KfK 3856 Februar 1985

Untersuchung der in der Kernschmelzanlage SASCHA erzeugten Aerosole

H. Albrecht, H. Wild Institut für Radiochemie Projekt Nukleare Sicherheit

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Radiochemie Projekt Nukleare Sicherheit

KfK 3856

Untersuchung der in der Kernschmelzanlage SASCHA erzeugten Aerosole

> H. Albrecht H. Wild

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Die Untersuchungen an Kernschmelzaerosolen wurden unter weitgehend realistischen Bedingungen an der Schmelzanlage für Schwache Aktivitäten (SASCHA) durchgeführt. Als Verfahren zur Aerosolprobenahme und als Analysenmethoden kamen zum Einsatz: Filtrationstechnik, Kaskadenimpaktoren, Aerosolzentrifuge, Alpha- und Gammaspektrometrie, Röntgenmikroanalyse und Augerelektronenspektroskopie. Die Partikelgrößenverteilung in einer Wasserdampfatmosphäre erwies sich als logarithmisch normal mit einem Medianwert $\overline{d_g} = 0,09 \ \mu m$ für den Partikeldurchmesser und einer Standardabweichung $\sigma_q = 2,13$.

Es wurden Massenkonzentrationen bis zu 30 g/m³ erzeugt, die Partikelzahlkonzentrationen lagen im Bereich von 10⁸ Partikeln/cm³. Die mikrochemische Analyse des Aerosols zeigte, daß auf den Einzelpartikeln stets mehrere Elemente des eingesetzten Schmelzguts vorhanden waren, und daß diese vorwiegend als Oxide, teilweise aber auch als Hydroxide oder in elementarer Form auftraten. Investigation on Nuclear Aerosols Generated in the Core Melting Facility SASCHA

Abstract

Investigations on core melt aerosols were performed under largely realistic conditions at the melting facility SASCHA. The following sampling techniques and analytical methods were applied: filtration, cascade impactor, aerosol centrifuge, alpha- and gamma-ray spectrometry, X-ray microanalysis, and Auger electron spectroscopy. The size distribution of the aerosol particles in a steam atmosphere was found to be log-normal with a median-value of the particle diameter of $d_q = 0.09 \ \mu m$ and a geometric standard deviation of $\sigma_q = 2.13$.

Aerosol mass concentrations up to 30 g/m³ were generated along with particle number concentrations in the range of 10^8 particles/cm³. By microchemical analysis of the mixed aerosol it was found that each single particle contained most of the elements being present in the melt material and that the chemical forms of the particle constituents were mostly oxides but in some cases also hydroxides or the elemental forms.

Inhalt

Zusammenfassung

Verzeichnis der Abbildungen Verzeichnis der Tabellen

Abstract

1.	Einleitung	1
2.	Aufbau und Durchführung der Experimente	1
3.	Aerosolkenngrößen und Meßauswertung	7
	3.1 Auswertung der Messungen mit dem Kaskadenimpaktor	8
	3.2 Auswertung der Messungen mit der Aerosolzentrifuge	14
4.	Ergebnisse der Versuche in einer Wasserdampfatmosphäre	14
	4.1 Eichungen des Kaskadenimpaktors	14
	4.2 Partikelgrößenverteilung	15
	4.3 Partikelzahlkonzentration	18
	4.4 Massenkonzentration	19
	4.5 Chemische Zusammensetzung	21
5.	Ergebnisse der Versuche in Luft	26
	5.1 Eichung von Kaskadenimpaktor und Aerosolzentrifuge	26
	5.2 Partikelgrößenverteilung und chemische Zusammensetzung	27
	des Aerosols	
6.	Zusammenfassung und Diskussion	33
7.	Literatur	35

Seite

Verzeichnis der Abbildungen

- Abb. 1 Prinzipskizze der Schmelzanlage SASCHA
- Abb. 2 Tiegelsystem mit Schmelzgut und Absaugsystem
- Abb. 3 Prinzip der Filterwechselmaschine
- Abb. 4 Eichung der Stufe 1 des Kaskadenimpaktors (Wasserdampf)
- Abb. 5 Aerosolpartikeln auf den Stufen 1 bis 4 des Kaskadenimpaktors (Wasserdampf)
- Abb. 6 Aerosolpartikeln auf den Stufen 5 bis 8 des Kaskadenimpaktors (Wasserdampf)
- Abb. 7 Aerosolpartikeln auf dem Abscheideband der Aerosolzentrifuge (Luft)
- Abb. 8 Größenverteilung und Summenkurve (Wasserdampf)
- Abb. 9 Röntgenmikrosondenaufnahme einer Partikel (Wasserdampf)
- Abb. 10 Verschiebung der Massenverteilung für die Beispiele J und Ce innerhalb der Gesamtmassenverteilung
- Abb. 11 Verschiebung der Massenverteilung für die Beispiele Cs und Fe innerhalb der Gesamtmassenverteilung
- Abb. 12 Ablagerungen auf Filter und Transportweg in Wasserdampf
- Abb. 13 Messungen mit der Aerosolzentrifuge
- Abb. 14 a -Zählrate (Oberflächenverteilung) des Niederschlags der Aerosolzentrifuge (Luft)
- Abb. 15 Partikelzahlverteilung des Niederschlags der Aerosolzentrifuge (Luft)
- Abb. 16 Röntgenemissionsspektrum einer Partikel (Luft)

Verzeichnis der Tabellen

Tabelle	1	Zusammensetzung des Schmelzguts				
Tabelle	2	Versuchsparameter				
Tabelle	3	Übersicht über die angewandten Aerosolmeßmethoden				
Tabelle	4	Versuchsbedingungen und Ergebnisse der Eichungen in				
		Wasserdampf				
Tabelle	5	Ergebnisse zur Partikelgrößenverteilung in Wasserdampf,				
		gemessen mit einem Kaskadenimpaktor				
Tabelle	6	Partikelzahlkonzentration bei Schmelzguttemperatur von				
	,	2400 °C				
Tabelle	7	Partikelzahlkonzentrationen bei Schmelzguttemperaturen von				
		ca. 2000 °C				
Tabelle	8	Massenkonzentrationen als Funktion der Temperatur und der				
		Schmelzgutzusammensetzung				
Tabelle	9	Angaben zur Eichung des Kaskadenimpaktors in Luft				
Tabelle 1	10	Partikelgrößenverteilung in Luft				

Eines der Ziele des Versuchsprogramms zur Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim LWR-Kernschmelzen ist die Charakterisierung des Aerosols, von dessen Eigenschaften das Transport- und Ablagerungsverhalten der freigesetzten radioaktiven Stoffe im Primärsystem und im Containment eines Reaktors abhängt.

Der überwiegende Anteil der aus einer Kernschmelze freigesetzten Stoffe besteht aus Silber, Eisenoxid und Uranoxid. Diese Stoffe sind nicht oder nur sehr schwach radioaktiv; aber sie kontrollieren im wesentlichen die ablaufenden Aerosolprozesse und damit auch das Verhalten der radioaktiven Bestandteile, die weniger als 10 % zur gesamten freigesetzten Masse beitragen. Nicht zu berücksichtigen sind dabei die Spaltedelgase, weil sie keinen Einfluß auf das Aerosolverhalten ausüben.

Im folgenden werden die Versuchsanordnung, die verwendete Meßtechnik und die Ergebnisse für die wichtigsten Aerosolkenngrößen beschrieben. Auf die Bestimmung der Freisetzungsraten einzelner Elemente, die sich durch den Vergleich der im Schmelzgut eingesetzten Nuklidaktivitäten mit den freigesetzten Aktivitäten ergeben, wird hier nicht näher eingegangen, da hierüber bereits zahlreiche Publikationen vorliegen (1,2).

2. Aufbau und Durchführung der Experimente

Die Aerosoluntersuchungen wurden wie die Freisetzungsexperimente an der Anlage SASCHA (Schmelzanlage für schwache Aktivitäten) durchgeführt. Diese Anlage (vgl. Abb. 1) besteht im wesentlichen aus zwei Baugruppen:

- einem Ofenkessel mit Hochfrequenzgenerator (40 50 kHz) und Induktionsspule zur Aufheizung der in einem Tiegelsystem befindlichen Schmelzproben,
- einer Aerosoltransportstrecke mit Filterwechselmaschine, Aerosolmeßgeräten und einigen Vorrichtungen zur Überwachung des Wasserdampfstromes bzw. anderer Transportgase.







Abb. 3 Prinzip der Filterwechselmaschine

Nachfolgend werden einige dieser Komponenten sowie die Schmelzgutzusammensetzung näher beschrieben.

Der <u>Ofenkessel</u> ist mit einer Wand- und Bodenbeheizung versehen, die es erlaubt, Versuche mit einer schwach überhitzten Wasserdampfatmosphäre mit Drücken bis 2,1 bar durchzuführen. Alternativ können auch Atmosphären aus Luft oder Schutzgas (Ar, He, N₂) verwendet werden. Im Deckel des Ofens befindet sich ein Fenster für den Strahlengang eines Quotienten-Pyrometers zur Messung der Schmelzguttemperatur.

Das <u>Tiegelsystem</u> (Abb. 2) besteht aus einem äußeren Schutztiegel aus Al₂O₃ oder MgO und dem eigentlichen Schmelztiegel aus ZrO₂ oder ThO₂. Der zylindrische Spalt zwischen beiden Tiegeln enthält einen Suszeptor aus Wolfram, der zum Schutz gegen die Ofenatmosphäre in Zirkondioxidgries bzw. Thoriumdioxidgries eingebettet ist. Durch die Isolationswirkung dieses Materials wird gleichzeitig der Wärmestrom in Richtung Außentiegel reduziert.

Das <u>Schmelzgut</u> enthält neben jeweils drei kurzen Brennstäben mit Zircaloy-Hülle einen repräsentativen Anteil an RDB-Strukturmaterialien. Es wird daher auch als Corium bezeichnet, vgl. Tabelle 1. Der Brennstoff selbst ist ein synthetisches Abbrandgemisch (Fissium), das alle wichtigen Spaltprodukte in Konzentrationen gemäß einem vorgegebenen Abbrand von 44 GWd/t Uran enthält (3).

Spaltprodukte	J, Cs, Te, Se, Cd, Sb, Ag, Sn, Zr, Mo, Ru, Ba, Ce, Nd
Inconel	≤ 3 %
Absorbermaterial ^{*)}	≤ 3 %
Zircaloy	15 - 20 %
Stahl	40 - 50 %
Brennstoff	35 - 40 %

<u>Tabelle 1:</u> Zusammensetzung des Schmelzguts (in Anteilen an der Gesamtmasse von jeweils 150 - 250 g)

*) 80 % Ag, 15 % In, 5 % Cd

Die <u>Aerosoltransportstrecke</u> beginnt mit einem 4 1 - Glaskolben (vgl. Abb. 2), in den die aus der Schmelze verdampfenden und dann sehr schnell kondensierenden Produkte eintreten. Die so entstehenden Aerosolpartikeln werden mit dem Gasstrom über ein 50 cm langes Glasrohr und einen Kugelhahn wahlweise zu den Aerosolmeßgeräten oder zur Filterwechselmaschine (Abb. 3) transportiert. Die letztere enthält in einem Vorratsmagazin bis zu 50 Glasfaserfilter von 100 mm Durchmesser, die zusammen mit einer Edelstahlfritte als Stütze in quadratische Edelstahlrahmen eingespannt sind. Die kompletten Filterrahmen werden pneumatisch in die Beaufschlagungsposition befördert und dienen dort für vorwählbare Zeitintervalle (12 ... 1000 sec) zur Sammlung der Aerosolpartikeln. Weiter stromabwärts enthält die Transportstrecke noch folgende Komponenten: ein Manometer zur Drucküberwachung, ein Glasfaser-Kontrollfilter, einen Durchflußmesser zur Justierung des Gasvolumenstroms und ein Jodfilter. Dieses besteht aus einem zylindrischen Stahlgehäuse mit einer Füllung aus silbernitratimprägniertem Silikagel (AC 6120, (4)).

Die Aerosolprobenahme geschieht auf 3-fache Weise:

- mit den Glasfaserfiltern der Filterwechselmaschine; auf diese Weise lassen sich Massenfreisetzungsraten und Massenkonzentrationen bestimmen;
- mit einer Aerosolzentrifuge nach Stöber (5); in diesem Gerät werden die Aerosolpartikeln auf einem 1,8 m langen und 3 cm breiten Metallband abgeschieden; sein besonderer Vorteil liegt in einem hohen Auflösungsvermögen für die Masse und die Größe einzelner Partikeln;
- mit einem 8-stufigen Kaskadenimpaktor nach Berner (6,7); die einzelnen Impaktorstufen bestehen aus je einer Düsenplatte und einer Prallplatte; die Partikelabscheidung erfolgt je nach der Abstufung der Düsendurchmesser in verschiedenen Größenklassen auf den Prallplatten. Das dabei erzielbare Auflösungsvermögen ist zwar bei weitem nicht so hoch wie bei der Aerosolzentrifuge; dafür kann ein Impaktor im Gegensatz zur Zentrifuge aber bei erhöhten Temperaturen und insbesondere auch bei Versuchen mit Wasserdampf als Trägergas eingesetzt werden.

Bei der <u>Versuchsdurchführung</u> wird das Schmelzgut mit einer Rate von 50 - 300 °C/min aufgeheizt und dann für Zeiten von 5 - 60 min auf der gewünschten Höchsttemperatur (2000 - 2500 °C) gehalten. Die Filterwechselmaschine wird in der Regel erst bei Schmelzguttemperaturen ≥ 1200 °C gestartet, weil vorher keine nennenswerte Freisetzung und Aerosolbildung stattfindet. Die einzelnen Filterwechsel werden auf dem Schreiberstreifen der kontinuierlich aufgezeichneten Schmelzguttemperatur notiert, so daß nach jedem Versuch eine eindeutige Zuordnung zwischen den einzelnen Filtern, der Temperatur und der Versuchszeit möglich ist.

Die Probenahme mit der Aerosolzentrifuge und dem Kaskadenimpaktor erfolgt in allen Fällen in der Abkühlphase der Schmelze im Temperaturbereich zwischen 2200 °C und 1700 °C.

Die nachfolgende Tabelle 2 enthält eine Zusammenstellung der wichtigsten Versuchsparameter.

Schmelzgutmasse	150 - 250 g			
simulierter Abbrand	44 GWd/t Uran			
Atmosphäre	Wasserdampf, Luft, Argon			
Gasdurchsatz	10 bzw. 30 l/min			
Druck	2 bar			
Temperaturanstieg	50 - 300 ºC/min			
Beaufschlagungszeiten:				
- Glasfaserfilter	60 - 120 sec			
- Aerosolzentrifuge	10 min im Bypaß			
- Kaskadenimpaktor	1 - 90 sec			

Tabelle 2: Versuchsparameter

3. Aerosolkenngrößen und Meßauswertung

Die wichtigsten Kenngrößen, die ein aerodisperses System charakterisieren, sind die Partikelgrößenverteilung, die Partikelzahlkonzentration, die Massenkonzentration und die chemische Zusammensetzung der Partikeln. Diese Größen wurden mit den verschiedenen beschriebenen Meßtechniken und Meßgeräten bestimmt.

Darüber hinaus wurden die Elementzusammensetzung einzelner Partikeln mit der Röntgenmikrosonde und die Konzentrationsverteilung der Elemente in den verschiedenen Größenklassen mit dem Kaskadenimpaktor und anschließender Gammaspektroskopie gemessen. Schließlich wurden mit der Augerelektronenspektroskopie (XPS) an einigen Proben Aussagen über die vorliegenden chemischen Verbindungen gewonnen. In Tabelle 3 ist eine Übersicht der verwendeten Methoden bei Versuchen mit den Atmosphären Luft und Wasserdampf zusammengestellt.

Methode	Wasserdampf	Luft
Aerosolzentrifuge	nicht angewendet	Größenverteilung
Kaskadenimpaktor	Größenverteilung Elementverteilung	Größenverteilung Elementverteilung
Gravimetrie	Massenkonzentration Massenfreisetzungsrate	nicht angewendet
REM Röntgenmikrosonde	Größenverteilung Elementzusammensetzung	Größenverteilung Elementzusammen- setzung
XPS	Chemische Verbindung	nicht angewendet
Gammaspektroskopie	Elementverteilung	Elementverteilung

Tabelle 3: Übersicht über die angewandten Aerosolmeßmethoden

3.1 Auswertung der Messungen mit dem Kaskadenimpaktor

Um mit dem Kaskadenimpaktor die Partikelzahlkonzentration und die Größenverteilung ermitteln zu können, war zunächst eine Eichung erforderlich. Dazu wurden für Luft als Versuchsatmosphäre eine Eichung und für Wasserdampf zwei Eichungen mit jeweils 8 l/min Durchfluß durch den Kaskadenimpaktor durchgeführt. Ein höherer Durchsatz ließ sich wegen einer Strombegrenzungsdüse am Ausgang des Gerätes nicht einstellen.

Die Eichung erfolgte durch Auszählen und Größenklassifizierung der Partikeln auf jeder einzelnen Impaktorstufe. Als Maß für die Größe wurde jeweils die Projektionsfäche einer Partikel bestimmt und dann der Durchmesser der dazu äquivalenten Kreisfläche ermittelt. Bei der Auftragung der Häufigkeitsverteilung über dem Durchmesser ergab sich für alle Stufen in guter Näherung eine Normalverteilung. Als Beispiel ist in Abbildung 4 die Verteilung auf der ersten Impaktorstufe dargestellt, die sich bei der zweiten Eichung mit Wasserdampf ergab. In diesem Fall wurden Größe und Anzahl sämtlicher Partikeln auf 8 elektronenmikroskopischen Aufnahmen mit 20 000-facher Vergrößerung bestimmt. Acht Aufnahmen waren erforderlich, um insgesamt 677 Partikeln zu erfassen und damit eine hinreichend gute Statistik für die Verteilung zu gewährleisten.



Abb. 4 Eichung der Stufe 1 des Kaskadenimpaktors (Wasserdampf)

Zur Bestimmung der gesamten Partikelzahlverteilung wurden die 8 Stufen ausgewogen. Aus der auf der Stufe m abgeschiedenen Masse $M^{(m)}$ kann man auch die zugehörige Partikelzahl $N^{(m)}$ berechnen. Dazu verwendet man die durch die Eichung bestimmte Größenverteilung dieser Stufe sowie die beiden Annahmen, daß alle Partikeln kugelförmig sind und eine Dichte von 5 g/cm³ aufweisen. Die Berechtigung zu diesen Annahmen ergibt sich zumindest näherungsweise aus den elektronenmikroskopischen Aufnahmen (vgl. Abb. 5, 6, 7) und aus den Ergebnissen der Versuche mit der Aerosolzentrifuge (8).

Mit dem Wert $N^{(m)}$ läßt sich unter nochmaliger Anwendung der Größenverteilung für die Stufe m auch eine Partikelzahl $n_k^{(m)}$ bestimmen, die zu einer bestimmten Größenklasse k gehört. Wenn man – wie im vorliegenden Fall – ein Computerprogramm benutzt, kann man den Partikeldurchmesserbereich zwischen 0,01 µm und 1 µm z.B. in K = 1000 Größenklassen einteilen. k ist dann eine Laufzahl von 1 bis 1000.

Für die Masse $M^{(m)}$ auf der m-ten Impaktorstufe muß dann wieder gelten:

$$M^{(m)} = \frac{4}{3} \pi Q \sum_{k=1}^{K} (\frac{d_{K}}{2})^{3} \cdot n_{k}^{(m)}$$

mit **Q** = Dichte der Partikeln

d_k = mittlerer Partikeldurchmesser in der Größenklasse k

m = 1 ... 8 (Zahl der Impaktorstufen)

Die Gesamtgrößenverteilung über alle Stufen des Impaktors ergibt sich dann aus insgesamt K Werten der Art:

$$N_{k} = \sum_{m=1}^{8} n_{k}^{(m)}$$
 (k = 1,2, ..., K)

Durch die Summation über alle N_k bzw. alle N^(m) ergibt sich die Gesamtzahl der Partikeln auf dem Impaktor. Nach Division durch den integrierten Gasdurchsatz D erhält man ferner die Partikelzahlkonzentration:

$$c_{p} = \frac{1}{D} \sum_{k=1}^{K} N_{k} = \frac{1}{D} \sum_{m=1}^{8} N^{(m)}$$



Stufe 1

Stufe 2

Stufe 4

KIKIRCH



Abb. 5 Aerosolpartikeln auf den Stufen 1 bis 4 des Kaskadenimpaktors (Wasserdampf)



Stufe 5

Stufe 6



Stufe 7



Abb.6 Aerosolpartikeln auf den Stufen 5 bis 8 des Kaskadenimpaktors (Wasserdampf)



kleine Partikeln



mittelgroße Partikeln



große Partikeln

KIK IRCH

Abb.7 Aerosolpartikeln auf dem Abscheideband der Aerosolzentrifuge (Luft) 3.2 Auswertung der Messungen mit der Aerosolzentrifuge

Die Aerosolzentrifuge wurde mit Latex-Aerosolpartikeln geeicht. Durch den Größenvergleich der Latex- mit den Coriumaerosolpartikeln an jeweils gleichen Stellen des Abscheidebandes war es möglich, die Dichte der Coriumpartikeln zu bestimmen. Dabei ergab sich ein Wert von etwa 5 g/cm³.

Die Größenverteilung wurde anhand von Aufnahmen mit einem Rasterelektronenmikroskop und einem Transmissionselektronenmikroskop ermittelt. Mit der Röntgenmikroanalyse wurde ferner eine qualitative Elementanalyse einzelner Aerosolpartikeln durchgeführt.

Außerdem konnte hier durch Einsatz eines α -Zählers die Oberflächenverteilung der Aerosolpartikeln ausgemessen werden. Die α -Teilchen stammten aus den Zerfallsprodukten des Thoriums, die bei der Aufheizung des Schmelztiegels zusammen mit den Schmelzgutbestandteilen freigesetzt wurden.

4. Ergebnisse der Versuche in einer Wasserdampfatmosphäre

4.1 Eichungen des Kaskadenimpaktors

Für die Versuchsatmosphäre Wasserdampf wurden zwei Eichungen durchgeführt, um einen möglichen Einfluß verschiedener experimenteller Randbedingungen auf die Verteilungsparameter der einzelnen Impaktorstufen zu erkennen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 zusammengestellt.

An den Medianwerten und den zugehörigen Standardabweichungen σ_g erkennt man, daß beide Eichungen trotz recht unterschiedlicher Versuchsparameter nur geringfügig voneinander abweichen. Auch die beiden Rechenbeispiele, in denen beide Eichungen zur Berechnung der Gesamtgrößenverteilung verwendet wurden, zeigen, daß die Unterschiede der resultierenden Medianwerte weniger als 10 % betragen und damit wenig relevant sind.

Die Stufe 8 des Kaskadenimpaktors war bei der zweiten Eichung wegen eines zu schwachen Niederschlags nicht auswertbar. Bei einer weiteren Sensitivitätsanalyse zeigte sich, daß der Einfluß dieser Stufe auf das Ergebnis der Gesamtverteilung und der entsprechenden Parameter vernachlässigbar ist.

	l. Fichur	'n	2. Fichur	nΠ
		יש 		יש
Temperatur des Schmelzguts bei Probenahme (ºC)	2050		1700	
Masse des Schmelzguts (g)	100		235	
Probenahmedauer (sec)	1		21	
Niedergeschlagene Masse auf den Prallplatten des Kaskaden- impaktors (µg)	< 50		1510	
	Median [µm]	σg	Median [µm]	σg
Stufe 1	0,057	2,1	0,056	2,4
Stufe 2	0,065	2,0	0,072	1,9
Stufe 3	0,087	1,9	0,085	2,4
Stufe 4	0,13	1,9	0,11	2,7
Stufe 5	0,15	2,2	0,18	2,4
Stufe 6	0,16	1,9	0,22	2,2
Stufe 7	0,18	1,9	0,30	2,3
Stufe 8	0,32	2,3	nicht aus	wertbar
		ang lantak tergenye manapak BATES deren		
Rechenbeispiel 1	0,070	2,1	0,064	2,4
Rechenbeispiel 2	0,106	2,2	0,100	2,7

Tabelle 4: Versuchbedingungen und Ergebnisse der Eichungen in Wasserdampf

4.2 Partikelgrößenverteilung

Bei insgesamt 9 Freisetzungsversuchen wurden die Partikelgrößenverteilungen mit dem Kaskadenimpaktor gemessen und - wie in Abschnitt 3.1 beschrieben -mit einem Rechenprogramm ausgewertet. In der Abbildung 8 ist ein Beispiel für eine Verteilung und die dazugehörige Summenkurve dargestellt. Man erkennt, daß die Form der Verteilung sehr gut mit einer logarithmischen Normalverteilung übereinstimmt. In Tabelle 5 sind die durchgeführten Experimente zusammen mit den wichtigsten Versuchsparametern aufgelistet.



Abb. 8 Größenverteilung und Summenkurve (Wasserdampf)

$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$							
S-24121001452021 1700,102,11S-2502000220209 0800,102,09S-2532000240304 4000,092,09S-25520002604511 1900,092,12S-26421002416012 1300,082,21S-266a2100235257 2700,082,09S-266b1700235211 5100,072,11S-26822002114516 3760,092,17S-2692100237304 2380,112,17	Versuch	T °C	M _{SG} g	t sec	MKKI µg	d̄g μm	σg
S-2502000220209 0800,102,09S-2532000240304 4000,092,09S-25520002604511 1900,092,12S-26421002416012 1300,082,21S-266a2100235257 2700,082,09S-266b1700235211 5100,072,11S-26822002114516 3760,092,17S-2692100237304 2380,112,17	S-241	2100	145	20	21 170	0,10	2,11
S-2532000240304 4000,092,09S-25520002604511 1900,092,12S-26421002416012 1300,082,21S-266a2100235257 2700,082,09S-266b1700235211 5100,072,11S-26822002114516 3760,092,17S-2692100237304 2380,112,17	S-250	2000	220	20	9 080	0,10	2,09
S-25520002604511 1900,092,12S-26421002416012 1300,082,21S-266a2100235257 2700,082,09S-266b1700235211 5100,072,11S-26822002114516 3760,092,17S-2692100237304 2380,112,17	S-253	2000	240	30	4 400	0,09	2,09
S-26421002416012 1300,082,21S-266a2100235257 2700,082,09S-266b1700235211 5100,072,11S-26822002114516 3760,092,17S-2692100237304 2380,112,17	S-255	2000	260	45	11 190	0,09	2,12
S-266a2100235257 2700,082,09S-266b1700235211 5100,072,11S-26822002114516 3760,092,17S-2692100237304 2380,112,17	S-264	2100	241	60	12 130	0,08	2,21
S-266b17002352115100,072,11S-26822002114516 3760,092,17S-2692100237304 2380,112,17	S-266a	2100	235	25	7 270	0,08	2,09
S-268220021145163760,092,17S-26921002373042380,112,17	S-266b	1700	235	21	1 510	0,07	2,11
S-269 2100 237 30 4 238 0,11 2,17	S-268	2200	211	45	16 376	0,09	2,17
	S-269	2100	237	30	4 238	0,11	2,17

Tabelle 5:Ergebnisse zur Partikelgrößenverteilung in Wasserdampf, gemessenmit einem Kaskadenimpaktor

T = Temperatur des Schmelzguts während der Probenahme

M_{SG} = Masse des Schmelzgutes

t = Dauer der Probenahme mit dem Kaskadenimpaktor

 M_{KKI} integrale Aerosolmasse auf den 8 Stufen des Impaktors

 $\overline{d_q}$ = mittlerer geometrischer Durchmesser (Medianwert)

 σ_q = geometrische Standardabweichung

Man sieht aus Tabelle 5, daß die Medianwerte der Verteilungen wie auch die geometrischen Standardabweichungen innerhalb der ganzen Versuchsreihe nur wenig schwanken.

Als Mittelwerte aus allen Messungen erhält man

für den Medianwert des Durchmessers:	$\overline{d_g} =$	0 , 09 µm	
für die Standardabweichung:	σg =	2,13	

4.3 Partikelzahlkonzentration

Wie in Abschnitt 3.1 beschrieben, wurden zur Ermittlung der Partikelzahlverteilung die einzelnen Stufen des Kaskadenimpaktors ausgewogen. Dadurch kann die prozentuale Verteilung des Gesamtniederschlages auf den einzelnen Stufen berechnet werden. Bildet man die entsprechenden Mittelwerte für alle neun in Tabelle 5 angegebenen Versuche, so ergibt sich die folgende Verteilung:

Stufe des KKI:	1	2	3	4	5	6	7	8
Masse in %:	3	6	12	22	30	15	8	4

Hiervon ausgehend kann man mit Hilfe der Werte für den Partikeldurchmesser und die mittlere Dichte sowie für den Wasserdampfdurchsatz die Partikelzahlkonzentration berechnen, die den Niederschlägen auf den einzelnen Filtern entspricht. Dafür wurden von 3 Versuchen jeweils 3 Filter ausgewählt, die bei Schmelzguttemperaturen von 2400 °C beaufschlagt worden waren. Die Ergebnisse sind in Tabelle 6 dargestellt.

Versuch	Partikelzahlkonzentrationen						
	Filter 8	Filter 9	Filter 10	Mittelwert			
S-264	7,7 E7	1,0 E8	1,1 E8	1,0 E8			
S-268	3,0 E8	2,5 E8	2,9 E8	2,8 E8			
S-269	2,6 E8	1,4 E8	9,8 E7	1,7 E8			

Tabelle 6:	Partikelzahlkonzentrationen	in	P/cm³	bei	einer	Schmelzgut-
	temperatur von 2400 ºC					

Weitere Berechnungen von Partikelzahlkonzentrationen wurden für die Niederschläge auf dem Kaskadenimpaktor (vgl. Tabelle 5) durchgeführt. Für vier dieser Versuche wurde außerdem der Niederschlag auf dem Filter ausgewertet, der der Kaskadenbeaufschlagung unmittelbar vorausging. Bei Versuchen bis zur Nummer S-261 stand die Filterwechselmaschine noch nicht zur Verfügung, so daß in diesen Fällen während der gesamten Aufheiz- und Abkühlphase eines Versuches nur ein Filter beaufschlagt wurde. Die Ergebnisse der erwähnten Rechnungen sind in Tabelle 7 dargestellt.

vu	n ca. 2000 - C		
Versuch	T (ºC) a)	KKI-Auswertung ^{b)}	Filterauswertung
S-241	2100	1,8 E8	-
S-250	2000	8,9 E7	-
S-253	2000	4,3 E7	· _
S-255	2000	7,2 E7	-
S-264	2100	6,6 E7	8,6 E7
S-266a	2100	1,9 E8	1,3 E8
S-266b	1700	3,5 E7	-
S-268	2200	8,2 E7	5,8 E7
S-269	2200	2,3 E7	2,3 E7

Tabelle 7: Partikelzahlkonzentrationen in P/cm³ bei Schmelzguttemperaturen 2000 00

a)

b)

Т

= Temperatur des Schmelzguts bei der Probenahme KKI = Kaskadenimpaktor

Man sieht, daß den Niederschlägen auf dem Kaskadenimpaktor und denen auf den Filtern näherungsweise die gleichen Partikelzahlkonzentrationen entsprechen. Wenn man für alle berechneten Werte der Tabellen 6 und 7 jeweils einen Mittelwert bildet, so ergibt sich

für T = 2000 °C	c _p = 8,5 E7 Partikeln/cm³
und für T = 2400 °C	c̄ _o = 1,8 E8 Partikeln/cm³

d.h., daß bei einer höheren Schmelzguttemperatur - wie nicht anders zu erwarten - auch eine höhere Partikelzahlkonzentration c_{D} auftritt.

4.4 Massenkonzentration

Etwas einfacher als die Berechnung der Partikelzahlkonzentration gestaltet sich die Berechnung der Massenkonzentration. Als Ausgangsgrößen werden hier nur die Massen der Niederschläge auf den Filtern und der Gasdurchsatz benötigt.

Die nachfolgend beschriebenen Ergebnisse (Tabelle 8) beziehen sich auf Experimente mit 3 verschiedenen Schmelzgutzusammensetzungen:

- A: Brennstabprüflinge + Stahl
- B: wie A + Absorbermaterial (80 % Ag, 15 % In, 5 % Cd)
- C: wie A, das Schmelzgut wird jedoch nicht in einem ThO₂-Tiegel aufgeheizt (wie bei A und B), sondern in einem Betontiegel.
- Tabelle 8:Massenkonzentrationen in g/m³ als Funktion der Temperatur und der
Schmelzgutzusammensetzung (vgl. Text)

T Schmelzgut				
(°C)	ohne Absorber (A)	mit Absorber (B)	mit Betontiegel (C)	
2000	1,9 (a)	2,7 (a)	-	
2400	6,3 (a)	27,6 (a)	14 , 7 (b)	
2800	18 , 8 (b)	-	-	

(a) Mittelwerte aus 5-10 Versuchen

(b) Mittelwerte aus 2 Versuchen

Die Streuung der Einzelwerte um die angegebenen Mittelwerte beträgt ca. \pm 30 %.

Auch hier wird - wie bei der Partikelzahlkonzentration - der Einfluß der Temperatur auf die Massenkonzentration deutlich sichtbar. Weiterhin erkennt man den hohen Beitrag des Absorbermaterials zur Massenkonzentration des gebildeten Aerosols. Auch während der Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton ergibt sich pro Volumeneinheit eine größere Aerosolmasse, weil nun die freigesetzten Betonbestandteile (vorwiegend SiO₂) einen zusätzlichen Massebeitrag liefern.

4.5 Chemische Zusammensetzung

Hinsichtlich der chemischen Zusammensetzung des Kernschmelzenaerosols ist grundsätzlich festzustellen, daß es sich hierbei um ein heterogenes Mischaerosol handelt. Das bedeutet: Die einzelnen Teilchen sind nicht homogen aus jeweils nur einem Element oder einer Verbindung aufgebaut, sondern sie bestehen stets aus mehreren der im Schmelzgut eingesetzten Elemente. Die quantitative Zusammensetzung hängt dabei hauptsächlich von den Elementkonzentrationen im Schmelzgut und von dessen Temperaturen ab.

Die Abbildung 9 zeigt ein Beispiel für eine Mikrosondenanalyse einer einzelnen Partikel. Die darin enthaltenen Linien der Elemente Al und Au stammen von dem Aluminium-Probenträger bzw. von der Goldbedampfung der Probe. Da die Linien von Eisen, Mangan, Chrom, Kobalt, Caesium und Jod einen relativ hohen Untergrund verursachen, ist zu vermuten, daß auch noch andere Elemente vertreten sind, deren Linien jedoch wegen zu geringer Konzentration im Untergrund verschwinden.

Bei einer detaillierten Auswertung der Niederschläge auf dem Kaskadenimpaktor mittels Gammaspektroskopie zeigte sich, daß die Elementverteilung nicht auf allen Stufen identisch ist. Aus den Abbildungen 10 und 11 ist zu ersehen, daß die Konzentrationsmaxima der Elemente mit höherem Dampfdruck bei kleineren Partikeldurchmessern liegen, um umgekehrt die größeren Partikeln zu Elementen mit niedrigerem Dampdruck gehören. Diese Tatsache ist aufgrund der Kelvin'schen Kondensationsgleichung verständlich. Sie besagt. daß der Logarithmus des Dampfdrucks (p) eines kondensierenden Stoffes umgekehrt proportional dem Radius rk der Kondensationspartikel ist:

$$\ln p \sim \frac{1}{r_k}$$

Es sei jedoch darauf hingewiesen, daß diese Elementverschiebung nur eine Tendenz angibt. Für die Gesamtmasse des Aerosols spielt dies praktisch keine Rolle, da bei Schmelzguttemperaturen oberhalb von 2000 °C der Hauptmassenanteil aus den Elementen Silber, Eisen und Uran besteht (1).

Trotzdem ist noch ein weiterer Befund, der eine Elementverschiebung belegt, deutlich meßbar. Die Ablagerungen in der Transportstrecke verschieben sich mit zunehmender Entfernung vom Entstehungsort des Aerosols (Schmelztiegel) zu Elementen mit höherem Dampdruck, vgl. Abbildung 12. (Dabei ist jedoch zu



Abb.9 Röntgenmikrosondenaufnahme einer Partikel (Wasserdampf)

- 23 -Ce

-2,0



Abb. 10 Verschiebung der Massenverteilung für die Beispiele Jund Ce innerhalb der Gesamtmassenverteilung



Abb. 11 Verschiebung der Massenverteilung für die Beispiele Cs und Fe innerhalb der Gesamtmassenverteilung



beachten, daß dieses Bild nur die geometrische Verteilung der freigesetzten Elementanteile beschreibt, aber nichts über die tatsächliche Freisetzung der Elemente aussagt.) Damit bestätigt sich auch hier die Tendenz, daß Elemente mit niedrigem Dampfdruck vorwiegend größere Partikeln bilden und deshalb schneller abgelagert werden.

Bei Untersuchungen von Filterniederschlägen mittels Augerelektronenspektroskopie und Röntgenmikroanalyse konnte außer einer Elementanalyse auch eine halbquantitative Bestimmung der chemischen Form durchgeführt werden, in der die einzelnen Elemente vorliegen (9). Es zeigte sich, daß Silber metallisch und als Silberjodid vorliegt, Caesium als Jodid und Hydroxid, Cadmium als Hydroxid und Indium sowie Tellur als Oxide.

Hervorzuheben sind hierbei zwei zusätzliche Befunde (1,2) über das radiologisch besonders bedeutsame Spaltprodukt Jod:

- a) Fast alles Jod (> 99 %) ist an Aerosolpartikeln gebunden.
- b) Die chemische Bindung des Jods an Caesium und Silber hat zur Folge, daß dieses Element in wesentlich schwerer flüchtigen Formen vorliegt als elementares Jod. Dies führt im Falle eines Kernschmelzenunfalls zu einer starken Begünstigung der Jodrückhaltung im Reaktor-Containment.

5. Ergebnisse der Versuche in Luft

Wgen der generellen Zielvorgabe, die LWR-Kernschmelzenaerosole unter möglichst realistischen Bedingungen zu erzeugen, wurden unter Luft nicht so viele Experimente durchgeführt wie unter Wasserdampf. Die entsprechenden Ergebnisse werden daher auch insgesamt knapper dargestellt.

5.1 Eichung von Kaskadenimpaktor und Aerosolzentrifuge

Die Versuchsbedingungen und das Ergebnis der Eichung des Kaskadenimpaktors in Luft sind in Tabelle 9 zusammengestellt.

Die Eichung der Aerosolzentrifuge erfolgte mit Latex-Aerosolpartikeln mit Durchmessern zwischen 0,176 und 5,2 μ m. Die entsprechende Eichkurve ist in der

Abbilung 13 dargestellt, die zusätzlich eine Meßkurve für ein Coriumaerosol enthält. Mit Hilfe dieser beiden Kurven wurde - wie in Kapitel 3.2 beschrieben -

Temperatur des Schmelz	zguts: 2200	٥C
Masse des Schmelzguts:	200	g
Durchfluß:	8	l/min
Probenahmedauer:	5	sec
Impaktorstufe	Median (µm)	٥g
1	0,14	3,5
2	0,16	2,3
3	0,17	2,8
4	0,18	4,4
5	0,25	4,3
6	0,28	4,3
7	0,60	4,8
8	1,00	4,5
1		

Tabelle 9: Angaben zur Eichung des Kaskadenimpaktors in Luft

die Dichte der Coriumaerosolpartikeln bestimmt.

5.2 Partikelgrößenverteilung und chemische Zusammensetzung des Aerosols

Zur Bestimmung der Partikelgrößenverteilung wurden mit dem Kaskadenimpaktor drei Versuche und mit der Aerosolzentrifuge ein Versuch durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 10 zusammengestellt.

Tabelle 10: Partikelgrößenverteilung in Luft

Probenahme mit	Median (µm)	σ g
Kaskadenimpaktor	0,17 0,19 0,18	2,53 3,00 3,30
Aerosolzentrifuge	0,16	2,03



- 28 -

Leider konnte bisher nicht geklärt werden, warum das Kernschmelzenaerosol in der Atmosphäre Wasserdampf im Mittel aus kleineren Partikeln bestand als in der Atmosphäre Luft.

Es wurde jedoch an anderer Stelle (10) durch Parameterstudien gezeigt, daß Unterschiede in der Anfangsgrößenverteilung keinen gravierenden Einfluß auf das längerfristige Aerosolverhalten (Zeitraum: mehrere Stunden) im Containment ausüben.

Die Niederschlag auf dem Abscheidungsband der Zentrifuge wurde auch unter einem α -Zählstand ausgemessen (Abbildung 14). Die α -Aktivität rührt von den Produkten der Thoriumzerfallskette her, die sich im Tiegelmaterial (ThO₂) bilden. Außerdem wurde die Partikelgrößenverteilung des Niederschlags anhand von elektronenmikroskopischen Aufnahmen ermittelt, vgl. Abbildung 15. Wenn man die entsprechende Verteilungskurve in eine Oberflächenverteilung umrechnet, so ergibt sich eine exakte Übereinstimmung mit der Verteilung der Abbildung 14. Man sieht also, daß durch die Messung der α -Aktivität direkt die Oberflächenverteilung der Partikeln ausgemessen werden kann.

Zur Interpretation der Abbildung 15 ist noch ein besonderer Hinweis erforderlich: Die dort angegebene Größenverteilung in Partikelzahl pro cm² beschreibt die unmittelbar meßbare Konzentrationsverteilung auf dem Abscheideband der Zentrifuge. Diese Verteilung ist nicht ohne Berücksichtigung der Abscheidungscharakteristik (Abbildung 13) auf die Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung im Strömungsmedium zu übertragen. Der in Tabelle 10 angegebene Wert von 0,16 μ m ist der Medianwert des 1. Maximums der Größenverteilung, die sich unter Berücksichtigung der Abscheidungscharakteristik ergibt.

Auch andere Autoren (11,12) berichten bei Kernschmelzenaerosolen von multimodalen Verteilungen. Im vorliegenden Fall wurde eine trimodale Verteilung gefunden. Sie kommt möglicherweise dadurch zustande, daß der Koagulationsprozeß zu verschiedenen Verteilungsmaxima führt, wenn eine über längere Zeit $(\gtrsim 10 \text{ min})$ wirksame Aerosolquelle für die Erzeugung eines hinreichend dichten Aerosols sorgt.

Eine Bestätigung der mit der Aerosolzentrifuge ermittelten Multimodalität ist verständlicherweise mit dem Kaskadenimpaktor nicht zu erbringen, da dessen Auflösungsvermögen mit 8 Abscheidungsstufen wesentlich geringer ist.



- 30 -



Abb. 15 Partikelzahlverteilung des Niederschlags der Aerosolzentrifuge (Luft)



Von einigen Einzelpartikeln der Niederschläge in Luft wurden auch Röntgenemissionsspektren aufgezeichnet, vgl. Abbildung 16. Dabei ließen sich wiederum fast alle im Schmelzgut eingesetzten Elemente nachweisen, und zwar weitgehend unabhängig von der Größe der Einzelpartikeln. Allerdings gilt diese Aussage wie für die in Wasserdampf gebildeten Partikeln nur als qualitative Feststellung. Quantitative Aussagen sind deswegen nicht verfügbar, weil dazu eine sehr aufwendige Eichung der Röntgenapparatur mit Aerosolpartikeln bekannter Zusammensetzung erforderlich gewesen wäre.

6. Zusammenfassung und Diskussion

- Die wichtigsten Ergebnisse der Aerosoluntersuchungen lassen sich wie folgt zusammenfassen:
- Bei den Simulationsversuchen zum Kernschmelzen an der Anlage SASCHA werden realistische Massenkonzentrationen bis zu 30 g/m³ erzeugt.
- Die dabei auftretenden Partikelzahlkonzentrationen liegen in der Größenordnung von 10⁸ P/cm³.
- Die Größenverteilung der Aerosolpartikeln entspricht einer logarithmischen Normalverteilung mit einem Medianwert für den Durchmesser von $\overline{d}_q = 0,09 \ \mu m$ und einer geometrischen Standardabweichung $\sigma_g = 2,13$.
- Die chemische Analyse des entstandenen Mischaerosols zeigt, daß auf den einzelnen Partikeln stets mehrere Elemente des eingesetzten Schmelzguts vorhanden sind.
- Elemente, die schon bei Temperaturen zwischen 1500 und 2000 °C eine relativ hohe Flüchtigkeit aufweisen, treten vorwiegend in folgenden chemischen Formen auf: CsJ, CsOH, Ag, AgJ, TeO₂, In₂O₃ und Cd(OH)₂.
- Die Dichte des Kernschmelzenaerosols beträgt etwa 5 g/cm³.

Diese Ergebnisse gelten in erster Linie für eine Versuchsatmosphäre aus Wasserdampf und für einen Zeitraum von 2-5 sec nach der Entstehung des Aerosols. Die Reproduzierbarkeit der Messungen war im allgemeinen gut; die maximalen Abweichungen der Werte für die Partikelzahl- und die Massenkonzentration betrug z.B. \pm 30 %, obwohl die Versuchsparameter in einigen Fällen größere Abweichungen aufwiesen.

Da die Ergebnisse unter weitgehend realistischen Kernschmelzbedingungen erzeugt wurden, können sie als Eingabedaten für weitere Rechnungen zum Aerosoltransport durch den Primärkreis und zum Aerosolabbau im Containment verwendet werden.

Als Einschränkung ist dabei jedoch folgender Aspekt zu beachten: Während des Kernschmelzens steht für die Freisetzungsprodukte innerhalb des Kernbereichs ein durch eine hohe Temperatur und eine hohe Aerosoldichte gekennzeichnetes Volumen zur Verfügung, das wesentlich größer ist als dasjenige des Schmelztiegels in der SASCHA-Anlage. Dies wird besonders den räumlichen und zeitlichen Verlauf der Aerosolprozesse Kondensation, Koagulation und Thermophorese beeinflussen und möglicherweise bereits am Austritt des Reaktordruckbehälters zu einem Partikelspektrum mit größeren Durchmessern führen.

Andererseits bedeutet es keine Einschränkung, daß die Versuche nicht mit echt abgebranntem Brennstoff, sondern mit Fissium durchgeführt wurden. Die Aerosolproben wurden nämlich fast ausschließlich nach dem Schmelzen des eingesetzten Schmelzgutes genommen. Nach dem Schmelzen aber dürften alle Unterschiede hinsichtlich der physikalischen Struktur und der Spaltproduktverteilung verschwunden sein, so daß dann die Freisetzung wie auch die Aerosolbildung bei beiden Arten von Brennstoff gleich abläuft.

7. Literatur

- H. Albrecht, H. Wild Review of the Main Results of the SASCHA Program on Fission Product Release under Core Melting Conditions ANS Topical Meeting on Fission Product Behavior and Source Term Research, July 15-19, Snowbird, Utah (1984)
- H. Albrecht, K. Nolte, V. Prech, K.H. Simon, H. Wild Untersuchung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Kernschmelzen PNS Jahresbericht 1983, KfK-Bericht 3450, S. 4300-17 (1984)
- J. Schreibmaier et al. Herstellung von Kernbrennstoff mit simuliertem Abbrand (Fissium) an der Anlage FIFA KfK-Bericht 2991 (1980)
- J. Wilhelm, H. Schüttelkopf Inorganic Adsorber Material for Off-gas Cleaning in Fuel Reprocessing Plants Conf. 720 823 Oak Ridge, 28.-31. August (1972)
- 5. T.T. Mercer, P.E. Morrow, W. Stöber Assessment of Airborne Particles C. Charles Thomas Verlag, USA (1972)
- A. Berner Kaskadenimpaktoren als Meßgeräte Kolloquium Aerosolmeßtechnik, Aachen, März (1975)
- 7. C.H. Murphy Handbook of Particle Sampling and Analysis Methods Verlag Chemie International, Deerfield Beach, USA (1984)

8. W. Muhr, H. Wild

Die Anwendung der Aerosolzentrifuge nach Stöber zur Untersuchung der beim Kernschmelzen auftretenden Aerosole
C. Junge, R. Jaenicke (Herausgeber): Aerosole in Naturwissenschaft, Medizin und Technik - Meßtechnik und technische Anwendung,
5. Tagung der Gesellschaft für Aerosolforschung, Karlsruhe, 26.-28. Oktober 1977, Seite 116, Mainz (1978)

- H. Moers, H. Klewe-Nebenius, G. Kirch, G. Pfennig, H.J. Ache Chemical State Evaluation of the Constituents of Aerosol Particles Formed in LWR Core Melting Experiments Specialist Meeting on Nuclear Aerosols in Reactor Safety, Karlsruhe, 4.-6. September (1984).
- H. Bunz, M. Koyro, W. Schöck NAUA-MOD-3 - Ein Computerprogramm zur Beschreibung des Aerosolverhaltens in kondensierender Atmosphäre KfK-Bericht 3154 (1981)

- D.A. Dahlgren, L.D. Buxton, J.F. Muir, W.B. Murfin, L.S. Nelson, D.A. Powers
 Molten LWR Core Material Interactions with Water and with Concrete Thermal Reactor Safety, Volume III, p. 426
 Thermal Reactor Safety Meeting, Sun Valley, ID, USA, 31. Jul 5 Aug (1977)
- 12. D.A. Powers Sustained Molten Steel / Concrete Interactions Tests ANL-78-10 (1978)