETA-Vorversuche bisher nicht bestätigt wurde. Der zweite Beitrag kann dem-

Tabelle 4: Zusammensetzung und Masse des bis zum RDB-Versagen gebildeten Aerosols (lineare Extrapolation der SASCHA-Ergebnisse)

Inventar		Freisetzung	
Element	Masse (kg)	relativ (%)	absolut (kg)*)
U	101 600	0.3	345
Fe	21 300	1.5	411
Cr	5 750	1.5	126
Ni	4 000	1.5	76
Mn	450	14	87
Zr	30 350	0.015	6
Sn	350	19	84
Ag	1 850	88	1628
In	350	95	332
Cd	115	100	131
Se	3	81	2
Rb	22	100	22
Cd	5	100	6
Te	37	81	30
I	18	100	18
Cs	178	100	178
$\Sigma$	~166 000		3482

\*) Es wird angenommen, daß die Freisetzungsprodukte zu 100 % in den folgenden Oxidformen vorliegen:  $\text{UO}_2$ ,  $\text{FeO}$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{NiO}$ ,  $\text{Mn}_3\text{O}_4$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{SnO}_2$  und  $\text{CdO}$

gegenüber höchstens einige 100 kg betragen, denn solange im RDB eine Wasserdampfquelle zur Verfügung steht, ist ein stetiger Transport der Freisetzungserzeugnisse durch das Primärkreisleck in den Sicherheitsbehälter gar nicht zu bezweifeln.

#### 5. Untersuchungen zur Spaltproduktfreisetzung während der Schmelze- Beton- Wechselwirkung

In den bisherigen Ausführungen wurde u.a. dargelegt, daß die leichtflüchtigen Spaltprodukte bis zum RDB-Versagen zu 50-100 % aus dem Brennstoff freigesetzt werden, während der entsprechende Anteil der schwerflüchtigen Spaltprodukte noch unterhalb von 1 % liegt. Für die Freisetzung nach dem RDB-Versagen stellen sich nun folgende Fragen:

- Werden die in der Schmelze verbliebenen leichtflüchtigen Spaltprodukte während der Schmelze/Beton-Wechselwirkung vollständig freigesetzt?
- Kann der Kontakt der Schmelze mit dem Beton und mit der Luft des Sicherheitsbehälters dazu führen, daß ein Teil der schwerflüchtigen Spaltprodukte durch Oxidbildung in leichter flüchtige Produkte umgewandelt werden? In einem solchen Fall könnte die Freisetzung sogar höher sein als unter den Randbedingungen im RDB, obwohl die Temperatur der Schmelze in den ersten Minuten der Wechselwirkung mit dem Beton ja um mehrere hundert Grad absinkt /9/.

Zur Beantwortung dieser Fragen haben wir in der SASCHA-Anlage 2 Versuche mit Betontiegeln durchgeführt, deren Prinzip in Abb. 8 dargestellt ist. Das Schmelzgut, bestehend aus 3 Brennstabprüflingen und 120 g Stahl, befand sich in einem Innentiegel aus  $ZrO_2$ , der zur Verringerung des Wärmeüberganges auf 3  $UO_2$ -Pellets ruhte. Die Aufheizung erfolgte mit 300-400 °C/min bis etwa 2500 °C. Bei dieser Temperatur war der größte Teil des Coriums geschmolzen. Die thermische Belastung des Innentiegels wurde jedoch so groß, daß die Schmelze den Boden durchbrach und dann in den noch relativ kalten Betontiegel eindrang. Um ein schnelles Abkühlen der Schmelze zu vermeiden, wurde sie bis kurz vor Erreichen des unteren Thermoelementes induktiv weiterbeheizt (noch 8 min nach dem Versagen des Innentiegels). Während des Aufschmelzvorgangs bildete sich ein intensiver Aerosolstrom von Freisetzungserzeugnissen, der in Zeitintervallen von 1 min auf automatisch ausgewechselten Filtern gesammelt und nach dem Versuch gamma-spektrometrisch analysiert wurde.

Die Abb. 9 zeigt zunächst einen Längsschnitt durch den Betontiegel des Versuchs S-277. Man sieht, daß der aufgeschmolzene Beton bis über den Tiegelrand aufquoll. Der oxidische Teil der Kernschmelze vermischte sich mit der Betonschmelze (Bildmitte), wodurch der metallische Teil nun die größere Dichte aufwies. Da der Stahl aufgrund der besseren Ankopplung an das Induktionsfeld außerdem am heißesten war, bildete er die vorderste Schmelzfront.

Die Abb. 10 zeigt den Temperaturverlauf des Schmelzgutes sowie den Freisetzungsverlauf von 4 Elementen als Funktion der Zeit. Sie läßt sich in folgender Weise kommentieren:

- a) Das Jod, von dem während der schnellen Aufheizphase noch ca. 20 % im Brennstoff verblieben war, wurde während der Beton-Wechselwirkung so gut wie vollständig freigesetzt. Ein analoges Verhalten ist auch von den Elementen Kr, Xe, Br, Rb, Cs und Cd zu erwarten.
- b) Die beiden Elemente Te und Ag (das Ag war hier in 2 g Absorbermaterial enthalten) wurden unter den vorliegenden Bedingungen fast ausschließlich während der Schmelze/Beton-Reaktion freigesetzt, u.z. Te zu 40 % und Ag zu ca. 60 %. Sollte die Freisetzung dieser Elemente vor dem RDB-Versagen nach der oben durchgeführten Rechnung (Tab. 4) überschätzt worden sein, so wird die Aussage sicher dann realistischer, wenn man die zusätzliche Freisetzung nach dem RDB-Versagen in die angegebenen Werte mit einbezieht.
- c) Neben Mo wurde in einem 2. Betontiegel-Versuch auch die Freisetzung von Ru gemessen. Beide Elemente können durch Oxidation in leichter flüchtige Produkte übergehen ( $\text{MoO}_2$ ,  $\text{MoO}_3$ ,  $\text{RuO}_2$ ,  $\text{RuO}_4$ ). Ein solcher Effekt war jedoch nur für Ru erkennbar. Im Vergleich zu den früheren Versuchen unter Wasserdampf ohne Beton lag hier die Freisetzung etwa um einen Faktor 20 höher. Der immer noch sehr niedrige Integralwert von 0,009 % läßt jedoch die Aussage zu, daß die Beiträge von Ru und Mo (0,08 %) zur Freisetzung der Aktivität und erst recht auch der Aerosolmasse eine sehr untergeordnete Rolle spielen.

Generell ist außerdem festzustellen, daß die Ergebnisse wegen der beschränkten Versuchsgeometrie in erster Linie qualitativen Charakter haben. Die Versuche lassen deshalb auch keine quantitative Aussage über die zu erwartende Aerosolmasse der Betonbestandteile zu. Es erscheint daher sinnvoll, für die Berechnung des Aerosolabbaus im Sicherheitsbehälter vorläufig weiterhin eine integrale Partikelmasse von ca. 3,5 t zu verwenden.

## Zusammenfassung

Meine Ausführungen sollten zeigen, daß es möglich war, anhand von Experimenten in relativ kleinem Maßstab und sogar unter Verwendung von Brennstoff mit simuliertem Abbrand zu Ergebnissen zu gelangen, die die Aktivitätsfreisetzung und die Aerosolbildung beim Kernschmelzen in - wie wir glauben - hinreichend realistischer Weise beschreiben. Die Vorgehensweise bestand aus zwei Schritten: Für die beiden Temperaturniveaus 2200 und 2400 °C wurden zunächst experimentelle Werte für die Freisetzungsraten aller relevanten Elemente im Kern ermittelt. Mit Hilfe eines einfachen Freisetzungsmodells und eines vorgegebenen Zeitverlaufs für die mittlere Kerntemperatur wurden dann die Integralwerte für die bis zum RDB-Versagen freigesetzte Aktivität und die gebildete Aerosolmasse berechnet. Dabei ist hervorzuheben, daß für die entsprechenden Aussagen weder eine detaillierte Beschreibung der Temperaturverteilung im Kern noch eine genaue Kenntnis der Vorgänge im RDB erforderlich waren wie etwa der örtliche und zeitliche Ablauf der Schmelzenbildung oder die Art des Kernslumpings beim Versagen der unteren Gitterplatte.

Die Ergebnisse beziehen sich auf die Referenzanlage Biblis B der Deutschen Risikostudie unter der Annahme eines großen Lecks im Primärsystem (Niederdruckpfad) und für einen mittleren Abbrand von ca. 20-40 GWd/t Uran. Sie lassen sich wie folgt zusammenfassen und kommentieren:

1. Die integral aus dem Kern freigesetzte Aktivität beträgt  $16 \pm 2$  % des 2 Stunden nach Abschaltung des Reaktors vorhandenen Inventars an radioaktiven Stoffen. Die integral freigesetzte Partikelmasse beträgt bei linearer Extrapolation der SASCHA-Versuchsergebnisse maximal 3,5 t; durch Vergleich dieses Wertes mit einem Minimalwert von ca. 700 kg gelangt man zu einem wahrscheinlichen Mittelwert von 1565 kg.
2. Ca. 99 % der freigesetzten Aktivität läßt sich den Nukliden der Elemente Kr, Xe, J, Cs, Te und Sb zuschreiben; den Hauptbeitrag zur Aerosolmasse liefert das Element Ag des Absorbermaterials.
3. Die Relevanz der Beiträge von Te und Ag zur Gesamtfreisetzung erweist sich in besonders starkem Maße abhängig von den Annahmen über den Temperaturverlauf der Kernschmelze. Eine mögliche Überschätzung ihrer Freisetzung vor dem RDB-Versagen wird sicher dadurch kompensiert, daß gerade diese Elemente auch während der Schmelze/Beton-Wechselwirkung, d.h. kurz nach dem RDB-Versagen, in starkem Maße freigesetzt werden.

4. Da sich für die Schmelze/Beton-Reaktion der Beitrag zur Aerosolmasse aus den SASCHA-Versuchen nicht abschätzen läßt und auch aus anderen Experimenten bisher keine belastbaren Daten zur Verfügung stehen, wird empfohlen, für die Rechnungen zum Aerosolabbau im Sicherheitsbehälter bis auf weiteres eine integrale Partikelmasse von 3,5 t zu verwenden. Es ist sehr unwahrscheinlich, daß dieser Wert um mehr als einen Faktor 2 von der Realität abweicht.
5. Im Gegensatz zu der Vorgehensweise in der amerikanischen Reaktorsicherheitsstudie WASH-1400 gelten unsere Freisetzungsergebnisse für klar definierte Randbedingungen, nämlich für ein bestimmtes Aktivitäts- und Masseninventar, für eine zwar einfache, aber genau angegebene Temperatur/Zeit-Funktion des Kerns sowie für einen Satz von Freisetzungsraten, der für eine Wasserdampfatosphäre von 2 bar und eine realistische Materialzusammensetzung der Kernschmelze bestimmt wurde.

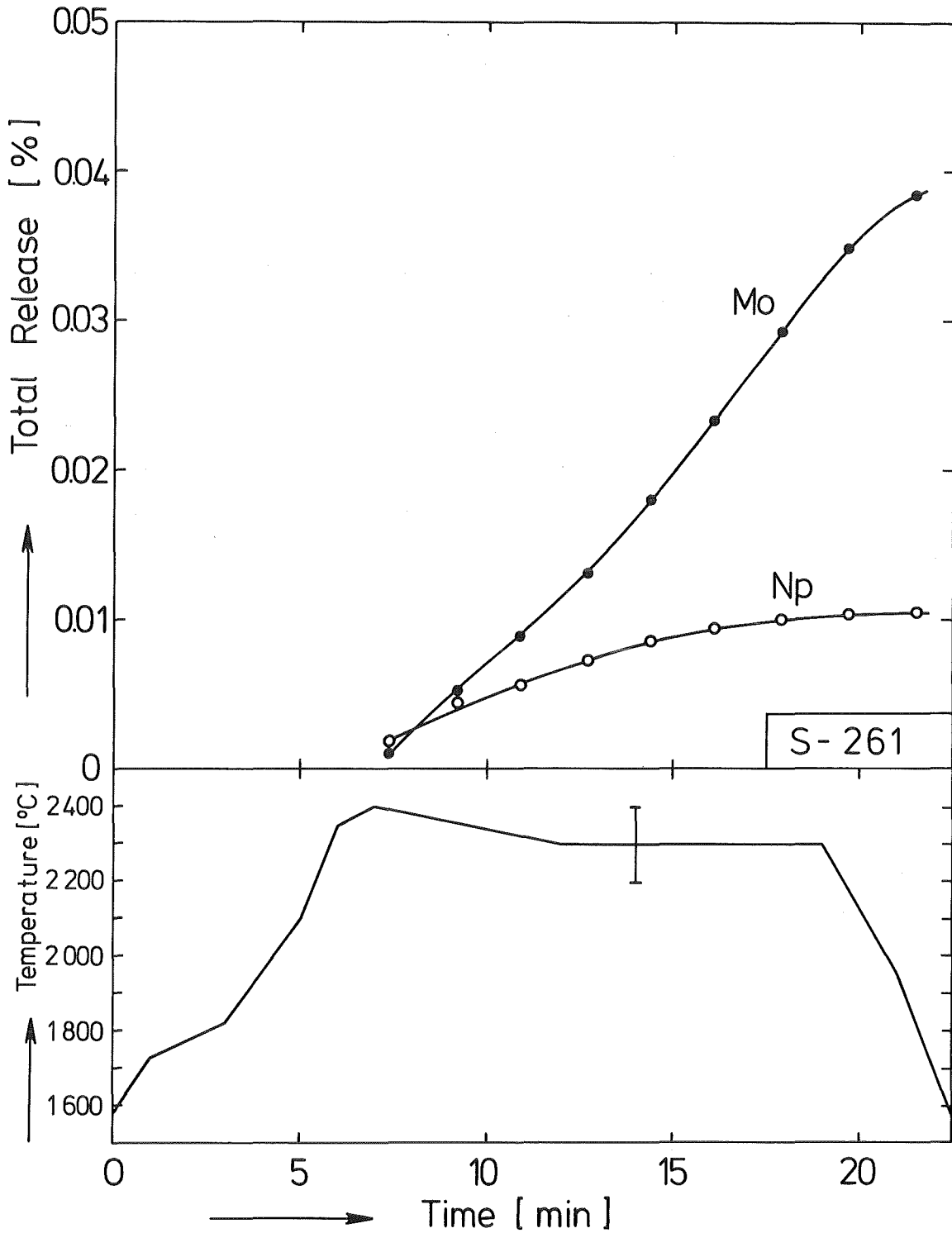
Für die Betrachtung spezieller Unfallabläufe ist es ohne weiteres möglich, mit anderen Inventaren und anderen Annahmen über die Kernaufheizung, aber unter Verwendung der gleichen Freisetzungsraten zu anderen Integralwerten für die Freisetzung zu gelangen.

#### Danksagung

Die Experimente an der Schmelzanlage SASCHA wären ohne ein eingespieltes Team von Kollegen und Mitarbeitern nicht durchführbar gewesen. Für die gute Zusammenarbeit, auch bei der Bereitstellung des Fissiums und der Auswertung der Versuche möchte sich der Autor bei folgenden Damen und Herren bedanken: H. Wild, K.H. Simon, K. Nolte, V. Prech, H. Ziegler und E. Damm. Eine großzügige Unterstützung des Vorhabens über nunmehr 10 Jahre erfolgte auch durch die Herren Prof. W. Seelmann-Eggebert und Prof. H.J. Ache.

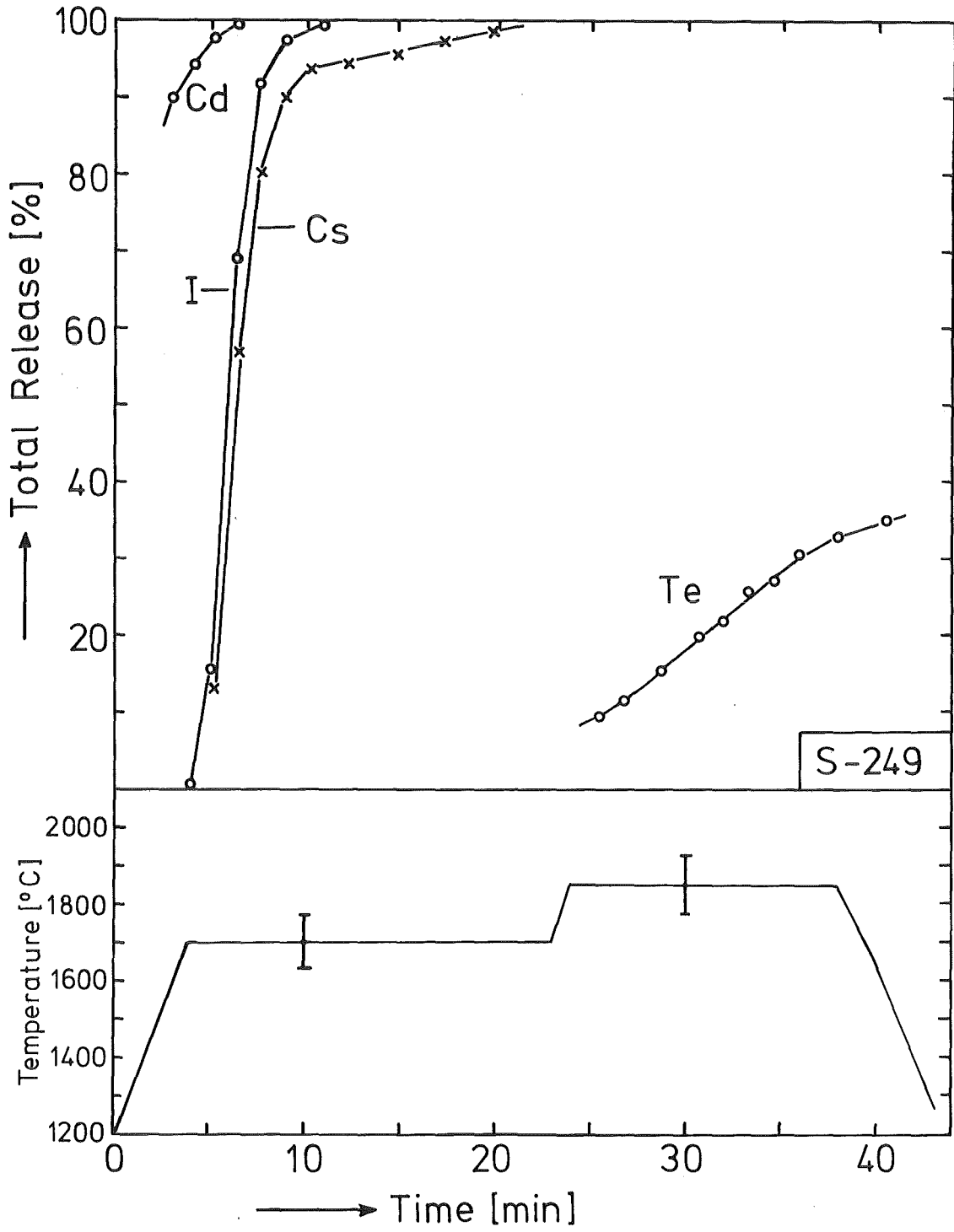
## Literatur

- /1/ H. Albrecht et al., PNS-Jahreskolloquium 1974, 1976, 1978, KfK-2101 (1974) 146, KfK-2399 (1976) 208, KfK-2770 (1978) 134
  
- /2/ H. Albrecht et al., PNS-Jahresberichte, KfK-2750 (1979), KfK-2950 (1981), KfK-3250 (1982), KfK-3350 (1983)
  
- /3/ H. Albrecht, H. Wild: Investigation of Fission Product Release by Annealing and Melting of LWR Fuel Pins in Air and Steam, ANS/ENS Topical Meeting on Reactor Safety, Aug. 2-6, 1981, Sun Valley, Idaho
  
- /4/ H. Albrecht, H. Wild: Behavior of I, Cs, Te, Ba, Ag, In, and Cd during Release from Overheated PWR Cores, Int. Meeting on Light Water Reactor Severe Accident Evaluation, Aug. 28 - Sept. 1, 1983, Cambridge, Mass.
  
- /5/ US-NRC: Technical Bases for Estimating Fission Product Behavior during LWR Accidents, NUREG-0772 (1981)
  
- /6/ H. Albrecht: Out-of-Pile Tests under Core Melting Conditions, OECD-NEA-CSNI/IAEA Specialists' Meeting on Reactor Fuel Safety and Fission Product Release in Off-normal and Accident Conditions, May 16-20, 1983, Riso, Dänemark
  
- /7/ G.W. Parker et al.: Influence of Variable Physical Process Assumptions on Core-Melt Aerosol Release, Int. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Aug. 29 - Sept. 2, 1982, Chicago, NUREG/CP-0027 (1982)
  
- /8/ D.A. Powers et al.: The Role of Ex Vessel Interactions in Determining the Severe Reactor Accident Source Term for Fission Products, vgl. Zitat /4/
  
- /9/ M. Reimann, S. Stiefel: Hydrodynamische und thermische Modelle zur Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton, PNS-Jahresbericht 1982, KfK-3350 (1983), Seite 4300- 68-81.

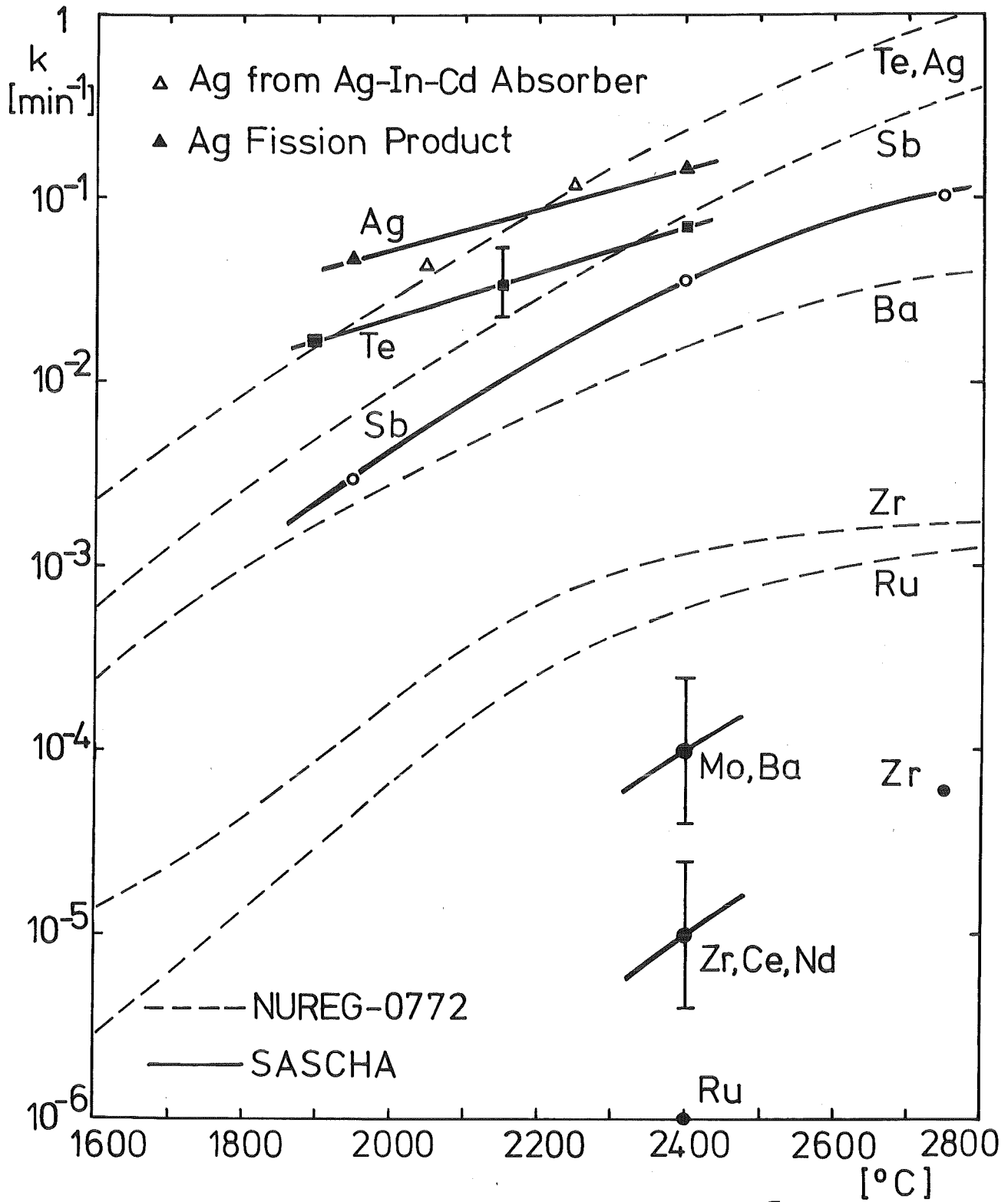


Release of Mo and Np in Steam ( 2 bar )

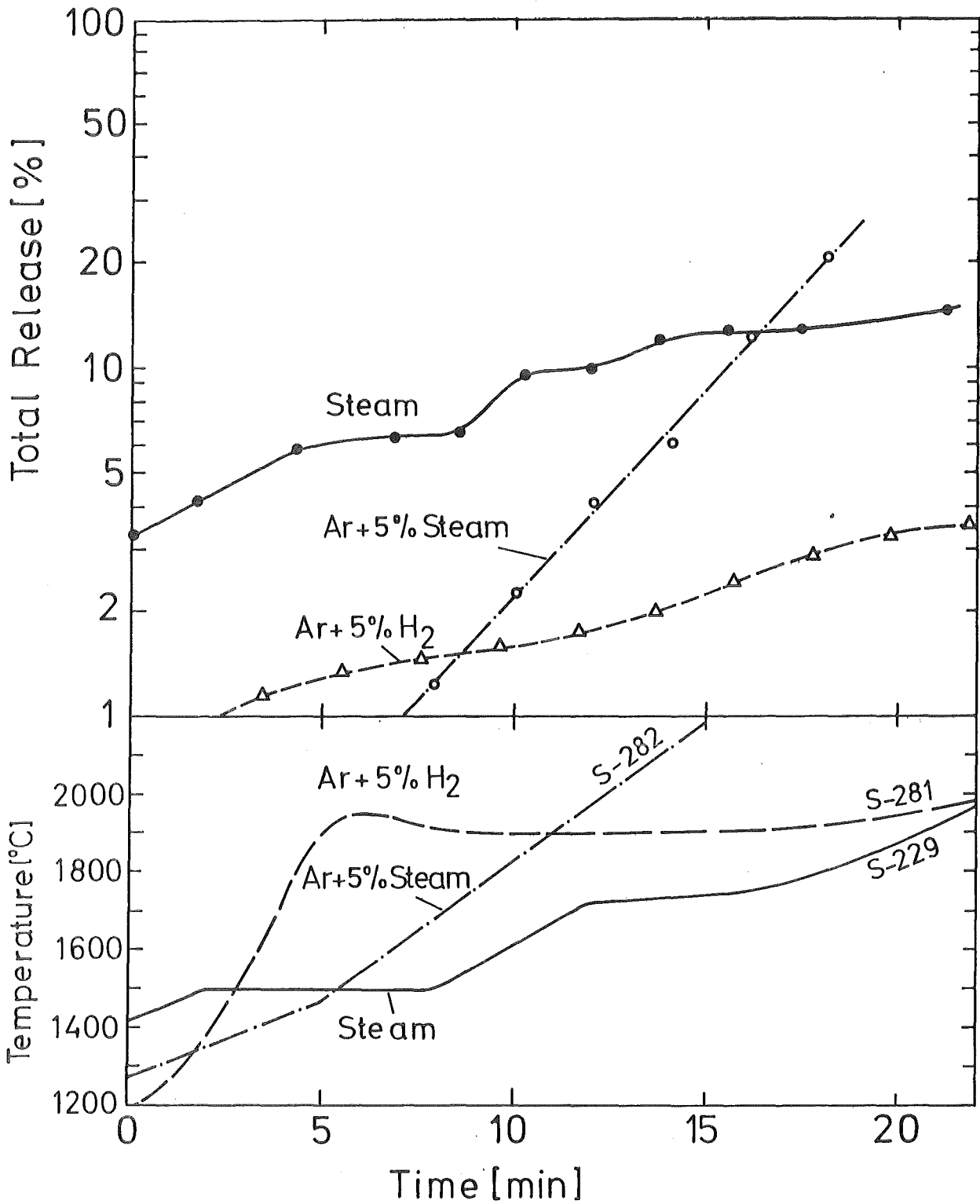




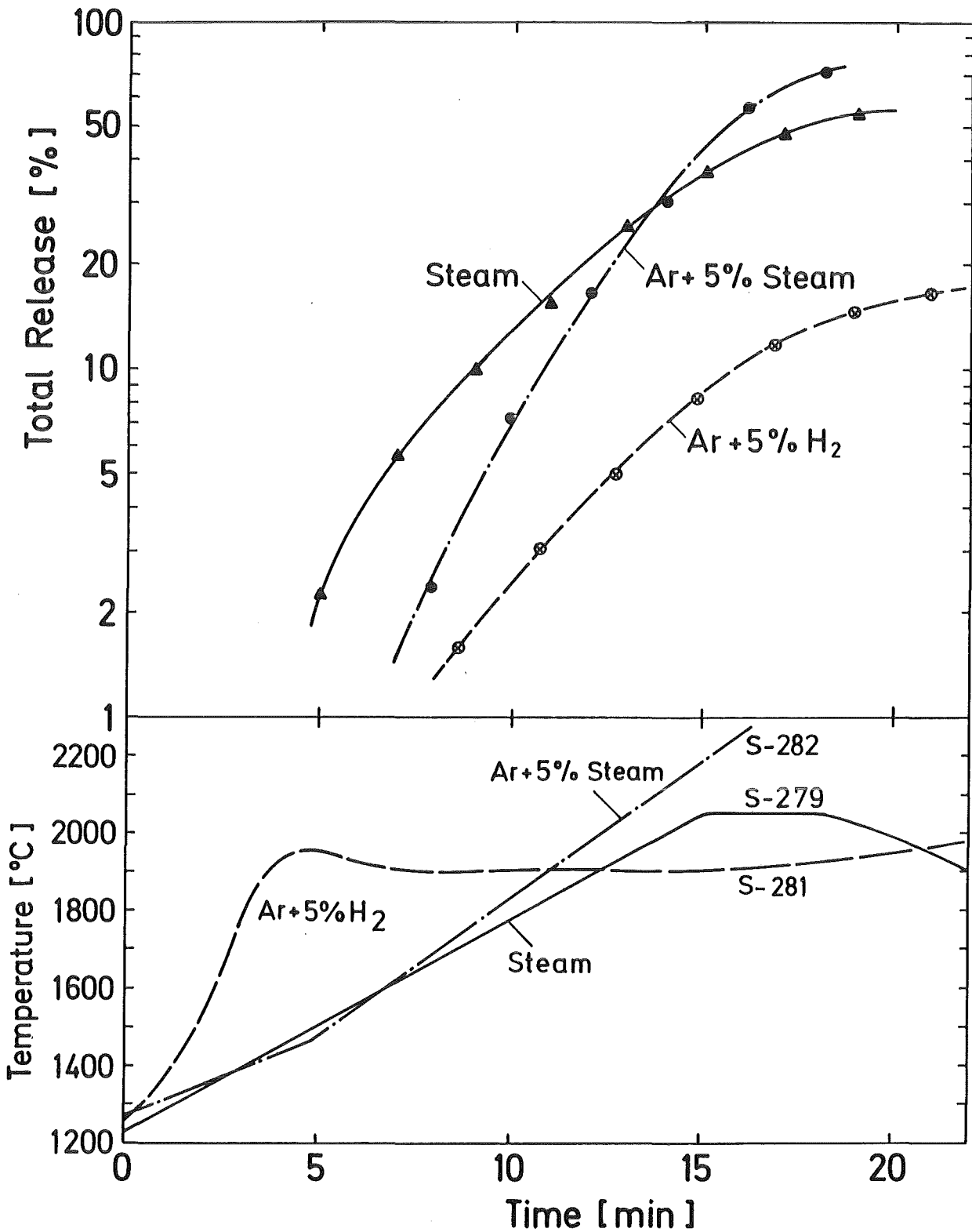
Release of Cd, I, Cs, and Te in Steam (2 bar)



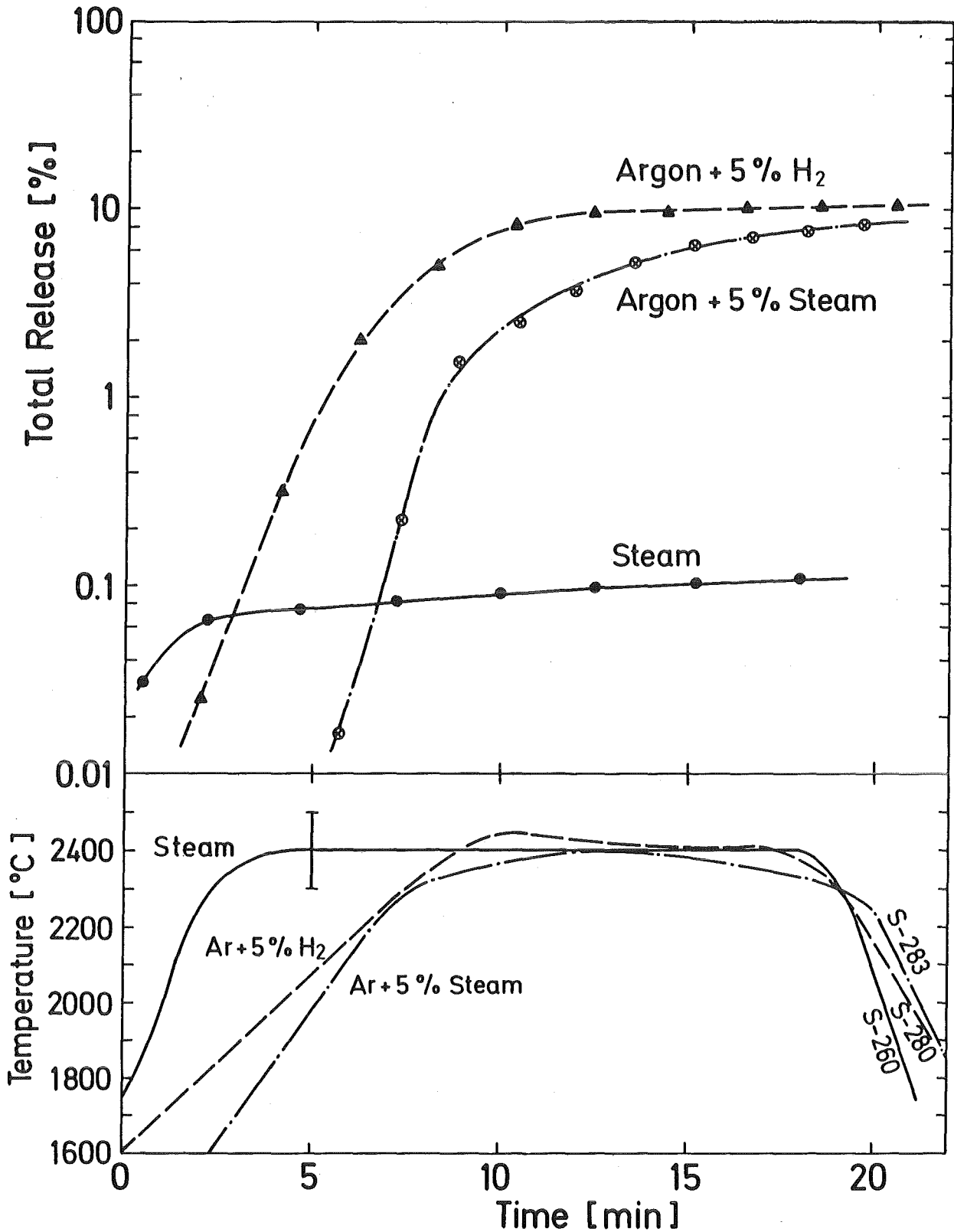
Comparison of Release Rates  $k$  in Steam [ $\text{min}^{-1}$ ]



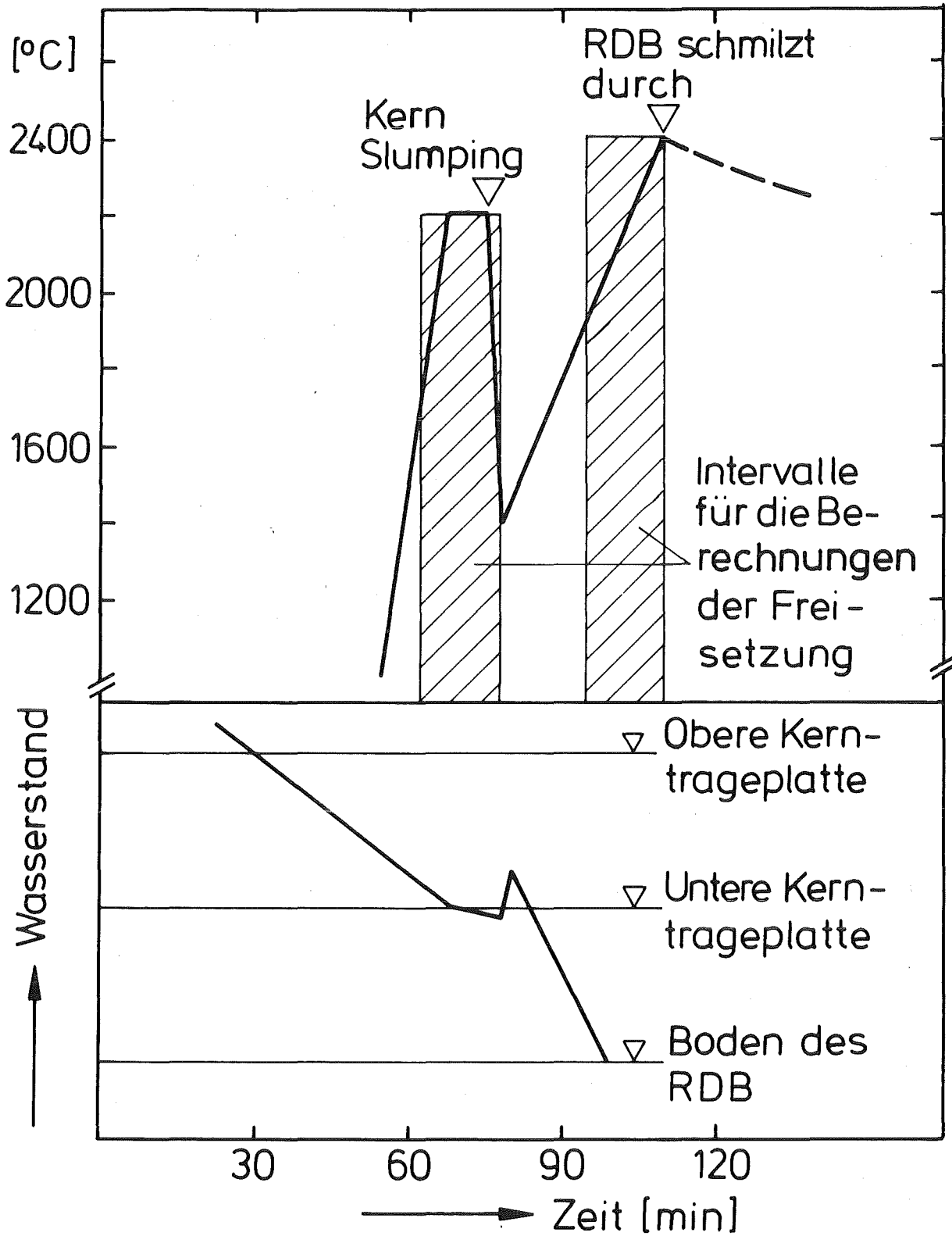
Dependence of Te Release on Steam Supply



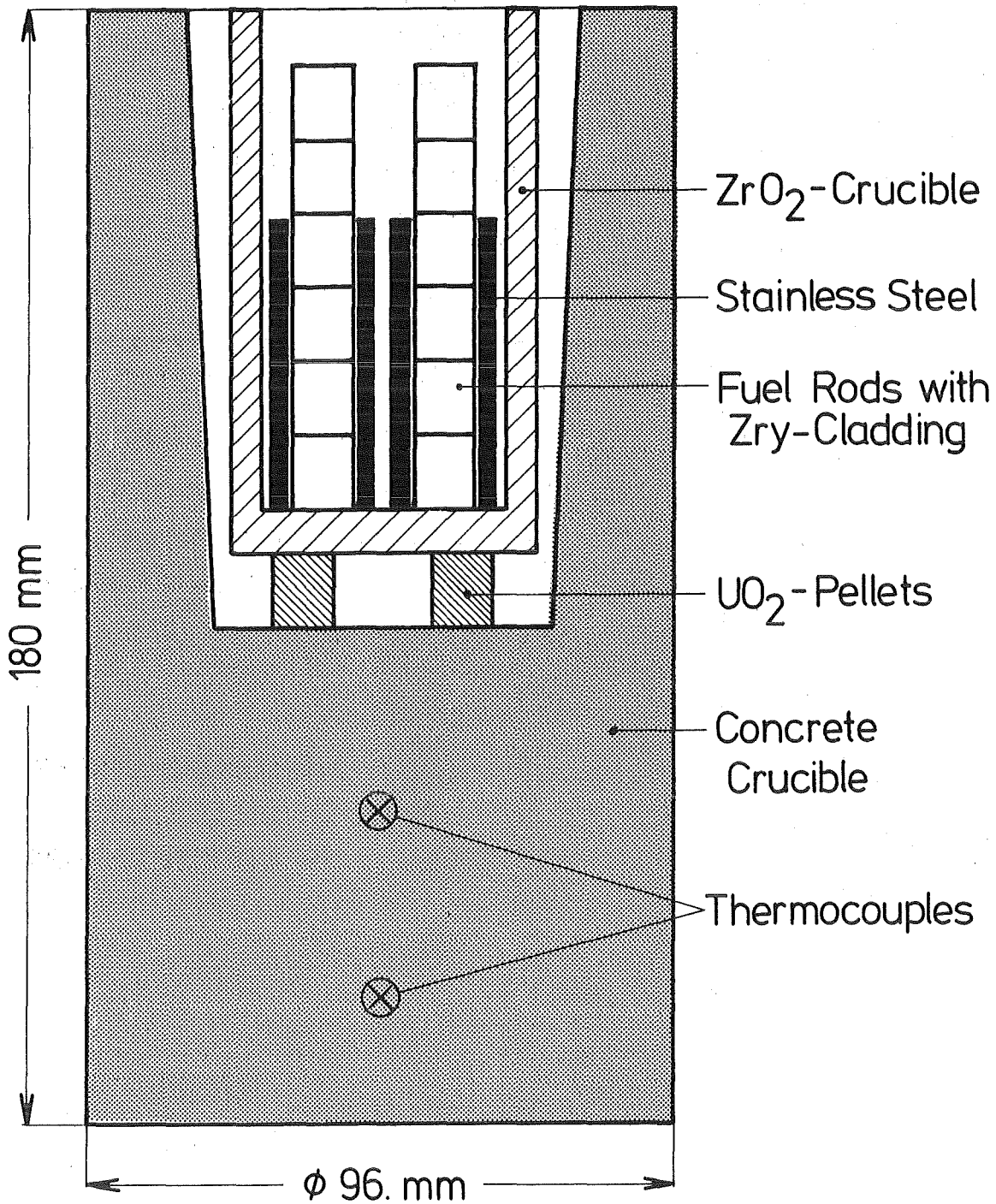
Dependence of Ag Release on Steam Supply



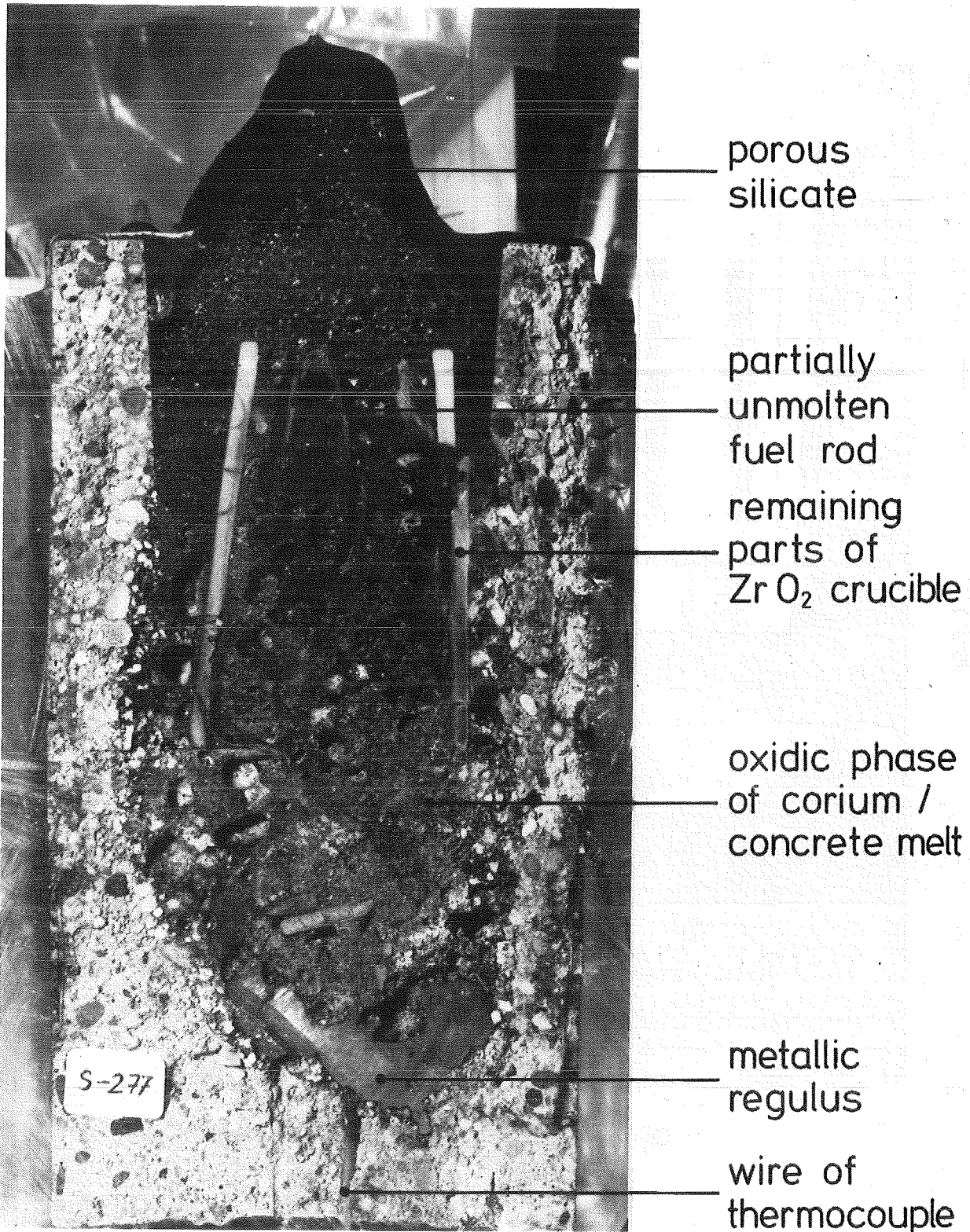
Dependence of Ba Release on Steam Supply



Mittlere Kerntemperatur und Wasserstand beim Kernschmelzen Abb. 7

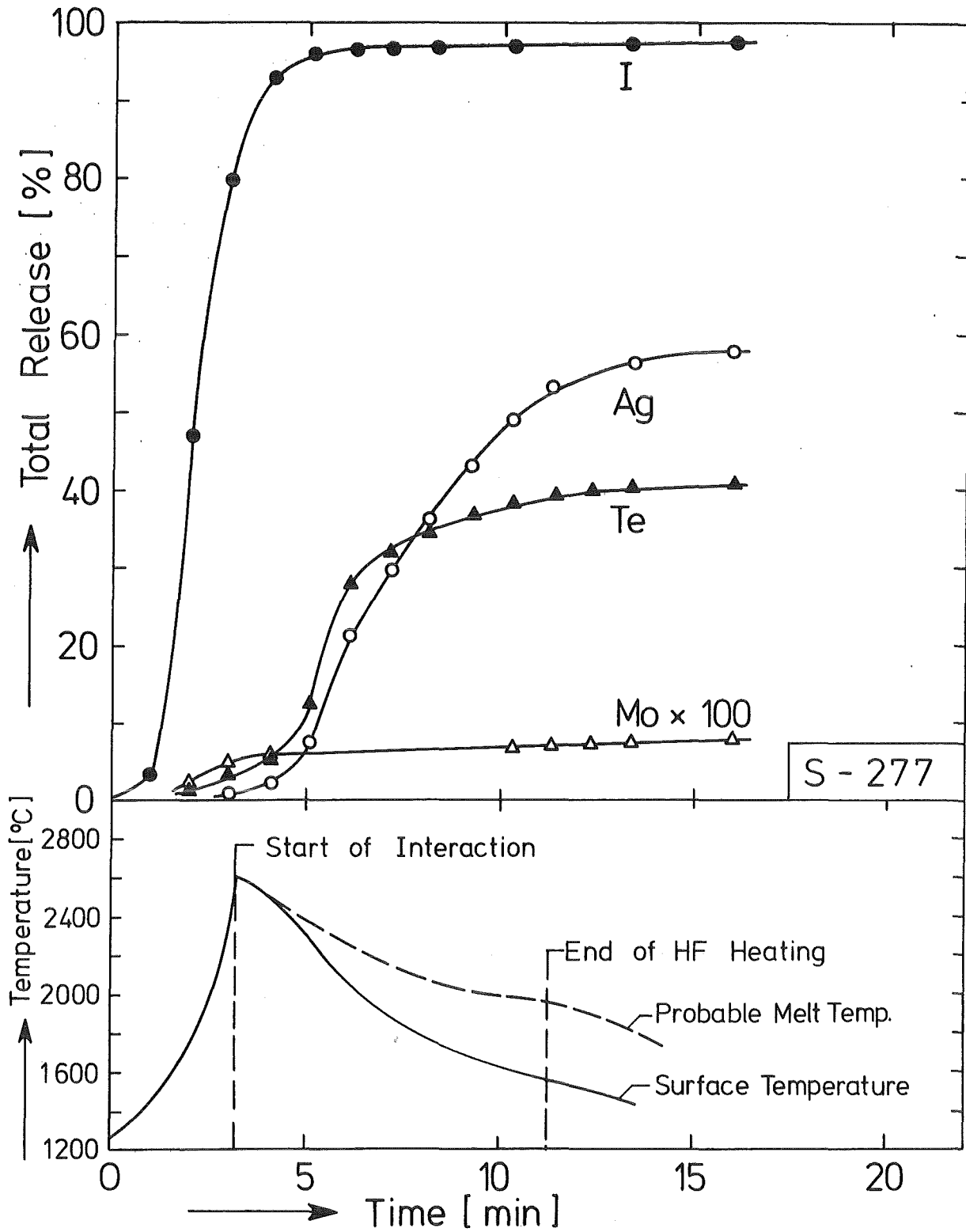


Arrangement for Fission Product Release Tests During  
Melt / Concrete Interaction



Section through concrete crucible of Test S - 277





Release of I, Ag, Te, and Mo during Melt / Concrete Interaction in Air



PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT  
JAHRESKOLLOQUIUM 1983

MODELLIERUNG DER AUFLÖSERABGASSTRECKE  
DER GEPLANTEN WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGE  
ALS GRUNDLAGE FÜR EINE SICHERHEITSANALYTISCHE BEWERTUNG

K. NAGEL  
H. WENZELBURGER  
J. FURRER <sup>+) )</sup>  
R. V. AMMON <sup>++) )</sup>

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE  
+) INSTITUT FÜR DATENVERARBEITUNG IN DER TECHNIK  
++) LABORATORIUM FÜR AEROSOLPHYSIK UND FILTERTECHNIK  
INSTITUT FÜR HEISSE CHEMIE

## Modelling of the Offgas-Cleaning System of the Planned Reprocessing Plant as a Basis for a Safety Analysis.

### Abstract:

Incidents for off-gas cleaning system installed in the Nuclear Research Center Karlsruhe (KfK) are investigated. For PASSAT, a facility that removes aerosols and iodine isotopes from the off-gas, a stochastic model has been developed. The model needs experimental data in an analytical approximation. With given operation- and repair-strategies the model allows predictions for mean release of radioactive iodine. Prediction for released aerosols are not yet possible, for we do not know the total amount as well as the spectral distribution of aerosols from the dissolver.

The results of the model are interpreted qualitatively with regard to a planned large reprocessing plant.

The facilities ADAMO and KRETA removing Kr-85 from the off-gas have been investigated in order to reveal their most important failures. It is possible to describe the operation of ADAMO regarding the time-dependent adsorption of  $H_2O$  and  $CO_2$  as well as the coadsorption of krypton and xenon in silicagel and molecular sieve. The time-dependent presentation of the krypton rectification in KRETA needs further research.

## Zusammenfassung

Die Störfallbetrachtungen zur Auflöserabgasstrecke einer geplanten Wiederaufarbeitungsanlage basieren auf den im KfK aufgebauten Anlagenteilen im technischen Maßstab. Für den Anlagenteil PASSAT, zur Aerosol- und Jodentfernung aus dem Abgas, konnte aufgrund eingehender Systemanalyse ein probabilistisches Modell konstruiert werden. Dazu wurden, um die für den ersten Störfall relevanten verfahrenstechnischen Abläufe näher analysieren zu können, die experimentellen Daten in analytischer Form dargestellt. Das konstruierte Modell läßt bei verschiedenen Betriebs-, Wartungs- und Reparaturstrategien Aussagen über die mittlere freigesetzte Schadstoffmenge an radioaktivem Jod zu. Modellaussagen zur Aerosolfreisetzung fehlt der Quellterm als sehr wichtiger Parameter, d.h. die gesamte aus dem Auflöser ausgetragene Menge an Aerosolen und deren spektrale Verteilung ist unbekannt.

Es ist möglich durch Festlegung der Betriebs-, Wartungs- und Reparaturstrategien, quantitative Aussagen zu machen. Diese Aussagen dürfen aber im Hinblick auf eine reale Anlage nur qualitativ bewertet werden.

Die technischen Systeme ADAMO und KRETA zur Entfernung von Krypton aus dem Abgas wurden bisher lediglich systemanalytisch untersucht. Für die wichtigsten Parameter zur Beschreibung der Vorgänge in ADAMO wurden analytische Beziehungen gefunden. Dies sind die zeitabhängige Adsorption von  $H_2O$  sowie  $CO_2$  und Koadsorption von Krypton und Xenon an Silicagel und Molekularsieb. Im Fall von KRETA sind die verfahrenstechnischen Vorgänge soweit aufbereitet, daß mögliche Störfälle beschrieben und deren Konsequenzen abgeschätzt werden können. Die Abschätzung bedeutet in diesem Fall: Krypton wird oder wird nicht unter Störfallbedingungen freigesetzt. Die zeitabhängige Darstellung der Vorgänge in KRETA bedürfen weiteren Untersuchungen.

## Einleitung

Die Auflöserabgasstrecke einer Wiederaufarbeitungsanlage hat die Aufgabe, die gasförmigen Komponenten der Auflösung und die luftgetragenen Aerosole möglichst vollständig aus dem Abgas zu entfernen. Gasförmige Komponenten sind Stickoxide der zur Auflösung verwendeten Säure, sowie Jodisotope und Krypton-85. Die ausgetragenen Aerosole führen zusätzlich toxische Spaltprodukte mit sich wie Ce-144, Cs-134, Cs-137, Sr-90, Ru-106, Sb-124 und die Transurane Np, Pu, Am, Cm /1/.

Die Stickoxide in den Gaskomponenten sollen in einer dem Auflöser nachgeschalteten  $\text{NO}_x$ -Wäsche rezykliert, d.h. zu Salpetersäure rückgebildet werden. Hinter der Wäsche werden die Aerosole zum großen Teil in einem Naßabscheidersystem zurückgehalten. Das Abgas wird danach erwärmt, wobei die aus noch vorhandenen Aerosolen gebildeten Partikeln an einem HEPA-Filter abgeschieden werden sollen. Nach weiterer Erwärmung scheidet sich das Jod aus dem Abgas an silberimprägniertem Silikagel durch Chemisorption ab.

Die Abkühlung des Abgases zur kryogenen Entfernung des Kryptons macht die vorherige adsorptive Abtrennung von  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{CO}_2$  an Silikagel- und Molekularsieb-Betten notwendig. Kr-85 soll zusammen mit Xenon über die Tieftemperatur-Rektifikation entfernt werden.

Die im Abgas hinter der Jodentfernung noch vorhandenen Stickoxide werden durch Reduktion mit Wasserstoff vor der Rektifikation chemisch umgewandelt. Dieser Anlagenteil wird in diesen Betrachtungen ausgeklammert.

Der Modellierung liegen keine Experimentierergebnisse einer geschlossenen Auflöserabgasstrecke zugrunde, sondern Ergebnisse spezieller Anlagenteile im technischen Maßstab:

PASSAT zur Aerosol- und Jodisotopenabtrennung /2/,

ADAMO zur Adsorption von  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{CO}_2$ ,

KRETA zur kryogenen Xe- und Kr-Entfernung /3/.

Es besteht nun die Aufgabe, das zeitliche Verhalten der Dekontaminationsfaktoren der Rückhalteeinrichtungen in Abhängigkeit seiner wichtigsten Parameter zu beschreiben. Daraus ergibt sich das Störfallverhalten der Rückhalteeinrichtungen, was am Beispiel PASSAT gezeigt werden soll.

## Anlage mit Schwebstoff- und Sorptionsfilter

Die Anlage besteht im Prinzip aus zwei Teilen, die sich nur geringfügig beeinflussen. Im ersten Abschnitt, dem Naßteil, werden aus dem Abgas die Flüssigaerosole abgeschieden. Nach der Erhitzung des Abgases werden daraus die restlichen Feststoffaerosole an einem Schwebstofffilter zurückgehalten und die Jodisotope durch Chemisorption im Filterbett gebunden.

Die Aerosolabscheidung an den Naßabscheidern (Fangrillen- und Faserpaket-Abscheider) ist eine Funktion der Durchflußmenge und des Aerosoldurchmessers /4/. Der Dekontaminationsfaktor des Schwebstofffilters ist abhängig von der Druckdifferenz über dem Filter. Die Druckdifferenz erhöht sich bei höherem Durchfluß oder bei Beladung. Änderungen aufgrund der Beladung sind stark abhängig von der Aerosolgrößenverteilung, die nicht bekannt ist.

Die ursprüngliche Anlage besaß zwei Erhitzer, wobei der erste das Abgas vor dem Schwebstofffilter auf 80°C erhitzt und der zweite seine Temperatur hinter dem Schwebstofffilter auf 130°C erhöht. Ein neueres Konzept sieht nur einen Erhitzer vor, der das Abgas vor dem Schwebstofffilter auf 130°C erhitzt. Unseren weiteren Betrachtungen liegen jedoch die ursprünglichen zwei Erhitzer zugrunde. Die bestimmenden Parameter der Jodsorption sind die vorhandene Filterbetttiefe und die relative Feuchte des Abgases /5/.

Sind es bei der Aerosolabscheidung die sich ändernden Durchflüsse und Durchmesserspektren, die den zeitlichen Ablauf eines Störfalls bestimmen, so sind es bei der Jodsorption die Beladung des Filters und/oder der Ausfall eines bzw. beider Erhitzer.

Für weitere Störfallbetrachtungen in der Aerosolabscheidung ist das Fehlen des Quellterms entscheidend, d.h. man kennt nicht die Gesamtmasse und die Verteilung des aus dem Auflöser freigesetzten Aerosolspektrums. Der Quellterm zur Jodfreisetzung beruht auf Messungen in der WAK (Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe).

Ein mathematisches Modell, das sowohl die Jodfreisetzung im Normalbetrieb als auch im Störfall enthalten soll, muß den zeitlichen Ablauf aller möglichen Betriebszustände des technischen Systems beschreiben. Um ein solches Modell konstruieren zu können, mußte die Theorie der Markoff-Erneuerungsprozesse mit linearen auf solche mit monotonen Kostenfunktionen (Kosten=Freisetzung) erweitert werden /10/.

Die sich ändernden Zustände des Systems sind:

- 1.) Die Beladung des Jodsorptionsfilters aufgrund der Standzeit und die sich daraus ergebende Restbett-Tiefe.
- 2.) Die Ausfälle der Erhitzer und damit der Temperaturverlauf des Abgases.

Die Restbett-Tiefe  $h$  des Sorptionsfilters läßt sich als lineare Funktion von dessen Beladung darstellen:

$$h(t) = h_{\max} \left(1 - \frac{b(t)}{\beta}\right) \quad , \quad 0 \leq t \leq \tau_f$$

wobei  $b(t)$  die Beladung zur Zeit  $t$ ,  $\beta = b(\tau_f) = 12,1 \text{ kg}$  die maximale Beladung,  $\tau_f$  die Standzeit des Filters und  $h_{\max} = 60 \text{ cm}$  die gesamte Filterbett-Tiefe bedeuten.

Aus der Restbett-Tiefe ergibt sich aufgrund von Abbildung 1 die prozentuale Joddurchlässigkeit.

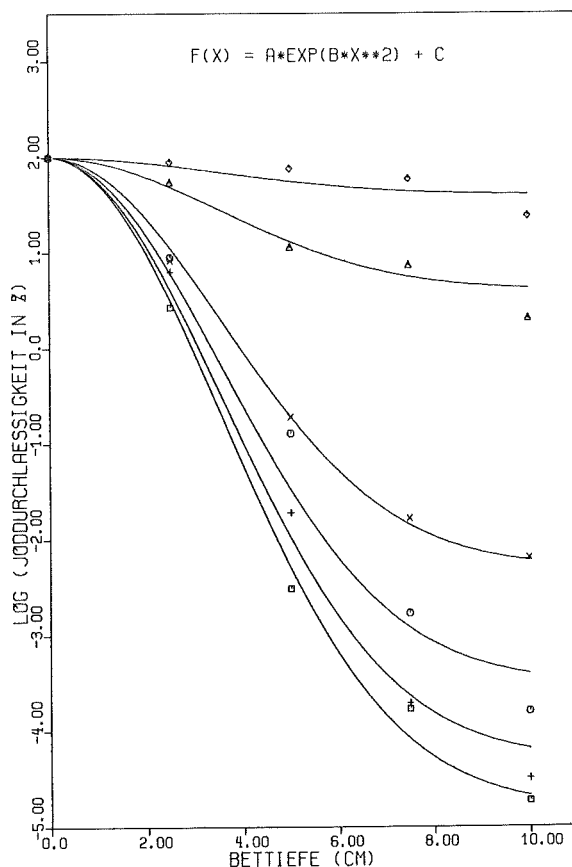


Abb. 1:

Durchlässigkeit des Jodfilters als Funktion der Restbett-Tiefe des Filters. Experimentelle Werte und Approximation mit relativer Feuchte als Parameter: ( $\square$ ) 25%, (+) 40%, (o) 55%, ( $\times$ ) 70%, ( $\Delta$ ) 85%, ( $\diamond$ ) 95%.



Die experimentell ermittelten zeitlichen Änderungen der Abgastemperatur bei Ausfall eines der Erhitzer bzw. beider Erhitzer sind in Abbildung 2 dargestellt. Die relative Feuchte des Abgases als Funktion der Temperatur läßt sich über die Beziehung von Clausius-Clapeyron für den Sättigungsdruck des



Wasserdampfes approximieren /6/. Der Wert der relativen Feuchte bestimmt die Joddurchlässigkeit des Sorptionfilters (s. Abb. 1).

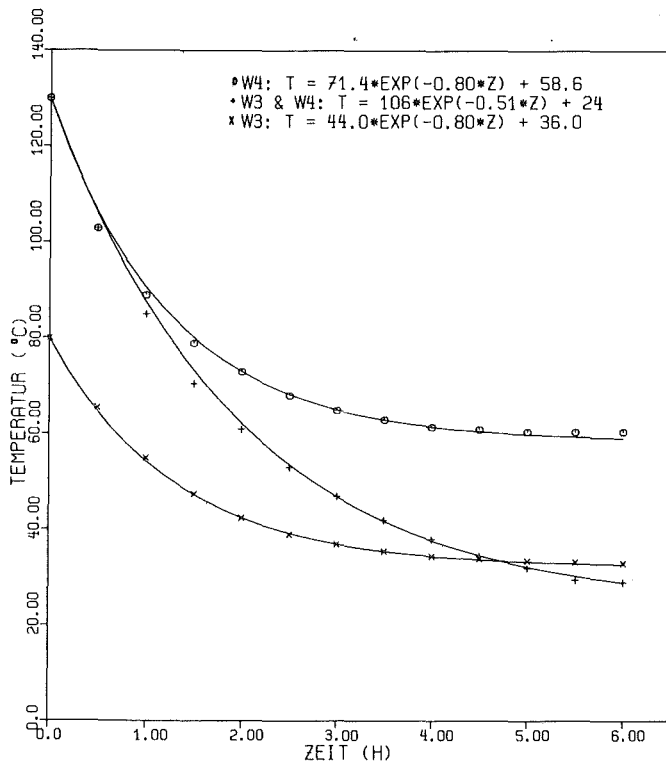


Abb. 2:  
Änderung der Abgastemperatur bei Abschaltung eines der Erhitzer bzw. beider Erhitzer.



Aufgrund der verfahrenstechnischen Gegebenheiten der Anlage PASSAT erhöht sich die freigesetzte Jodmenge nur dann merkbar, wenn beide Erhitzer innerhalb der achtstündigen Auflösungsperiode ausfallen. Für den Erhitzer-Störfall ist die folgende Kombination typisch: der Erhitzer EH2 vor dem Jodfilter fällt vor dem Erhitzer EH1 vor dem HEPA-Filter aus und beide innerhalb der Auflösungsperiode. Fällt EH1 vor EH2 aus, so ist EH2 solange er intakt bleibt in der Lage, das Abgas auf einer Temperatur von 130°C zu halten und die Temperatur sinkt erst dann, wenn EH2 ausfällt.

Der genaue Eintrittszeitpunkt eines Erhitzerausfalls ist nicht vorhersehbar; er ist eine zufällige Größe, der man eine Wahrscheinlichkeitsverteilung zuordnen kann. Wir haben für die Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Lebensdauern  $T_i$  der Erhitzer  $EHi$  ( $i=1,2$ ) zwei voneinander statistisch unabhängige Exponential-Verteilungen

$$P\{0 < T_i \leq t\} = 1 - e^{-\lambda_i t}, \quad i=1,2$$

mit  $\lambda_1 = 2,0 \cdot 10^{-6} \text{ Std}^{-1}$  und  $\lambda_2 = 2,2 \cdot 10^{-6} \text{ Std}^{-1}$  angenommen.

Diese bestimmen für den ersten Störfall die Wahrscheinlichkeitsverteilung für den Abstand Y, in dem die Erhitzer ausfallen und die Restbett-Tiefe H des Jodfilters bei Störfallbeginn. Wenn das Jodfilter zu Beginn des ersten Störfalls gewechselt wird, ist die Restbett-Tiefe H keine zufällige Größe.

Wir unterscheiden zwischen zwei Auflösungsverfahren für die Brennstäbe:

### 1.) Batchbetrieb

Es wird die gesamte Brennstoffcharge in 7.2 molare Salpetersäure geschnitten und dann aufgekocht. Durch das Aufkochen erreicht der Jodaustrag aus dem Auflöser innerhalb der ersten Stunde sein Maximum und fällt langsam ab (s. Abb. 3).

### 2.) Säurezudosierung

Man gibt die Brennstoffcharge in verdünnte Salpetersäure und kocht diese auf. Eine entsprechende Zudosierung an konzentrierter Salpetersäure ( $\leq 13$  molar) ergibt einen gleichmäßigen Austrag an Jod, Krypton und Xenon aus dem Auflöser.

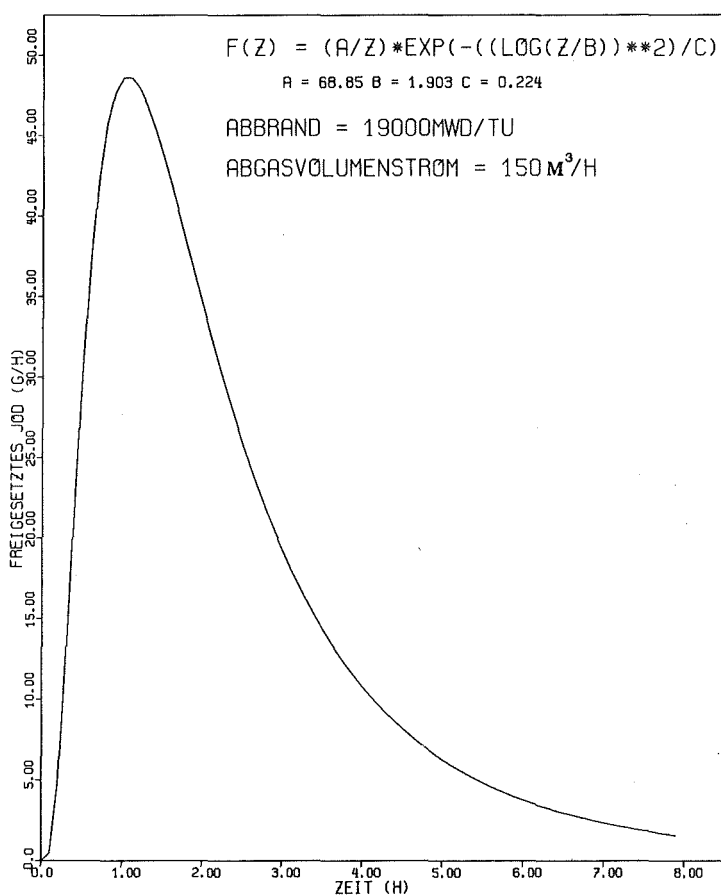


Abb. 3:  
Jodfreisetzung aus dem Auflöser im Batchbetrieb als Funktion der Zeit. Auflösung einer Tonne LWR-Brennstoff.

Die bisherigen Modellrechnungen haben gezeigt, daß nahezu unabhängig von allen anderen Parametern die Jodfreisetzung im Batchbetrieb um rund 30% höher ist als bei Säurezudosierung /7/.

Filterwechsel lassen sich auf verschiedene Weise durchführen:

### I. Turnusmäßiger Wechsel

Um zu ermitteln, wie die Schadstofffreisetzung von der Restbett-Tiefe  $h$  des Jodfilters abhängt, die zur Zeit des Filterwechsels vorliegt, betrachteten wir die folgenden Fälle:

Filterwechsel im Normalbetrieb bei einer Restbett-Tiefe  $h$  von

- a)  $h \leq 2.5$  cm, d.h. einer Durchlässigkeit  $\geq 3\%$
- b)  $h \leq 5.0$  cm, d.h. einer Durchlässigkeit  $\geq 10^{-2}\%$
- c)  $h \leq 7.5$  cm, d.h. einer Durchlässigkeit  $\geq 10^{-3}\%$
- d)  $h \leq 10.0$  cm, d.h. einer Durchlässigkeit  $\geq 10^{-4}\%$  .

Die Modellrechnungen zeigen, daß sich die mittlere freigesetzte Schadstoffmenge um einige Größenordnungen verringert, wenn sich die Bedingungen von a) nach d) ändern /7/.

### II. Turnusmäßiger Wechsel und Filterwechsel zu Störfallbeginn

Bei dieser Strategie ergibt sich eine Herabsetzung der mittleren freigesetzten Menge um drei Größenordnungen bei Säurezudosierung gegenüber Strategie I a). Bei Batchbetrieb ergeben die Rechnungen allenfalls eine Verringerung um eine Größenordnung.

Eine interessante Aussage folgt aus dem Vergleich der mittleren freigesetzten Mengen an Schadstoff beim ersten Erhitzerstörfall mit der aus der ersten Betriebsperiode (Betriebsperiode = bestimmungsgemäßer Betrieb zwischen zwei Störfällen).

Aufgrund der bisher zugrunde gelegten Erhitzerdaten liegt die mittlere Dauer der ersten Betriebsperiode bei ungefähr 27 Jahren und die mittlere Dauer des ersten Störfalls bei etwa 12 Stunden. Daraus ergibt sich, als wichtiges Ergebnis:

Die mittlere freigesetzte Schadstoffmenge in der ersten Betriebsperiode liegt in derselben Größenordnung wie die mittlere freigesetzte Schadstoffmenge

im ersten Störfall, wenn das Jodfilter vollständig beladen wird.

Es ist sicher von Bedeutung, ob dieselbe Menge an Jod über 27 Jahre oder über 12 Stunden an die Umgebung abgegeben wird. Wird jedoch das Filter in der Betriebsperiode dann gewechselt, wenn die Joddurchlässigkeit  $10^{-3}\%$  überschreitet, so ist die mittlere freigesetzte Schadstoffmenge im ersten Störfall weit größer als in der vorausgehenden Betriebsperiode.

Bisher haben wir mehr über die qualitativen als über die quantitativen Ergebnisse berichtet, die wir mit Hilfe unseres probabilistischen Modells für den ersten Störfall in PASSAT erhalten haben. Dies vor allem deswegen, weil nicht nur die analytische Darstellung der Eingangsdaten schwierig ist, sondern auch die genauen Betriebs-, Wartungs- und Reparaturstrategien noch in der Diskussion sind.

Da es im Rahmen dieser Diskussion wichtig ist, ob es sich bei der jeweils betrachteten mittleren Schadstoffmenge um einen (unbedingten) Erwartungswert oder bedingten Erwartungswert handelt, sei dies an einem speziellen Modell erläutert.

In diesem Modell wollen wir annehmen, daß die Anlage im Dauerbetrieb läuft, also die Auflösungsperioden für die Brennstäbe ohne Pause aufeinander folgen und der Abgasstrom (Zudosierung!) konstant ist. Ferner sollen das Jodfilter bei Störfallbeginn gewechselt werden und die Erhitzer, wenn sie innerhalb der Auflösungsperiode von 8 Stunden ausfallen, erst wieder hochgefahren werden, wenn beide Erhitzer repariert sind.

Weiter vereinfachen wir das Problem, indem wir voraussetzen, daß nur zwei Störfalltypen möglich sein sollen: Ausfall EH1 vor EH2 oder Ausfall EH2 vor EH1, wobei wir einen gleichzeitigen Ausfall von EH1 und EH2 durch einen Defekt im Netz gänzlich vernachlässigen /8/.

Wir diskutieren zunächst den "schlimmsten" Störfall, der in diesem System möglich ist: Ausfall EH2 vor EH1 unter der Bedingung, daß der Erhitzer EH1 im zeitlichen Abstand  $Y$  von maximal  $\rho = 8$  Stunden nach dem Erhitzer EH2 ausfällt. Für diese Situation kann man leicht zeigen, daß deren mittlere Dauer, wenn die Lebensdauern der Erhitzer exponentialverteilt sind

$$E(\rho+Y) | 0 < Y \leq \rho) = \rho + \frac{1}{\lambda_1} \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_1 \rho} (1 + \lambda_1 \rho)}{1 - e^{-\lambda_1 \rho}} \right]$$

$$\approx 1,5 \cdot \rho$$

beträgt. Die Abhängigkeit von  $\lambda_1$  ist hier vernachlässigbar, weil  $1/\lambda_1 \approx 10^6$  Std und  $\rho = 8$  Std sind.

Unser Modell gibt für diesen bedingten Störfall EH2 vor EH1 eine mittlere freigesetzte Schadstoffmenge  $E(C_1 | 0 < Y \leq \rho) \approx 70$  g ( $C_1$ : = zufällige Variable für die im ersten Störfall freigesetzte Schadstoffmenge). Da der Abgasstrom in  $1,5 \cdot \rho = 12$  Std insgesamt  $12 \cdot 16,1 \approx 195$  g radioaktives Jod transportiert (Quellstärke 16,1 g/Std), wird in diesem bedingten Störfall 36% der gesamten anfallenden Menge an radioaktivem Jod freigesetzt.

Betrachten wir anstelle des bedingten den unbedingten Störfall EH2 vor EH1, so müssen wir zulassen, daß der zeitliche Abstand  $Y$  für EH2 vor EH1 ausgefallen sämtliche positiven Werte annehmen kann. Für die mittlere freigesetzte Menge gilt dann

$$E(C_1 | \text{EH2 vor EH1}) := E(C_1 | 0 < Y < \infty)$$

$$= P\{0 < Y \leq \rho\} \cdot E(C_1 | 0 < Y \leq \rho) + P\{\rho < Y\} \cdot E(C_1 | \rho < Y)$$

mit  $P\{0 < Y \leq \rho\} = 1 - e^{-\lambda_1 \rho} = 1,6 \cdot 10^{-5}$  und

$$P\{\rho < Y\} = e^{-\lambda_1 \rho} = 1 - 1,6 \cdot 10^{-5}.$$

Da bei unseren Voraussetzungen  $E(C_1 | \rho < Y)$ , d.h. die außerhalb der Auflösungszeit von  $\rho = 8$  Std. freigesetzte mittlere Menge so klein ist, daß der zweite Term in der obigen Gleichung gegen den ersten Term vernachlässigt werden kann, hat der bezüglich  $Y$  unbedingte Erwartungswert für den ersten Störfall EH2 vor EH1 den Wert

$$E(C_1 | \text{EH2 vor EH1}) \approx (1 - e^{-\lambda_1 \rho}) \cdot E(C_1 | 0 < Y \leq \rho)$$

$$= 1,6 \cdot 10^{-5} \cdot 70 = 1,1 \text{ mg}$$

Dies muß nicht so sein. Hätten wir vorausgesetzt, daß das Jodfilter im bestimmungsgemäßen Betrieb wie im Störfall turnusgemäß bei einer Restbett-Tiefe von 0 cm gewechselt wird, würde in der obigen Gleichung der zweite Term den ersten überwiegen und es wäre

$$E(C_1 | \text{EH2 vor EH1}) \approx e^{-\lambda_1 \rho} \cdot E(C_1 | \rho < Y)$$

$$= 2,7 \cdot 10^3 \text{ mg} = 2,7 \text{ g} !!$$

Wichtig ist nun festzuhalten, daß 1,1 mg bzw.  $2,7 \cdot 10^{+3}$  mg und nicht 70 g die mittlere Schadstoffmenge wäre, die wir im Abluftkamin messen würden, wenn es nur den Störfall EH2 vor EH1 gäbe.

Unser Modell enthält aber zwei Typen von Störfällen, nämlich Ausfall EH2 vor EH1 und Ausfall EH1 vor EH2. In dieser Situation ist die gesamte mittlere freigesetzte Schadstoffmenge an Jod im ersten Störfall /8/

$$E(C_1) = P(\text{EH1 vor EH2}) \cdot E(C_1 | \text{EH1 vor EH2}) \\ + P(\text{EH2 vor EH1}) \cdot E(C_1 | \text{EH2 vor EH1})$$

$$\text{wobei } P(\text{EH1 vor EH2}) = \lambda_1 / (\lambda_1 + \lambda_2) \quad \text{und}$$

$$P(\text{EH1 vor EH2}) + P(\text{EH2 vor EH1}) = 1.$$

Würde im Störfall EH1 vor EH2 kein Schadstoff freigesetzt werden, so müßte dennoch wegen des zugrunde gelegten zufälligen Mechanismus der bedingte Erwartungswert  $E(C_1 | \text{EH2 vor EH1})$  um den Faktor  $\lambda_2 / (\lambda_1 + \lambda_2) = 0,53$  reduziert werden. D.h. bei  $E(C_1 | \text{EH2 vor EH1}) = 1,1$  mg würde in die Umgebung nur die mittlere Schadstoffmenge

$$E(C_1) = 0,53 \cdot 1,1 \approx 0,58 \text{ mg}$$

und nicht 1,1 mg freigesetzt werden.

Im Störfall EH1 vor EH2 ist  $E(C_1 | 0 < Y \leq \rho) \approx 40$  g, also  $E(C_1 | \text{EH1 vor EH2}) \approx (1 - e^{-\lambda_2 \rho}) \cdot E(C_1 | 0 < Y \leq \rho) = 0,70$  mg. Daher erhalten wir in unserem speziellen Modell für die gesamte in die Umgebung freigesetzte Menge an radioaktivem Jod

$$E(C_1) = 0,47 \cdot 0,70 + 0,53 \cdot 1,1 = 0,91 \text{ mg} .$$

### Adsorptionsanlage mit Molekularsieb

Die Tieftemperatur-Rektifikation von Krypton und Xenon bedingt die vorherige Abtrennung größerer Mengen von  $H_2O$  und  $CO_2$ . Diese Verbindungen sowie Ammoniak  $NH_3$  als Nebenprodukt der Reduktion von  $NO_x$  führen aufgrund ihrer Erstarrungstemperaturen zu Störungen in der Rektifikationskolonne. Während  $NH_3$  durch entsprechende Prozeßführung vermieden werden soll, entfernt man  $H_2O$  und  $CO_2$  durch Adsorption an Silicagel und Molekularsieb.

Abbildung 4 zeigt die  $H_2O$ -Konzentration im Abgas hinter dem Silicagel-Bett abhängig von der Zeit (Tage). Dargestellt sind sowohl experimentelle Daten als auch deren Approximation. Die Durchbruchzeit für  $H_2O$  am Molsieb ist als unterer Grenzwert ( $>10800$  min) bekannt.

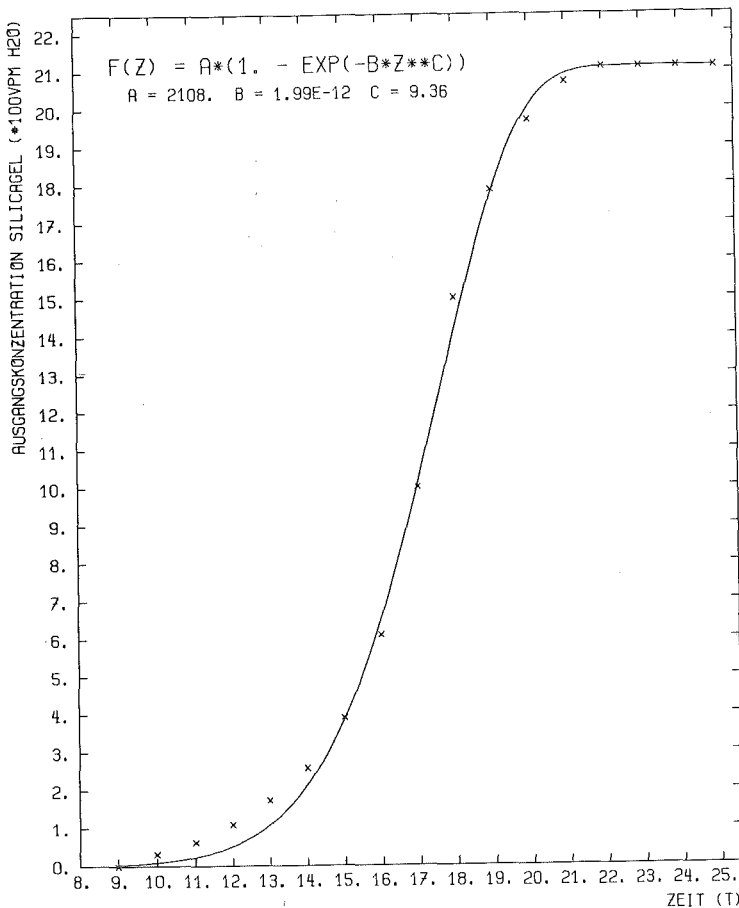


Abb. 4:  
 $H_2O$ -Konzentration hinter dem Silicagel-Bett (ca. 100 kg) als Funktion der Zeit (Tage).

Abbildung 5 zeigt die Verhältnisse für  $CO_2$  am Molsieb. Für  $CO_2$  ist die Durchbruchzeit am Silicagelbett als oberer Grenzwert ( $<480$  min) angegeben.

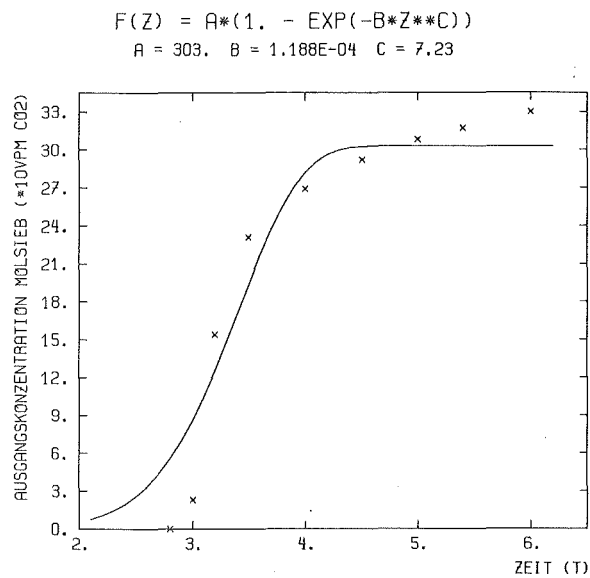


Abb. 5:  
CO<sub>2</sub>-Konzentration hinter dem Molekularsieb (ca. 100 kg) als Funktion der Zeit (Tage).

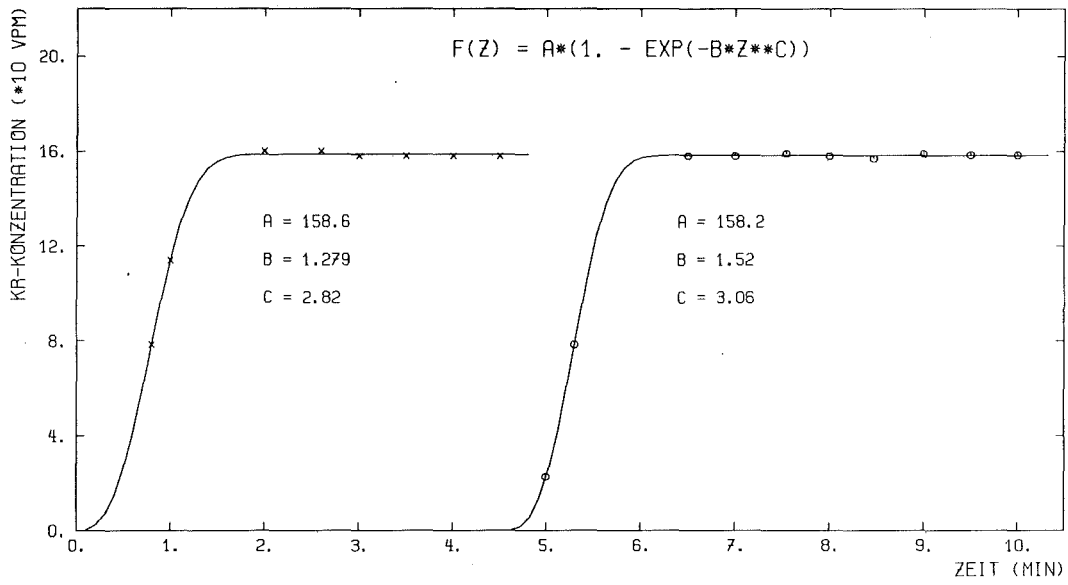


Die Abtrennung von H<sub>2</sub>O und CO<sub>2</sub> in den Adsorberbetten von ADAMO bewirkt die Koadsorption von Krypton und Xenon. Sollte die Adsorptionskapazität der beiden Betten für H<sub>2</sub>O und CO<sub>2</sub> möglichst groß sein, so ist sie für Kr und Xe so klein wie möglich zu halten. Die Adsorption von Kr und Xe kann mathematisch mit dem gleichen Funktionsansatz beschrieben werden wie für H<sub>2</sub>O und CO<sub>2</sub> (s. Abb. 4 und 5):

$$F(Z) = A \cdot (1. - \text{EXP}(- B \cdot Z^C)).$$

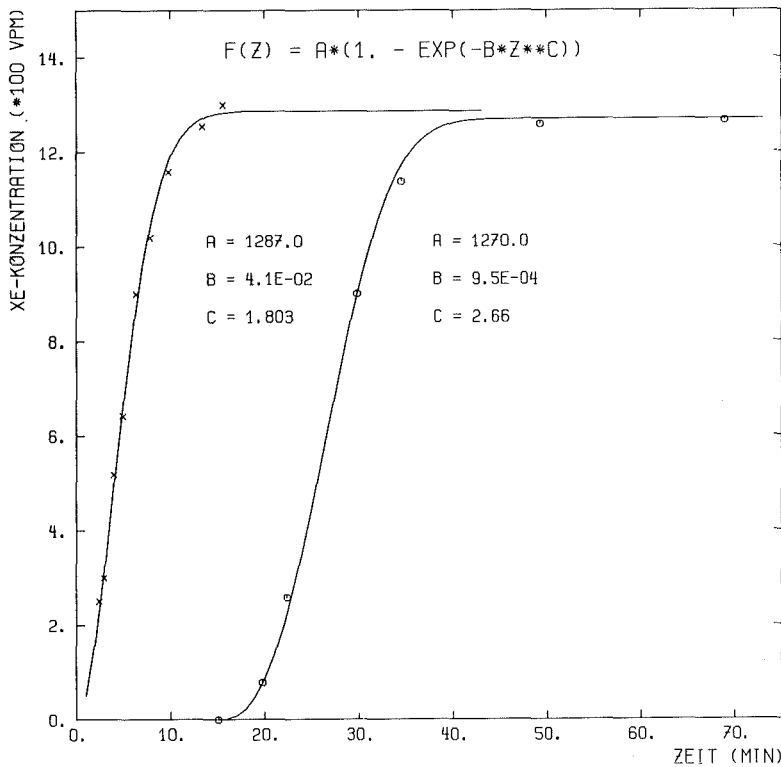
Zur Beschreibung der physikalischen Abhängigkeiten der Koeffizienten A, B und C standen uns die Ergebnisse von 5 Experimenten zur Kr- und 2 zur Xe-Adsorption zur Verfügung. Die experimentellen Ergebnisse wurden dadurch approximiert, daß das Minimum der quadratischen Abweichungen zwischen experimentellen und berechneten Werten gesucht wurde. Abbildung 6 und 7 zeigen Beispiele solcher Approximationen. Abbildung 6 hat den zeitlichen Verlauf der Ausgangskonzentrationen von Kr am Silicagel- und Molsiebbett zum Inhalt. Abbildung 7 zeigt das entsprechende für Xe. Die folgende Tabelle 1 beinhaltet die Ergebnisse aller 7 Experimente und deren Approximation.





KIK  
STDT

Abb. 6: Kr-Konzentrationen hinter dem (x) Silicagel bzw. (o) Molsieb als Funktion der Zeit und deren Approximation.



KIK  
STDT

Abb. 7: Xe-Konzentrationen hinter dem (x) Silicagel bzw. (o) Molsieb als Funktion der Zeit und deren Approximation.

Tabelle 1: Experimentelle und rechnerische Werte zur Adsorption von Kr und Xe an Silicagel und Molekularsieb.

Adsorbens	Adsorptiv $C_E$ (vpm)	$t_M$ (min)	Koeffizienten			
			A	B	C	S
SILICAGEL	190 Kr	2.58	177.	$6.24 \cdot 10^{-5}$	9.84	52.8
	178 Kr	0.63	158.6	1.279	2.82	5.6
	171 Kr	0.91	160.5	0.479	4.93	550.2
	160 Kr	2.73	153.	0.03	2.87	172.6
	156 Kr	0.83	145.5	1.032	1.82	515.
	1200 Xe	5.93	1150.	0.0154	2.19	7927.
	1350 Xe	4.9	1287.	0.041	1.803	4301.
MOLEKULARSIEB	178 Kr	3.62	170.	0.025	4.43	51.9
	157 Kr	4.53	158.2	1.52	3.06	3.2
	161 Kr	3.25	149.3	0.782	3.01	6.3
	156 Kr	3.97	153.	0.044	2.72	227.3
	145 Kr	3.60	134.7	1.118	1.85	35.6
	1150 Xe	20.1	1101.	$6.27 \cdot 10^{-3}$	2.04	17982.
	1300 Xe	22.1	1270.	$9.5 \cdot 10^{-4}$	2.66	2411.

$t_M$ : Durchbruchzeit bei  $C_A = C_E/2$

Die Koeffizienten A, B und C in der mathematischen Beschreibung der Krypton-Durchbruchskurven an Silicagel zeigen aufgrund der Tabelle 1 folgende Abhängigkeiten:

$$A = 0.8 \cdot C_E + 21.5$$

$$B = 0.45 \cdot t_M^{-2.5}$$

$$C = 0.233 \cdot C_E - 34.6 .$$

Für das Molekularsieb folgt:

$$A = 0.98 \cdot C_E - 3.06$$

$$B = 0.564 \cdot (t'_M - t_M) - 0.562$$

$$C = 0.077 \cdot C_E - 9.22 .$$

Die Koeffizienten lassen sich für beide Adsorberbetten in einfacher Form darstellen. Sind A und C in beiden Fällen lineare Beziehungen zur Eingangskonzentration, so ist B abhängig von der Durchburchszeit bei  $C_A = C_E/2$ . Die Zeit, die den Adsorptionsvorgang beschreibt, wird durch Diffusionseffekte bestimmt. Die Beschreibung der Abhängigkeiten des Koeffizienten B erfordert also die Lösung der Fick'schen Gleichung.

Bei den durchgeführten Experimenten wurde auch die von den Adsorberbetten aufgenommene Masse an Krypton und Xenon gemessen. Die adsorbierte Menge kann auch mit Hilfe der angepaßten Funktionen berechnet werden. Zur Berechnung müssen die Funktionen integriert werden. Die Integration ergibt das zweite Eulersche Integral, dessen Werte in Tabellenform vorliegen. Tabelle 2 zeigt die Ergebnisse:

Tabelle 2: Gemessene und berechnete Mengen an adsorbiertem Krypton und Xenon.

Adsorbens	Adsorptiv $C_E$ (vpm)	Adsorbierte Menge (Nm1)	
		gemessen	berechnet
SILICAGEL	190 Kr	408.0	375.0
	178 Kr	95.3	108.0
	171 Kr	128.0	142.0
	160 Kr	366.0	385.0
	156 Kr	110.0	106.0
	1200 Xe	5950.0	5705.0
	1350 Xe	5525.0	5604.0
MOLEKULARSIEB	178 Kr	540.0	453.0
	157 Kr	588.0	589.0
	161 Kr	432.0	413.0
	156 Kr	516.0	482.0
	145 Kr	432.0	424.0
	1150 Xe	19200.0	18428.0
	1300 Xe	23640.0	23131.0

## Tiefemperatur-Rektifikationsanlage

Das Rektifikationsverfahren zur Abtrennung von Kr-85 aus dem Auflöserabgas einer Wiederaufarbeitungsanlage beruht auf langjährigen Erfahrungen in der Luftzerlegung zur Edelgasgewinnung. Der Prozeß muß allerdings modifiziert werden, weil das Molverhältnis der Edelgase Krypton und Xenon in Luft 13.1 und im Auflöserabgas 0.104 ist. Außerdem ist bei der Spaltdedelgasabtrennung Stickstoff Trägergas im Gegensatz zum Sauerstoff bei der Luftzerlegung. Nach dem gegenwärtigen Fließschema wird Sauerstoff aus dem Auflöserabgas vor der Rektifikation entfernt, um die radiolytische Bildung von Ozon in Gegenwart von Kr-85 zu verhindern. Im Dreistoffsystem  $N_2$ -Kr-Xe existieren bei einem Druck von 1 bar große Bereiche, in denen Fest-flüssig-Gemische (Mischungslücken) auftreten können. Diese Bereiche werden kleiner mit zunehmendem Druck, deshalb wird die Rektifikationskolonne bei einem Kolonnendruck von 5 bar betrieben /3/.

Die Rektifikationskolonne ist vom Siebbodentyp mit einem Lochdurchmesser von 2.0 mm und einem maximalen Durchsatz von  $60 \text{ Nm}^3/\text{h}$ . In ihr sollen sich die im Feed vorhandenen Spaltdedelgase Kr und Xe möglichst rein im Sumpf der Kolonne anreichern und alle anderen Verbindungen mit dem Stickstoff über den Kolonnenkopf abgehen. Die Trennung der Feedkomponenten in die gewünschten Kopf- und Sumpfprodukte wird über zwei Verfahrensmerkmale erreicht:

1. Aufbau eines der Feedzusammensetzung und der geforderten Produktreinheiten entsprechenden Temperaturprofils in der Kolonne,
2. eine möglichst gute Nachbildung der Gleichgewichtsstufen einer Trennkaskade.

Zur Erreichung dieser Ziele besitzt die Kolonne Sumpfheizung und Rücklaufkühler, die für die Erzeugung der Dampf- und Flüssigphase sorgen und in der Kolonne im Gegenstrom geführt werden. Die Kolonneneinbauten gewährleisten die Zwangsvermischung der Phasen, die für die Stofftrennung notwendig ist. Die Güte der Stofftrennung wird im Verstärkungsteil (zwischen Feed und Kolonnenkopf) durch das Rücklaufverhältnis und im Abtriebsteil (zwischen Sumpfheizung und Feed) durch das Aufdampfverhältnis bestimmt. Das Rücklaufverhältnis ist der Quotient aus gesamter Kondensatmenge zu Restdampfmenge. Das Aufdampfverhältnis ist der Quotient aus Aufdampfmenge zu Sumpfabzug.

Am Feedeingang soll nach der allgemeinen Kolonnentheorie die Temperatur des Feedbodens mit der Siedetemperatur des zulaufenden Feeds übereinstimmen. Die Siedetemperatur des Feeds liegt bei etwa 94°K. Diese Temperatur liegt am unteren Ende der Desublimationskurve für Xenon in Abbildung 8 und läßt im praktischen Betrieb eine Verarbeitung von etwa 800 vpm Xenon zu. Abbildung 8 stellt den Phasenübergang vom gasförmigen in den festen Zustand als Funktion des Partialdruckes und der Temperatur bei 5 bar dar /9/.

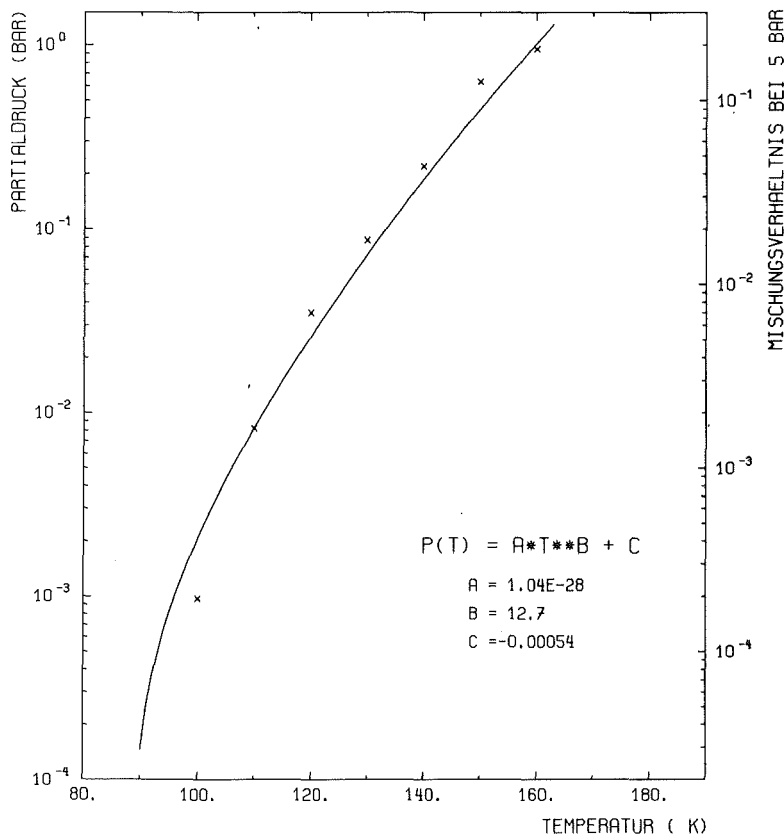


Abb. 8:  
Desublimationskurve von Xenon bei 5 bar Absolutdruck.



Die Mengen an Xe, die bei der Aufarbeitung abgebrannter Kernbrennstoffe vorkommen sind größer, so daß die Temperatur am Feedeingang höher sein muß. Sie wurde auf 120°K gelegt, wodurch 3100 vpm sicher verarbeitet werden können. Im praktischen Betrieb werden 4000 vpm routinemäßig verarbeitet.

Die kurze Darstellung der Funktionsweise der Rektifikationskolonne weist darauf hin, wo Störfälle zu suchen sind. Mögliche Störfälle sind:

- a) Ausfall der Kondensatorkühlung
- b) Ausfall des Feedstromes
- c) Ausfall der Sumpfheizung
- d) Feedstrom zu groß oder zu klein
- e) Anreicherung von Sauerstoff und Methan.

Zu e). Sauerstoff mit einer Siedetemperatur von 108°K (bei 5bar) hat seine maximale Anreicherung auf Böden oberhalb des Feedeintritts, Methan dagegen mit 135°K verhält sich ähnlich dem Krypton mit maximalen Anreicherungen unterhalb des Feedeintritts.  $\text{CH}_4$  stellt durch seine Zerlegbarkeit im Strahlungsfeld von Kr-85 und weitere Reaktionen mit anderen Verunreinigungen im Normalbetrieb eine Gefahrenquelle dar, besonders bei gleichzeitiger radiolytischer Bildung von Ozon aus  $\text{O}_2$ .

Zu d). Die Druckdifferenz über einen Kolonnenboden ist unter anderem abhängig vom Quadrat der Gasgeschwindigkeit in den Bohrungen und der Höhe der unbegasten Flüssigkeit auf den Böden. Ein Anstieg des Feedstromes erhöht die Gasgeschwindigkeit in der Kolonne. Gilt für die Geschwindigkeit  $w$ :

$$w \geq w_G = \frac{F_{\text{Zul}}}{\sqrt{\rho_G}}$$

mit  $F_{\text{Zul}} = 0.7 \cdot F_{\text{Max}}$

und  $\rho_G = \text{Gasdichte}$

so staut die Kolonne, d.h. der Differenzdruck über die Böden ist so groß, daß die Flüssigkeit nicht mehr über die Ablaufrohre nach unten gelangen kann.

$F_{\text{Max}}$  ist ein vom Kolonnentyp abhängiger maximaler Belastungsfaktor. Ähnliches gilt für eine Abnahme des Feedstromes:

$$w_{\text{Min}} = \frac{F_{\text{Min}}}{\sqrt{\rho_G}} = \frac{10}{\sqrt{\rho_G}}$$

d.h. der Belastungsfaktor sollte nicht unter 10 sinken, da sonst die Gefahr besteht, daß die Böden total abregnen.

Zu c). Durch die fehlende Gaslast im Abtriebsteil regnet die Kolonne im unteren Teil ab und der flüssige Stickstoff drückt schwerer siedende Komponenten in den Sumpf. Die Sumpftemperatur sinkt ab und aufgrund von Verdampfungsvorgängen im Sumpf schwankt der Differenzdruck im Abtriebsteil sehr.

Zu b). Die fehlende Gaslast im Verstärkungsteil der Kolonne senkt den Differenzdruck über den Böden und sie regnen ab, bis sich ein neues Gleichgewicht eingestellt hat. Die Kolonnenböden bleiben aber mit Flüssigkeit bedeckt. Wird die Rückkühlerleistung nicht reduziert, sinkt der Absolutdruck der Kolonne.

Bei Zuschaltung des Feedstromes drückt der flüssige Stickstoffrücklauf Kr und Xe in den Sumpf, wodurch dessen Temperatur absinkt. Über die Sumpfheizung erreicht man den Normalzustand.

Zu a). Ausfall der Kondensatorkühlung ist an sich der schlimmste Störfall. Der zeitliche Störfallablauf erlaubt jederzeit verschiedene Gegenmaßnahmen.

- Herausnahme der Kolonne aus dem Kreislauf durch Schließen der Absperrventile in der Feedzuspeisung und Kopfproduktleitung.
- Eine Abschaltung der Sumpfheizung allein hat die Erwärmung der Böden des Verstärkungsteils zur Folge, da der Rücklauf fehlt. Die Bodeneinhalte verdampfen allmählich und entweichen über Kopf.
- Eine Abtrennung des Feeds allein bewirkt das Abregnen des flüssigen Stickstoffs. Es kommt zu Durchmischungen von flüssigem Stickstoff und Edelgasen und es werden leicht Bereiche des Phasendiagramms erreicht, in denen Ausfrierungen aus der Flüssigkeit auftreten. Die weitere Wärmezuführung über den Sumpf läßt schwerersiedende Komponenten wie Xenon in Bereiche niedriger Bodentemperaturen gelangen, wo sie desublimieren.

Von relevantem Interesse in Bezug auf Aktivitätsfreisetzung sind prinzipiell nur solche Störfälle, bei denen Staus der Kolonne bzw. Ausfrierungen in der Kolonne auftreten, abgesehen natürlich vom Ausfall der Kondensatorkühlung. Sind die Freisetzungsfolgen bei Staus ersichtlich, so treten die Probleme bei Ausfrierungen beim Wiederauffahren der Kolonne auf. Ausfrierungen bedeuten auch, daß Meßinstrumente zur Kolonnenregelung außer Funktion sind.

Literaturverzeichnis

- /1/ Nagel, K., Furrer, J., Becker, G., Obrowski, W., Seghal, Y.P.,  
Weymann, J.:  
Time-Dependent Analyses of Dissolver Off-gas Cleaning Installations  
in a Reprocessing Plant CONF-820833, p.51 (1982)
- /2/ Furrer, J., Kaempfer, R., Linek, A., Merz, A.:  
Results of Cleaning Dissolver Off-gas in the PASSAT Prototype Dissol-  
ver Off-gas Filter System CONF-801038, p. 566 (1980)
- /3/ v. Ammon, R., Burkhardt, H.-G., Hutter, E., Neffe, G.:  
Trennung von Edelgasgemischen durch Tieftemperatur - Rektifikation:  
Entwicklungen für die kerntechnische Abgasreinigung  
Ber. Bunsenges. Phys. Chem. 83, 1143 (1979)
- /4/ Nagel, K., Furrer, J.:  
Modellierung der Aerosolrückhaltung in der Anlage PASSAT  
KfK-3618 (1983)
- /5/ Nagel, K., Furrer, J.:  
Zeitabhängige Modellierung einer Jodsorptionsfilterstrecke  
KfK-3544 (1983)
- /6/ Schmidt, E.:  
VDI-Wasserdampfatafeln. Springer Verlag, Berlin (1968)
- /7/ Wenzelburger, H., Nagel, K.:  
Ein neues zeitabhängiges stochastisches Modell zur Risikoanalyse der  
Abgasstrecke PASSAT, KfK-3350, 4500 (1-29), (1983)
- /8/ Wenzelburger, H.:  
Zur stochastischen Modellierung der Jodfreisetzung in der Abgasstrecke  
PASSAT, 12. Jahrestagung Deutsche Gesellschaft für Operations  
Research, Mannheim (1983).



/9/ v. Ammon, R., Bumiller, W., Hutter, E., Neffe, G.:

Steady State Operation of the First Cryogenic Column in a Krypton Separation System, CONF-801038, p. 202 (1980)

/10/ Zinterhof, P.:

Analytische Markoff-Erneuerungsmodelle zum Problem der Schadstoff-freisetzung in Wiederaufarbeitungsanlagen,

12. Jahrestagung Deutsche Gesellschaft für Operations Research, Mannheim (1983).