

KfK 3550  
Juni 1985

# **Projekt Nukleare Sicherheit**

**Jahresbericht 1984**

**Projekt Nukleare Sicherheit**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

KfK 3550

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

JAHRESBERICHT 1984

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003



## Vorwort

Im Rahmen des Projekts Nukleare Sicherheit (PNS) arbeiteten im Berichtsjahr die folgenden Institute und Abteilungen der Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH zusammen:

Institut für Datenverarbeitung in der Technik	IDT
Institut für Material- und Festkörperforschung	IMF
Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik	INR
Institut für Reaktorbauelemente	IRB
Institut für Zuverlässigkeit und Schadenskunde im Maschinenbau der Universität Karlsruhe	IRB/ZSM
Institut für Reaktorentwicklung	IRE
Institut für Radiochemie	IRCH
Hauptabteilung Ingenieurtechnik	IT
Hauptabteilung Sicherheit	HS
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik	LAF
Laboratorium für Angewandte Systemanalyse	AFAS
Entwicklungsabteilung Kernmantelsicherung	EKS

Die Forschungs- und Entwicklungsarbeiten des PNS sind Bestandteil des Reaktorsicherheitsforschungsprogramms des BUNDESMINISTERS FÜR FORSCHUNG UND TECHNOLOGIE (BMFT) und werden in Zusammenarbeit mit der Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS), Herstellern und Betreibern, Gutachtern, Genehmigungsbehörden sowie anderen Forschungsinstitutionen durchgeführt.

Der vorliegende Jahresbericht 1984 beschreibt die Fortschritte der Arbeiten des PNS, die von den Instituten und Abteilungen der KfK und den im Auftrag der KfK arbeitenden externen Institutionen auf dem Gebiet der nuklearen Sicherheit durchgeführt werden. Er enthält detaillierte Beiträge zu allen Forschungsvorhaben, die den Stand der Arbeiten zum Ende des Berichtsjahres darstellen. Diesen Beiträgen in deutscher Sprache sind Kurzfassungen in englischer Sprache vorangestellt, in denen über

- durchgeführte Arbeiten
- erzielte Ergebnisse
- geplante Weiterarbeit

jedes einzelnen Forschungsvorhabens zusammengefaßt informiert wird.

Im Anhang findet sich eine vollständige Liste der PNS-Veröffentlichungen, die im Berichtsjahr erschienen sind.

Der Bericht wurde von der Projektleitung zusammengestellt.

Zum Druck eingereicht: Juni 1985

NUCLEAR SAFETY PROJECT

ANNUAL REPORT 1984

The Annual Report 1984 is a detailed description (in German language) of work within the Nuclear Safety Project performed in 1984 in the nuclear safety field by KfK institutes and departments and by external institutes on behalf of KfK

It includes for each individual research activity short summaries in English language on

- work performed
- results obtained
- plans for future work

This report was compiled by the project management.

Karlsruhe, June 1985

THE HISTORY OF THE

REPUBLIC OF THE

THE HISTORY OF THE  
REPUBLIC OF THE  
THE HISTORY OF THE  
REPUBLIC OF THE

THE HISTORY OF THE  
REPUBLIC OF THE

THE HISTORY OF THE  
REPUBLIC OF THE

THE HISTORY OF THE  
REPUBLIC OF THE

## Inhaltsverzeichnis

## Seite

SUMMARIES

1 - 50

### DETAILLIERTE BERICHTE

06.01. SICHERHEIT UND UMGEBUNGSSCHUTZ VON KKW

#### PNS-Teilprojekt 4100 - Dynamische Beanspruchung von Reaktor- komponenten unter Störfallbedingungen

<u>06.01.02</u>	Entwicklung und Verifizierung von Codes zur dynamischen Beanspruchung von RDB-Einbauten	4100 - 1
06.01.02/17A PNS 4125	Ermittlung und Bewertung der plastischen Dehnungskonzentrationen im Einspannbereich von Zylinderschalen bei Überlastung	4100 - 1
<u>06.01.15</u>	Entwicklung und Verifizierung von Codes zur Beanspruchung von Containment-Strukturen	4100 - 29
06.01.15/06A PNS 4127	Weiterentwicklung und Verifizierung von Codes zur Analyse der dynamischen Spannungen und Verformungen von LWR-Containments	4100 - 29
<u>06.01.19</u>	Thermoermüdung und Thermoschockverhalten von Reaktorkomponenten	4100 - 44
06.01.19/03A PNS 4160	Experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Ermüdungsrißausbreitung unter zyklischer Thermoschockbelastung	4100 - 44
<u>06.01.21</u>	Thermo- und fluiddynamische Analysen von LWR-Störfällen	4100 - 53
06.01.21/03A PNS 4270	Vorausrechnung eines kleinen Lecks mit Hilfe von RELAP5	4100 - 53
06.01.21/04A PNS 4271	Vektorisierung des Thermohydraulik-Codes BODYFIT-1FE	4100 - 54
	Einführung und Anwendung von COMMIX-1B, einer Weiterentwicklung von COMMIX-1A	4100 - 56

		<u>Seite</u>
06.01.21/05A	Teil I: Nachrechnung des FEBA-Versuchs Nr.216	4100 - 61
PNS 4272	Teil II: Erste LOCA-Untersuchungen zum FDWR	4100 - 67
06.01.22/01A	Untersuchungen zu transienten Austauschvor-	4100 - 74
PNS 4280	gängen in Zweiphasenströmungen (NOVA-Programm)	
<u>06.01.03</u>	Entwicklung von Zweiphasen-Massenstrom-Meß-	4100 - 83
	verfahren und Anwendung bei Blowdown-	
	Experimenten	
06.01.03/27A	Versuchsstand für instationäre Zweiphasen-	4100 - 83
PNS 4139	Meßtechnik	
<u>PNS-Teilprojekt</u>	<u>4200 - Brennelementverhalten bei Störfällen</u>	
<u>06.01.04</u>	Entwicklung und Verifizierung eines Codesystems	4200 - 1
	zur Beschreibung des Brennelementverhaltens	
	bei Störfällen	
06.01.04/35A	Erweiterung von SSYST für Brennstabanalysen im	4200 - 1
PNS 4231.9	SFD-Temperaturbereich. Quantifizierung	
	verschiedener Einflüsse	
06.01.04/36A	Inbetriebnahme von SCDAP/Mod0 auf der Rechen-	4200 - 5
PNS 423C	anlage der KfK	
<u>06.01.09</u>	Brennstabverhalten in der Wiederauffüll- und	4200 - 10
	Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles	
06.01.09/07A	Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen auf-	4200 - 10
PNS 4238	blähenden Zircaloy-Hüllen und einsetzender	
	Kernnotkühlung (REBEKA-Programm)	
06.01.20/02A	Brennstabsimulatoreffekte bei Flutexperimenten	4200 - 17
PNS 4260	(SEFLEX-Programm)	
<u>06.01.16</u>	Untersuchungen zu schweren Kernschäden	4200 - 30
06.01.16/23A	Oxidationsverhalten von Zircaloy-Hüllrohren	4200 - 30
PNS 4254	bei langsamen Transienten und schweren	
	Kernschäden	

Seite

06.01.16/22A PNS 4253	Mechanisches und chemisches Verhalten von Zircaloy-Hüllrohren und $UO_2$ -Brennstoff bei hohen Temperaturen	4200 - 76
06.01.16/20A /21A PNS 4251/52	Out-of-pile Bündelexperimente zur Untersuchung schwerer Kernschäden (CORA-Programm)	4200 - 97
06.01.16/19A PNS 4250	Langzeitkühlung im stark beschädigten Core (COLD)	4200 - 130
<u>06.01.17</u>	Untersuchungen zum Störfallverhalten fortgeschrittener Druckwasserreaktoren (FDWR)	4200 - 146
06.01.17/16A PNS 4240	Flut- und Deformationsverhalten eng gepackter, hexagonaler Stabbündel	4200 - 146
06.01.17/17A PNS 4242	Untersuchungen zum Einfluß des Oxidbrennstoffs und der Spaltprodukte auf das mechanische Verhalten von Stahlhüllrohren	4200 - 151
06.01.17/19A PNS 4244	Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Hüllrohrwerkstoffen für FDWR	4200 - 157
<u>PNS-Teilprojekt</u>	<u>4300 - Ablauf und Beherrschung von LWR-Kernschmelzenunfällen</u>	
<u>06.01.11</u>	Reaktions-, Freisetzungs- und Aerosolverhalten beim Kernschmelzen	4300 - 1
06.01.11/29A PNS 4311	Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und Aerosolen in LWR-Containments	4300 - 1
06.01.11/30A PNS 4314	Ermittlung von Daten zur Beschreibung des Reaktions- und Freisetzungsverhaltens bei hohen Temperaturen im RDB und beim Kernschmelzen. Neuere Untersuchungen zum Hochtemperatur-Phasenverhalten im System U-Zr-O	4300 - 14
06.01.11/31A PNS 4315	Untersuchung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Kernschmelzen	4300 - 27

		<u>Seite</u>
<u>06.01.12</u>	Untersuchungen zur Wechselwirkung von Stahlschmelzen in Beton	4300 - 37
06.01.12/30A PNS 4325	Ausbreitung von Stahlschmelzen in Beton	4300 - 37
06.01.12/31A PNS 4323	Experimente zur Wechselwirkung von Stahlschmelzen mit Beton; Endabnahme-Schmelzversuche A1, A2 und A3	4300 - 58
06.01.12/32A PNS 4331	Hydrodynamische und thermische Modelle zur Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton	4300 - 85
06.01.12/33A PNS 4334	Modellentwicklung zur analytischen Beschreibung von Kernschmelzenunfällen	4300 - 104
 <u>PNS-Teilprojekt 4400 - Verbesserung der Spaltproduktrückhaltung und Reduktion der Strahlenbelastung</u>		
<u>06.01.14</u>	Abluftfilterung an Reaktoren	4400 - 1
06.01.14/19A PNS 4414	Untersuchungen zum Auftreten und zur Abscheidung von penetrierenden Iodverbindungen in der Abluft von Kernkraftwerken	4400 - 1
06.01.14/20A PNS 4415	Entwicklung und Verbesserung von Abluftfiltern zum Einsatz unter extremen Belastungen	4400 - 18
06.01.14/21A PNS 4416	Zum Studium des Verhaltens von Schwebstoffiltern unter simulierten Störfallbedingungen	4400 - 24
06.01.14/22A PNS 4418	Untersuchungen zur Abscheidung von Iod an Sorptionsmaterialien bei Bränden	4400 - 49



		<u>Seite</u>
06.02	SICHERHEIT UND UMGEBUNGSSCHUTZ VON WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGEN	
<u>PNS-Teilprojekt 4500 - Sicherheit der Wiederaufarbeitung</u>		
<u>06.02.01</u>	Störfallanalysen für die große Wiederaufar- beitungsanlage (WAA)	4500 - 1
06.02.01/12A PNS 4513	Störfallablaufanalysen für die Abgasreinigung der großen Wiederaufarbeitungsanlage	4500 - 1
06.03	EINDÄMMUNG VON FOLGESCHÄDEN	
<u>PNS-Teilprojekt 4800 - Verhalten, Auswirkung und Beseitigung freigesetzter nuklearer Schadstoffe</u>		
<u>06.03.01</u>	Untersuchung des physikalischen und chemischen Verhaltens biologisch besonders wirksamer Radionuklide in der Umwelt	4800 - 1
06.03.01/11A PNS 4812	Untersuchung des physikalischen und chemischen Verhaltens biologisch besonders wirksamer Radionuklide in der Umwelt	4800 - 1
06.03.01/12A PNS 4813	Mikrobiologische Einflüsse auf die Mobilität und die Bioverfügbarkeit von Radionukliden in Böden und Sedimenten	4800 - 26
<u>06.03.03</u>	Untersuchung der radiologischen Folgen von Reaktorunfällen unter probabilistischen Gesichtspunkten	4800 - 31
06.03.03/16A PNS 4831	Unfallfolgenmodell für "Risikostudien für kern- technische Anlagen"	4800 - 31
06.03.03/18A PNS 4834	Untersuchungen zu speziellen Fragestellungen aus dem Themenbereich "Risikostudien für kerntechnische Anlagen"	4800 - 31

06.03.03/17A  
PNS 4833

Methodologie der Ermittlung der radiologischen Folgen der bei Reaktorunfällen freigesetzten Radioaktivität

4800 - 49

06.03.03/19A  
PNS 4835

Untersuchung der Kühlturm- und Gebäudeeinflüsse auf die Anfangsbedingungen bei der atmosphärischen Ausbreitung von Spaltprodukten

4800 - 54

S U M M E R I E S

OF THE

GERMAN REPORTS



<u>Content</u>	<u>Page</u>
06.01. SAFETY AND ENVIRONMENTAL PROTECTION OF NUCLEAR POWER PLANTS	1
<u>PNS-Subproject 4100 - Dynamic Loads and Strains of Reactor Components under Accident Conditions</u>	
<u>06.01.02</u> Development and Verification of Codes for Dynamic Stress Analysis of Reactor Components	1
06.01.02/17A Development and Verification of Codes for Analysis PNS 4125 of Dynamic Stresses and Deformation of Reactor Vessel Internals during LOCA	1
06.01.15/06A Development and Verification of Codes for PNS 4127 Analysis of Dynamic Stresses and Deformation of LWR-Containments	3
06.01.19/03A Thermal Fatigue and Thermal Shock Behavior of PNS 4160 Reactor Components	5
06.01.21/03A Thermalhydraulic Analysis of LWR-Accidents 04A/05A PNS 4270-72	7
06.01.22/01A Investigation of Transient Interfacial Exchange PNS 4280 Processes in Two-Phase Flow (NOVA-Program)	9
<u>06.01.03</u> Development of Two Phase Mass Flow Measurement Techniques and Application at Blowdown Experiments	10
06.01.03/27A Experimental Facility for Nonsteady State PNS 4139 Two-Phase Flows	10
<u>PNS-Subproject 4200 - Fuel Behavior under Accident Conditions</u>	
<u>06.01.04</u> Development and Assessment of a Fuel Behavior Code System	11
06.01.04/35A Development and Verification of a Code-System 36A of Fuel Behavior at Loss-of-Coolant Accidents PNS 4231.9 PNS 423C	11

		<u>Page</u>
<u>06.01.09</u>	Fuel Rod Behavior in the Refill and Reflood Phase of a LOCA	14
06.01.09/07A PNS 4238	Investigations of the Interaction between Ballooning Zircaloy Claddings and the Emergency Core Cooling (REBEKA-Program)	14
06.01.20/02A PNS 4260	Fuel Rod Simulator Effects in Flooding Experiments (SEFLEX)	15
<u>06.01.16</u>	Investigations on Severe Core Damage	17
06.01.16/23A PNS 4254	Oxidation Behavior of Zircaloy Cladding Tubes	17
06.01.16/22A PNS 4253	Mechanical and Chemical Behavior of Zry-4 Cladding and UO <sub>2</sub> Fuel during Severe Core Damage Transients	18
06.01.16/20A /21A PNS 4251/52	Out-of-pile Bundle Experiments on Severe Fuel Damage (CORA)	21
06.01.16/19A PNS 4250	Long Term Coolability of Severely Damaged Cores (COLD)	22
<u>06.01.17</u>	Investigations on the Accident Behavior of Advanced Pressurized Water Reactor (FDWR)	24
06.01.17/16A PNS 4240	Flooding and Deformation Behavior of Closely Packed Hexagonal Fuel Rod Bundles	24
06.01.17/17A PNS 4242	Investigations on the Influence of Oxide Fuel and Fission Products on the Mechanical Properties of Steel Cladding Tubes	25
06.01.17/19A PNS 4244	Investigation of the Mechanical Behavior of Cladding Material for APWR	26

PNS-Subproject 4300 - Investigation and Control of LWRCore-Meltdown Accidents

<u>06.01.11</u>	Reaction Behavior, Activity Release and Transport of Fission Products during Core-Meltdown	28
06.01.11/29A PNS 4311	Investigations on the Interactions of Fission Products and Aerosols in LWR-Containments	28
06.01.11/30A PNS 4314	Constitutions and Reaction Behavior of LWR Materials at Core Melting Conditions	29
06.01.11/31A PNS 4315	Experiments on Determination and Limitation of Fission and Activation Product Release during Core Meltdown	30
<u>06.01.12</u>	Investigation on the Interaction of Steel Melts and Concrete	32
06.01.12/30A PNS 4325	Erosion of Concrete by Steel Melts Investigation of the Melt Front Velocity	32
06.01.12/31A PNS 4323	Experiments on the Interaction between Steel Melts and Concrete	33
06.01.12/32A PNS 4331	Hydrodynamical and Thermal Models for the Interaction of a Core Melt with Concrete	34
06.01.12/33A PNS 4334	Development of Models for the Analytical Determination of Core Meltdown Accidents	36

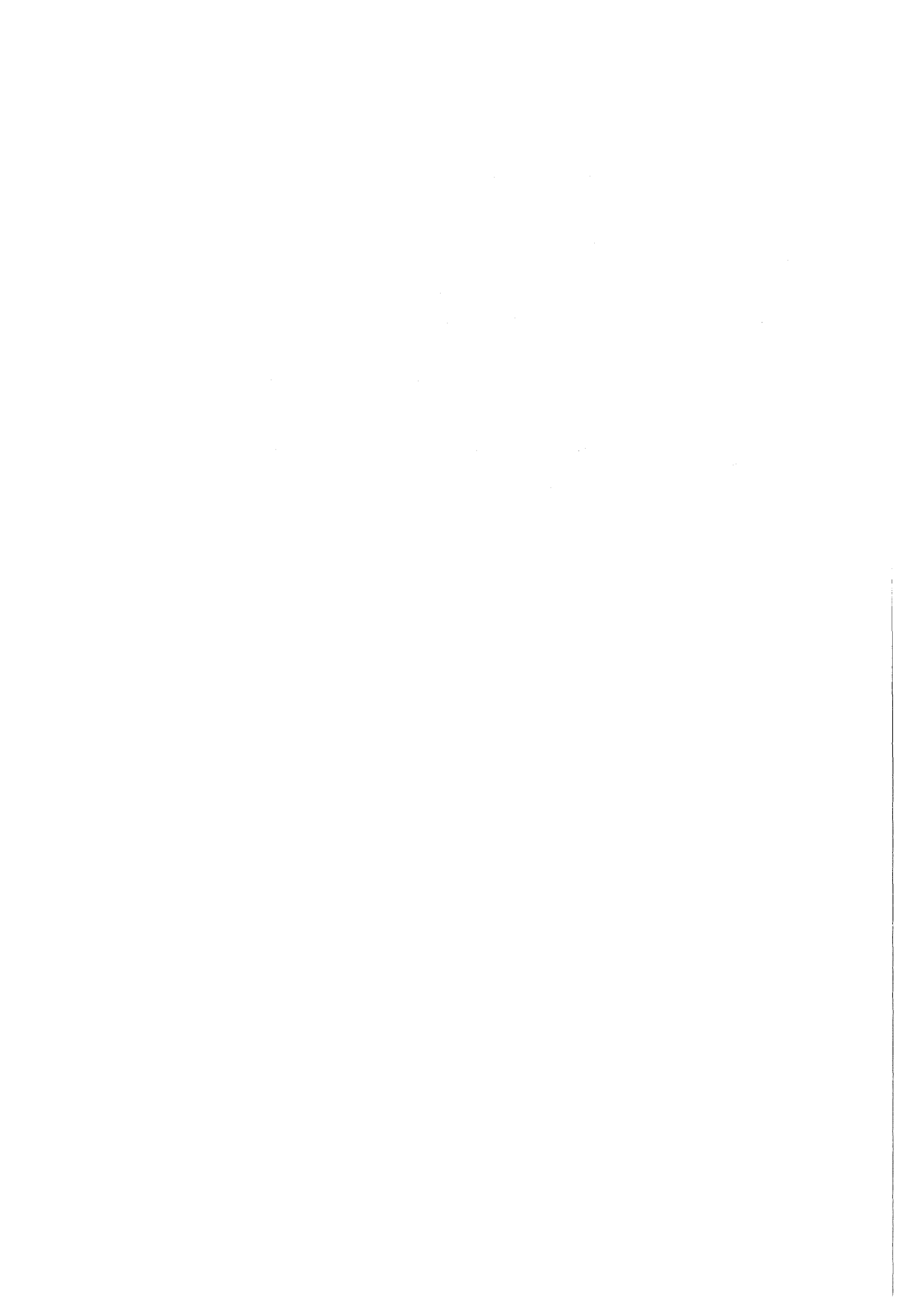
PNS-Subproject 4400 - Improvement of Fission Product Retentionand Reduction of Radiation Load

<u>06.01.14</u>	Offgas Filters in Nuclear Power Stations	38
06.01.14/19A PNS 4414	Investigations on the Occurrence and Retention of Penetrating Iodine Species in the Exhaust Air of Nuclear Power Plants	38

	<u>Page</u>
06.01.14/20A PNS 4415	Development and Improvement of Exhaust Air Filters for Accident Conditions 39
06.01.14/21A PNS 4416	Investigation into the Behaviour of HEPA Filters at High Temperature, Air Humidity and Elevated Differential Pressure 40
06.01.14/22A PNS 4418	Investigations on the Retention of Iodine by Sorbents in the Case of Fire 42
06.02	SAFETY AND ENVIRONMENTAL PROTECTION OF REPROCESSING PLANTS
<u>PNS-Subproject 4500 - Safety of the Reprocessing</u>	
<u>06.02.01</u>	Incident Analysis for the Large Reprocessing Plant 43
06.02.01/12A PNS 4513	Incident Analysis for the Offgas Cleaning System of the Large Reprocessing Plant 43
06.03	MITIGATION OF CONSEQUENCES
<u>PNS-Subproject 4800 - Behavior, Impact and Removal of Released Nuclear Pollutants</u>	
<u>06.03.01</u>	Investigation of the Physical and Chemical Environmental Behavior of Radionuclides Characterized by a Particular Biological Effectiveness 44
06.03.01/11A PNS 4812	Investigation of the Physical and Chemical Environmental Behavior of Radionuclides Characterized by a Particular Biological Effectiveness 44
06.03.01/12A PNS 4813	Microbiological Influence on the Mobility of Radionuclides in Soils and Sediments 46



		<u>Page</u>
<u>06.03.03</u>	Investigation of Radiological Impact of Reactor Accidents under Probabilistic Aspects	47
06.03.03/16A PNS 4831	Off-site Accident Consequence Model for Nuclear Facilities	47
06.03.03/18A PNS 4834	Investigations of Special Problems in Assessing Off-site Accident Consequences	47
06.03.03/17A PNS 4833	Methodology for Evaluating the Radiological Consequences of Radioactive Effluents Released in Accidents	48
06.03.03/19A PNS 4835	Investigation of Cooling Tower and Building Impacts on the Initial Conditions in Atmospheric Dispersion of Fission Products	49



06.01. SAFETY AND ENVIRONMENTAL PROTECTION OF NUCLEAR  
POWER PLANTS

PNS-Subproject 4100 - Dynamic Loads and Strains of Reactor Components  
under Accident Conditions

06.01.02 Development and Verification of Codes for Dynamic Stress  
Analysis of Reactor Components

06.01.02/17A Development and Verification of Codes for Analysis  
PNS 4125 of Dynamic Stresses and Deformations of Reactor Vessel  
Internals during LOCA  
(M. Geiß, R. Krieg, M. Wadle; IRE)

Work performed

Within the structural mechanics investigations plastic strain concentrations at the clamping of cylindrical shells under overload have been analyzed with parametric calculations. The influence of the shell geometry the clamping conditions and the material behavior has been systematically investigated. The usual valuation of the stresses within the framework of standard codes has been critically examined for this problems with the detailed elastic-plastic analyses.

During 1984 all  $\gamma$ -densitometer signals were converted into their physical properties by means of special evaluation programs. With the achieved results existing databank was completed.

With a second code the probability density function of all  $\gamma$ -signals were calculated and the relation to the prevailing flow pattern was established. The experimented results were compared with the two-phase theory of pressure drop in abrupt expansions and a new correlation was found.

Results obtained

The structural mechanics investigations show that only moderate strain concentrations have to be expected at the edges of an ideally clamped cylindrical shell under internal pressure loading. The maximum strains are at most four times higher than the strains in the undisturbed shell regions. The ratio of shell thickness and shell radius has only minor influence on the strain

concentrations. For shorter shells and large plastic deformations a little bit greater strain concentrations have to be expected at the shell clamping. The influence of the work hardening characteristic on the strain concentrations is also not very strong.

The load carrying mechanism at the clamping is responsible for this behavior. The clamping reduces the membran stresses to some extent. The strain peaks caused by bending only compensate the displacement differences. Therefore the bending stresses at the shell edges may be classified as secondary stresses within the concept of standard codes. Because of the local character of this strain peaks and the high ductility of modern steels this peaks are of minor importance for single loading cases. Failure thus has to be expected by plastic instability in the shell regions not disturbed by the edge effects.

A completely different behavior must be expected at a flexible flange type clamping under axial loading in the shell. In this case considerable strain concentrations occur. The local strain peaks at the clamping may amount more than hundred times the strain values in the undisturbed shell regions. The height of this peaks depends strongly from the work hardening characteristic of the material. Furthermore the special boundary conditions at the flange and the flange geometry have dominant influence on the strain peaks. Therefore a detailed analysis is necessary for every single case. In the special case under consideration failure has to be expected at the clamping because of excessive strain concentrations. The undisturbed shell regions still remain in the elastic loading range.

This behavior results from the special function of the bending stresses at the edge. They do not arise from compatibility, rather they are nearly proportional to the loading. Therefore considerable plastic strains occur when the structure is overloaded. For this reason the bending stresses at the clamping have to be classified as primary stresses.

Generally the design procedure used in standard codes turn out to be conservative. However, in case of an incorrect stress classification a non-conservative design may occur. Unfortunately this question may only be answered with detailed elastic-plastic analyses for complicated geometry and loading conditions.

A data bank could be made available with the experimental data of about 300 two-phase-flow experiments in a nozzle test section. For every run it contains mass flow rate, quality and up to 8 temperature-, 16 pressure- and 22 void fractions and density values. The evaluation of the probability density

functions brought more insight in the development of the flow through the test section. Especially the transition from one-phase to two-phase-flow, between bubbly and slug flow and from subcritical to supercritical experiments could be easily detected by analyzing these signals.

In general fluid dynamics, a first approach to pressure drop calculation in an abrupt expansion is the integration of the momentum and energy balance over the whole flow region. Neglecting some of the more complex terms one usually obtains formulations which strongly depend upon the area ratio.

If the homogeneous model is adopted, the expansion from single, phase to two-phase flow is straight forward. If the two-fluid model is used some more assumption especially concerning void are necessary to obtain a completely evaluable formulation. Seven different equation from the literature for the pressure recovery were compared with the measurements. None was in acceptable agreement with the experiments. A new correlation, derived from the momentum balance, but neglecting void fraction was established, which can calculate all experiments ( $0 < x < 13\%$ ,  $0 < 90\%$ ,  $20 < p < 130$  bar,  $9 \cdot 10^3 < \dot{m} < 2.4 \cdot 10^4$  kg/m<sup>2</sup> sec) with good results.

#### Plans for future work

The experiments will be compared to calculations with finite-difference two-phase codes for refinement of constitutive equations.

06.01.15/06A Development and Verification of Codes for Analysis of  
PNS 4127 Dynamic Stresses and Deformations of LWR-Containments  
(G. Class, F. Eberle, B. Göller, G. Hailfinger, J. Kadlec,  
R. Krieg, G. Lang, G. Messemer, R.Scharnowell, E. Wolf; IRE)

#### Work performed and Results obtained

Two bulge tests were performed with membranes, which had a reinforced section at its center. The membranes failed at a pressure of 28 and 32 bar respectively what is considerable lower than the failure pressure of the membranes without reinforcement (42 bar). The failed membranes had a crack running approximately 2 mm in front of the thickened region around this region, separating it from the remainder of the membranes by 50% and 80% respectively. The computer program ROTMEM was not able to predict the failure pressure with acceptable tolerances.

That is why a simplified model was developed which allows to take into account for the influence of the stresses in the thickness-direction of the membranes, which occur in the region with changes in wall thickness. First computations using the new model showed that necking now starts at a significantly higher pressure, what agrees better with the experiments.

In order to clarify whether the bolted connection between material lock and containment can be investigated by a small scale experiment some bolted connections with different scale factors were investigated in uni-axial tensile tests. The results showed that the loading where first slip occurs, as well as the loading at rupture may be transferred with simple scale factors, provided that the specimens are manufactured with great care. Thus, the design of the bi-axial tension test machine could be finished.

Manufacturing of the containment model shell goes on. The outer shape of the sphere is already finished. Measurements showed, that the deviations from the ideal shape are smaller than 3/100 mm.

A series of experiments was performed, in which the transfer of pressure fluctuations within the water pool of a pressure suppression system to the walls of the pool was investigated. Some experiments with different intensities of steam condensation were performed, and modal analysis of the measured signals with the computer program EVA was done. The volume source function of collapsing bubbles during the chugging phase could be computed from the pressure signals measured at several points at the wall, using the program VOICE. Furthermore, the programs VOICE and SING were used to compute experiments, in which the pressure fluctuations were generated by a piston vibrating within the condensation tube. The agreement was satisfactorily for experiments with excitations on the central axis. However, for eccentric excitations large discrepancies occurred.

#### Plans for future work

Additional bulge tests will be performed with membranes with quadrilateral reinforcement plates. The computations for the overpressurization of the containment will be completed.

The machine for testing the bolted connection between material lock and containment under two-axial stresses will be manufactured.

Manufacturing of the spherical containment model will be completed. After a detailed measurement of the shell the experimental modal analysis will be started. Parallel, a computer program for the description of the influence of the imperfections will be developed.

Additional experiments and computations with excitation of vibrations within the fluid of the cylindrical pool will be performed in order to clarify the occurred discrepancies.

06.01.19/03A Thermal Fatigue and Thermal Shock Behavior of  
PNS 4160 Reactor Components  
(G. Czuck, R. Rintamaa<sup>+</sup>), D. Munz, H. Stamm; IRB/ZSM)

#### Work performed

##### Experiments:

- Construction and optimization of the two THESPA-testing benches
- Measurement of spatial and temporal temperature distributions and comparison with theoretical results
- Fracture surface evaluation with scanning electron microscope
- Crack growth measurements in different test specimens made of 22 NiMoCr 37, 20 MnMoNi 55 and an austenitic stainless steel
- $da/dN-\Delta K$ -data with compact tension specimens.

##### Theory:

- Performance of parameter studies for simple structures with semi-elliptical surface cracks under thermal loading
- Investigation of the influence of plastic deformation due to severe thermal shocks in the surface region on fatigue crack growth
- Optimization of the computer program to calculate stress intensity factors and fatigue crack growth under cyclic thermal loading
- Prediction of fatigue crack growth in the three test specimens
- Analysis of crack growth in a nozzle corner under thermal shock loading (PHDR)

---

<sup>+</sup>R. Rintamaa, Technical Research Center of Finland (VTT), Metals Laboratory, SF-02150 Espoo 15, Finland

### Results obtained

A great part of the experimental activities was occupied with the construction of a second testing bench and the improvement of the cooling circuit.

A continuous day and night operation is now possible. During the end of the year several specimens made of 22 NiMoCr 37, 20 MnMoNi 55 and of an austenitic stainless steel have been tested. The detailed evaluation and comparison with the theoretical prediction is not yet completed.

In cooperation with Valtion Teknillinen Tutkimuskeskus (VTT-Finland) the fracture surfaces of the cyclically fatigued specimens have been investigated in the scanning electron microscope. It was possible to remove the oxide layer without destroying the characteristic fatigue structure.

Crack growth rate measurements under mechanical fatigue loading with compact specimens revealed the effect of environment (water in comparison to air) and the effect of frequency in water environment.

Due to a delegation of Dr. Stamm to the Oak Ridge National Laboratory, where he participated in their thermal shock program no fundamentally new results were obtained in the theoretical field. The calculations concerning the effect of plastic deformation on the cyclic stress distribution have been extended.

### Plans for future work

Further thermal shock experiments including clad materials; Investigations on the effect of superimposed mechanical loads.

### References:

- /1/ H. Stamm, C. Mattheck, D. Munz  
Stress intensity factors for surface cracks under thermal fatigue conditions, Proceedings of the International Conference on Application of Fracture Mechanics to Materials and Structures, Nijhoff Publ. 1984, pp. 855-865
- /2/ H. Stamm: Berechnung des Rißverhaltens bei Thermoschockbelastung, KfK-Nachrichten 15 (1983), 346-352
- /3/ G. Czuck, H. Stamm: Thermoermüdung u. Thermoschockverhalten von Reaktor-komponenten, KfK 3450 (Juni 1984) S. 4100/64-4100/87



06.01.21/03-05A Thermalhydraulic Analysis of LWR-Accidents  
PNS 4270/71/72 (H.Borgwaldt, G. Jacobs, W. Baumann, G. Willerding; INR  
S.H. Mansoor, IAEA, M. Cigarini, C. Ferrero; EURATOM)

Work performed

A new RELAP5 input model of the LOBI-MOD2 test facility has been developed. Steady state calculations were performed in order to fulfil the measured initial and boundary conditions of LOBI-test A2-81, which is the basis of the ISP18.

The vectorisation of the code BODYFIT-1FE has been successfully pursued, including the conversion of all material property functions and acceleration of the routines that solve the transformed Poisson equation. The vectorised code was run both on a CYBER 205 and on a CRAY X-MP.

The final version 12.6 of the multi-component code COMMIX-1A was received from ANL and made available on the computers SIEMENS 7890 and CYBER 205. A pre-release version of COMMIX-1B has been implemented on the KfK computer. Recalculations of thermal shock experiments were continued. Regarding theoretical investigation of long-term thermal strains for the HDR, efforts were devoted to generate a computational model for the simulation with COMMIX-1B. After optimizing the model size, the simulation of the HPI transients has been initiated.

In order to support user application of COMMIX, procedures facilitating restart and plot runs were established. A universal graphics system, DISSPLA vers. 9.0, and software for the coupling with COMMIX, have been implemented on the KfK computer.

LOCA- and ATWS-calculations with RELAP5 for a normal KWU's PWR reactor were performed. The LOCA calculation was repeated with a slightly modified version of the program. In this case most of the numerical oscillations were removed. At the present time, calculations for an APWR-LOCA are being executed. The implementation of the FLUT code on the SIEMENS 7890 with the FORTRAN-77-Compiler was completed. The FEBA-experiment no. 216 was simulated and evaluated with FLUT. A modification in the quench model was introduced and tested. The input data for PWR's and APWR's calculations is being prepared.

### Results obtained

With the help of special control system for balancing the secondary side with the primary side of steam generators, the RELAP5 calculations for LOBI-MOD2 have achieved steady state.

Vectorisation of BODYFIT-1FE was quite successful. On a 1-pipe CYBER 205, for typical test-cases, the relative performance (versus an IBM 3033) rose from 2 to a value of 8. Above that, general performance was increased by some 50 percent. Test runs on a CRAY X-MP, which required only minor adaptations, were even faster than on the CYBER 205.

First results of the HPI transients have been obtained. However, the simulations turn out to be time-consuming and require a good adjustment of convergence parameters.

The last ATWS and LOCA (blowdown and refill) results of RELAP5 for a PWR are in good agreement with the corresponding ones obtained with other programs (for instance LECK, in use at KWU).

The calculation of FEBA-experiment no. 216 shows that the FLUT code estimates correctly the maximum rod temperature during reflooding. The introduced model modification gives better results in the evaluation of the upper quench position.

### Plans for future work

Completion of the LOBI-MOD2 small break standard problem exercise.

Optimisation and vectorisation of a working version of COMMIX-2, that has become available.

Application of COMMIX-1B to determine long-term thermal strains for the HDR installation. Calculation of velocity and temperature fields as a basis for determining thermal strain of the reactor vessel near a cold leg inlet nozzle. Coupling of the RELAP5 and FLUT codes. Execution of ATWS calculations for the APWR with RELAP5; evaluation with FLUT of the APWR-experiments planned at IRB.

06.01.22/01A Investigation of Transient Interfacial Exchange  
PNS 4280 Processes in Two-Phase Flow (NOVA-Program)  
(G. Class, R. Meyder, W. Sengpiel, P. Philipp, K.H. Lang,  
E. Stratmanns; IRE)

#### Work performed and Results obtained

In the period reported here, the NOVA test facility has been set up, instrumented and put in operation. Testing of different local measuring techniques has been started including the development of electrical resistivity probes for measurement of local void and bubble velocities. In the frame of theoretical support for the NOVA experiments, the computer codes K-FIX and TEACH for simulation of two-phase dispersed flow have been implemented. In parallel to modeling activities for description of the influences of turbulence and Kutta-Joukowski effects on phase transport in bubble flows, numerical and physical models for simulation of fluid dynamics of dispersed two-phase flow published in the literature have been studied. It became evident that the influence of turbulent diffusion on the transport of the dispersed phase is considered in very different ways and is even often totally neglected. As this diffusional process, together with lift forces due to the Kutta-Joukowski effect and with turbulent stresses contributes to the radial distribution of the phases, turbulent diffusion must be considered in the set of basic conservation equations. Thus, the complete set of conservation equations for separated two-phase flow including the effects of mass and momentum transport by turbulent diffusion has been deduced and will be taken as a consistent basis for further model development.

#### Plans for future work

In the first half year of 1985, the experimental program will be started for investigation of local characteristics (void distribution, velocities of both phases, turbulent structure of the liquid phase) of dilute air-water bubbly flows. The model development will be continued with emphasis on turbulence modelling.

- 06.01.03           Development of Two Phase Mass Flow Measurement  
                  Techniques and Application at Blowdown Experiments
- 06.01.03/27A      Experimental Facility for Nonsteady State Two-Phase-Flow  
PNS 4139           (H.John, S.Barth, A.Demski, G.Eisele, K. Hitzig, S.Kleiber  
                  A.Megerle, L.Pawlak, J.Reimann, E.Wanner, R.Weinbrecht; IRB)

Work performed

- The test results from the mass flow rate instrumentation of the LOBI-spool piece have been documented.
- The modifications of the test loop for the new experiments are nearly finished.

Results obtained

- Comparing the test results of the LOBI-mass flow rate instrumentation with the reference mass flow rate measurement (TMFM), it was found that after correcting with a calibration constant the range of the relative measuring error was below  $\pm 28\%$  (10-100% FS) in blowdown flow. The combination of full-flow turbine and gamma densitometer was most reliable. The results have been presented at the ASME Winter Annual Meeting 1984 and published in the report KfK-3877.
- Due to the progress in modifying the test loop the experiments will start in the beginning of 1985. The first steel plates with small cracks are ready for the test.

Plans for future work

- Measurement of critical mass flow rates in small cracks.

06.01. SAFETY AND ENVIRONMENTAL PROTECTION OF  
NUCLEAR POWER PLANTS

PNS-Subproject 4200 - Fuel Behavior under Accident Conditions

06.01.04 Development and Assessment of a Fuel Behavior Code System

06.01.04/35A Development and Verification of a Code System of  
                  <sup>36A</sup>  
PNS 4231.9 Fuel Behavior at Loss-of-Coolant Accidents  
PNS 423C (R. Meyder, W. Sengpiel; IRE, K. Wagner; IT)

Work performed und Results obtained

SSYST-4 Modules

The PECLOX code models the combined external and internal oxidation of the fuel rod cladding by solving the Fick and Stefan equations for the oxygen diffusion with moving interfaces.

The modelling of PECLOX-Mod 1 is completed.

PECLOX is able to calculate the concentration profiles in the various interaction layers as well as the movement of the interfaces as function of temperature and time up to the total oxidation of the cladding.

First calculations show a reasonable agreement with experimental data with respect to reaction layer thicknesses and cladding diameter changes.

The first working version of the two-dimensional heat transport program was completed and renamed WATRAP.

The post-test calculations of the ESSI-4 experiment are completed. Modelling the free convection between shroud and insulation was improved. The results show that the rate equation for the reaction of steam/Zry describes the reality well enough. It could be shown, too, that hydrogen blanketing might be a very important parameter. Furthermore it could be shown, that the free convection within the gap between shroud and insulation and the radiation in all gaps must be taken into account. After concluding the calculations, it must be started, that for complete verification of any models it is necessary to have a similar experiment without condensation and evaporation in the insulation.

### SCDAP

The Severe Core Damage Analysis Package (SCDAP) computer code developed at INEL Idaho was implemented on the IBM computer in KfK. Since the code is written for a CDC computer a number of changes had to be made. The implementation was completed by calculating the sample problem given on the transmittal tape. After this another set of changes had to be incorporated to the code to model the specific design of the ESSI resp. CORA experiments. Those were:

- modelling the fuel rod simulator consisting of tungsten heater, UO<sub>2</sub> annular pellets, gap and Zircaloy cladding
- modelling heat generation due to prescribed DC and temperature dependent resistivity of the heater
- change in shroud geometry from plate to cylindrical
- modelling radiation heat transfer in the gap of the shroud slab
- modelling of axial heat transfer
- introduction of a time step control as a function of heat fluxes.

Besides this plotting of SCDAP result was established with PLOTCP, the standard plot program at KfK and finally the restart capability was tested also.

The post test analysis of ESSI 4 experiment with our SCDAP version indicated a problem with the heat fluxes exchanged between the individual components modeled for a specific run. The heat flux originally was tied to the coolant temperature. This caused the calculation of a negative heat transfer coefficient in cases where the heat flux due to radiation was higher and of different sign than the heat flux due to convection to the coolant. Second, since the coolant temperature is the boundary condition the cladding temperature cannot be higher than the coolant temperature. This can cause large errors in the overall heat balance, since the heat exchanged between the components, determined by the solution of a linear equation system is not transferred if the driving temperature difference is changed significantly during the time step. To overcome these difficulties the connection between the individual components was changed so that now heat fluxes are the boundary conditions instead of the coolant temperature and a heat transfer coefficient. The remaining problem is now to determine the proper heat transfer data for the insulation material of the shroud.

A new series of ESSI tests will be performed with more thermocouples. With these experiments the material properties of the insulation material will be determined.

Plans for future work

- Further verification of PECLOX using existing experimental data.
- Modification of the integration method in PECLOX to the implicate method to save computer time.
- Documentation of the post-test calculations to ESSI-4
- Documentation of WATRAP
- Application of the SCDAP computer code
- Analysis of SFD-experiments in the frame of the project 06.01.16 (ESSI, ESBU)

06.01.09 Fuel Rod Behavior in the Refill and Reflood Phase  
of a LOCA

06.01.09/07A Investigations of the Interaction between Ballooning  
PNS 4238 Zircaloy Claddings and the Emergency Core Cooling  
(REBEKA-Program)  
(K. Wiehr, F. Erbacher, Ha. Schmidt, E. Vogel; IRB)

#### Work performed

- Single rod experiments performed on partly recrystallized Zircaloy-4-claddings.
- Preparation and performance of bundle test REBEKA-7.

#### Results obtained

Partly recrystallized Zircaloy-4-claddings show a higher stability of the dimensions at higher burn up with respect to creep and growth compared to stress relieved Zry-4-claddings. Therefore single rod experiments with recrystallized Zry-4-claddings have been performed under identical conditions compared to the transient single rod experiments with stress relieved Zry-4-claddings.

The experimental results showed a comparable scatterband of the burst strains. In the  $\alpha$ -phase the highest burst strains of the partly recrystallized tubes showed a negligible higher value than the upper envelope of burst strains of the stress relieved Zry-4-claddings.

The dominant influence of azimuthal temperature differences could be shown also for partly recrystallized Zry-4-claddings. The same reduced burst strains were received which are found for the stress relieved material.

The last bundle experiment REBEKA-7 has been performed successfully on October 31, 1984. This experiment was similar to REBEKA-6 with an unchanged coolant flow direction during the refill and the reflood phases.

All 49 fuel rod simulators were pressurized with He-gas of 60 bar.

Only some few thermocouples spotwelded on the Zry-cladding were positioned in the axial region, where the ballooning was expected. The thermocouples which are needed for the power calibration of the bundle were mounted 150 mm below the axial midplane of the bundle.



By these steps an undisturbed and maximum rod to rod interaction could be expected. The cladding deformation developed at a nearly constant temperature of about 800°C. The average time of deformation during the reflood phase was about 30 seconds. The evaluation of the cladding deformation and the determination of the coolant channel blockage has not yet been done. But it seems that the axial span of higher circumferential strain may be larger than in REBEKA-6.

#### Plans for future work

- Evaluation and documentation of bundle test REBEKA-7.
- Final report of the REBEKA-program.

06.01.20/02A Fuel Rod Simulator Effects in Flooding Experiments (SEFLEX)  
PNS 4260 (P. Ihle, K. Rust, H. Schneider ;IRB)

#### Work performed

The evaluation of the experiments involving non-deformed rod bundles were continued (Series I and II). Series III and IV with pre-deformed ballooned cladding tubes equivalent to a 90% local coolant channel blockage (see FEBA series III) are being prepared. Comparison of COBRA-TF calculations with experimental data is under way.

#### Results obtained

Single Rod Tests (SEFLEX-E):

- Inconel cladding: Clad rewetting time with He in the gap about 1/3 longer than with Argon in the gap ( $\lambda_{\text{He}} \approx 10 \times \lambda_{\text{Ar}}$ )
- Taking the rewetting velocity of a rod with Inconel cladding and He in the gap as a basis, the rewetting velocity then is for:
  - a) Zry/He the same at the beginning of the test, faster later on time  
|  $(\rho c_p)_{\text{Zry}} = 2.34 \text{ W/cm}^3\text{K}$ ,  $(\rho c_p)_{\text{Inc.}} = 4.58 \text{ W/cm}^3\text{K}$  |
  - b) Inc./Ar faster at the beginning of the test, the same later on  
| faster until  $\Delta T$  in the gap is established |
- At the location of rewetting temperatures inside the rods are 150 K up to 200 K higher for Ar than for He in the gap.
- For the case of He in the gap the rewetting of the cladding is slower than for Ar in the gap; however, more heat per unit of time is being transferred to the coolant.

- Concerning the difference of the rewetting time the influence of the gases in the gap (0.05 mm width) is more pronounced than that of the cladding materials.

Evaluation of 5x5 rod bundle tests: Grid spacer effects (Comparison full length 5x5 rod bundle with short 2x2 rod bundle): Improvement of local cooling is more pronounced downstream of a grid spacer than within a grid spacer /3/.

Comparison experiment/calculation:

FEBA and SEFLEX data are being compared with COBRA-TF calculations in cooperation with EPRI. The results are satisfying.

#### Plans for future work

Performance and Evaluation of Series III and IV.

#### References

- /1/ Nishida, M. "Fuel Rod Simulator Effects in Flooding Experiments, Single Rod Tests (Zry-Cladding)" KfK 3786 B, September 1984.
- /2/ Arone, I.; Harten, U.; Ihle, P. "Fuel Rod Simulator Effects in Flooding Experiments, Single Rod Tests with Inconel Cladding" in Vorbereitung
- /3/ Lee, S.L.; Ihle, P. "A Study of Mist Cooling Enhancement from Grid Spacers in Loca Reflood of a PWR Combined Gross Heat Transfer and Local Temperature and LDA Droplet Sizing Analysis". 12th Water Reactor Safety Research Information Meeting, Gaithersburg, Maryland, USA, Oct. 22-26, 1984, USNRC.
- /4/ Erbacher, F.-J.; Ihle, P.; Rust, K.; Wiehr, K. "Temperature and Quenching Behavior of Undeformed, Ballooned and Burst Fuel Rods in a LOCA" 5th Int. Mtg. on Thermal Nuclear Reactor Safety, Sept. 9-13, 1984, Karlsruhe, FRG.
- /5/ Ihle, P. "Heat Transfer in Rod Bundles with Severe Clad Deformations" Nucl. Science and Engineering: 88, 206-219 (1984).
- /6/ Ihle, P.; Rust, K. "FEBA-flooding experiments with blocked arrays. Evaluation report". KfK-3657 (März 84)
- /7/ Ihle, P.; Rust, K. "FEBA-flooding experiments with blocked arrays. Data report 1, test series I through IV". KfK-3658 (März 84)
- /8/ Ihle, P.; Rust, K. "FEBA-flooding experiments with blocked arrays. Data report 2, test series V through VIII". KfK-3659 (März 84)
- /9/ Ihle, P.; Rust, K.; Schneider, He. "Brennstab-Simulator Effekte in Flutexperimenten (SEFLEX-Programm)" In: Projekt Nukleare Sicherheit, Jahresbericht 1983, KfK 3450 p.4200/97 - 111, (Juni 1984)

06.01.16            Investigations on Severe Core Damage

06.01.16/23A        Oxidation Behavior of Zircaloy Cladding Tubes

PNS 4254            (S. Leistikow, B. Bennek.Kammerichs, H. v. Berg, I. Combien<sup>+</sup>,  
G. Schanz, H. Uetsuka<sup>++</sup>; IMF II)

#### Work performed

Parameter studies towards the influence of reduced steam supply rate and of hydrogen addition to steam on the oxidation kinetics and the mechanical behavior of Zircaloy-4: Experimental investigations of the oxidation behavior and the hydrogen uptake of Zircaloy-4 in steam of extremely reduced flow velocities at 100 and 1300°C. Similar investigations under mixed atmospheres of steam hydrogen, and argon at 800 to 1000°C. Creep rupture testing of Zircaloy-4 tube capsules under unlimited steam, steam/argon mixtures, and argon (1000°C,  $\leq 3$  h).

#### Results obtained

Only drastically reduced steam flow velocities result in deviations from the normal oxidation behavior. At 1000°C the lack of available steam leads to reduced oxidation reaction turnover and enhanced hydrogen uptake. At 1300°C and within a critical range of reduced steam supply rate enhanced oxidation and hydrogen uptake are observed, whereas further reduction of steam supply leads over to abruptly reducing reaction turnover. This test series is completed, its documentation is in progress.

Investigations of the reaction in mixed atmospheres of steam, hydrogen, and argon of various specified compositions were continued (900 and 1000°C, 2 min to 6 h). A trend to linear kinetics and reduced turnover is observed with reduced steam supply rates, especially for short-term reactions. At 1000°C the long-term kinetics indicates the retarded transition to breakaway-similar behavior. No significant influence of the hydrogen fraction of the atmosphere on the oxidation is identified in the temperature range covered up to now, especially no "hydrogen blanketing effect", as described in publications. In contrast, hydrogen acts as competing reactant. The importance of the hydrogen uptake decreases with increasing steam supply rate and reaction temperature:

---

<sup>+</sup>) Del., Commisariat à l'Energie Atomique, Saclay, Frankreich

<sup>++</sup>) Del., Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Japan

Earlier creep-rupture investigations under argon and unlimited steam supply were corroborated and extended to 3 h time span in tests at 1000°C. in comparison to argon-tested tube capsules the steam-exposed specimens show enhanced strength and reduced rupture strain. The metallographic observation of the  $ZrO_2$  and  $\alpha$ -Zr(O) layer shows no direct enhancing influence of strain on the oxidation, as evaluated away from surface cracks, which are broadening and deepening under localized strain and are exposed to deeper penetrating oxidation. Such an influence, however, is identified in comparison to double-sided oxidation of tube specimens and has to be discussed as consequence of the one-sided oxidation of the capsules. Premature occurrence of the breakaway effect under burst test conditions is observed.

Creep-rupture test series performed under two different steam/argon mixtures show, that the short-term behavior under steam starvation tends towards the behavior under inert atmosphere, whereas the long-term response of the material is determined by pronounced oxidation-induced strengthening.

#### Plans for future work

Documentation of results for reduced steam flow velocities, continued evaluation of experiments under steam/hydrogen/argon mixtures for temperatures up to 1000°C and extension of the latter parameter test program to 1100-1300°C. Evaluation of creep-rupture tests under steam starvation and new similar experiments under hydrogen-containing atmospheres.

06.01.16/22A      Mechanical and Chemical Behavior of Zry-4 Cladding and  $UO_2$   
PNS 4253          Fuel during Severe Core Damage Transients  
(P. Hofmann, H. Uetsuka, Ch. Adelhelm, J. Burbach,  
G. Gausmann, K. Kurz, H. Metzger, G. Nagel, E. Nold; IMF I)

#### Work performed

- Isothermal and temperature transient  $UO_2$ /Zr-4 reaction experiments with 100-mm long fuel rod segments in an oxidizing atmosphere between 1000°C and the melting point of Zircaloy-4 (about 1760°C).
- Isothermal Zircaloy/oxygen reaction experiments under oxidizing conditions to determine the oxidation kinetics.
- Temperature calibration experiments in the LAVA melting apparatus.

### Results obtained

- After completion and documentation of the isothermal and temperature transient  $UO_2$ /Zircaloy reaction experiments with short LWR fuel rod segments under inert test conditions /1/ the isothermal and temperature transient experiments were continued under oxidizing test conditions. The oxidation medium was an (Ar+25Vol.%  $O_2$ ) mixture; the pressure was 40bar. The annealing temperatures varied between 1000 and 2000°C, the annealing times between 3 and 150 minutes. By internal oxygen uptake of the Zircaloy cladding due to the reaction with the  $UO_2$  and by external oxygen uptake due to reactions with the oxygen gas, oxygen-stabilized  $\alpha$ -Zr(O) phases form which grow into the cladding tube at approximately the same rate. Moreover, on account of the higher oxygen potential of the gas mixture compared to  $UO_2$ , a  $ZrO_2$  layer is formed on the external cladding surface. If the  $\alpha$ -Zr(O) phases from inside and outside combine within the cladding tube, the  $UO_2$ /Zry interactions come to a stop because the external oxidation potential is dominating. Finally, the whole Zry cladding tube is transformed into  $ZrO_2$  and the metallic (U,Zr) alloy contained in it is transformed into (U,Zr) $O_2$  mixed oxide.

After the reaction experiments, the U,Zr and O-concentration in the Zircaloy cladding was determined by a Scanning-Auger Microprobe Analyzer. The  $\alpha$ -Zr(O)<sub>a</sub> phase, which contains some U, has a maximum oxygen content of 8 wt.%. The initially formed metallic (U,Zr) alloy is transformed due to oxygen uptake into a uranium rich (U,Zr) $O_2$  mixed oxide, which has an oxygen content of about 12 wt.%.

The combined external Zircaloy/oxygen and internal  $UO_2$ /Zircaloy interactions can be described by the model PECLOX /2/. The model is able to predict the thickness of the various reaction layers and the oxygen distribution in the individual phases in dependence on temperature and time.

- In parallel to the experiments described before the oxidation of Zry tube sections was investigated in various (Ar +  $O_2$ ) gas mixtures in a tube furnace. These experiments were made under isothermal conditions and with exact temperature measurement using thermocouples. The thicknesses of the  $\alpha$ -Zr(O) and  $ZrO_2$  reaction layers serve as reference values of the  $UO_2$ /Zry interaction experiments in the MONA test apparatus. A comparison of the test results shows that the pyrometer measured temperatures in the MONA test apparatus are too low by about 50-70°C. The necessary corrections of the test results have still to be made. The oxygen concentration in the gas mixtures, which was varied between 10 and 100 vol.%, has no influence on the Zircaloy/oxygen reaction kinetics.

- The induction-heated melting apparatus LAVA was put into operation and first temperature calibration experiments were performed. The temperatures in the experiments were measured by a pyrometer and were compared with thermocouple measurements. The thermocouples had been placed into the crucible wall and into the crucible bottom; the crucible consists of  $UO_2$  and accommodates the liquid Zry melt. Later in the dissolution experiments the temperature will be determined only by a pyrometer and will then be corrected.

#### Plans for future work

- Evaluation of the temperature transient  $UO_2$ /Zircaloy-reaction experiments under oxidizing conditions.
- Improvement and verification of the model PECLOX.
- Determination of the rate of dissolution of solid  $UO_2$  by liquid Zry in the LAVA melting apparatus.
- Fabrication of  $UO_2$ /Zry/Inconel 718 reference melting specimens of defined initial composition to describe the reaction behavior of the bundle components in complicated meltdown experiments.

#### References

- /1/ P. Hofmann, D. Kerwin-Peck; " $UO_2$ /Zry-4 Chemical Interaction from 1000 to 1700°C under Isothermal and Transient Temperature Conditions", Journal of Nuclear Materials, 124 (1984) 80-119.
- /2/ P. Hofmann, H.J. Neitzel; "External and internal Reaction of Zircaloy Tubing with Oxygen and  $UO_2$  and its modeling", 5th International Meeting on "Thermal Nuclear Reactor Safety", Sept. 9-13, 1984, Karlsruhe FRG.

06.01.16/20A Out-of-pile Bundle Experiments on Severe Fuel Damage (CORA)  
/21A  
PNS 4251/52 (S. Hagen, K. Hain, W. Butzer, A. Grünhagen, J. Hanauer,  
G. Harbauer, W. Lange, W. Leiling, H. Malauschek, N. Paroth,  
F. Schloß, T. Vollmer, K.P. Wallenfels; IT  
B. Buescher; EG&G, Idaho)

### Work performed

Construction of the CORA-facility:

Completion of the CORA-facility is going on: The quench unit was finished and installed into the containment. Installation of the tubing is finished to 80%. The control board is in construction. The computer software is finished and can be tested after completion of measuring and control hardware. Construction of the fuel rod simulators have started. The steam superheater concept for 1000 °C steam was expanded on the alternative use of steam and argon.

Preliminary tests in the NIELS-facility:

The investigation of the escalation of temperature due to the Zircaloy-steam reaction was continued. To understand the influence of the hydrogen generated in this reaction, tests in Ar/steam, Ar/O<sub>2</sub> and Ar were performed. The amount of oxygen was the same in the two first tests and the electric power profile was equal in all three tests. In the Argon/Oxygen test no H<sub>2</sub> is developed as in the Ar/steam test. The experiment in pure Argon should allow a better determination of heat losses. For the determination of hydrogen, a quadrupole mass spectrometer was installed.

During the second half of 1984 the investigation of the influence of absorber rod materials on the damage mechanism was started. A bundle of 3x3 fuel rod simulators with central absorber rod was heated to about 2000 °C. The 80Ag15In5Cd-alloy was clad with SS and surrounded by a Zircaloy guide tube. The guide tube was centered by a Inconel 718 spacer. Within the exhaust line the aerosols leaving the bundle were collected on a filter.

### Results obtained

Comparison of the tests in Ar/steam and Ar/O<sub>2</sub> shows a much steeper escalation in oxygen. During the steep temperature rise in steam, a solid oxide envelope forms on the fuel rod simulator. Also, during the escalation in steam, a large increase in the production of H<sub>2</sub> was observed. In oxygen, the temperature escalation was so fast that most of the zircaloy cladding was not yet oxidized when the melting temperature was reached. The liquid zircaloy dissolved most of the UO<sub>2</sub>-pellet and

the oxide layer, developed during heatup, must have been dissolved or swept away by the melt. In the middle hot region, only the tungsten heater was left.

There are two possible reasons for the faster escalation in oxygen: 1. The larger heat of reaction, 2. The absence of hydrogen. By means of accurate calculations of the temperature behaviour considering each of the different effects, we are trying to separate the contribution from each effect. The post test investigation of the absorber bundle shows an significant influence of absorber on the damage behaviour. The absorber rod, the zircaloy guide tube and the spacer have melted. The major part of these structural materials have formed a lump in the lower part of the bundle. During the test a remarkable aerosol development was noticed. On the filter in the exhaust line a dense condensate was found. Analysis of this condensate showed a preferential contribution of Cd. The condensate consists of 91% Cd, 3,4% Ag and 0,5% In. The other analyzed materials U, Zr, Fe, Mn, Cr and Ni gave all values for below 1%.

#### Plans for future work

At the end of the first half year all components should be installed. Then the facility trial tests can be started.

The investigation of absorber rod material is continued. Posttest investigation of the absorber test ABS-1 will be done. Further absorber tests with lower maximal temperatures are planed, to investigate the damage development with temperature.

06.01.16/19A Long Term Coolability of Severely Damaged Cores (COLD)

PNS 4250 (G. Hofmann, H. Schneider; IRB)

#### Work performed

A test rig was constructed that allows to perform dryout experiments in particle beds of 60 mm diameter and up to 1000 mm depth. In addition to the usual temperature measurement the axial pressure profile in the bed can be measured stepwise prior to and during the dryout transient. The hydraulic boundary conditions for the replenishment with coolant can be varied; especially the driving head for bottom inlet flow is adjustable.

A great number of dryout experiments has been performed. The bed consisted of 3mm-spheres and was 60 mm in diameter. Its depth has been varied so far between 100 cm and 57 cm. Below the dryout power and during the pre-dryout transient the pressure profile has been measured in 5 axial steps. In addition for the 100 cm - bed the axially averaged saturation was determined for several power levels. It has



been investigated if the dryout heat flux depends on the size of the power step that initiates the dryout transient. With a limited number of tests the influence on the dryout heat flux of a 5 cm-layer of 1 mm - particles on top of the 3 mm - spheres was investigated.

#### Results obtained

A quantitative and comparative evaluation of the test results is still to be done.

As first qualitative results can be reported:

- for 3 mm-particles there is no considerable influence on the dryout heat flux from bed heights between 57 and 100 cm.
- the measurement of the axial pressure differences in the bed has been proven as a very sensitive and helpful instrument to early recognize the pre-dryout transient and in addition it generates data on the permeability of the bed for a two-phase countercurrent flow.
- a layer of 1 mm-particles on top of a bed of 3 mm-particles with a horizontal layer resulted in an unexpectedly low dryout heat flux.

#### Plans for future work

Continuation and evaluation of dryout experiments on the influence of the bed depth on the dryout heat flux for top-fed situations in a bed of 1 mm-particles. Experiments with variable natural convection bottom inlet flow through a permeable support structure.

#### References

G. Hofmann: On the Location and Mechanisms of Dryout in Top-fed and Bottom-fed Particulate Beds;  
Nuclear Technology, Vol. 65 (Apr. 1984), p. 36.

- 06.01.17            Investigations on the Accident Behavior of Advanced  
                          Pressurized Water Reactor (FDWR)
- 06.01.17/16A        Flooding and Deformation Behavior of Closely Packed  
PNS 4240            Hexagonal Fuel Rod Bundles  
                          (F.J. Erbacher, W. Just, P. Schäffner, H. Schmidt, E. Vogel  
                          K. Wiehr; IRB)

Work performed

- Fabrication and instrumentation of full-length electrically heated fuel rod simulators with cosine shaped axial profile.
- Development of electrically heated fuel rod simulators for CHF-tests in Freon.
- Single rod burst tests on shortened SS-cladding tubes up to burst temperature of approx. 1250°C.

Results obtained

The test results obtained up to now of single rod burst tests on SS-claddings in steam and constant heating rate of about 5 K/s allow the following conclusions:

- The burst temperatures of SS-claddings (material 1.4970, 10.1 x 0.4 mm) are higher by about 200 K compared to Zircaloy claddings (10.75 x 0.725 mm).
- Smooth SS-claddings and those with helical fins show identical burst temperatures.
- The maximum circumferential burst strains of smooth SS-claddings amount to about 75% at high temperatures.
- Helical fins on SS-cladding tubes limit the maximum circumferential burst strains to about 20%.

Plans for future work

- Assembly and instrumentation of the 61-rod test bundle.
- Bundle tests with flooding on a 61-rod bundle.
- Single rod burst tests on smooth SS-cladding tubes and those with helical fins.
- Fabrication of electrically heated fuel rod simulators for CHF-tests in Freon.
- Contribution to modeling of the flooding behavior of closely packed hexagonal rod bundles in cooperation with IKE.

06.01.17/17A Investigations on the Influence of Oxide Fuel and Fission  
PNS 4242 Products on the Mechanical Properties of Steel Cladding Tubes  
(P. Hofmann, U. Liesenfeld, J. Burbach, Ch. Gosgnach,  
H. Metzger, H. Schamberger; IMF I

#### Work performed

Short-term creep rupture tests performed from 800 to 1200°C with fission-product containing 1.4970 tube specimens. Determination of the influence of various oxygen.

#### Results obtained

The major results of the experiments involving iodine, selenium, tellurium and cesium will be reported below:

- Iodine causes at high concentrations above 100 mg/cm<sup>3</sup> a marked reduction in the time-to-failure but only a small reduction in the burst strain compared to the reference specimens. Lower iodine concentrations extend the time-to-failure. High oxygen potentials such as the oxygen potentials of MoO<sub>2</sub> or NiO<sub>2</sub>, greatly intensify the influence of lower iodine concentrations (1 mg/cm<sup>3</sup>). The time-to-failure and burst strain of the steel tube specimens decrease.
- Selenium influences the time-to-failure and burst strain of tube specimens similar to those of iodine (100 mg/cm<sup>3</sup>). Also in this case, even minor concentrations in combination with an oxygen potential cause a pronounced reduction in time-to failure and burst strain.
- Tellurium in direct contact with the steel cladding tube has a catastrophic influence on the time-to-failure and burst strain. The possibly underlying mechanism must be attributed to liquid-metal embrittlement. Preliminary tests which allow to attack the steel via the gas phase only have so far yielded useful results at elevated temperatures only (> 1000°C).
- Metallic cesium with low oxygen contents does not attack Cr-Ni steels, not even at elevated temperatures. Therefore, the Cs<sub>2</sub>O and Cs<sub>2</sub>Te compounds were selected in order to determine their influence on the time-to-failure and burst strain. The results show that Cs has a pronounced influence on the time-to-failure and burst strain of the specimens only in combination with oxygen. The influence of Cs on the mechanical properties of the tubing increases with increasing oxygen potential.

Plans for future work

Continuation of the creep rupture tests with 1.4970 tubing containing iodine, selenium, tellurium, and cesium and extension of these tests to longer service lives.

06.01.17/19A      Investigation of the Mechanical Behavior of Cladding  
PNS 4244            Material for APWR  
                      (C. Petersen, H. Schneider, W. Schweiger; IMF II)

Work performed

- Tensile tests on rod samples from austenite, W.Nr. 1.4970 and tempered martensitic ferrite, W.Nr. 1.4914 respectively had been performed in a temperature range between 600°C and 1000°C in steps of 50°C at a strain rate of  $3 \times 10^{-4} \text{ sec}^{-1}$  in air atmosphere.
- Creep tests under vacuum had been performed in a temperature range between 600°C and 900°C on the same materials at stresses from 10 to 350 MPa.

Results obtained

- The up to now available values of flow stress and ultimate tensile stress from the austenite (W.Nr. 1.4970) under the same thermomechanical pretreatment but another heat, could be confirmed with the new own test data. The behavior of uniform strain and total strain was found to be different. Mainly in the temperature range between 600°C and 800°C a faster decrease in uniform strain was observed, than by the other heat, which was tested before under the framework of PSB (Fast Breeder Project). The minimum in uniform strain between 800°C and 900°C could either be confirmed. At 1000°C much lower values of uniform strain ( $\sim 5\%$ ) could be found than those  $> 15\%$  of the reference heat. Also the total strain data of the tested heat remained until 900°C on a lower strain level of 10-12% and increased above 950°C up to values of 50%.  
Experimental data of the tempered martensitic ferrite (W.Nr. 1.4914) had been available from PSB-project up to 800°C. The values of flow stress and ultimate tensile stress could be confirmed by our experimental data. The rapid decrease of flow stress and ultimate tensile stress with increasing temperature is stopped by reaching the ( $\alpha + \gamma$ ) two phase region (825°C - 905°C). Even a slight increase of both stresses in the two phase region occur. Above 900°C until 1000°C the stresses are close

Plans for future work

- Continuation of uniaxial tensile and creep tests up to temperatures of 1200°C.
- Study of the precipitation behavior in this temperature range.
- Determination of constants from the data base to install these into failure models for predicting material behavior.

PNS-Subproject 4300 - Investigation and Control of LWR Core-Meltdown Accidents

- 06.01.11            Reaction Behavior, Activity Release and Transport of  
                    Fission Products during Core-Meltdown
- 06.01.11/29A        Investigations on the Interactions of Fission Products  
PNS 4311            and Aerosols in LWR-Containments  
                    (H. Bunz, M. Koyro, W. Schöck; LAF I)

Work performed and Results obtained

A multi-compartment version of NAUA was developed which operates with arbitrary intercompartmental flow patterns. The need for such a code had become obvious during the calculations of the AB- $\beta$ -sequence for the ANS Source Term Study which were performed in cooperation with SWEC, Boston, last year. This case was one of the very few for which the input data for a multi-compartment calculation had been made available. The comparison with a single-compartment calculation of the same case, however, showed very little differences in the accumulated leakage.

A NAUA participation has also been established in two international code comparison exercises which are organized within the OECD and CEC. These exercises will be of the benchmark type.

Construction work and preparation for DEMONA was completed. Considerable time was spent for testing and optimizing of the aerosol generators using various materials and operation modes. During these tests also the measurement techniques were improved.

Two dry and one wet experiments have been conducted with tin oxide aerosol. The peak aerosol concentrations were 6,12 and 8 g/m<sup>3</sup>, respectively. For the dry tests a very good agreement with NAUA calculations was observed. The calculation of the wet test still raises problems with the thermodynamic input data. Qualitatively a very much increased aerosol removal rate was observed during the wet test as a result of condensational particle growth.

A study on the influence of resuspension from the containment sump on the source term was performed. A literature search showed that the mechanisms are incompletely understood and that the data base scatters over two orders of magnitude. Parameter calculations with NAUA resulted in non-negligible contributions of resuspended fission products to the source term in all cases. Further the relative importance of fission products may be altered.

### Plans for future work

The DEMONA experiments will be continued in 1985. Work on the resuspension problem will continue, specific experiments under core melt accident conditions are scheduled to begin 1986.

06.01.11/30A Constitutions and Reaction Behavior of LWR Materials  
PNS 4314 at Core Melting Conditions  
(A. Skokan, K. Biemüller, G. Reiser, G. Schlickeiser; IMF I)

### Work performed

1. Final constitutional investigations in the U-Zr-O system at temperatures between 1500 and 2000°C.
2. Final laboratory scale experiments on the interaction of a steel melt with high-density concrete, containing iron oxide aggregates.
3. Examination of samples in the frame of the BETA experiments, drawn from the melt as well as from the cut crucible after cooling down.

### Results obtained

- Reg. 1: Tentative isothermal sections at 1905 and 1950°C of the U-Zr-O system were proposed on the basis of literature data and some own experimental results. Two further temperature-concentration sections (Zr-UO<sub>2</sub> and Zr<sub>0.5</sub>O<sub>0.5</sub>-UO<sub>2</sub>) were established at temperatures up to 1900 and 2000°C, resp., in order to enable the inspection of the phase relations between zirconium and urania with increasing oxygen partial pressure.
- Reg.2: The earlier results regarding the decrease of the hydrogen production due to the chemical reactions of the iron oxides with the melt were confirmed by continuous mass spectrometric gas analyses during laboratory scale interaction tests between high-density concrete and steel melt.
- Reg.3: The thermite mixture, the fireproof casing of the pouring spout and the melted concrete of the crucible were characterized, yielding reference data of the starting materials and for the chemical reactions. Numerous analyses of the specimens from the immersion probe facility and from the cooled down crucible indicated for the oxide melt increasing concentrations of concrete constituents (CaO, SiO<sub>2</sub>) and of oxida-

tion products of the iron melt (iron oxides), and decreasing concentrations of  $\text{Al}_2\text{O}_3$  and  $\text{MgO}$  (initial thermite melt and casing material), with increasing duration of the test. These results demonstrated the usefulness of the immersion probe sampling for the accompanying investigation of the reaction and intermixture kinetics. The amount of metallic melt droplets trapped in the oxide melt shows downward tendency with increasing duration of test. The reaction rate is rather high during the first minutes of the interaction and then decreases continuously.

#### Plans for future work

Continuing examinations of samples from the BETA experiments.

06.01.11/31A Experiments on Determination and Limitation of Fission  
PNS 4315 and Activation Product Release during Core Meltdown  
(H. Albrecht, K. Nolte, K.H. Simon, H. Wild; IRCH)

#### Work performed

- Investigations on the AgI formation in the gas phase.
- Experiments on the transport and deposition behavior of  $\text{I}_2$  in the SASCHA facility.
- Shut-down of the SASCHA facility.
- Preparation of a final report.

#### Results obtained

- When the aerosol precipitates were subjected to solubility tests in water and sodium thiosulphate ( $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ ), strong indications for the AgI formation in the gas phase were found. The occurrence of this reaction was confirmed also by applying the XPS method (Auger Electron Spectroscopy) for the direct detection of AgI molecules.
- The integral fraction of I being present in the form of AgI was found to range from 2 to 33%. It is concluded that high fractions of AgI can be expected only if the time functions of the Ag and I evaporation are sufficiently overlapping. This, in turn, depends on various parameters such as initial chemical form of I, composition of the atmosphere, heatup characte-



ristics, and -of course- initial concentration of both elements.

In those test phases where the mass concentration of Ag in the gas Phase was higher than the concentration of I (at temperatures  $\geq 1800^{\circ}\text{C}$ ), between 15 and 80% of the iodine was found to react with silver.

- The results on the transport and deposition behavior of iodine are mainly needed for the correct interpretation of the gaseous iodine fractions in the SASCHA tests:
  - In atmospheres of Ar + 5% H<sub>2</sub> the interaction of I<sub>2</sub> with all components of the aerosol transport system was small (less than 5% retention). In addition, the iodine precipitation on the fiberglass filters and on the sintermetal-frits supporting the filters was less than 1%.
  - In a steam atmosphere, however, transportation losses in the range of 20 to 40% were found which were mainly due to the iodine retention on stainless steel surfaces.
- As similar results were obtained from investigations with HI it is concluded that the amount of iodine arriving at the iodine filter corresponds within a factor of max. 2 to the total amount of gaseous iodine in the aerosols system.

- 06.01.12 Investigation on the Interaction of Steel Melts  
and Concrete
- 06.01.12/30A Erosion of Concrete by Steel Melts Investigation of the  
PNS 4325 Melt Front Velocity  
(S. Hagen, A. Grünhagen, H. Malauschek, K.P. Wallenfels; IT)

#### Work performed

After completion of the BETA facility 3 trial tests were run. The original BETA crucibles were used. About 300 kg melt were poured from the reaction vessel into the crucible. The first test was done without induction heating, the second with 0.4 MW for 2600 sec and the third with 1.7 MW for 800 sec. For the investigation of the influence of induction two further tests with pulsed heating was done. During the first test there was about 20 kg melt and during the second test about 200 kg melt in the crucible. The electric power input was about 100 and 400 KW. Four further tests according to the test matrix were done.

#### Results obtained

The 3 trial tests demonstrated the reliability of the BETA-facility. In particular, the reliability of the measuring methods used to determine melt front propagation in the strong induction field was varified. The data evaluation system worked successfully.

For the BETA-tests the melt is kept by inductive heating on a constant temperature. From the failure time of the thermocouples and the cross sections of the crucibles we got the following results: The melt front penetration is preferential in the axial dirction. In the radial direction the penetration is limited to a few centimeters and take place at the beginning of melt interaction.

In axial direction for constant power input we also got constant melt front progression (0.18 mm/sec for 300 KW and 1 mm/sec for 1700 KW).

The tests with pulsed heating confirm that the magnetic Lorentz forces have no influence on the shape of the melt front progression.

The cross sections show, that for tests with high electric power input the metallic phase is dispersed into the oxidic phase by the strong gas release. For the tests without additional heating we got a distinct segregation of the two phases.

#### Plans for future work

The tests are continued according to the test matrix.

06.01.12/31A Experiments on the Interaction between Steel Melts  
PNS 4323 and Concrete

(D. Perinic, R. Döbele, M. Hespeler, W. Höhn, B. Kammerer,  
U. Kirchhof, W.D. Klotz, H. Lukitsch, A. Mack, N. Paroth,  
G. Prokott, R. Töpfer, K. Trautwein, D. Zimmerlin; IT)

#### Work performed

1. Concept, planning, construction and operation of the BETA test facility for experiments on the interaction of steel melts and concrete.
  2. Development and acquisition of the measuring technology for the facility.
  3. Planning, preparation, implementation and evaluation of experiments.
  4. Coordination of construction measures including the licensing procedure.
- Work relating to 1-4 has been carried on and completed meanwhile.

#### Results obtained

Final acceptance of the BETA facility took place on April, 1984 which is now available for experimental operation. In three melting experiments the proof was furnished that the facility is operative. In test A1 on February, 1984 we ignited 600 kg thermite mixture, 300 kg metal melt were poured off into the concrete crucible. The performance of the thermite cast system and the fumes suction system was demonstrated. The induction power was connected for only some seconds for trial. In test A2 on March, 1984 likewise 600 kg thermite were ignited and 300 kg metal poured off. An induced melt power of 400 kW at the maximum was set. This power reduced to approximately 250 kW, despite a constant setting of the inductor voltage, until the end of the test (electric switch off of the facility) after 43 minutes. It was possible to raise temporarily the inductor power to 6625 kW at the maximum. The manufacturer

in this way furnished the proof of an induced melting power of 180 kW. In test A3 on April, 1984 we ignited 600 kg thermite, 300 kg metal melt and 150 kg oxide melt were poured off. While the inductor voltage was kept constant, an inductor power of 6302 kW at the maximum was supplied. Approximately 1690 kW of this power were coupled into the molten pool. The power continuously dropped until switch off which took place automatically by response of a light pipe of the crucible rupture monitoring system provided in the crucible bottom.

Contrary to expectation, the crucible cavities exhibited a much stronger vertical than horizontal propagation of the melting front. The depth of vertical penetration of the melt front into the concrete was 45 mm in A1, 454 mm in A2, and 562 mm in A3; the depth of horizontal penetration was 39 mm in A1, 103 mm in A2 and 75 mm in A3. The crucible lining resisted perfectly these loads. Despite strong induction fields the MSR technique, on the whole performed satisfactorily, Initially, there were problems with the immersed probe temperature measurement. After performance had been evidenced, the immersed probe system was finally accepted.

06.01.12/32A Hydrodynamical and Thermal Models for the Interaction of  
PNS 4331 a Core Melt with Concrete  
(M. Reimann, S. Stiefel; IRB)

#### Work performed

- Pre-test and post-test calculations of the BETA experiments.
- Implementation of a simplified film model in the WECHSL code.
- Modifications of the heat transfer modelling in WECHSL.
- Implementation of the containment codes.
  - . CONDRU (GRS)
  - . COCMEL (KWU)
- Programming work for the iodine model.

### Results obtained

For shortening the CPU time of WECHSL, the film model for the description of the heat transfer from the core melt to the concrete has been approximated by empirical functions. By this measure, the CPU time of a WECHSL run when applied for the core melt accident can be shortened by approximately 50 %. Recently, the experimental operation of the test facility BETA was started.

In the experiments with sustained heating, an unexpected preference of the vertical melt front propagation had been observed. Consequently, an enhanced heat transfer mechanism seems to exist in the bottom region of the crucible, as it could occur during the transition from a stable gas film to a mode characterized by discrete bubbles detaching from the concrete surface.

Till now, the stability criterion for the gas film as given in the boiling literature has been used and it was found in the computations the heat transfer is governed by the gas film. The resulting value for the minimum gas mass flux density was now multiplied by an empirical factor  $F > 1$ . If the mass flux density drops below this new limiting value, the bottom area covered by the gas film is increasingly reduced and correspondingly, the quenched bottom area is enlarged. In the vertical wall region, the gas film governs further the heat transfer. If the solidification temperature of the melt layer is approached, the heat transfer is governed by the growing crusts.

With this modified modelling of the heat transfer, post test calculations for the first four BETA tests with sustained heating could be carried out successfully under variation of the empirical factor  $F$ .

If the heat transfer modifications are applied on the core melt accident in reactor dimensions, for  $F \gg 1$  a strongly enhanced erosion rate in vertical direction is found in the initial phase of the interaction when compared with the case  $F = 1$ . However, the sensible and latent heat of the melt pool is consumed faster and consequently, freezing phenomena set in earlier reducing the downward penetration. When the cavity formation is computed over a sufficiently long period of time, rather similar cavity shapes are found in both cases.

### Plans for future work

- Further development of the physical models.
- Computations of simulation experiments and of core melt accidents.

06.01.12/33A Development of Models for the Analytical Determination of  
PNS 4334 Core Meltdown Accidents  
(H. Alsmeyer, K. Dres; IRB - H. Benz, M. Oehmann,  
E. Schönthal, H. Ziegler; KTB)

Work performed

- Test of the BETA experimental facility.
- BETA experiments on the high temperature core melt-concrete interaction.

Results obtained

The operational tests have been carried out in early 1984. In three experiments, the equipment and measurement systems have been successfully tested. By sustained induction heating, a net input power between 300 and 1700 kW could be coupled to the melt in accordance to the planned data. Melt generation and off-gas system were operated safely.

Due to a somewhat unexpected melt front propagation where the downward propagation of the melt was observed to be dominating, a special pulsed heating experiment was conducted in BETA. This experiment, additional to early experimental and theoretical investigations, proved that the influence of magnetic Lorentz forces on heat transfer and melt front propagation is negligible.

Further experiments following the test matrix investigated high temperature interaction with siliceous concrete for various heating power level to the melt. The following characteristic results were found:

Downward propagation of the melt into the concrete is dominating for the high temperature interaction while the melt is liquid, whereas sideward penetration is limited to some centimeters only. From the propagation rate of up to 1 mm/s downward heat transfer rates are derived which are by a factor of 2 higher than reported from earlier transient experiments. Therefore, a modification of heat transfer modelling was necessary (cf PNS 4323). The high release of gases from concrete decomposition produces entrainment of the metallic phase initially at the bottom into the oxidic phase. As this process is mostly influenced by the superficial gas velocity and viscosity and density of the melt phases, it is strongly dependent on the melt temperature. With respect to the core melt-down accident, the stability of the dispersed phases must be evaluated at reduced gas rates.

The release of aerosols from melt/concrete interaction measured in BETA by laser absorption and sample analysis results in a rather low aerosol concentration in the off-gas of less than  $10^{-2}$  g/m<sup>3</sup> for siliceous concrete as used in BETA up to now, and further decreases at lower temperatures of the melt. Therefore it is concluded that the melt concrete interaction does not contribute to the aerosol

release into the containment. The chemical composition of the off-gas is analyzed by an on-line mass spectrometer and by gas probes. The gases released from the melt surface are  $H_2$ , CO,  $CO_2$ , and  $H_2O$  with hydrogen as the main component. The released gas rate is reduced as the melting rate of the concrete reduces with decreasing temperature, while the composition of the gas changes slightly only.

#### Plans for future work

Further BETA experiments and their interpretation to verify existing computer codes for high temperature melt interaction. Experiments at low melt temperatures including crust formation and solidification.

06.01. SAFETY AND ENVIRONMENTAL PROTECTION OF NUCLEAR POWER PLANTS

PNS-Subproject 4400 - Improvement of Fission Product Retention and  
Reduction of Radiation Load

06.01.14 Offgas Filters in Nuclear Power Stations

06.01.14/19A Investigations on the Occurrence and Retention of  
PNS 4414 Penetrating Iodine Species in the Exhaust Air of  
Nuclear Power Plants  
(H. Deuber; LAF II)

Work performed

- Operation of particular iodine species samplers in the stack exhaust air and other exhaust air streams of a boiling water reactor (BWR 5) during refueling outage and power operation to establish the occurrence and origin of penetrating iodine. The particular iodine species samplers permit to distinguish between organic iodine that is less difficult to retain (e.g.  $\text{CH}_3\text{I}$ ) and more difficult to retain.
- Retention of  $^{131}\text{I}$  volatilized from an alkaline aqueous solution ( $\text{p}_\text{H}=13$ ) by activated carbons and other sorbents. This iodine form is called hypoiodous acid (HOI), although no unequivocal identification exists. Reliable data on the retention of this iodine form by activated carbons were not known.

Results obtained

- As for the stack exhaust air, during refueling outage (7 weeks) the average proportion of the organic  $^{131}\text{I}$  that is less difficult to retain was about 30%, and the average proportion of the organic  $^{131}\text{I}$  that is more difficult to retain about one tenth of this value. (The rest consisted nearly completely of elemental  $^{131}\text{I}$ .) During power operation, due to the low  $^{131}\text{I}$  concentrations no reliable data were obtained. In the other exhaust air streams similar results were obtained.
- By far the largest proportion of the  $^{131}\text{I}$  volatilized from an alkaline aqueous solution was in a form (HOI) whose retention by sorbents was lower than that of elemental iodine, but higher than that of methyl iodide.



The type of the impregnated carbon and the duration of purging (up to one week) were not significant for the retention of "HOI". Thus, "HOI" should be no problem for iodine filtration.

#### Plans for future work

- Further operation of particular iodine species samplers and - with occurrence of high proportions of penetrating iodine - performance of the other investigations indicated in section 3 in BWR 5 and another BWR.
- Retention of HI and other iodine species by sorbents.

06.01.14/20A    Development and Improvement of Exhaust Air Filters for  
PNS 4415        Accident Conditions  
(H.-G. Dillmann, R. Maier, H. Pasler, H. Schmitt; LAF II)

#### Work performed

Investigations into metal fiber filters were carried on. It was possible to reproduce the tests involving vapor exposure. Additional test series were performed relating to the mass retention capability.

The necessary renovation of the TAIFUN facility was planned and the respective orders were placed.

Work on metal fiber filter development resulted in two additional tasks to be tackled in cooperation with other institutes. Activities started together with the LAF I to develop mist eliminators for programs on environmental studies. Development started of filter cartridges on the basis of stainless-steel fiber materials to be used in uranium enrichment under the separation nozzle method.

#### Results obtained

With an appropriate fiber configuration of 2  $\mu\text{m}$  fiber filters HEPA filter grades can be attained also under conditions of vapor exposure. This corresponds to removal efficiencies of  $\geq 99.97\%$  for defined particle sizes of  $\leq 0,3 \mu\text{m}$ .

The loading tests were carried on in order to determine the removal efficiencies as a function of the particle size with a view to optimizing the roughing filters and to minimizing the pressure drop while maintaining the highest possible removal efficiency and a high dust retention capability. It appeared that with growing face velocity the loadability increased within the face previously studied between 20 and 40 cm.

The new mist eliminator was applied successfully for the first time in the Taunus region under conditions of natural fog.

The investigations of filter cartridges so far used in the Separation Nozzle Project revealed comparatively low removal efficiencies of about 25% under testing conditions. These cartridges are made from sintered metal powders. Consequently, the development of fiber material cartridges has been proposed because much higher removal efficiencies can be attained with this type of cartridge. The relevant work has started.

A process guide system was selected and ordered for renovation of the TAIFUN facility. Bids have been invited for the MSR instruments and the orders will be placed in early 1985. The technical problems have already been clarified.

#### Plans for future work

The loading tests will be carried on with a view to optimizing the foughing filters. The mist collectors will be optimized under the aspect of classifying the mist droplets by sizes. Filter cartridges will be bolt, tested and optimized so as to achieve small prssure drops and high removal efficiencies.

06.01.14/21A    Investigation into the Behaviour of HEPA Filters at High  
PNS 4416        Temperature, Air Humidity and Elevated Differential Pressure  
                  (V. Rüdinger, Th. Arnitz, R. Benesch. U. Ensinger, U. Geckle,  
                  C.I. Ricketts; LAF II)

#### Work performed

- Comparison tests of the newly developed efficiency test method with two different standard procedures were performed and documented together with the results of the development work. In view of efficiency measurements at temperatures up to 200<sup>0</sup>C the test facility TAIFUN was equipped with a plama spray gun for the aerosol generation.

- The studies into the response of HEPA filters to moist air were continued. For these tests the experimental instrumentation was further improved by addition of a SLR camera and a 8 mm motion picture camera to the observation system as well as of an instrument for the determination of fog wetness. The IR-hygrometer was calibrated.
- Several hundred samples of filter media for tensile strength measurements were taken in order to verify the assumed dominating failure mechanism.
- The construction of the test facility BORA was accomplished. The computer program E-VENT was extended for modelling the transient air flow inside the facility BORA. First experiments to verify the calculations with both programs T-VENT and E-VENT were performed.

#### Results obtained

- Due to the smaller particle size the decontamination factors measured with 0,6  $\mu\text{m}$  DOP-aerosol and uranine were by factors of 2.2 and 1.5 higher, when compared with the plasma method.
- The humidity tests demonstrated that HEPA filters fail after extended exposure to air with 100% rel. humidity. The time of exposure showed a certain influence on the level of failure pressure. The amount of dust deposited in the filter only influences the extent to which the differential pressure increases across the filter, rather than the failure pressure. The highly efficient droplet separator was not able to prevent failure of the loaded filter units under fog conditions.
- The preparation for the measurements of the tensile strength are completed.
- With the facility BORA the first test program was successfully accomplished. The test runs with the modified program E-VENT were also successful. Good agreement of the experimental data with the calculations of both codes T-VENT and E-VENT was obtained.

#### Plans for future work

- The newly developed efficiency test method will be used for investigations at high temperatures.
- The humidity tests including improved prototypical filters will be continued.

- The measurements of filter-paper tensile strength will be performed and further improved filters will be tested.
- The test facility BORA will be used for the above mentioned filter testing. Additional verification experiments are foreseen.

06.01.14/22A    Investigations on the Retention of Iodine by Sorbents in  
PNS 4418        the Case of Fire  
                  (H. Deuber, V. Giraud; LAF II)

#### Work performed

- Start of operation of a combustion apparatus with connected gas sampling train; combustion of PVC cables to determine the reproducibility and to analyze the gaseous combustion products (gas chromatography).
- First tests on the retention of  $\text{CH}_3\text{I}$  by the activated carbon 207B (KI) under the influence of the synthetic combustion product HCl.

#### Results obtained

- Combustion with PVC cables:  
reproducibility sufficient; occurrence of HCl, large amounts of high-volatile organic compounds and small amounts of low-volatile organic compounds.
- Determination of the retention of  $\text{CH}_3\text{I}$  and  $\text{I}_2$  by sorbents under the influence of combustion products: Evaluation in progress.

#### Plans for future work

- Combustion of cables to be used in future cables (FRNC), lubricants and paints to determine the reproducibility and to analyze the gaseous combustion products (gas chromatography, mass spectrometry).
- Preparation and analysis of gaseous reaction products from  $\text{I}_2$  and combustion products.
- Test on the retention of  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  and  $^{131}\text{I}_2$  by various impregnated activated carbons under the influence of different synthetic combustion products ( $\text{HCl}$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{CH}_3\text{COOH}$ ) and of combustion products from the combustion of relevant materials (cables (PVC, FRNC), mineral oils, paints).

06.02. SAFETY AND ENVIRONMENTAL PROTECTION OF REPROCESSING PLANTS

PNS-Subproject 4500 - Safety of the Reprocessing

06.02.01 Incident Analysis for the Large Reprocessing Plant

06.02.01/12A Incident Analysis for the Offgas Cleaning System of the  
PNS 4513 Large Reprocessing Plant

(K. Nagel, S. Fenyi, G. Weber, H. Wenzelburger; IDT)

Work performed

- Calculating deterministically the release of iodine and aerosols under different conditions using the PASSAT facility.
- On the basis of diffusion the adsorption of water, krypton and xenon on special adsorber beds have been described.
- Theory to calculate the amount of iodine in PASSAT under the following failures:
  - a) two causes of failures (heater 1 failed before heater 2, heater 2 failed before heater 1)
  - b) see a) and failure of the power-light system.
- Stochastic model for calculating the released amount of iodine using an arbitrary sequence of failures and several causes of failure.
- A procedure for the numerical inversion of a two-dimensional Laplace-Stieltjes transformed using number-Theoretical methods.

Results obtained

- The released amounts of aerosols are very low normal conditions. The release of iodine in the most serious accident depends on the used dissolution process. The release is nearly a factor of 10 higher using dosage of acid compared to batchwise dissolution
- The adsorption of water as well as the coadsorption of krypton and xenon can be described using diffusion models.
- The failure of the power-light system gives a release of iodine which is two to three orders of magnitude higher than in all other failures.

Plans for future work

- Additional investigations in the adsorption of water, krypton and xenon.
- The investigations with the stochastic models to calculate released amounts of iodine were terminated.

06.03            MITIGATION OF CONSEQUENCES

PNS-Subproject 4800 - Behavior, Impact and Removal of Released

Nuclear Pollutants

06.03.01            Investigation of the Physical and Chemical Environmental  
Behavior of Radionuclides Characterized by a Particular  
Biological Effectiveness

06.03.01/11A       Investigation of the Physical and Chemical Environmental  
PNS 4812            Behavior of Radionuclides Characterized by a Particular  
Biological Effectiveness

(H. Schüttelkopf, W. Schmidt, T. Liese, M. Pimpl,  
G. Gamer, G. Hefner, J. Hiller, T. Sollich; HS)

Work performed

- An analytical procedure for the determination of Np in Environmental samples parallel to Pu, Am, and Cm was developed.
- The releases of Pu with gaseous and liquid effluents of the Karlsruhe reprocessing plant were measured monthly.
- Experiments were continued to increase the mobility of actinides in soil columns.
- The measurement of transfer factors soil to plant for Pu, Am, Cm, and Np in a green house was continued.
- Investigations on the field of conventional soil analysis were continued.

Results obtained

- With Np.239 as a tracer an analytical procedure was developed which allows the determination of Np in environmental samples in parallel to Pu, Am, and Cm.
- In total, 20 soil columns of 30 cm diameter and 80 cm of length were taken undisturbed at 9 locations of different soil types, which were important for agricultural use. The migration velocity of the water front was measured with HTO as tracer and the salt concentration in the percolated water was analyzed monthly, before the soil columns were contaminated 4 cm below the surface with Np, Pu, Am, Cm, and Tc. By irrigation with water the Tc moved

through the soil columns and was washed out with the percolating water within 14 days nearly complete. Per technetate is eluted without retention in the same way as HTO is. Subsequently, the soil columns were irrigated with a DTPA-solution for 2.5 month. During this time, most of the Np, Pu, Am, and Cm migrated through the columns as DTPA-complexes. At the time being, the columns are irrigated with water to wash out excess DTPA, before a recultivation by a systematic fertilization can be started up.

- The measurement of the soil to plant transfer was continued on three soils: a chalk weathering soil, a granite weathering soil, and a sandy soil. The second vegetation period lasted from November 83 to March 84, the third one from March to November 84. In addition to the 4<sup>th</sup> vegetation period of potatoes, maize, and spring wheat some other crops become cultivated in additional installed pots and lysimeters. The edible parts of the crops from the first and second vegetation period were analyzed. Except for grass, the transfer factors measured deviate considerably from those which are recommended for the estimation of long-term exposure of man in the Federal Republik of Germany. In additional investigations the toxic effect of heavy metals in soils on plants was determined. Low amounts of Pb, Co, and Cr were mixed in a sandy soil and grass was cultivate. This elements were used as stable tracers for the radioecological important nuclides Pb-210, Co-60, and Cr-51. It could be shown that even very low heavy metal concentrations in the soil reduce the plant development in relation to cultivation on untreated soil. The soil pH was raised by mixing chalk into the soil and the experiments will be repeated under these changed conditions. A similar investigation to prove the toxic effect of Np on grass showed that there is no change in water consumption and plant material production up to a Np concentration of 30 Bq/g soil.
- Procedures for the determination of main- and trace-elements in soils and plants using ICP and AAS were developed. Several methods to decompose the samples and procedures to extract the elements of interest were proved and optimized. At present, 46 elements can be measured in soils and plants. In addition, procedures are developed for the determination of phosphate, nitrate, sulphate, and other anions in soil and plant samples using ion-chromatography.

Plans for future work

The monthly measuring of the releases of Pu from the Karlsruhe reprocessing plant and the determination of the actinide concentrations in the environment of this plant will be continued as well as the experiments to increase the mobility of actinides in soil and the work on conventional soil analysis. The measuring of transfer factors will be continued and extended.

06.03.01/12A    Microbiological Influences on the Mobility of Radionuclides in  
PNS 4813        Soils and Sediments  
                  (S. Strack, A. Müller, A. Riedl; HS/R)

Work performed and results obtained

Laboratory tests have been performed to study the immobilization of iodine in soil columns. Non-treated soil of the humic horizon with the natural microbiological cover shows a very rapid immobilization resulting in a more than 90% fixation of the applied iodine within the first few hours of the experiment. The exponentially decrease of soluble iodine was characterized by a half-life of about 22 min. In sterilized soil (autoclaved 20 min, 121°C) the rapid immobilization process could not be observed. To compare sterilized soil and soil and soil subjected to identical physical treatment, but with microbiological activity, autoclaved soil was reinoculated with an extract of soil organisms and incubated for five days before application of the iodine. The resulting experimental curves show a significant acceleration of the fixation compared to the sterilized soil.

A compartment analysis of the data gained with the 'non-treated' soil and several attempts of a description by various kinetic models revealed, that the immobilization of iodine is a result of at minimum three processes with different velocities, representing obviously biotic as well as abiotic reactions. The microbiological influence becomes evident in the significant acceleration of the immobilization in the re-inoculated soil. Moreover, several indications exist, that the rapid fixation in the non-treated soil is of biotic origin.

The investigations have been terminated.



- 06.03.03 Investigation of Radiological Impact of Reactor Accidents  
under Probabilistic Aspects
- 06.03.03/16A Off-site Accident Consequence Model for Nuclear Facilities  
PNS 4831
- 06.03.03/18A Investigations of Special Problems in Assessing Off-site  
PNS 4834 Accident Consequences  
(A. Bayer, J. Braun, K. Burkart, J. Ehrhardt, F. Fischer,  
O. Graf, E. Meder, J. Päsler, H.-J. Panitz, C. Steinhauer,  
U. Zöller; INR)

#### Work performed and Results obtained

The further development of the off-site accident consequence model UFOMOD has been concentrated on the improvement of the atmospheric dispersion model, shielding factors of buildings for external radiation, behaviour of radionuclides in foodchains and countermeasures to mitigate the radiological impact. In addition methods for sensitivity and uncertainty analyses have been investigated in cooperation with GRS. Important parts of future accident consequence studies will be the completing presentation and analysis of intermediate results (activity concentrations, radiation doses), for which supplementary evaluation and plot subroutines have been developed to complete the code system UFOMOD/B4.

To identify dispersion models suited for accidental releases of pollutants, comparative and validation calculations have been initiated with participants of German and foreign institutions. In several meetings benchmark problems have been defined which cover simple dispersion conditions up to stationary conditions and complex atmospheric stratifications. The evaluation of the comprehensive calculational results is under way.

The QAD-CG-E code was developed to calculate shielding factors for buildings of any 3-dimensional complexity. Additionally the new PICTURE-CG program is able to draw any slices through building structures including isodose - lines. A comparison of QAD-CG-E results with more sophisticated methods is done ( $S_N$ -transport code DOT 4.2 at IKE Stuttgart, G. Hehn) or in hand (Monte-Carlo code SAM-CE at University of Hannover, H.G. Vogt). For the purpose of validation of  $\gamma$ -shielding codes in use in the European Community extensive benchmark calculations were performed. A CEC report concerning the benchmark results and evaluation is in preparation.

With respect to the revision of the ingestion pathway, the computer code FOODMARC of the NRPB accident consequence model has been implemented. According to its dynamic modelling, it allows to treat seasonal dependencies and to consider a large number of foodstuffs. Comparative calculations with the WASH-1400 model, which is at present included in UFOMOD, demonstrated the influence of improved modelling and data on the results of accident consequence assessments.

#### Plans for future work

The countermeasures model and its intervention levels are under discussion with various public authorities. To judge and improve the present concept, detailed analyses and parameter studies have to be performed to show the most important dependencies which influence the radiation doses to be expected. Detailed evaluations of accident consequence scenarios are and will be performed to minimize the remaining risk by optimizing the administrative and medical emergency actions.

06.03.03/17A    Methodology for Evaluating the Radiological Consequences  
PNS 4833        of Radioactive Effluents Released in Accidents  
                 (P. Witteck; HS; P. Hosemann, PNS-PL)

#### Work performed

Within the framework of the research project "Methodology for Evaluating the Radiological Consequences of Radioactive Effluents Released during Accidents", supported by the European Community, several projects listed in the Annual Report PNS 1983 (KfK 3450) are pursued on a bilateral level by the NRPB (National Radiological Protection Board, UK), and KfK (INR and HS). Within the Project "Atmospheric Dispersion Including Topographical Effects" two different methods have been applied to classify the topographical complexity of nuclear facility sites. For several sites selected under orographical aspects calculations have been performed with the accident consequence model UFOMOD. The orography was taken into account by a height correction of the effective plume height.

As a contribution to the Project "Meteorological Sampling" two sampling schemes proposed by NRPB have been implemented in UFOMOD for testing purposes.

Results obtained

A comparison of the two classification methods demonstrates their usefulness in classifying complex sites. The calculations with plume height correction showed that for selected weather sequence the number of early fatalities is increased up to a factor of 3 compared to flat terrain simulations. The application of a meteorological sampling scheme shows that improvements in the representativity of the results cannot be expected generally. Therefore it would be necessary to develop a sampling scheme which is appropriate for the UFOMOD code.

Plans for future work

The methodology development is terminated at the end of March 1985.

06.03.03/19A    Investigation of Cooling Tower and Building Impacts on the  
PNS 4835        Initial Conditions in Atmospheric Dispersion of Fission  
                  Products  
                  (G. Koutsouvelis, W. Fiebig; EKS)

Work performed

- a) Literature searches to find out whether appropriate model setups and/or experimental results are available.
- b) Preparatory work with respect to handling a computer program developed to cover three-dimensional flow fields.

Results obtained

The first results obtained in al literature search are these:

- The complicated airflow pattern around buildings, which can greatly influence the dispersion of pollutants, is determined chiefly by the shape of these flow obstacles and by the conditions upstream.
- Some general rules can be derived with respect to the behavior of dispersion events around isolated buildings and building clusters. However, the model setups used for this purpose are simplified to such a degree as to neglect important effects of buildings.

- Consequently, a more sophisticated model appears to be required which could take into account at least the main characteristics of the flow field around a building.

Plans for future work

- Investigating the applicability of the computer program mentioned above to cases involving flow conditions around buildings.
- Calculating such cases, if necessary and possible.

D E T A I L L I E R T E   B E R I C H T E

06.01. SICHERHEIT UND UMGEBUNGSSCHUTZ VON KKW

PNS - Teilprojekt 4100 - Dynamische Beanspruchung von Reaktor-  
komponenten unter Störfallbedingungen

06.01.02	Entwicklung und Verifizierung von Codes zur dynamischen Beanspruchung von RDB-Einbauten	4100 - 1
06.01.15	Entwicklung und Verifizierung von Codes zur Beanspruchung von Containment-Strukturen	4100 - 29
06.01.19	Thermoermüdung und Thermoschockverhalten von Reaktorkomponenten	4100 - 44
06.01.21	Thermo- und fluiddynamische Analysen von LWR-Störfällen	4100 - 53
06.01.22	Untersuchungen zu transienten Austauschvorgängen in Zweiphasenströmungen (NOVA-Programm)	4100 - 74
06.01.03	Entwicklung von Zweiphasen-Massenstrom-Meßverfahren und Anwendung bei Blowdown-Experimenten	4100 - 83

- 06.01.02            Entwicklung und Verifizierung von Codes zur dynamischen Beanspruchung von RDB-Einbauten
- 06.01.02/17A      Ermittlung und Bewertung der plastischen Dehnungskonzentrationen im Einspannbereich von Zylinderschalen bei Überlastung  
PNS 4125

(M. Geiß, R. Krieg, M. Wadle; IRE)

### 1. Problembeschreibung

Üblicherweise erfolgt die Auslegung von Reaktorkomponenten gegen die Belastungen aus dem normalen Betrieb und aus Störfällen auf der Basis rein elastischer Festigkeitsanalysen. Trotzdem werden bisweilen plastische Verformungen zugelassen. Die auftretenden Beanspruchungen dürfen in diesen Fällen Grenzwerte erreichen, die oberhalb der Fließgrenze des Werkstoffs liegen. Die Vorschriften für derartige Auslegungen sind im ASME-Code /1/ und in den KTA-Regeln /2/ festgelegt.

Im Berichtszeitraum wurde anhand einiger exemplarischer Probleme untersucht, ob diese vereinfachte Vorgehensweise eine realistische Beurteilung des Festigkeitsverhaltens erlaubt, d.h., ob die Versagenslast immer etwa dasselbe Vielfache der zugelassenen Last ist. Eine zu niedrige Versagenslast kann eine Reduktion der Bauteilzuverlässigkeit zur Folge haben, eine zu hohe Versagenslast kann eine unnötige Überdimensionierung anzeigen. Als exemplarisches Bauteil wurde eine Zylinderschale gewählt. Ihr Verhalten bei Überlastung wurde unter verschiedenen Randbedingungen und bei unterschiedlichem elastisch-plastischem Materialverhalten analysiert. Insbesondere wurde das Verhältnis zwischen der zulässigen Last nach /1/ oder /2/ und der Versagenslast bestimmt.

Ausgangspunkt für diese Arbeit waren die früher im Zusammenhang mit dem HDR-Verfahren untersuchten Beanspruchungen des Kernbehälters bei einem Blowdownstörfall. Die maximalen Spannungen treten hierbei an der Kernbehälter-Einspannung auf. Die Bewertung dieser Spannungen führten damals auf

die hier diskutierten Fragen.

Zur Untersuchung des Festigkeitsverhaltens der Zylinderschalen und ihrer Einspannungen wurden sowohl quasi-analytische Verfahren als auch die Finite-Element-Methode (FEM) eingesetzt. Neuere Entwicklungen dieser Methode erlauben es, das elastisch-plastische Verformungsverhalten einer Struktur unter Berücksichtigung großer Verformungen explizit zu analysieren. Gerade dies ist bei der Berechnung von Versagenslasten eine wesentliche Voraussetzung.

Um den Berechnungsaufwand in erträglichen Grenzen zu halten, wurde meistens axial-symmetrische Belastung vorausgesetzt. In diesem Fall kann nämlich mit zweidimensionalen FEM-Modellen gearbeitet werden. Versuchsweise wurden auch einzelne dreidimensionale Analysen durchgeführt. Es hat sich aber im Verlauf dieser Untersuchungen gezeigt, daß dreidimensionale Analysen bei großen plastischen Verformungen und feiner für lokale Aussagen notwendiger Diskretisierung noch deutlich über der Leistungsfähigkeit der heute eingesetzten Rechnergeneration liegen. Die Durchführung inelastischer Festigkeitsanalysen ist, abgesehen von wenigen Spezialfällen, ohnehin erst in den letzten Jahren mit der Weiterentwicklung der Rechenanlagen und der Entwicklung fortgeschrittener FEM-Rechenprogramme möglich geworden /3/.

Im Rahmen der vorliegenden Untersuchungen wurde mit dem Rechenprogramm ADINA /4/ gearbeitet. Dieser Rechencode wurde vom Massachusetts Institute of Technology speziell für nichtlineare Probleme entwickelt. Er ermöglicht eine optimale Lösung inelastischer Probleme, da er eine Reihe sehr effektiver problemspezifischer Algorithmen für die inkrementell-iterativen Lösungsverfahren enthält. Zur Interpretation der FEM-Ergebnisse, zur Erkennung von wirksamen Beanspruchungsmechanismen und für eine gewisse Überprüfung der Ergebnisse wurden im Rahmen dieser Arbeit zusätzlich verschiedene Spezialmodelle entwickelt.

Eine detaillierte Darstellung der durchgeführten Arbeit wurde in /5/ gegeben.



## 2. Dehnungskonzentrationen an der festen Einspannung einer Zylinderschale

### 2.1 Elastische Beanspruchung

Die feste Einspannung einer Zylinderschale stellt einen Grenzfall für verschiedene reale Rand- bzw. Übergangsbedingungen an Diskontinuitätsstellen dar. Abb. 1 zeigt den Beanspruchungsverlauf (Mises'sche Vergleichsspannung) in einer fest eingespannten Zylinderschale unter Innendruckbelastung. Dabei sind die Ergebnisse einer geschlossenen Lösung nach Flügge /6/ und die Ergebnisse einer entsprechenden FEM-Analyse gegenübergestellt.

Es zeigt sich, daß die FEM-Ergebnisse in der Nähe des Schalenrandes, wo entsprechend fein diskretisiert wurde, sehr gut mit der analytischen Lösung übereinstimmen. Die geringfügigen Abweichungen in den randfernen Bereichen dürften auf die dort gröbere Diskretisierung zurückzuführen sein. Der Beanspruchungsverlauf zeigt die Maxima, die an der Schaleneinspannung auftreten. Diese sind eine Folge der Biegebeanspruchungen. Dagegen sind die Membranspannungen (Spannungen in der neutralen Faser) in Randnähe deutlich kleiner als im ungestörten Schalenbereich, weil die Einspannung das globale Beanspruchungsniveau in Randnähe reduziert.

Mit Hilfe des Beanspruchungsverlaufs nach Abb. 1 läßt sich bereits näherungsweise beurteilen, wie sich die Struktur bei Überlastung verhält. Erstmaliges Fließen erfolgt an der Schaleninnenseite direkt an der Einspannung. Bei weiterer Laststeigerung wird es dort auch auf der Außenseite zu plastischen Verformungen kommen. Beides beruht auf der hohen Biegebeanspruchung an der Schaleneinspannung. Bei weiterer Laststeigerung wird auch im ungestörten Schalenbereich die Fließgrenze erreicht werden. Dabei wird gleich der gesamte Querschnitt plastifizieren, da es sich hier primär um Membranbeanspruchungen handelt. Erst danach wird auch der gesamte Querschnitt an der Einspannstelle plastifizieren. Die Einspannung übernimmt nämlich im Nahbereich einen Teil der Membranbeanspruchungen in Umfangsrichtung.

Wegen dieser Zusammenhänge wird ein Versagen im ungestörten Schalenbereich auf plastische Instabilität, ein Versagen an der Einspannstelle auf zu hohe

Dehnungskonzentrationen zurückzuführen sein.

## 2.2 Elastisch-plastische Analyse mit ADINA

Bei den elastisch-plastischen Analysen mit ADINA wurde das Verhalten der Schale bis zu Belastungen untersucht, bei denen plastische Instabilität in den von Randeinflüssen ungestörten Membranspannungsbereichen auftritt. Da für die meisten Analysen eine relativ kurze Schale zugrunde gelegt wurde, liegt dieser Punkt bei relativ hohen Belastungen; denn an den Schalenenden wird - wie bereits erwähnt - ein Teil der Membranspannungen durch die Einspannung übernommen. Damit ist es möglich, das Verhalten der Schalenränder unter hoher Belastung und insbesondere hohen Dehnungskonzentrationen zu untersuchen. Die Analysen erlauben eine Quantifizierung dieser Dehnungskonzentrationen.

Aus programmtechnischen Gründen wurde bei den elastisch-plastischen Analysen nicht genau der klassische Fall einer durch Innendruck beanspruchten Schale analysiert, vielmehr wurde hier statt der statischen Randbedingung für die Axialspannungen die kinematische Bedingung einer konstanten Zylinderlänge eingeführt. Beide Fälle unterscheiden sich nur geringfügig. Für große Verformungen sind sie identisch.

Insbesondere wurde der Einfluß der Werkstoffverfestigung sowie der Schalen-geometrie auf die Größe der Dehnungskonzentrationen untersucht. Der Einfluß der Verfestigung wurde hierbei parametrisch durch Variation des Verhältnisses des Tangentenmoduls  $E_T$  zum Elastizitätsmodul  $E$  im Spannungs-Dehnungs-Diagramm (wahre Spannung über logarithmischer Dehnung) analysiert (s. Abb. 2). Zur Untersuchung des Geometrieinflusses wurden Analysen mit unterschiedlichem Verhältnis von Schalenlänge bzw. Schalendicke zum Schalenradius durchgeführt.

Abb. 3 zeigt für einen Fall die plastisch verformten Bereiche mit zunehmender Belastung. Diese besitzen zunächst ausgeprägt lokalen Charakter, d.h., ihre axiale Erstreckung liegt in der Größenordnung der Schalendicke. Selbst bei Erreichen der Fließgrenze im ungestörten Schalenbereich ist die

Schale an der Einspannung noch nicht vollständig durchplastifiziert. Da sich somit noch kein Fließgelenk gebildet hat, muß die Größe dieser Dehnungen in derselben Größenordnung liegen wie die Dehnungen in den umgebenden elastischen Bereichen. Dieses Verhalten wird manchmal mit dem Begriff "constraint plasticity" bezeichnet. Es ist eine Folge der Tatsache, daß die plastischen Verformungen lediglich zum Ausgleich von Verformungsdifferenzen dienen.

Nach globalem Überschreiten der Fließgrenze in der Schale kommt es zu großen plastischen Verformungen. Deren Größe hängt im wesentlichen von den Verfestigungseigenschaften des Werkstoffes ab. Diese globalen Verformungen bestimmen jetzt in erster Linie die Größe der Dehnungen am Rand.

Man muß deshalb hinsichtlich des Umfangs der auftretenden plastischen Verformungen zwei Bereiche unterscheiden.

Lastbereich I:   globale Beanspruchung elastisch  
                  lokale plastische Verformungen an der Einspannung

Lastbereich II:  globale plastische Verformungen

Im Lastbereich I sind die Dehnungen noch gering, sie liegen in der Größenordnung der elastischen Dehnungen. Im Bereich II hat man dagegen Dehnungen im Prozentbereich.

Einfluß der Werkstoffverfestigung:

Unter Verwendung der elastisch-plastischen Analysen wurde in Abb. 4 die maximale Vergleichsdehnung (2. Invariante des Green-Lagrange'schen Verzerrungstensors) an der Einspannung in Abhängigkeit von der Belastung für unterschiedliche Werkstoffverfestigungen dargestellt. Offensichtlich hat die Werkstoffverfestigung erst im Lastbereich II dominanten Einfluß auf die maximalen Dehnungen, d.h. diese hängen nur schwach von den Materialeigenschaften ab, solange nur lokale plastische Verformungen auftreten.

### 2.3 Bedeutung der Dehnungskonzentrationen für das Festigkeitsverhalten

Mit Hilfe der ermittelten Dehnungsverteilung an der festen Zylinderschalen-einspannung lassen sich einige generelle Aussagen bezüglich des zu erwartenden Einflusses auf das Festigkeitsverhalten machen.

Betrachtet man das Verhalten unter einmaliger Überlast, so ergibt sich, daß über den gesamten Lastbereich die Dehnungsspitzen an der Einspannung in derselben Größenordnung wie die Dehnungen im ungestörten Schalenbereich liegen.

Drastische Dehnungskonzentrationen treten nicht auf. Solange die Schale global unter elastischer Beanspruchung steht, können die Dehnungsspitzen an der Einspannung höchstens den 4fachen Wert der Dehnungen im ungestörten Schalenbereich erreichen.

Nach globalem Überschreiten der Fließgrenze sind die Dehnungskonzentrationen zunächst geringer, sie nehmen mit steigender Belastung aber wieder zu. Es zeigt sich aber, daß selbst bei relativ kurzen Schalen die relativen Dehnungen an der Einspannung kaum wieder den Wert 4 erreichen. Dieser Wert kann damit als konservative obere Grenze für die Dehnungsspitzen an der festen Einspannung angesehen werden.

Wegen der hohen Duktilität üblicher Werkstoffe ist deshalb - fehlerfreier Werkstoffzustand vorausgesetzt - nicht zu erwarten, daß diese Beanspruchungsspitzen versagensrelevant sind. Versagen wird vielmehr durch plastische Instabilität im ungestörten Schalenbereich erfolgen. Sollten jedoch Risse von entsprechender Größe in Randnähe vorhanden sein, so muß eine Beurteilung des Bauteilverhaltens auf der Basis des hier ermittelten Spannungs- und Dehnungszustandes in Randnähe erfolgen.

### 3. Dehnungskonzentrationen an der Flansch-Einspannung einer Zylinderschale

Bei vielen Konstruktionen läßt sich eine feste Einspannung, wie sie in Kap. 2 untersucht wurde, auch nicht näherungsweise realisieren. Sehr häufig findet man dagegen Konstruktionen, bei denen die Zylinderschale mit Hilfe eines Flansches eingespannt ist, Abb. 5. Die im Einzelfall vorliegenden Randbedingungen sind hier unterschiedlich, weil sie von Details der konstruktiven Ausführung der Flanscbefestigung abhängen. Im folgenden wird eine Konstruktion untersucht, bei der eine Stülpperformung des Flansches möglich ist. Ausgangspunkt für diese Untersuchungen war ein konkreter Anwendungsfall bei der Blowdown-Beanspruchung im Kernbehälter eines Druckwasserreaktors. Dabei hat sich gezeigt, daß dieser Fall hinsichtlich der an der Einspannung auftretenden Beanspruchungen besonders kritisch und für eine Reihe ähnlicher Probleme typisch ist. Von Bedeutung sind nur Belastungen durch Axialkräfte, da sie zu einer Stülpperformung des Flansches mit hohen Beanspruchungen führen.

Ähnliche Probleme wie bei der Beanspruchung der Flansch-Einspannung treten bei Zylinderschalen immer dort auf, wo ein Biegemoment durch äußere Lasten aufgeprägt wird. Dies ist z.B. im Übergangsbereich zweier Zylinderschalen unterschiedlichen Durchmessers der Fall.

#### 3.1 Elastische Analyse

Abb. 6 zeigt das für die Struktur erstellte FEM-Modell. Im Übergangsbereich von der Schale zum Flansch wurde wegen der erwarteten hohen Beanspruchungen besonders fein diskretisiert.

Zur Analyse der Flanscheinspannung wurde neben den FEM-Modellen auf ein Stufenkörpermodell entwickelt. Einzelheiten sind in /5/ zu finden.

#### Ergebnisse im Vergleich mit FEM-Analysen

Abb. 7 zeigt die mit dem FEM-Modell ermittelten Verformungen. Die größten Verformungen treten direkt am Flansch auf. Als Folge der Belastung durch

die Axialspannungen stülpt dieser um das Lager und weitet die Schale am Übergang zum Flansch auf. Dadurch treten an dieser Stelle Biegespannungen auf. Diese Biegespannungen bilden wiederum ein Moment, das das Moment aus den Axialspannungen zum Teil kompensiert.

Abb. 8 zeigt die berechneten Verformungen nach dem Stufenkörpermodell und der FEM-Analyse im Vergleich. Das Stufenkörpermodell beschreibt das Verformungsverhalten der Struktur in guter Näherung. Die berechneten radialen Verformungen weichen jedoch im Übergangsbereich von der Schale zum Flansch deutlich von den Ergebnissen der genaueren Analyse mit dem FEM-Programm ab. Hier werden die radialen Verformungen vom Stufenkörpermodell überschätzt. Dies ist eine Folge davon, daß das konische Übergangsteil im Stufenkörpermodell biegesteif ist und eine zu große Schalenaufweitung verursacht. Dies führt auch dazu, daß die Krümmungen, die Biegespannungen und damit die Gesamtspannungen in diesem Bereich überschätzt werden. Abb. 9 zeigt diesen Sachverhalt für die Axialspannungen.

Ein Vergleich des Biegemoments am Übergang von der Schale zum Flansch mit dem aufgeprägten Moment aus den Axialspannungen in der Schale zeigt im übrigen, daß beide ungefähr gleich groß sind. Das resultierende Moment auf den Flansch, die Differenz aus beiden, ist deutlich kleiner. Dieser Sachverhalt zeigt eine wichtige Funktion des Biegemoments bei diesem Problem. Es reduziert nämlich die Belastung, die dem Flansch durch die Axialspannungen aufgeprägt wird. Damit braucht dieser die Belastung nicht allein durch seine Stülpsteifigkeit abzutragen. Diese Zusammenhänge gewinnen bei der Beurteilung des Tragverhaltens bei Beanspruchungen, die über die Elastizitätsgrenze reichen, an Bedeutung. Hierauf wird bei der elastisch-plastischen Festigkeitsanalyse eingegangen.

Der berechnete Vergleichsspannungsverlauf (s. Abb. 10) zeigt, daß das Beanspruchungsmaximum auf der Schalenaußenseite am Übergang zum Flansch auftritt. An dieser Stelle überlagern sich axiale Membranspannungen und Biegespannungen gleichen Vorzeichens. Dies führt verstärkt durch die zusätzliche Kerbwirkung zu der Beanspruchungsspitze. Hier werden also bei Überlastung erstmalig plastische Verformungen auftreten. Erst bei weiterer

Laststeigerung wird es auch an der Innenseite am Übergang von der Schale zum Flansch und später auch auf der Flanschoberseite zu plastischen Verformungen kommen.

Generell zeigt der Vergleich von Ergebnissen des Stufenkörpermodells mit den FEM-Analysen, daß das Stufenkörpermodell ein gutes Verständnis des Verformungsverhaltens erlaubt. Man kann jedoch mit Hilfe dieses Modells die lokale Spannungs- und Dehnungsverteilung an der Einspannung nur unvollkommen beschreiben. Ist man an der Auflösung von solch lokalen Beanspruchungsspitzen interessiert, so ist der Einsatz aufwendiger Methoden wie der FEM-Analysen notwendig.

### 3.2 Elastisch-plastische Analyse

Ebenso wie für die feste Einspannung wurde für die Flansch-Einspannung der Einfluß des Werkstoffverhaltens auf die Größe der Dehnungsspitzen untersucht.

Einfluß der Werkstoffverfestigung:

Abb. 11 zeigt an einem Beispiel die sich ausbildenden plastischen Zonen für verschiedene Belastung. Abb. 12 zeigt entsprechend das Verhältnis der Dehnungsspitze an der Einspannung zu der Dehnung im ungestörten Schalenbereich für unterschiedliche Werkstoffverfestigung als Funktion der dimensionslos gemachten Belastung. Man erkennt den dominanten Einfluß der Verfestigung auf die Größe der maximalen Dehnungen über den gesamten Lastbereich plastischer Verformungen. Es treten hier nicht die beiden getrennten Stadien plastischer Verformungen wie bei der festen Einspannung auf. Vielmehr können, insbesondere bei wenig verfestigenden Werkstoffen, die Dehnungen an der Einspannung bereits im Prozent-Bereich liegen, wenn die Beanspruchungen im ungestörten Schalenbereich noch weit unterhalb der Fließgrenze liegen. Offensichtlich kommt es bei diesem Problem zu enormen Dehnungskonzentrationen im Einspannbereich, d.h., die maximalen Dehnungen an der Einspannung, die bei elastischer Beanspruchung ca. 9 mal größer sind als die Dehnungen in entsprechender Entfernung von der Einspannung, können bei Überlastung auf mehr als das 100-fache dieser Werte ansteigen. Allerdings treten derart

große Dehnungen selbst bei elastisch ideal plastischem Materialverhalten erst dann auf, wenn die Belastung doppelt so groß wie diejenige bei Fließbeginn ist. Bis zu dieser Belastung ist, wie Abb. 11 zeigt, der Übergangsbereich von der Schale zum Flansch noch nicht völlig durch die Schalendicke plastifiziert. Hier bestehen noch die Bedingungen für "constraint plasticity". Die Struktur schöpft in diesem Bereich die Tragreserven aus Spannungsumlagerungen. Bei größeren Lasten, wenn sich ein Fließgelenk an dieser Stelle gebildet hat, hängt die Größe der Dehnungskonzentrationen entscheidend vom Verfestigungsverhalten ab. Für übliche Werkstoffe ist mit vorzeitigem Versagen an der Einspannung durch Überschreiten kritischer Dehnungswerte bzw. Funktionsverlust zu rechnen, obwohl die Beanspruchung im ungestörten Schalenbereich noch unterhalb der Fließgrenze liegt.

### 3.3 Bedeutung der Dehnungskonzentrationen für das Festigkeitsverhalten

Die obigen Ausführungen haben gezeigt, daß bei dem hier untersuchten Problem drastische Dehnungskonzentrationen an der Einspannung zu erwarten sind, die sowohl bei einmaliger Überlastung als auch bei zyklischer Beanspruchung versagensrelevant sind.

Die Größe dieser Dehnungsspitzen hängt stark von dem Verfestigungsverhalten des Werkstoffes und der Detailgeometrie an der Einspannung ab. In dem untersuchten Referenzfall erfolgt bei einmaliger Überlastung mit Sicherheit ein vorzeitiges lokales Versagen im Einspannbereich, bevor es zu globaler plastischer Instabilität kommt. Bei zyklischer Belastung bis in den Bereich plastischer Verformungen ist der Einspannbereich ebenfalls wegen der Dehnungskonzentrationen ermüdungsgefährdet und bestimmt die Lebensdauer des Bauteils. Wegen der Vielzahl der Einflußfaktoren kann jedoch eine Beurteilung des Einflusses auf das Festigkeitsverhalten nur im Einzelfall erfolgen.

Ein ähnliches Verhalten wie bei der flanschartigen Einspannung ist bei allen Problemen zu erwarten, bei denen ähnliche Mechanismen wirksam sind, d.h. wo Biegespannungen eine tragende Funktion übernehmen.



#### 4. Vergleich der konventionellen Auslegung nach technischen Regelwerken mit den Ergebnissen der inelastischen Analysen

##### 4.1 Die konventionelle Auslegung nach technischen Regelwerken

Die Vorgehensweise bei der Berechnung von Reaktorkomponenten ist in technischen Regelwerken /1, 2/ festgelegt. Generelles Ziel dieser Auslegungsregeln ist es, alle relevanten Versagensmechanismen auszuschließen. Dazu werden die Spannungen für charakteristische Beanspruchungsfälle ermittelt und zulässigen Grenzwerten gegenübergestellt. Die Größe der zulässigen Spannungen hängt dabei von der Art der Spannungen (werden Spannungsspitzen durch Werkstofffließen abgebaut?) sowie von der Ursache der Belastung ab. Die Spannungsanalysen hierzu erfolgen grundsätzlich auf der Basis rein elastischer Strukturmodelle.

Hinsichtlich der Spannungsarten ist nach den Regelwerken zunächst eine Klassifikation durchzuführen. Tab. I zeigt die einzelnen Spannungsarten, die man im Rahmen dieses Konzepts unterscheidet. Wichtigstes Merkmal der Primärspannungen ist, daß die von ihnen verursachten Verformungen sich nach Überschreiten der Fließgrenze wesentlich vergrößern, ohne sich selbst zu begrenzen. Eine Struktur kann dann weitere Tragreserven lediglich aus der Werkstoffverfestigung schöpfen. Innerhalb der Gruppe der Primärspannungen unterscheidet man noch zwischen allgemeinen Primärspannungen, lokalen Primärspannungen und primären Biegespannungen je nach der Verteilung in der Struktur. Als Sekundärspannungen werden solche Spannungen bezeichnet, die zwar zu Schnittlasten innerhalb des Querschnitts aufintegriert werden können, bei Überschreitung der Fließgrenze aber Verformungen verursachen, die die Spannungen abbauen und damit auch die Verformungen begrenzen. Typische Sekundärspannungen sind Spannungen aus behinderter Wärmedehnung. Spannungsspitzen sind Beanspruchungsmaxima mit ausgeprägt lokalem Charakter. Diese einzelnen Spannungsarten werden zu Spannungskategorien zusammengefaßt, die dann entsprechenden Versagensarten zugeordnet werden. Tab. II zeigt die Zusammenfassung dieser einzelnen Spannungsarten zu den Spannungskategorien mit den entsprechenden Grenzwerten, die von der Fließgrenze  $R_{p0.2T}$  und der Zugfestigkeit  $R_{mT}$  bei Betriebstemperatur abhängen.

Die Größe dieser Grenzwerte hängt noch von der Ursache der jeweiligen Belastung ab. So werden für selten auftretende Beanspruchungsfälle, wie etwa Störfallbelastungen, höhere Spannungen als für häufig auftretende Belastungsfälle zugelassen. Die Beanspruchungsfälle werden deshalb einzelnen Beanspruchungsstufen A, B, C, D zugeordnet, wobei die Eintrittswahrscheinlichkeit von A bis D abnimmt und die zulässigen Spannungen zunehmen.

Problematik der konventionellen Analyse:

Die konventionelle Vorgehensweise läßt jedoch einige Fragen unbeantwortet. Insbesondere bereitet es bisweilen Schwierigkeiten, einen Spannungszustand entsprechend den genannten Kriterien zu klassifizieren, da eine Aufteilung in die verschiedenen Spannungsarten nicht immer eindeutig möglich ist. Die Definitionen des Primär- und Sekundärspannungsbegriffs erfolgen nämlich streng genommen indirekt über das Verhalten der Struktur bei Überlast. Gerade dies läßt sich aber nicht mit elastischen Modellen beurteilen. Es ist deswegen notwendig, einen gewissen Erfahrungsschatz bei der Beurteilung des Festigkeitsverhaltens einzubringen. Letztliche Klarheit kann aber nur eine Analyse schaffen, bei der das reale elastisch-plastische Materialverhalten explizit berücksichtigt wird und die tatsächlich auftretenden Dehnungen bestimmt werden. Noch problematischer ist die Anwendung der Regelwerke bei Belastungen, die bereits nominell zu plastischen Verformungen führen. Hier wird mit fiktiven Spannungsgrenzwerten gearbeitet, die oberhalb der Werkstofffließgrenze liegen. Mit dieser groben Beschreibung bleiben Details der Verfestigung unberücksichtigt. Die Beanspruchung, d.h. die auftretenden maximalen Dehnungen, hängen in diesen Fällen aber sehr wohl vom elastisch-plastischen Materialverhalten ab. Spannungsumlagerungseffekte und das Verfestigungsverhalten sind von Bedeutung. Diese Phänomene werden aber bei den konventionellen elastischen Analysen nicht berücksichtigt.

#### 4.2 Beurteilung der Beanspruchungen mit Hilfe der elastisch-plastischen FEM-Analysen

Die in Kap. 2 und Kap. 3 beschriebenen elastisch-plastischen Festigkeits-

analysen bieten nun die Möglichkeit für die untersuchten exemplarischen Probleme, die konventionelle Vorgehensweise nach den Regelwerken anhand detaillierter elastisch-plastischer Analysen zu überprüfen. Der entscheidende Vorteil der detaillierten Analysen besteht darin, daß man Kenntnis über die tatsächlich auftretenden Dehnungen erhält. Die meisten denkbaren Versagensarten sind nämlich mit dem Überschreiten kritischer Dehnungswerte verbunden. Die Größe der zulässigen Dehnungswerte ist vom Werkstoff abhängig und wird im wesentlichen von der betrachteten Versagensart bestimmt.

Definition zulässiger Dehnungswerte:

Analog zu den Regelwerken, in denen die Beanspruchungsgrenzen durch Definition von maximal zulässigen Spannungen festgelegt sind, muß man bei den elastisch-plastischen Analysen deshalb maximal zulässige Dehnungen angeben.

Dehnungsgrenzwerte in der Stufe C:

Nach Regelwerk sind höchstens 25 Lastspiele in dieser Stufe zulässig, wenn diese Lastfälle nicht in der Ermüdungsanalyse berücksichtigt werden. Bei den elastisch-plastischen Analysen soll verlangt werden, daß die Membrandehnungen höchstens die Fließgrenze erreichen dürfen. Lokal dürfen allenfalls Dehnungsspitzen bis 0.5 % auftreten. Bei Dehnungsamplituden dieser Größenordnung liegt die Zeitfestigkeit üblicher Materialien bei ca.  $10^4$  Lastwechseln. Damit sind - wie in der Regel - Ermüdungsanalysen nicht notwendig.

Dehnungsgrenzwerte in der Stufe D:

Bei Beanspruchungsfällen in der Stufe D dürfen globale plastische Verformungen auftreten, so daß unter Umständen ein Komponentenaustausch nach der Beanspruchung (Störfall) notwendig wird. Bei der hohen Duktilität der heute eingesetzten Stähle kann man für diese Stufe ohne weiteres 3 % Membrandehnung zulassen. Dehnungen dieser Größenordnung sind nämlich auch bei Auslegung nach Regelwerk und Verwendung austenitischer Werkstoffe zu erwarten. Lokal dürfen somit noch deutlich größere Dehnungen auftreten. Damit wird man der Tatsache gerecht, daß die üblichen Werkstoffe bei einmaliger Beanspruchung lokal sehr hohe Dehnungen ertragen, wenn keine gravierenden Schwachstellen (Risse) vorhanden sind.

Ergebnisse des Vergleichs für zwei typische Werkstoffe:

Für die in Kap. 2 und Kap. 3 dargestellten Probleme wurden entsprechende Analysen mit jeweils für austenitische bzw. ferritische Werkstoffe charakteristischem Werkstoffverhalten durchgeführt. Die zugrundegelegten Werkstoffparameter sind in Abb. 13 und 14 dargestellt. Im folgenden werden die Beanspruchungsgrenzen, die sich bei Auslegung nach Regelwerk ergeben, mit den Beanspruchungsgrenzen aus den elastisch-plastischen Analysen verglichen.

Abb. 15 und Abb. 16 zeigen für die fest eingespannte Zylinderschale jeweils die maximale Dehnung an der Einspannung  $\epsilon_{vmax}$  und die Dehnung in der Schalenmitte  $\epsilon_{vus}$  bei beiden Werkstoffen. Diese Dehnungswerte sind dimensionierungsbestimmend. Als untere Abszisse wurde die auf die Dimensionierungsbelastung in der Stufe A bezogene Innendruckbelastung gewählt. Dabei wurden die Biegespannungen an der Einspannung als Sekundärspannungen klassifiziert. Bei der oberen Abszisse wurden die Biegespannungen als Primärspannungen klassifiziert. Die zulässigen Beanspruchungen, die sich bei Regelanwendung ergeben, sind für die einzelnen Beanspruchungsstufen auf den Abszissen angegeben. Die Beanspruchungsgrenzen, die sich bei Anwendung der Grenzdehnungskriterien aus den elastisch-plastischen Analysen ergeben, sind in den entsprechenden Dehnungsverläufen eingezeichnet. Im einzelnen ist bezüglich des Vergleichs konventioneller Auslegung mit den detaillierten elastisch-plastischen Analysen festzustellen:

- I) Bezüglich der Problematik der Spannungsklassifikation läßt sich für diesen Fall eindeutig feststellen, daß die Biegespannungen an der Einspannung ohne Einschränkung als Sekundärspannungen zu klassifizieren sind. Betrachtet man nämlich die untere Abszisse in Abb. 15 und Abb. 16, so erkennt man, daß die zulässige Innendruckbelastung nach Regelwerk gleich oder kleiner ist als die zulässige Belastung nach der elastisch-plastischen Analyse. Eine Klassifikation der Biegespannungen als Primärspannungen wäre dagegen zu konservativ.

- II) Für Stähle mit einem hohen Streckgrenzenverhältnis (Ferrite) stimmen die Grenzwerte für die Beanspruchungsstufe C recht gut überein. Für die Beanspruchungsstufe D ist die Auslegung nach Regelwerk dagegen konservativ. Dies liegt daran, daß bei Auslegung nach Regelwerk mit entsprechendem Sicherheitsabstand gegen die Zugfestigkeit dimensioniert wird. Bei Stählen mit einem hohen Streckgrenzenverhältnis kann der Grenzwert für die allgemeinen Primärspannungen deshalb unterhalb der Fließgrenze liegen, so daß in Wirklichkeit in der Beanspruchungsstufe D nur lokale plastische Verformungen auftreten können.
- III) Für stark verfestigende Stähle (Austenite) treten bei Auslegung nach Regelwerk in der Beanspruchungsstufe C lokal kaum plastische Verformungen auf. Wegen der relativ starken Verfestigung können nämlich die lokalen Dehnungen an Diskontinuitätsstellen nicht groß sein, solange die Membrandehnungen noch im elastischen Bereich sind. Die elastisch-plastischen Analysen liefern daher größere zulässige Beanspruchungen in der Stufe C. Hierbei ist das Kriterium ausschlaggebend, daß die Membrandehnungen im elastischen Bereich bleiben müssen. Lokal haben die Dehnungen die 0.5 %-Grenze noch nicht erreicht. Für die Beanspruchungsstufe D stimmen die Beanspruchungsgrenzen gut überein.

Abb. 17 und Abb. 18 zeigen diesselben Verhältnisse für die in Kap. 3 behandelte Flanscheinspannung. Als untere Abszisse ist wiederum die auf die Grenzbelastung in der Stufe A bezogene Belastung (Axialspannung in der Schale) gewählt, wenn die Biegespannungen am Flansch als Sekundärspannungen klassifiziert werden. Die obere Abszisse zeigt die dimensionslose Belastung für den Fall, daß man die Biegespannungen als Primärspannungen klassifiziert. Die beiden Kurven zeigen die dimensionierungsbestimmenden Dehnungen am Übergang von der Schale zum Flansch.  $\epsilon_{vmax}$  ist die maximale Dehnung,  $\epsilon_{vm}$  ist die Membrandehnung an dieser Stelle. Die Beanspruchungsgrenzen sind ebenfalls dargestellt. Im einzelnen ist festzustellen:

- I) Vergleicht man für beide Werkstoffe die Beanspruchungsgrenzen bei Auslegung nach Regelwerk mit denjenigen, die sich aus den elastisch-plastischen Analysen ergeben, so ergibt sich, daß die Biegespannungen

am Flansch nicht als Sekundärspannungen klassifiziert werden dürfen. Die Beanspruchungsgrenzen auf der unteren Abszisse zeigen, daß man bei Klassifikation als Sekundärspannungen extrem nicht-konservative Ergebnisse erhalten würde. Die Ursache dafür wurde bereits in Kap. 3 ausführlich erläutert. Klassifiziert man die Biegespannungen am Flansch dagegen als Primärspannungen, so müssen gewisse Überdimensionsierungen in Kauf genommen werden. Dieser Fall paßt offensichtlich nicht in den Klassifizierungsschematismus. Eine zuverlässige Beurteilung der Beanspruchungen ist hier nur mit Hilfe von elastisch-plastischen Analysen möglich.

- II) Für den ferritischen Werkstoff mit dem hohen Streckgrenzenverhältnis liefert die Auslegung nach Regelwerk in der Beanspruchungsstufe C realistische Beanspruchungsgrenzen. Dagegen ist der Grenzwert in der Beanspruchungsstufe D deutlich geringer als derjenige, den man aus den exakten Analysen ableitet.
  
- III) Für den austenitischen Werkstoff ergibt sich, daß die Beanspruchungsgrenze aus dem Regelwerk in beiden Beanspruchungsstufen deutlich konservativ sind.

#### 5. Zusammenfassung und Schlußfolgerungen

Es zeigt sich, daß an der festen Einspannung einer innendruckbeanspruchten Zylinderschale nur mäßige Dehnungskonzentrationen auftreten. Die maximalen Dehnungen betragen höchstens das Vierfache der Dehnungen im ungestörten Schalenbereich. Das Verhältnis von Schalendicke zu Schalenradius hat hierbei keinen nennenswerten Einfluß. Bei kürzeren Schalen und großen plastischen Verformungen sind etwas größere Dehnungskonzentrationen am Rand zu erwarten. Auch der Einfluß der Werkstoffverfestigung auf die Dehnungskonzentrationen ist nicht besonders stark.

Die Ursache für dieses Verhalten liegt im Mechanismus der Lastabtragung an der Einspannung. Die Ränder übernehmen nämlich einen Teil der Membranspannungen und reduzieren so das Beanspruchungsniveau. Die durch die Biegung

verursachten Dehnungsspitzen dienen lediglich dem Ausgleich auftretender Verformungsdifferenzen. Die Biegespannungen in Randnähe besitzen aus diesem Grunde ausgeprägten Sekundärspannungscharakter im Sinne der Regelwerke. Wegen des lokalen Charakters der Dehnungsspitzen und der hohen Duktilität der heute eingesetzten Werkstoffe sind diese Dehnungsspitzen bei einmaliger Belastung ohne große Bedeutung. Versagen ist vielmehr in Form einer plastischen Instabilität in den von Randeinflüssen freien Schalenbereichen zu erwarten.

Ganz anders ist das Verhalten bei einer Schaleneinspannung mittels eines flexiblen Flansches und bei Axialkraftbelastung. Hier treten beträchtliche Dehnungskonzentrationen auf. Die lokalen Dehnungen an der Einspannung können mehr als das Hundertfache der Dehnungen in den randfernen Bereichen betragen. Die Größen dieser Dehnungsspitzen hängt entscheidend vom Verfestigungsverhalten des Werkstoffes ab. Weiterhin haben die Gestaltung der Flanschlagerung und der Flanschform starken Einfluß. Eine Beurteilung kann hier nur für jeden Einzelfall erfolgen. In dem untersuchten Referenzfall ist mit Versagen bzw. Funktionsverlust an der Einspannung durch Überschreiten kritischer Dehnungen zu rechnen. Die Beanspruchungen in den randfernen Bereichen sind dabei noch im elastischen Lastbereich.

Dieses Verhalten hat seine Ursache in der besonderen Funktion der Biegespannungen am Rand. Diese ergeben sich nämlich nicht in erster Linie aus Kompatibilitätsgründen, sondern sind in etwa proportional zur Belastung. Bei Überlast ergeben sich deshalb sehr große plastische Dehnungen. Aus diesem Grunde dürfen die Biegespannungen bei der Schaleneinspannung mit einem flexiblen Flansch nicht als Sekundärspannungen klassifiziert werden. Sie besitzen Primärspannungscharakter.

Auf der Basis der durchgeführten inelastischen Festigkeitsanalysen erfolgte auch eine kritische Beurteilung der Auslegungsregeln bei Überlast. Im allgemeinen ist die Auslegung nach Regelwerk konservativ. Nicht-Konservativitäten können jedoch bei einer falschen Spannungsklassifikation auftreten und krasse Fehlinterpretationen zur Folge haben. Leider ist diese Frage bei etwas komplizierteren Geometrien und Belastungen nur durch detaillierte

elastisch-plastische Analysen zu beantworten. Hierzu liefert die vorliegende Arbeit einen Beitrag.

Der Vergleich zeigt im übrigen, daß die üblichen elastischen Analysen nur begrenzte Aussagen über die Beanspruchungen bei Überlast liefern können. Die Größe der tatsächlich auftretenden Beanspruchungen, d.h. Dehnungen, hängt nämlich mitunter wesentlich vom elastisch-plastischen Materialverhalten ab, das aber bei den üblichen Festigkeitsanalysen keine Berücksichtigung findet.

#### Literatur

- /1/ ASME Boiler and Pressure Vessel Code on American National Standard, Section III: Rules for Construction of Nuclear Power Plant Components, 1983 Edition, The American Society of Mechanical Engineers, New York
- /2/ Sicherheitstechnische Regeln des Kerntechnischen Ausschusses  
Carl Heymann Verlag KG, Köln
- /3/ Ray W. Clough: The Finite Element Method After Twenty-Five Years:  
A Personal View, Computers & Structures, Vol 12, 361-370, 1980
- /4/ ADINA System Theory and Modelling Guide, Report AE 83-4  
ADINA Engineering AB, Västerås Sweden
- /5/ M. Geiß: Plastische Dehnungskonzentrationen im Einspannbereich von  
Zylinderschalen bei Überlastung, KfK 3915 (1985)
- /6/ W. Flügge: Stress in Shells, Springer Verlag New York, 1973



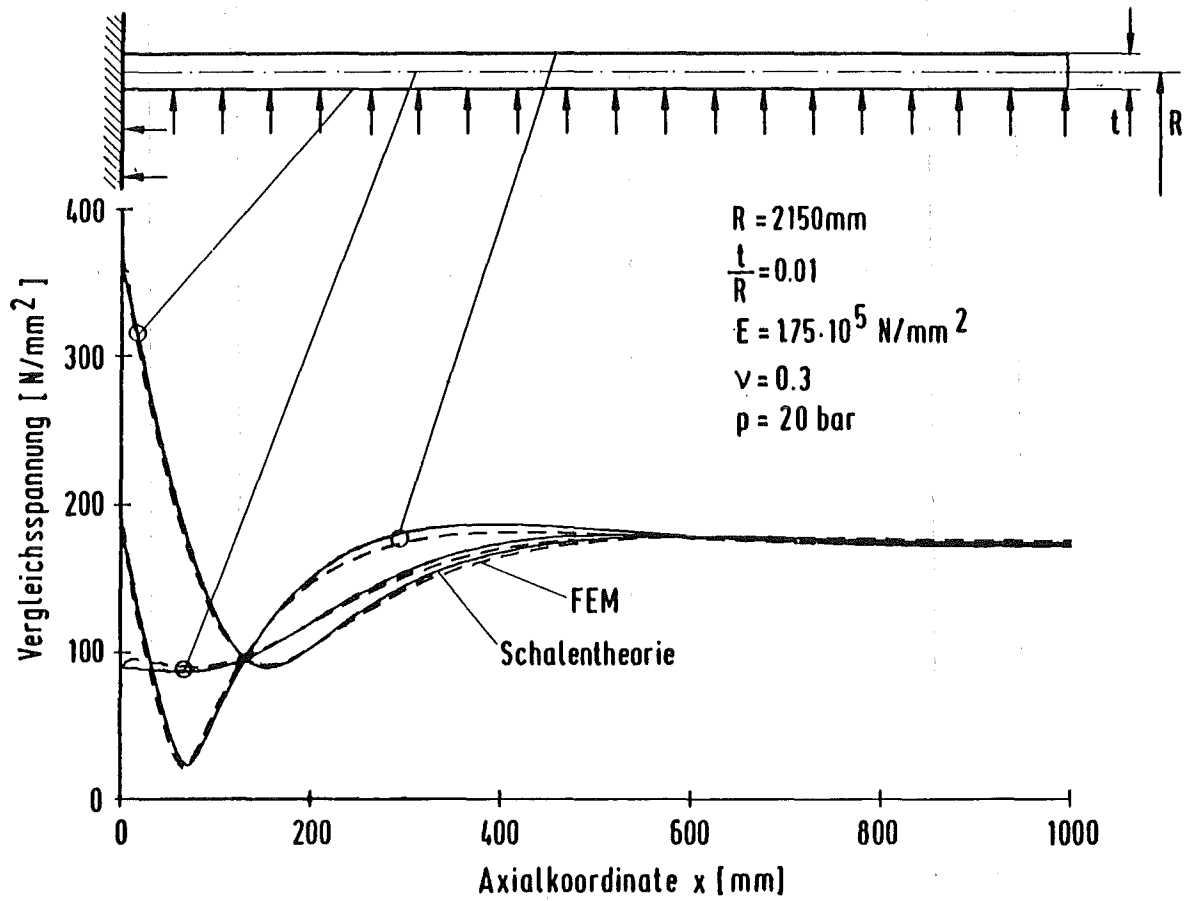


Abb. 1: Vergleichsspannungsverlauf in Zylinderschale unter Innendruckbelastung

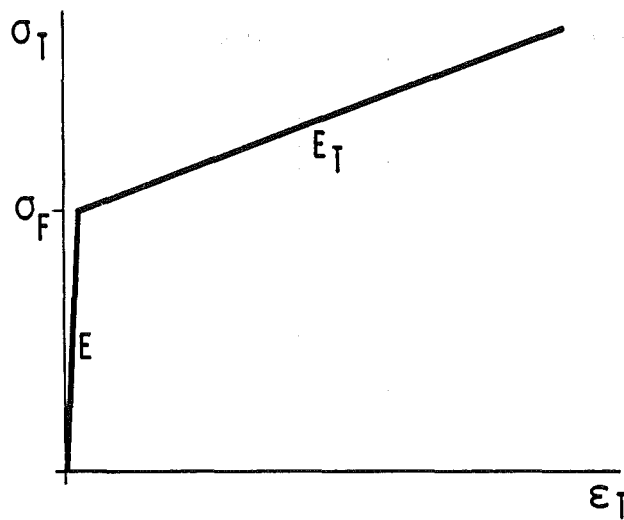


Abb. 2: Spannungs-Dehnungs-Diagramm

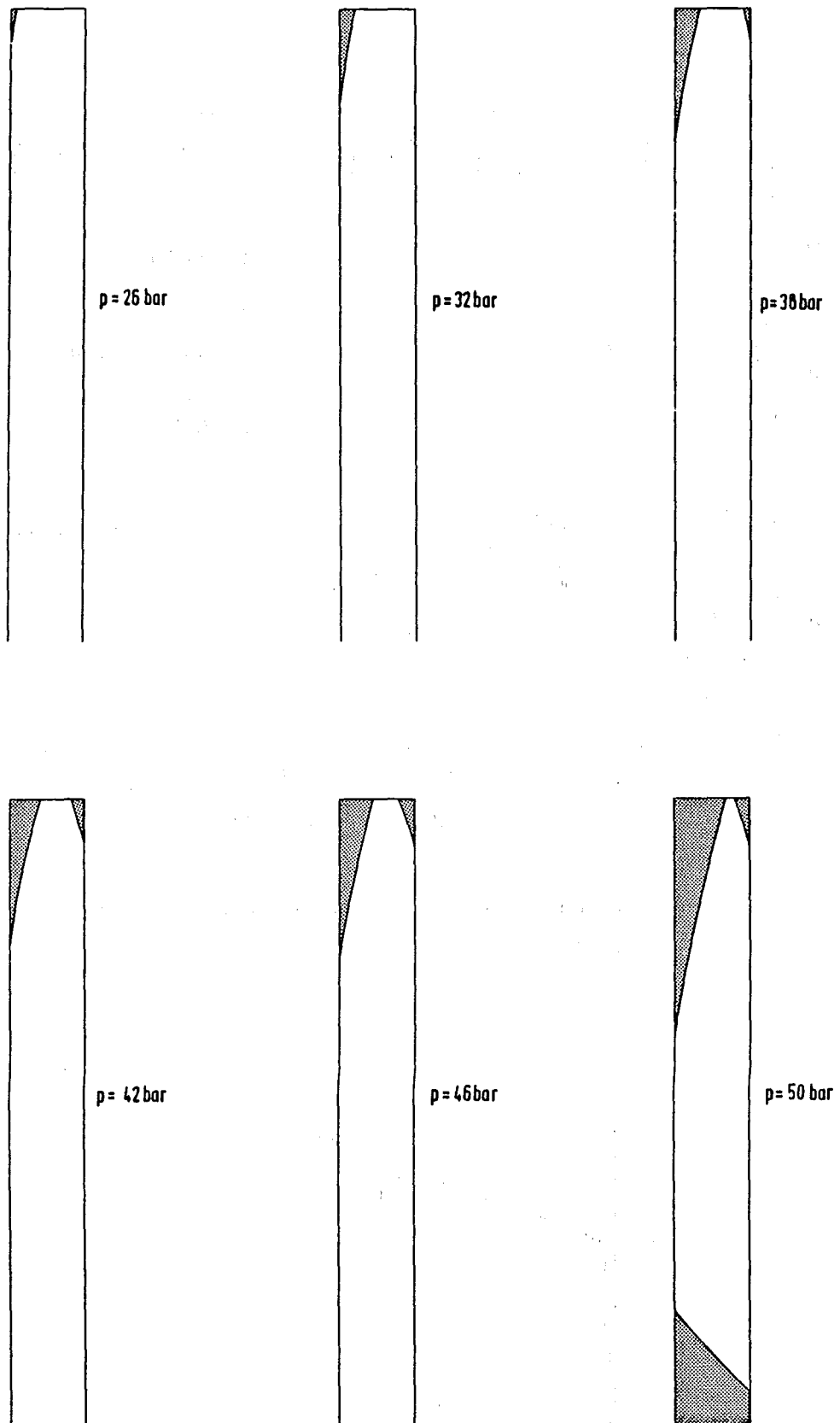


Abb. 3: Plastisch verformte Bereiche an der Einspannung

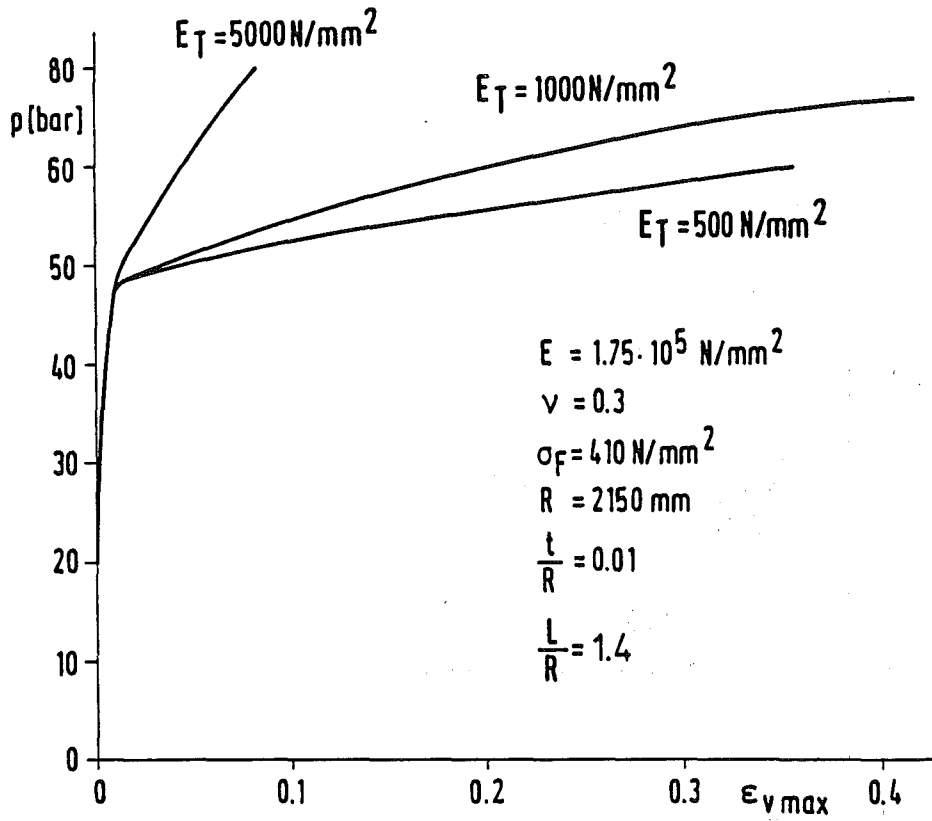


Abb. 4: Maximale Vergleichsdehnung an der Einspannung bei unterschiedlicher Werkstoffverfestigung

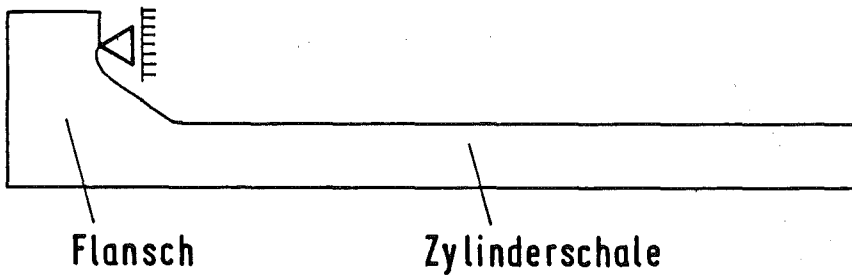


Abb. 5: Flansch-Einspannung

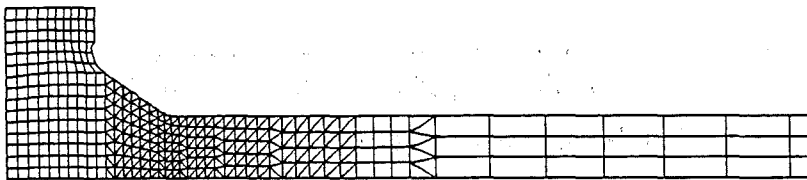


Abb. 6: FEM-Modell der Flanscheinspannung

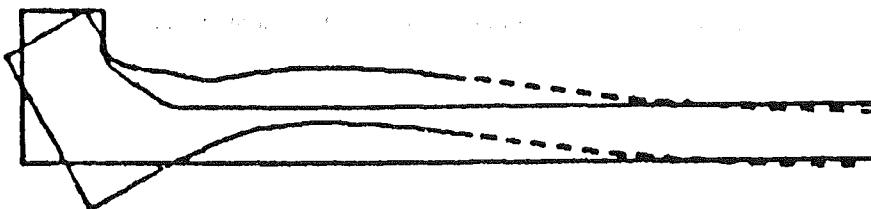


Abb. 7: Verformte Struktur

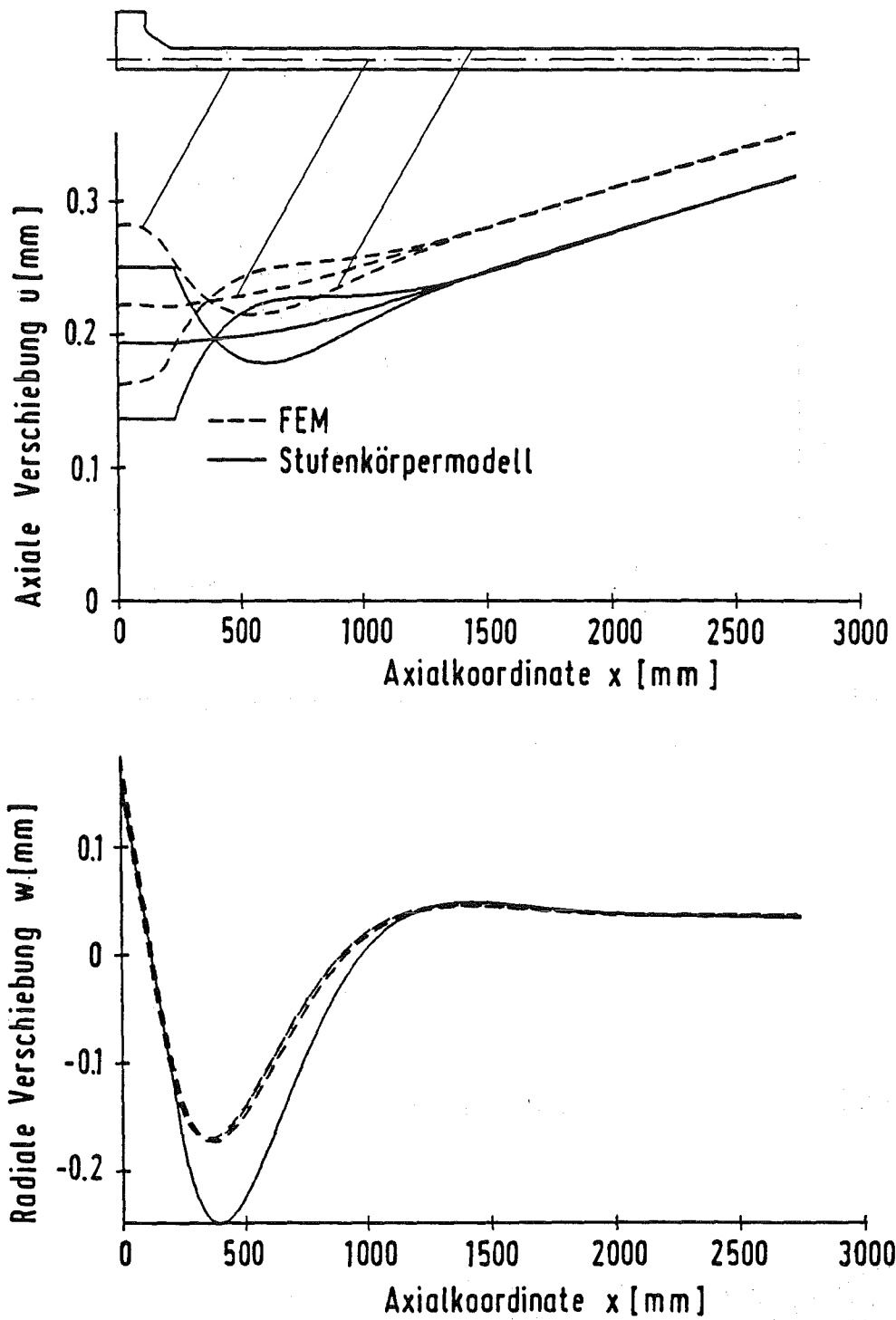


Abb. 8: Verformungen nach Stufenkörpermodell und FEM-Analyse

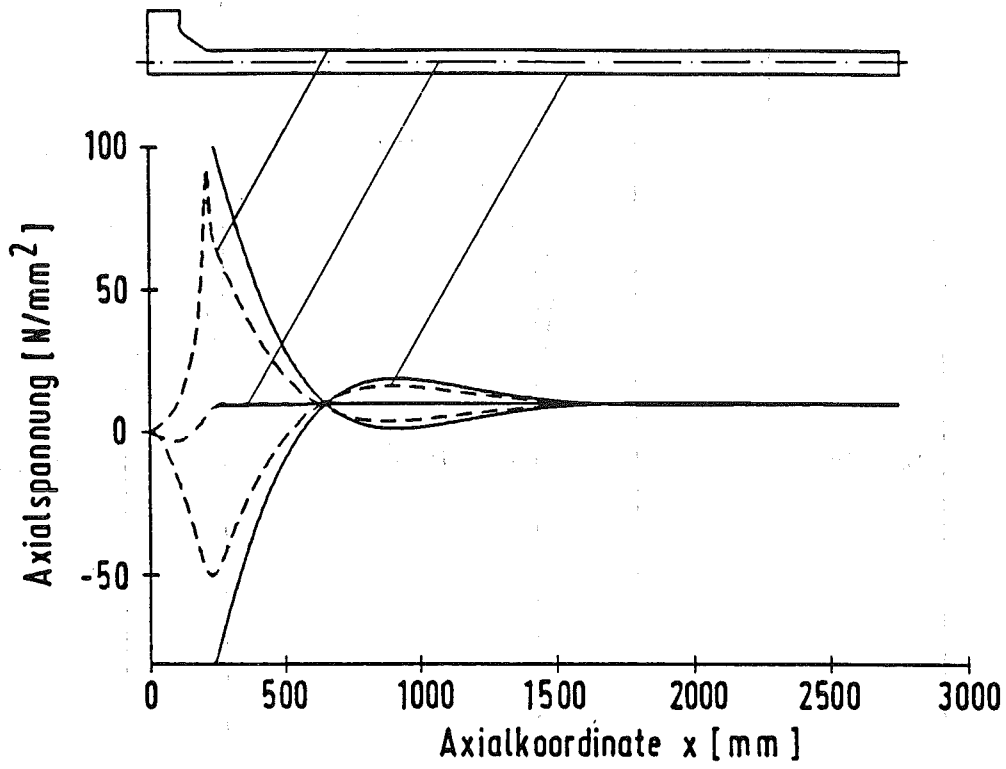


Abb. 9: Axialspannungsverlauf

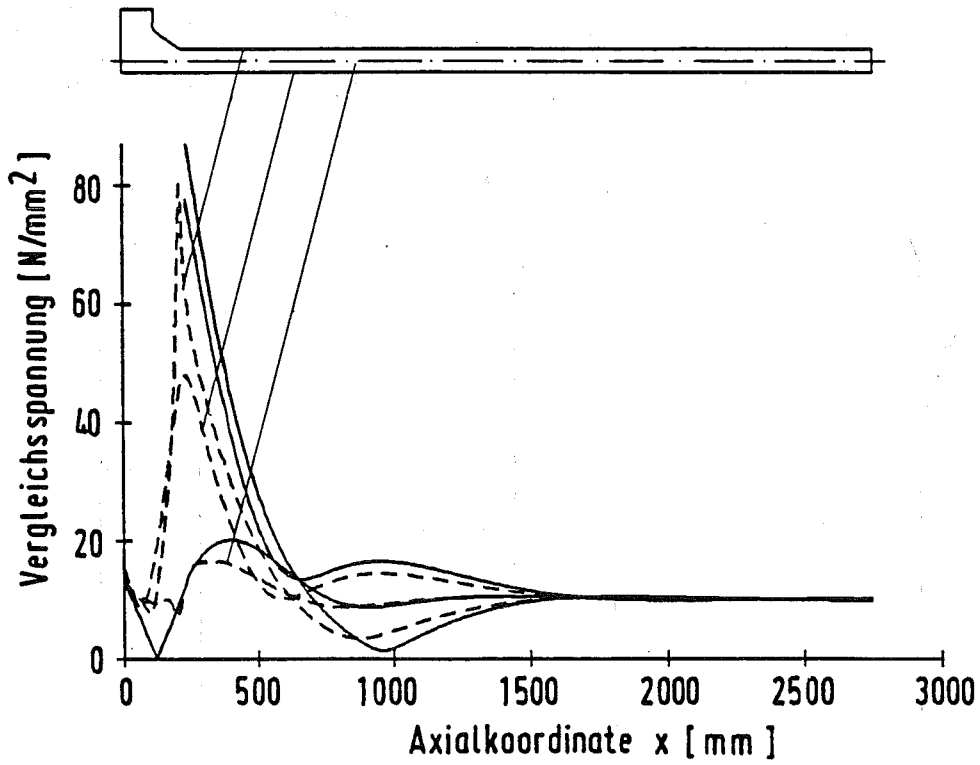


Abb. 10: Vergleichsspannungsverlauf

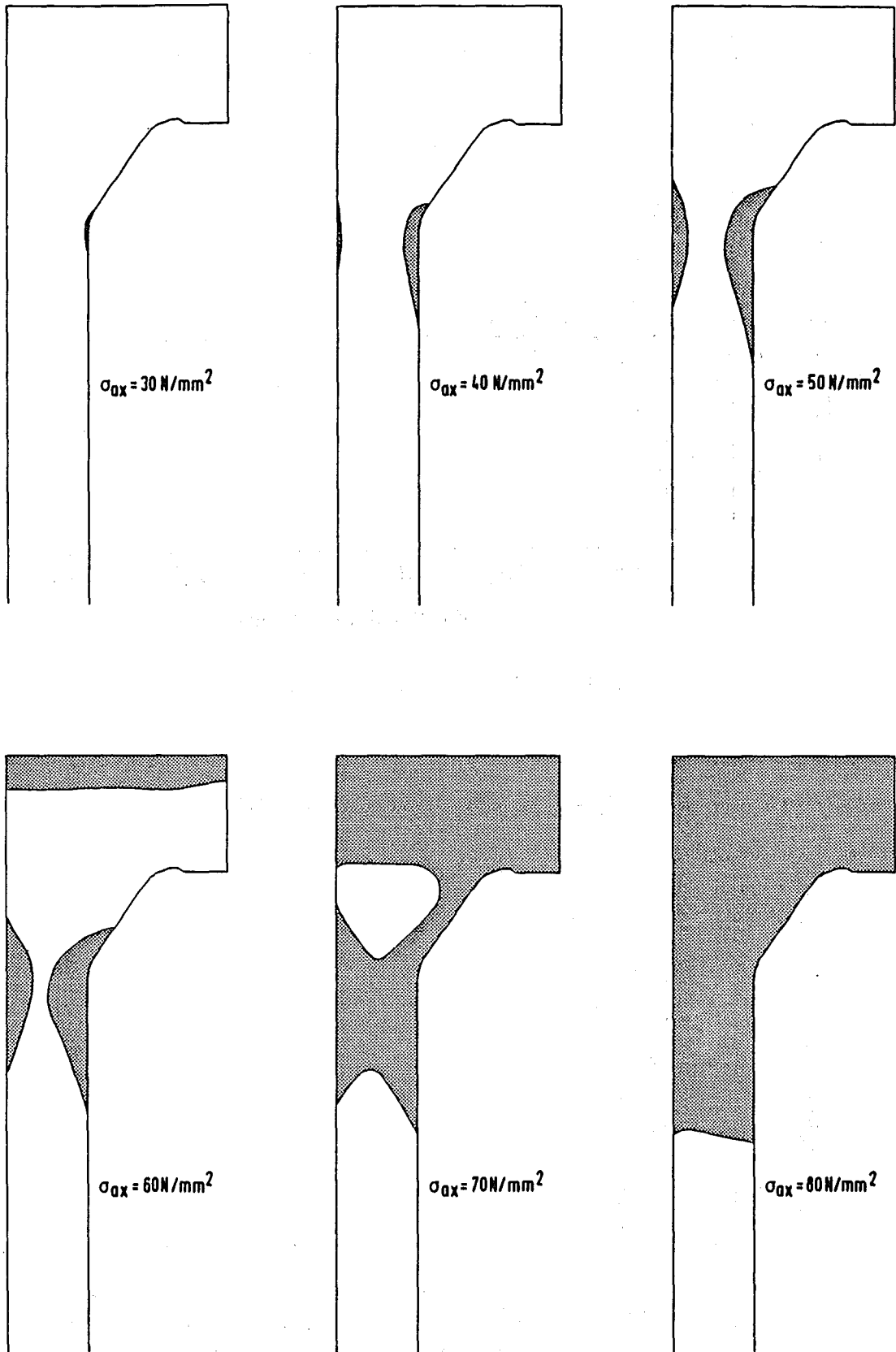


Abb. 11: Plastisch verformte Bereiche an der Einspannung

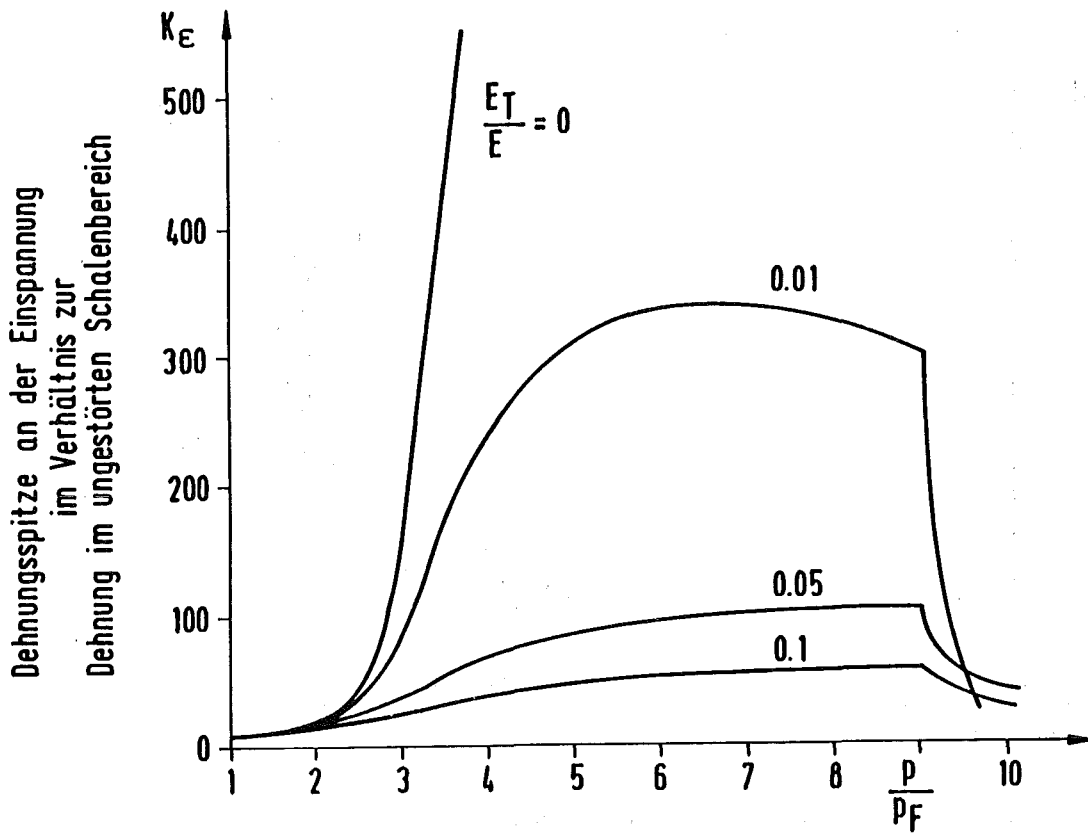


Abb. 12: Dehnungsspitze an der Einspannung bei unterschiedlicher Werkstoffverfestigung

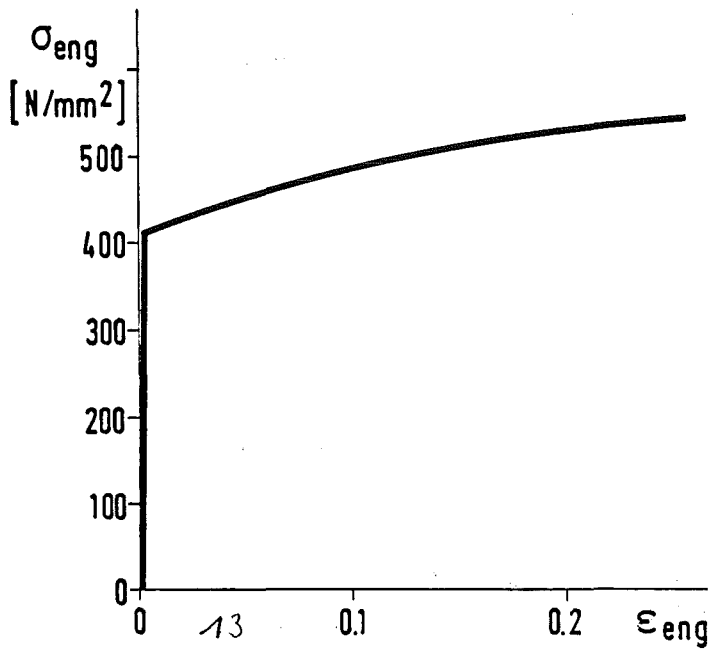


Abb. 13: Werkstoffkennlinie eines ferritischen Werkstoffes

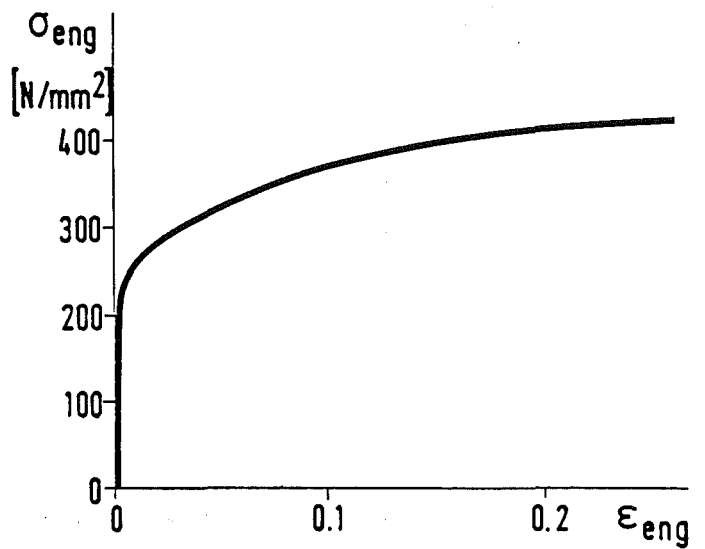


Abb. 14: Werkstoffkennlinie eines austenitischen Werkstoffes

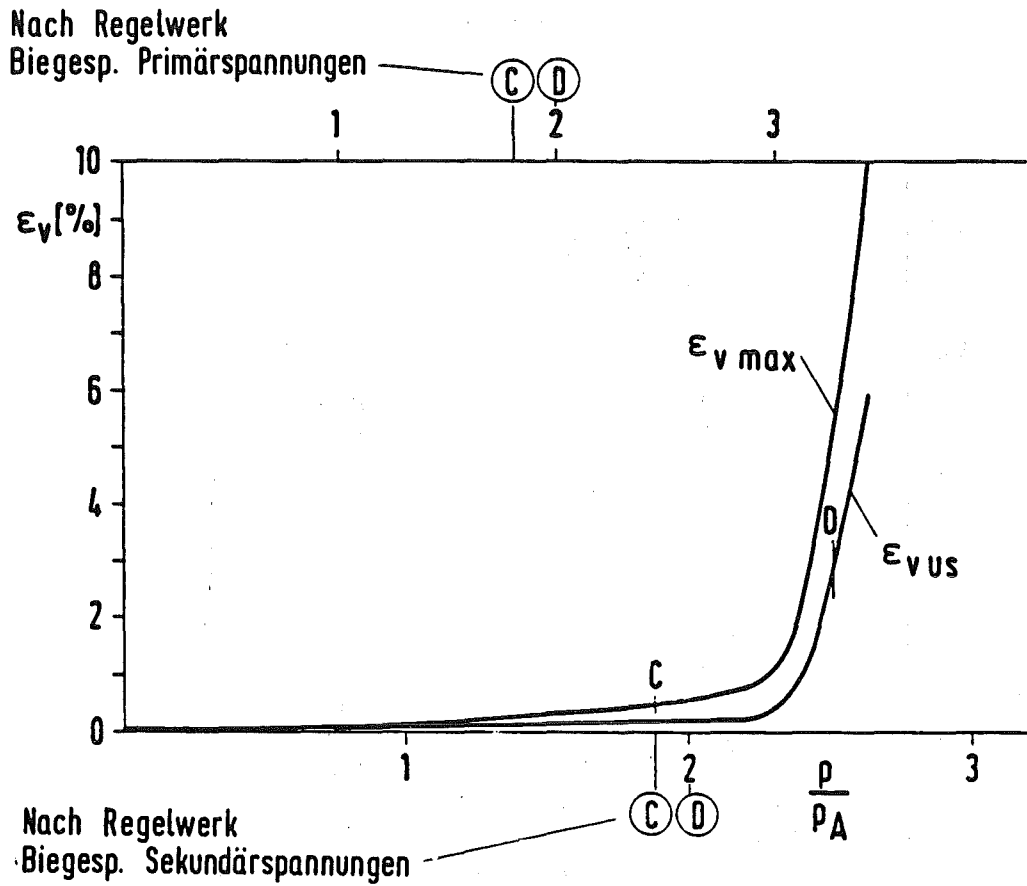


Abb. 15: Beanspruchungsgrenzen bei fester Einspannung und ferritischem Werkstoff

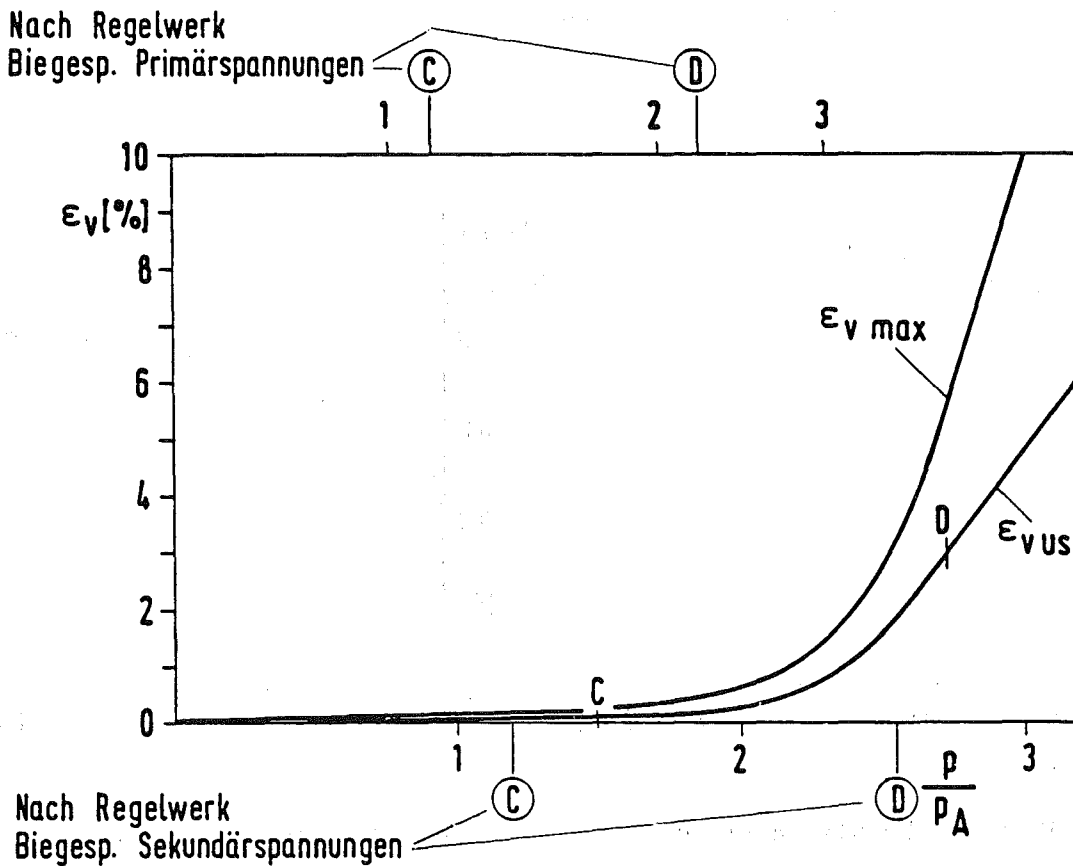


Abb. 16: Beanspruchungsgrenzen bei fester Einspannung und austenitischem Werkstoff



Nach Regelwerk  
Biegesp. Primärspannungen

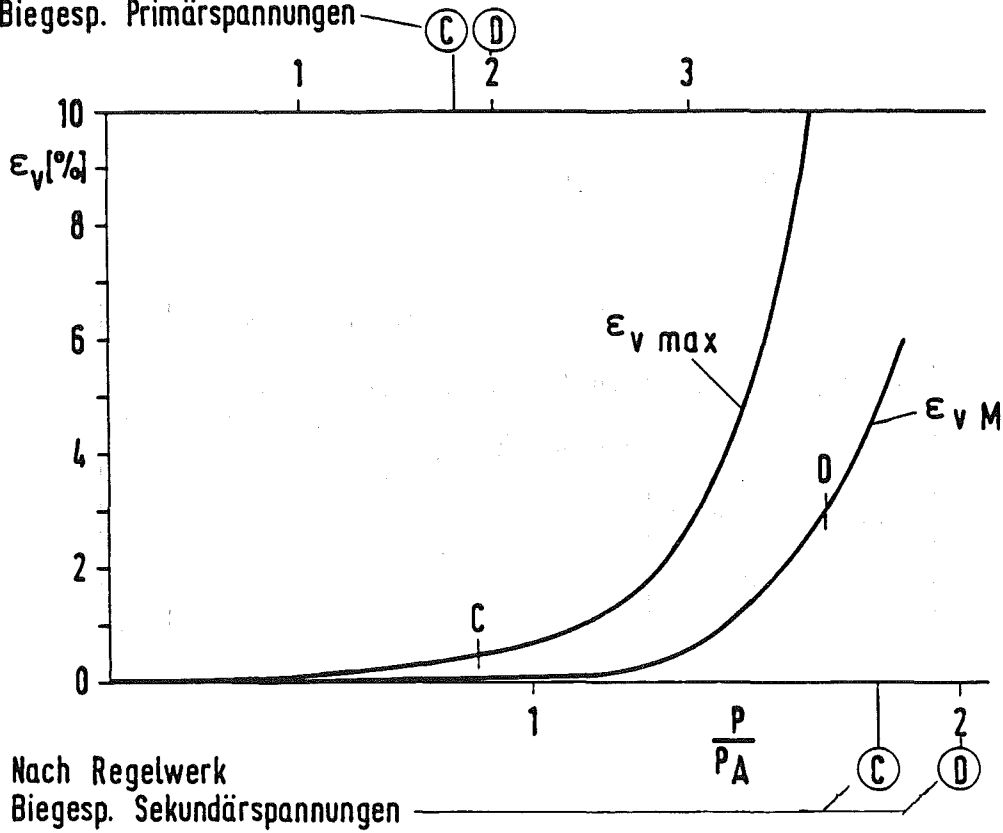


Abb. 17: Beanspruchungsgrenzen bei Flanscheinspannung und ferritischem Werkstoff

Nach Regelwerk  
Biegesp. Primärspannungen

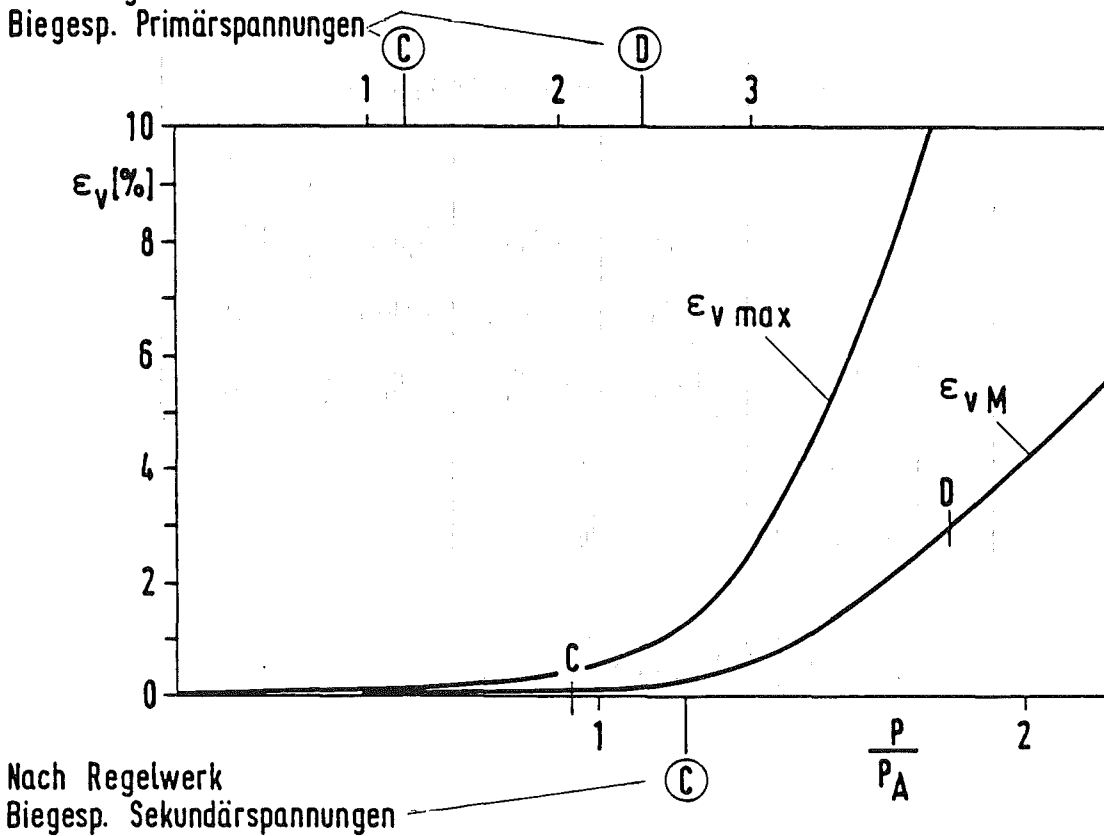


Abb. 18: Beanspruchungsgrenzen bei Flanscheinspannung und austenitischem Werkstoff

Tab. I: Spannungsarten

Primärspannungen	allg. primäre Membranspannungen	$P_m$
	örtliche primäre Membranspannungen	$P_L$
	primäre Biegespannungen	$P_B$
Sekundärspannungen		$Q$
Spannungsspitzen		$F$

Tab. II: Spannungskategorien und zugehörige Grenzwerte nach ASME oder KTA

		Beanspruchungsstufe			
		A	B	C	D
Kategorie	$P_m$	$S_m$	$1.1S_m$	$R_{p0.2T}$	$0.7R_{mT}$
	$P_L$	$1.5S_m$	$1.65S_m$	$1.5R_{p0.2T}$	$R_{mT}$
	$P_m + P_B$	$1.5S_m$	$1.65S_m$	$1.5R_{p0.2T}$	$R_{mT}$
	$P_L + P_B + Q$	$3S_m$			
	$P_L + P_B + Q + F$	$S_a$			

$$S_m = \text{Min} \left\{ \frac{2}{3} R_{p0.2T}, \frac{1}{3} R_{mT} \right\}$$

06.01.15            Entwicklung und Verifizierung von Codes zur Beanspruchung  
von Containment-Strukturen

06.01.15/06A    Weiterentwicklung und Verifizierung von Codes zur  
PNS 4127           Analyse der dynamischen Spannungen und Verformungen  
von LWR-Containments  
(G. Class, F. Eberle, B. Göller, G. Hailfinger,  
J. Kadlec, R. Krieg, G. Lang, G. Messemer,  
R. Scharnowell, E. Wolf, IRE)

## 1. Einleitung

Das Vorhaben befaßt sich mit dem Verhalten von Reaktorsicherheitsbehältern bei schweren Unfällen. Die im Berichtszeitraum durchgeführten Arbeiten haben sich auf zwei Untervorhaben konzentriert:

- (1) experimentelle und theoretische Untersuchungen des Containmentverhaltens bei Überlastung durch Innendruck bis nahe an den Versagenspunkt;
- (2) experimentelle und theoretische Untersuchungen der durch Dampfkondensation in einer Wasservorlage bewirkten Schwingungsanregung des umgebenden dünnwandigen zylindrischen Behälters.

Die Arbeiten zu dem Untervorhaben (1) werden hier nur kurz zusammengefaßt /1/. Über die Arbeiten zum Untervorhaben (2) wird ausführlicher berichtet.

## 2. Sicherheitsbehälter bei überhöhtem Innendruck

Der Sicherheitsbehälter der deutschen Druckwasserreaktoren (Typ Philippsburg II) besteht aus einer dünnwandigen Kugelschale aus Stahl. Er enthält zahlreiche Durchführungen, die in verdickte Ronden eingesetzt sind. Nach den gegenwärtigen Abschätzungen stellen die Kugelschalenbereiche in der Nähe dieser Ronden bei der Überdruckbeanspruchung des Sicherheitsbehälters Schwachstellen dar. Im Rahmen des Projektes Nukleare Sicherheit werden

diese Schwachstellen - neben anderen Schwachstellen, auf die hier nicht eingegangen werden soll - untersucht.

Zur experimentellen Ermittlung der Beanspruchungskonzentrationen vor einer Ronde wurden auf dem Membranversuchsstand zwei anfänglich ebene Membranen, die in der Mitte eine verdickte Ronde enthielten, einseitig mit Flüssigkeitsdruck beaufschlagt und so weit verformt, bis Versagen auftrat. Die Versagensdrücke lagen mit 28 bar und 32 bar erheblich unter dem Versagensdruck der Membran ohne Verdickung (42 bar). Die größten Vergleichsdehnungen lagen bei 50 %. Die Membranen versagten, in dem einige mm vor dem Wandstärkenübergang ein Riß um die Ronde herum lief und so die Ronde zu 50 % bzw. 80 % heraustrennte (Bild 1).

Die Nachrechnung dieser Versuche mit dem Programm ROTMEM ergab befriedigende Übereinstimmung. Das Rechenprogramm konnte daher eingesetzt werden, um die Beanspruchungskonzentrationen im Sicherheitsbehälter vor Ronden bei plastischem Beanspruchungsniveau zu untersuchen.

Für die Rechnungen wurden die Materialeigenschaften des Containmentstahles 15 MnNi63 bei 170°C und bei einer Dehngeschwindigkeit von rund  $10^{-6}/s$  benutzt. Bild 2 zeigt zusammenfassend für verschiedene Durchführungen, wie sich die größten Vergleichsdehnungen mit wachsendem Innendruck ändern. Man erkennt, daß bei einem Überdruck von rund 15,4 bar Versagen durch plastische Instabilität auftritt. Die Größe der Ronde, oder das Vorhandensein einer Ronde überhaupt, haben kaum einen Einfluß auf den Versagensdruck.

Wenn jedoch der Druck im Containment soweit ansteigt, daß es zum Versagen an einer solchen Stelle kommt, dann wird ein Riß entstehen, der um die Ronde herumläuft (wie in den Membranversuchen, Bild 1). Dann aber wäre ein Loch im Containment, und die Dehnungen am Lochrand müßten auf mehr als den doppelten Wert ansteigen (Fall P5 im Bild 2). Bei dem hohen Beanspruchungsniveau würden aber kleine lokale Störungen - etwa durch das rauhe Rißufer - Beanspruchungsspeaks verursachen, so daß neue Risse entstünden, die dann radial in das Containment hineinlaufen und so zum globalen Versagen führen würden.

Wie schon angedeutet, kann diese Versagensart nur dann auftreten, wenn nicht andere Schwachstellen im Containment einen derartigen Druckanstieg verhindern.

### 3. Schwingungsanregung in einer Wasservorlage

#### 3.1 Theoretische Modelle

Die Zielsetzung des zweiten Untervorhabens war die experimentelle Verifizierung des Rechenprogramms VOICE /2/ für den Fall der Übertragung von Schwingungen, ausgelöst durch Dampfkondensation an der Mündung eines Kondensationsrohres, auf die nachgiebige Wand der zylindrischen Kondensationskammer. Daneben wurden die experimentellen Ergebnisse auch mit Rechenergebnissen des Programmes SING-S verglichen /3/. Da dieser Teil der Arbeiten noch nicht abgeschlossen ist, folgt eine genauere Beschreibung zu einem späteren Zeitpunkt.

Den Untersuchungen lag folgender linearer Ansatz zugrunde:

$$y(\vec{r}, t) = \int g(\vec{r}, t - \tau) x(\tau) d\tau, \quad (1)$$

wobei  $y(\vec{r}, t)$  die dynamische Antwort der Kondensationskammer,  $g(\vec{r}, t - \tau)$  die Gewichtsfunktion und  $x(\tau)$  die für diesen Belastungsfall speziell eingeführte Volumenquelle bezeichnen. Als dynamische Antwort  $y(\vec{r}, t)$  kann entweder die transiente Druckantwort in der Wasservorlage oder die transiente Beschleunigung, Verformung oder Spannung der die Wasservorlage umschließenden Wandung betrachtet werden;  $\vec{r}$  bezeichnet die Koordinaten der entsprechenden Meßposition und  $t$  bzw.  $\tau$  die Zeit. Die Volumenquelle  $x(t)$  wurde in /2/ als zeitliche Ableitung des an der Kondrohrmündung verdrängten Wasservolumens definiert. Die die Übertragungseigenschaften der Kondensationskammer beschreibende Gewichtsfunktion  $g(\vec{r}, t - \tau)$  wird je nach Art von  $y(\vec{r}, t)$  als die Druck-, Beschleunigungs-, Verformungs- oder Spannungsantwort der Kondensationskammer auf eine in Form eines Dirac-Impulses verlaufenden Volumenquelle  $x(t)$  definiert. Sie wird deswegen auch als Impulsantwortfunktion bezeichnet. Bei dem Ansatz (1) wird der sehr komplizierte Kondensationsvorgang in der Wasservorlage außer Acht gelassen.

Das Rechenprogramm VOICE wurde für die Extraktion der einem isolierten Chugging-Vorgang zugeordneten Volumenquelle  $x(t)$  aus einem Satz von  $N$  simultan gemessenen Druckantwortsignalen  $y(\vec{r}_j, t) = p(\vec{r}_j, t)$  ( $j = 1, 2, \dots, N$ ) entwickelt /2/. Dieses Rechenprogramm basiert auf einer zylindrischen Geometrie der Kondensationskammer, kompressiblem Fluid und einer vereinfachten Beschreibung der Kondkammerwandung, die als ein System von einigen diskreten Komponenten mit jeweils einem einzigen Freiheitsgrad angenommen wird. Mit diesem Rechenprogramm werden auch die für die Extraktion benötigten Impulsantwortfunktionen des Druckes in der Wasservorlage berechnet. Das Rechenprogramm SING-S ist ein Mehrzweckprogramm für die Berechnung gekoppelter fluid/strukturdynamischer Aufgaben. Es basiert auf einem Finite-Element-Programm für die Modellierung der Struktur und einem Randintegralverfahren für die Modellierung des angekoppelten Fluids, welches jedoch inkompressibel und reibungsfrei angenommen wird /3/. Wenn die Volumenquelle  $x(t)$  einmal vorgegeben ist, können mit diesem Rechenprogramm sowohl die transiente Druckantwort in der Wasservorlage als auch die entsprechenden transienten Beschleunigungen, Verformungen oder Spannungen in der Kondkammerwandung berechnet werden.

Es wurde eine Versuchsreihe mit zwei verschiedenen Versuchsanordnungen konzipiert. Eine Versuchsanordnung mit simulierter Volumenquelle diente der experimentellen Bestimmung der verschiedenen Gewichtsfunktionen  $g(\vec{r}, t - \tau)$ . Eine andere Versuchsanordnung mit einem Kondensationsrohr und angeschlossener Dampfzufuhr wurde für die Realisierung der Chugging-Vorgänge in der Wasservorlage und die experimentelle Bestimmung der entsprechenden dynamischen Antworten benutzt. Die dazugehörige Volumenquelle  $x(t)$ , die direkt nicht meßbar ist, wurde anhand der experimentell ermittelten Funktionen  $y(\vec{r}, t)$  und  $g(\vec{r}, t - \tau)$  über die Entfaltung des Integrals (1) mit dem Rechenprogramm EVA /4/ berechnet.

### 3.2. Versuchsanordnungen

Abb. 3 zeigt den Kondensationsversuchsstand für die Realisierung der Chugging-Ereignisse und die Aufnahme der entsprechenden dynamischen Antworten in der Kondensationskammer. Er besteht aus einem zylindrischen Versuchsbehälter ( $\phi$  1000x3x1600 mm), einer Wasservorlage (Wasserspiegelhöhe 1350 mm), einer Einrichtung zum Einblasen von feinen Luftbläschen in die Wasservorlage (in Abb. 3 nicht dargestellt) und einem Kondensationsrohr ( $\phi$  150x

4x3800 mm, Bodenabstand 400 mm). Es wurden zwei Anordnungen des Kondrohres in der Kondkammer benutzt: eine achsensymmetrische Anordnung ( $e = 0$ ) und eine exzentrische Anordnung ( $e = 100$  mm). Das Kondrohr wurde an einen Pufferbehälter (Volumen  $1 \text{ m}^3$ ) angeschlossen, der die in realen LWR-Druckabbausystemen obligatorisch vorhandene Druckkammer simuliert. Die Versuchsanlage wurde mit Sattedampf aus dem Betriebsnetz gespeist. Das in Abb. 3 dargestellte Druckabbausystem wurde mit 14 Positionen für die Temperaturmessung, 31 Positionen für die Druckmessung, 41 Positionen für die Beschleunigungsmessung und einer Position für die Wegmessung versehen; die einzelnen Meßpositionen sind in Abb. 3 und 4 eingezeichnet.

Abb. 5 zeigt die Versuchsanordnung mit simulierter Volumenquelle, wofür ein oszillierender Kolben benutzt wurde. Dieser wurde an einen elektrodynamischen Schwingungserzeuger angeschlossen und jeweils mit zwei Druck- und zwei Beschleunigungsmeßstellen instrumentiert.

Alle in Abb. 3-5 angedeuteten Meßwertaufnehmer wurden über entsprechende Meßverstärker an ein zentrales Meßdatenerfassungssystem angeschlossen. Die Abfragefrequenz der A/D-Umwandlung betrug 3125 Hz. Die Auswertung der digitalisierten und auf einem Magnetband registrierten Meßsignale erfolgte auf einem zentralen Rechensystem Typ IBM 3034.

### 3.3 Untersuchungsergebnisse

Im Berichtszeitraum wurde eine Versuchsreihe mit exzentrischer Versuchsanordnung ohne Luftbeimischung in die Wasservorlage ( $e = 100$  mm,  $\alpha = 0$ ) unter sukzessivem Einsatz aller Meßstellen abgeschlossen. Außerdem wurden einzelne Experimente mit abgemagerter Instrumentierung, zentrischer Versuchsanordnung ( $e = 0$ ) und variabler Luftbeimischung ( $\alpha = 0,54, 1, 3, 5$  und  $7$  vol. %) durchgeführt. Die Auswertung dieser Experimente und die Durchführung der begleitenden Rechnungen hat begonnen. Einige typische, dabei gewonnene Ergebnisse sind in Abb. 6 - 10 vorgestellt.

Abb. 6 zeigt als Beispiel die bei einem Kondensationsversuch ( $e = 0$ ,  $\alpha = 0,54$  %) gemessenen Zeitverläufe der Temperatur im oberen ( $\theta_{54}$ ) bzw. unterem ( $\theta_{42}$ ) Teil des Kondrohres, des Druckes in der Druckkammer ( $p_{63}$ ), im

unteren Teil des Kondrohres ( $p_{45}$ ) und in der Wasservorlage ( $p_{36}$ ) sowie der Beschleunigung der Versuchsbehälterwand ( $a_3$ ). Diese Zeitverläufe zeigen, daß der Kondensationsprozeß quasi-periodisch abläuft; die entsprechende Zyklusperiode beträgt ca. 1,4 - 1,6 s. Die beiden Temperaturverläufe zeigen deutlich, daß das Kondrohr in jedem Zyklus teilweise mit Wasser gefüllt und durch den zuströmenden Dampf wieder freigeblasen wird. Nach jedem Freiblasen des Kondrohres kondensiert der Dampf sehr schnell in der Wasservorlage, was mit heftigen Druckpulsationen begleitet ist (sogenanntes Chugging-Ereignis). Jedes Chugging-Ereignis wird in der Regel mit einer abrupten Druckabsenkung und nachfolgendem scharfen Impuls in positiver Richtung eingeleitet, wonach ein stark gedämpftes Nachschwingen einsetzt (s. die Druckverläufe  $p_{45}$  und  $p_{36}$  und den Beschleunigungsverlauf  $a_3$ ). In diesem Zeitpunkt wird das Kondrohr neu mit Wasser gefüllt und der ganze Vorgang wiederholt sich. In den nachfolgenden Paragraphen wird jeweils nur der Beginn eines ausgewählten Chugging-Ereignisses mit einigen wenigen Pulsationen betrachtet.

### 3.4 Testfall mit zentrischer Versuchsanordnung und 5 % Luftbeimischung

Die zentrische Versuchsanordnung ( $e = 0$ ) und der relativ große Luftgehalt in der Wasservorlage ( $\alpha = 5$  vol. %) können als optimale Bedingungen aus dem Anwendungsbereich des Rechenprogrammes VOICE betrachtet werden. Die damit erzielten Ergebnisse werden in Abb. 7 - 10 dokumentiert. Abb. 7 und 8 beziehen sich auf einen Versuch mit dem oszillierenden Kolben; Abb. 9 und 10 auf einen Kondensationsversuch. Abb. 7 zeigt den Betrag  $|H_{a_k, p_{36}}(f)|$  der Frequenzgangfunktion des Druckes an der Meßposition DA 36. Diese Meßposition befindet sich an der Innenwand des Versuchsbehälters, 400 mm oberhalb des Kondkammerbodens (s. Abb. 4). Die Frequenzgangfunktion wurde auf die Beschleunigung des oszillierenden Kolbens normiert. Die voll ausgezogene Linie bezeichnet den experimentellen, die gestrichelte den auf dem Rechenprogramm VOICE basierenden theoretischen Verlauf. Im unteren Frequenzbereich verfolgen die beiden Kurven den gleichen Trend mit einer Abweichung von ca. 7 % zwischen der vorausgerechneten und der gemessenen Eigenfrequenz des fundamentalen Modes ( $f_1 \approx 29$  Hz) und ca. 30 % zwischen den entsprechenden modalen Dämpfungsquotienten ( $\zeta_1 \approx 8$  %). Im oberen Frequenzbereich treten beträchtliche Abweichungen auf, die auf die Vernachlässigung von höherfrequenten Schalenmodes im Rechenprogramm VOICE zurückzuführen sind. Abb. 8 zeigt die gemessene und die vorausgerechnete Impulsantwortfunktion



des Druckes  $g_{a_k, p36}(t)$ , die sich auf die gleiche Meßstelle wie oben beziehen. Die experimentelle Impulsantwortfunktion (voll ausgezogene Linie) wurde über die Fourier-Transformation der oben diskutierten experimentellen Frequenzgangfunktion gewonnen; die entsprechende Umrechnung wurde mit dem Rechenprogramm EVA /4/ durchgeführt. Die theoretische Impulsantwortfunktion (gestrichelte Linie) wurde mit dem Rechenprogramm VOICE vorausberechnet (diese Funktion diente als Ausgangsbasis für die Berechnung der oben diskutierten theoretischen Frequenzgangfunktion). Die theoretische und die experimentelle Impulsantwortfunktion stimmen nur in einem schmalen Zeitintervall  $0 - 10$  ms gut miteinander überein; der spätere Verlauf ( $t > 10$  ms) ist mit Abweichungen belastet, die den gleichen Ursprung haben wie oben bereits erwähnt wurde. Basierend auf der guten Abschätzung des ersten Peaks ist jedoch zu erwarten, daß der mit dieser Funktion über Gl. (1) abgeschätzte Maximalwert von der realen Maximalbelastung nicht wesentlich abweichen wird.

Abb. 9 zeigt die einem isolierten Chugging-Ereignis zugeordneten Quellfunktionen  $x(t)$ ; das Originalereignis ist in Abb. 10 präsentiert (voll ausgezogene Linie). Der entsprechende Kondensationsversuch wurde mit zentrischer Versuchsanordnung, 5 vol. % Luftgehalt und mittlerem Dampfmassenstrom  $\dot{m} = 0,5 \text{ kgs}^{-1}$  durchgeführt; die Anfangstemperatur in der Wasservorlage betrug  $\theta_{OW} = 32^\circ\text{C}$ . Die mit voll ausgezogener Linie in Abb. 9 dargestellte Quellfunktion wurde über die Entfaltung des Integrals (1) mit dem Rechenprogramm EVA extrahiert, wobei die experimentelle Impulsantwortfunktion (voll ausgezogene Linie in Abb. 8) benutzt wurde. Mit gestrichelter Linie ist die mit dem Rechenprogramm VOICE aus drei simultan gemessenen Druckverläufen extrahierte Quellfunktion dargestellt. Der generelle Trend der beiden Zeitverläufe ist ähnlich, die lokalen Abweichungen haben die gleichen Ursachen wie oben bereits diskutiert wurde.

Abb. 10 zeigt die Resultate eines globalen Tests der bei der Bestimmung der Frequenzgangfunktion und bei der Extraktion von Quellfunktion erzielbaren Genauigkeit. Mit voll ausgezogener Linie ist hier der Zeitverlauf der bei dem oben diskutierten Versuch gemessenen Druckantwort dargestellt. Die mit punktierter bzw. gestrichelter Linie dargestellten Zeitverläufe der gleichen Funktion wurden mit dem Rechenprogramm EVA bzw. VOICE über das Faltungintegral (1) rekonstruiert. Alle drei Kurven sollten a priori genau

miteinander übereinstimmen. Die vorhandenen kleinen Abweichungen zeugen davon, daß die erzielte Meß- und Rechengenauigkeit völlig ausreichend ist.

#### 4. Schlußfolgerungen

Aus den Ergebnissen der bisher durchgeführten Untersuchungen des Untervorhabens (2) werden folgende Schlüsse gezogen:

1. Die Anwendung des linearen Ansatzes (1) für die Untersuchung der durch Dampfkondensation bewirkten Schwingungsanregung eines Kondkammermodelles hat sich gut bewährt.
2. Die aus der Druckantwortsignalen mit dem Rechenprogramm VOICE extrahierten Quellfunktionen haben sich als brauchbare Abschätzungen der realen Quellfunktionen ausgewiesen, insbesondere wenn in der Wasservorlage der Kondensationskammer Luft enthalten ist.

#### Literatur

- /1/ Göller, B., Krieg, R., Messemer, G.: Failure of Reinforced Sections of Spherical Steel Containments Under Excessive Internal Pressure. Trans. 8th SMIRT-Conf., Brussel, 19 - 23 August 1985; Paper J 3/6
- /2/ Class, G.: Analyse von kondensationsbedingten Druckpulsationen im LWR-Druckabbausystem-Rechenprogramm VOICE. KfK 3921, Kernforschungszentrum Karlsruhe, März 1985
- /3/ Krieg, R., Göller, B., Hailfinger, G.: Transient, three-dimensional potential flow problems and dynamic response of surrounding structures. Part II: Simultaneous coupling between fluid and structural dynamics (computer code SING-S). Journal of Computational Physics 34, 164 - 183, 1980
- /4/ Eberle, F., Kadlec, J.: Extraction of Eigenfrequencies, Mode Shapes and Critical Damping Ratios of HDR Core Barrel Mockup from Step Relaxation Response Signals Measured in the Snapback Test Series V59. KfK 3408, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Oct. 1982

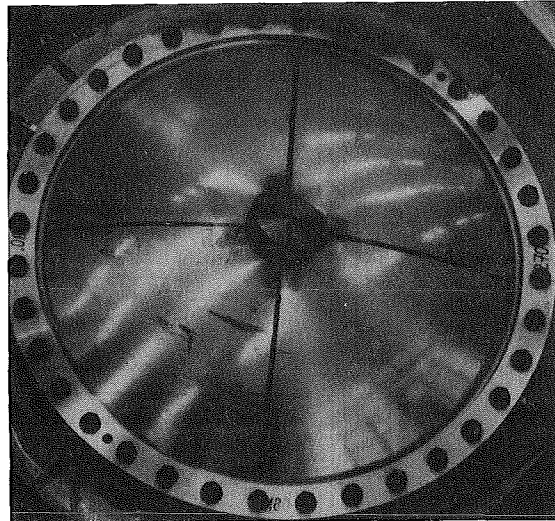


Abb. 1 : Membran mit verdickter, zentrischer Ronde nach dem Versagen bei einem Druck von 28 bar

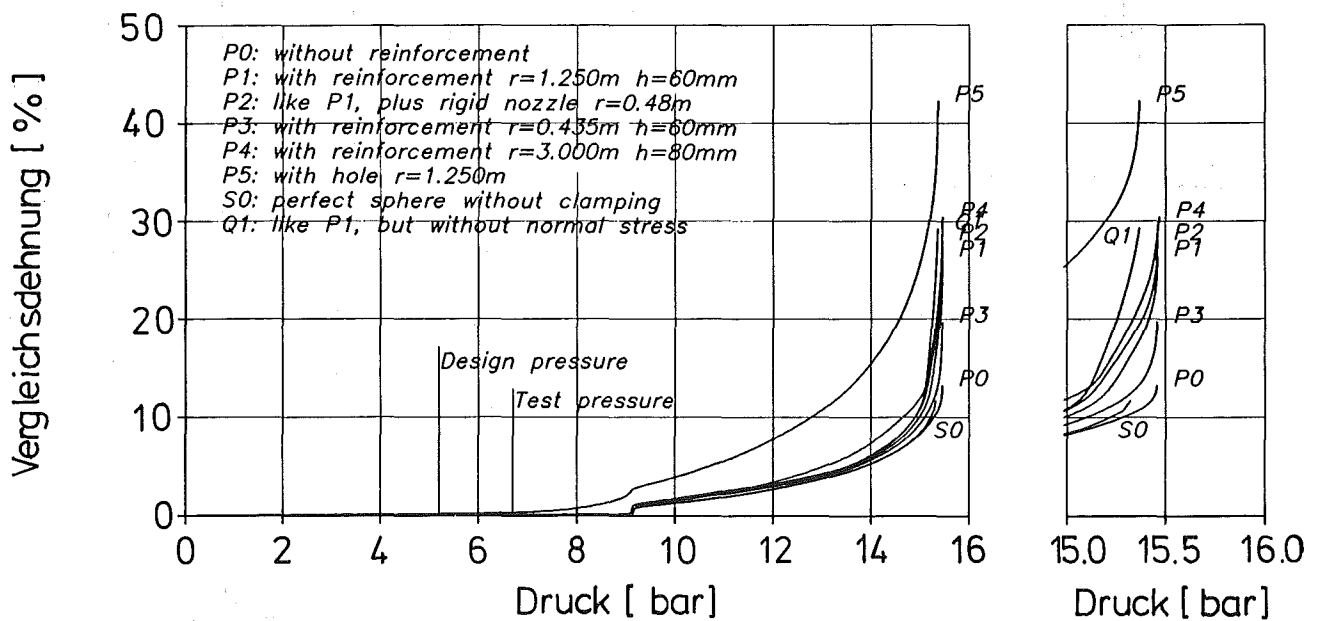


Abb. 2 : Größte Vergleichsdehnungen im Sicherheitsbehälter unter innerem Überdruck bei verschiedenen Ronden

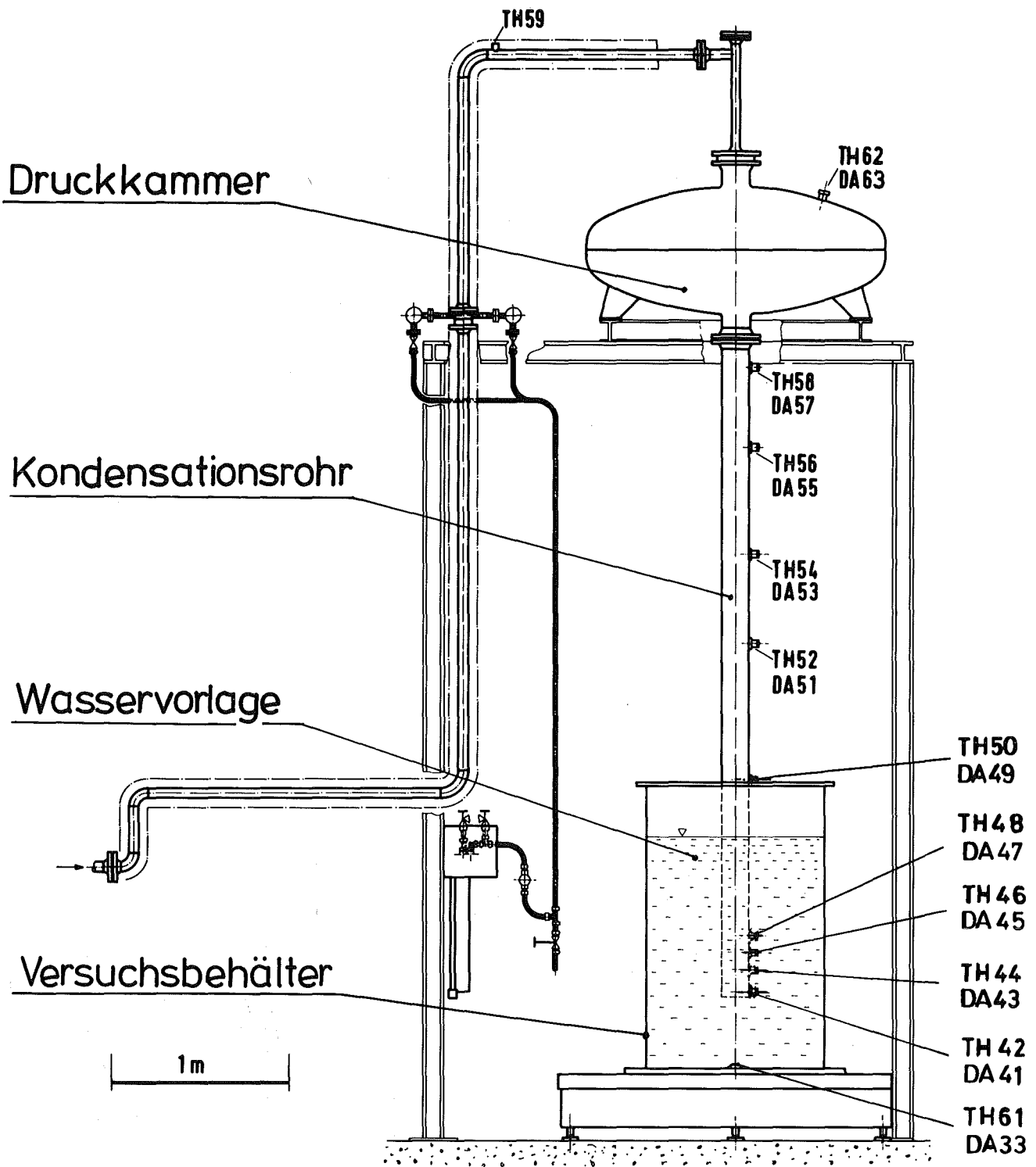
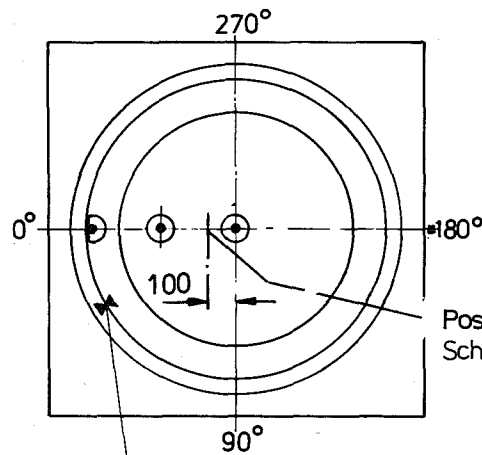
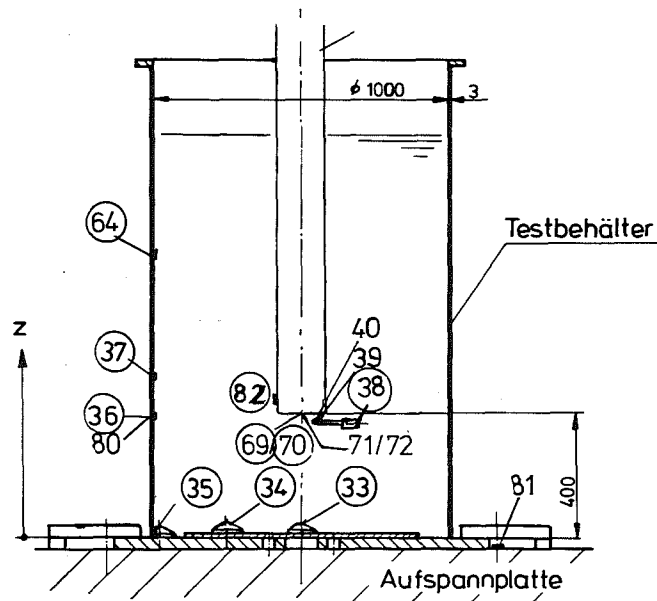
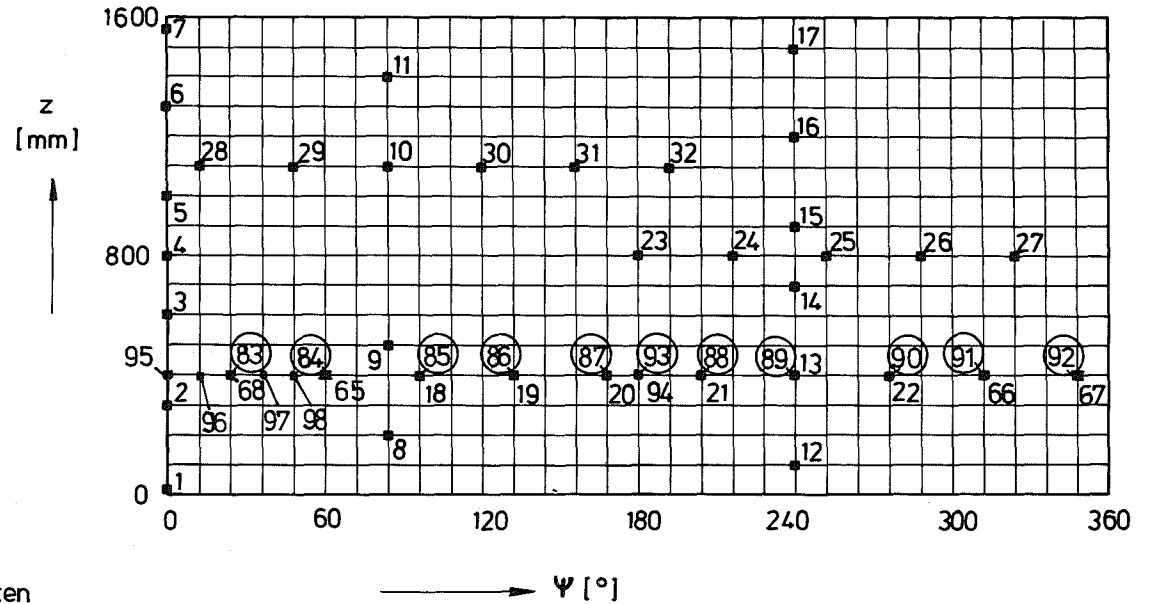


Abb.3: Versuchsaufbau für Kondensationsexperimente



Schweißnaht

Abwicklung des Testbehältermantels



- 4100-39 -



Abb.4: Meßstellenplan für die Testzylinderschale und die Wasservorlage

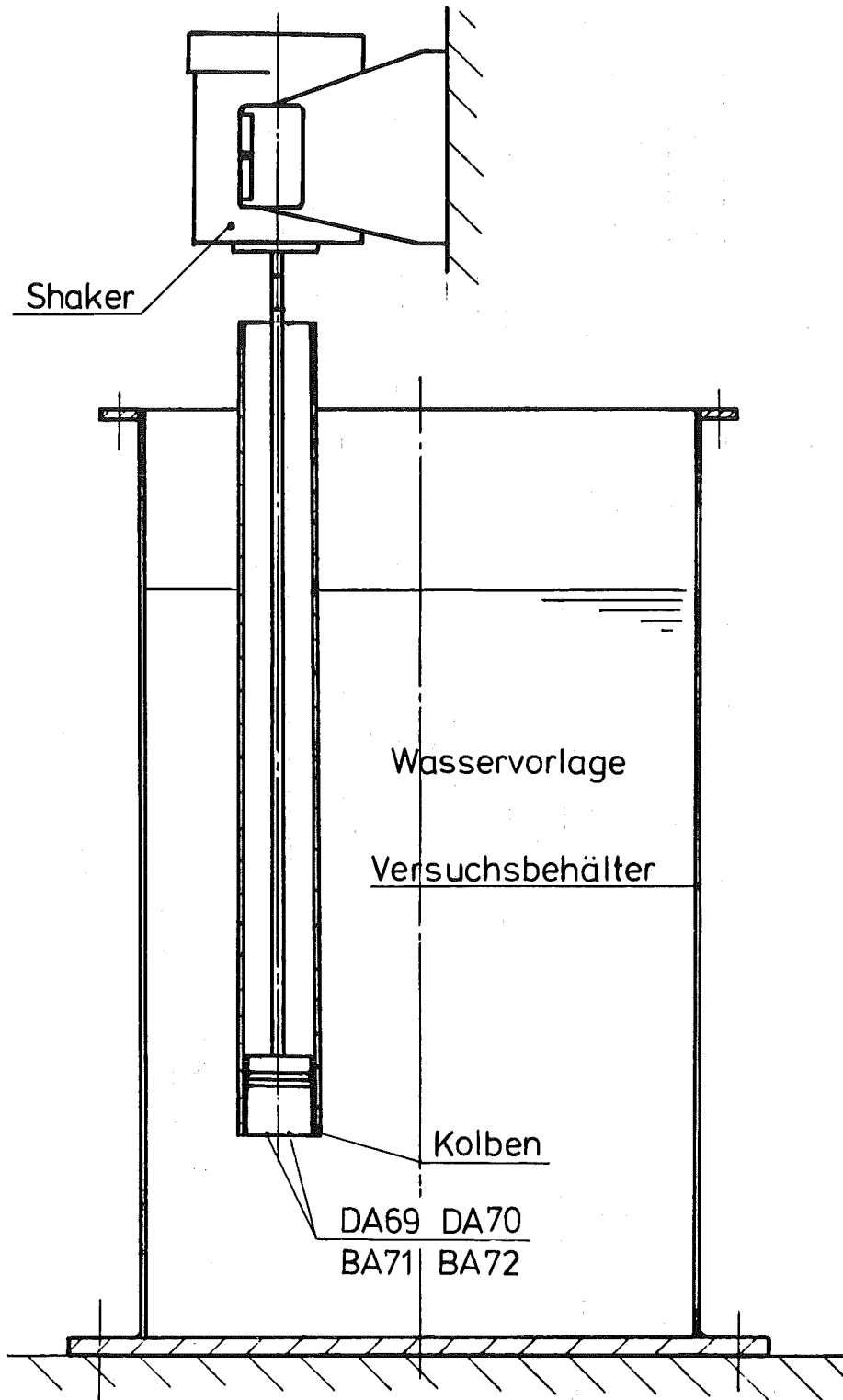
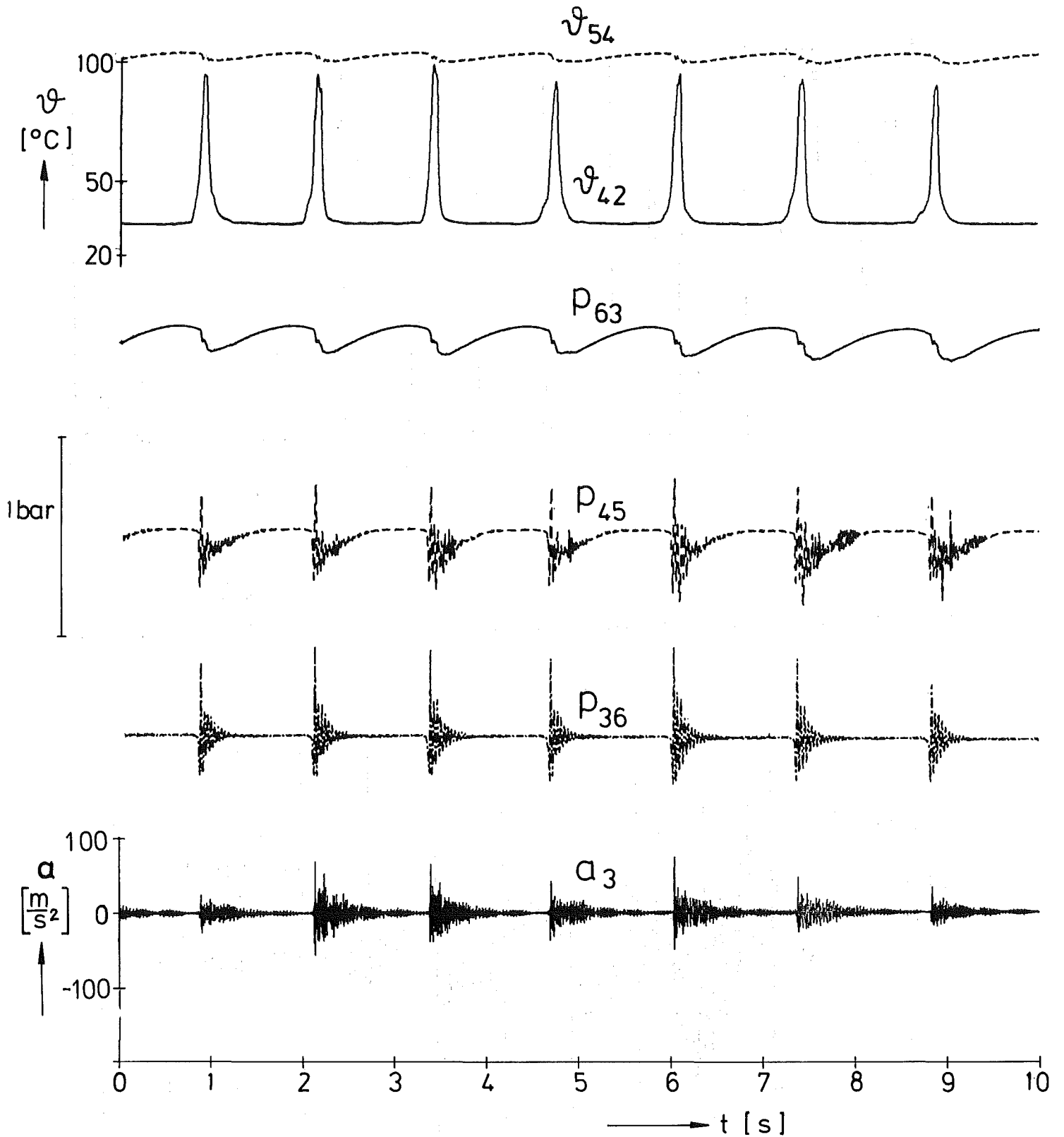
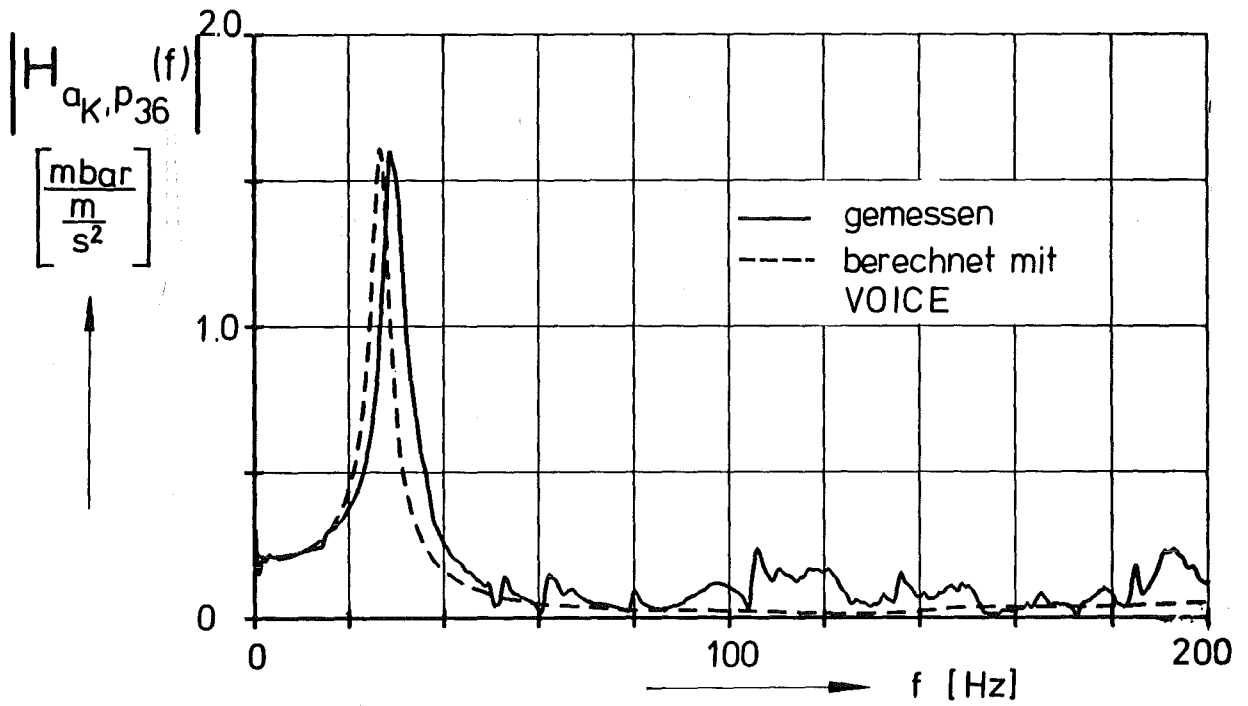


Abb.5 : Versuchsaufbau mit hydrodynamischer Schwingungsanregung erzeugt durch einen Shaker



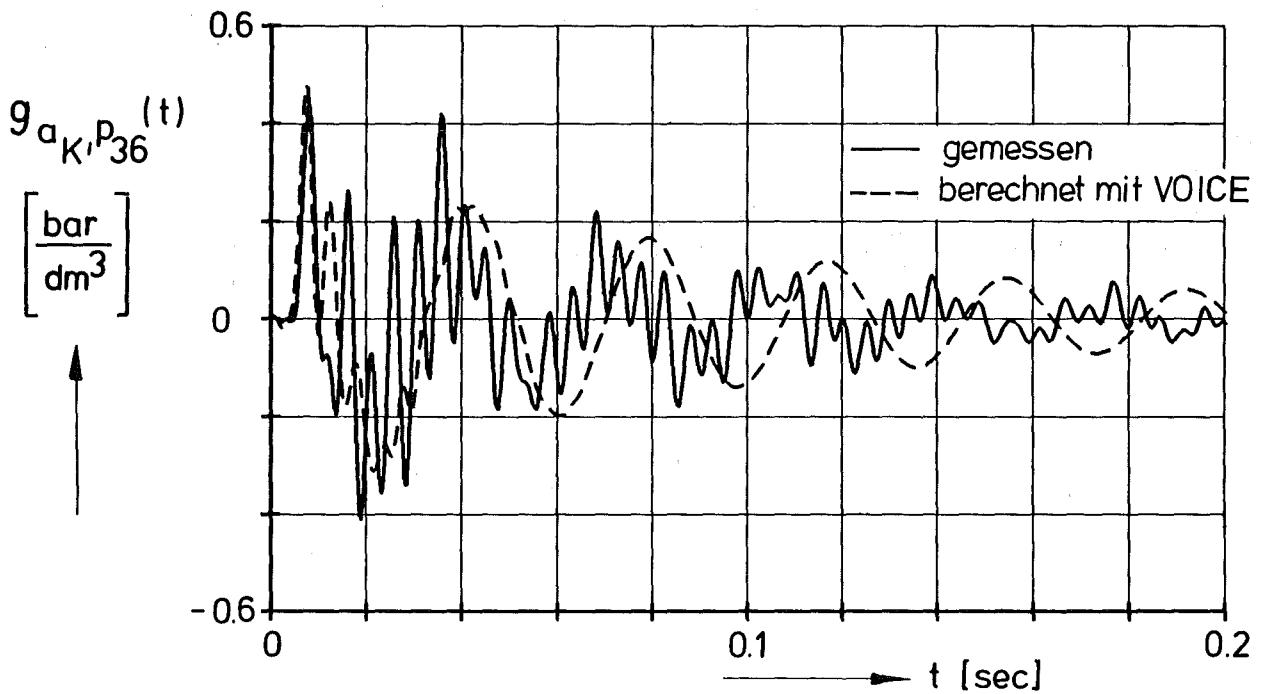
KfK

Abb. 6 : Gemessene Zeitverläufe der Temperatur des Druckes und der Beschleunigung beim Kondensationsversuch Nr. 24 ( $\vartheta_w \approx 32^{\circ}\text{C}$ ,  $\alpha = 5,4\%$ ,  $\dot{m} = 0,5 \text{ kgs}^{-1}$ )



KfK

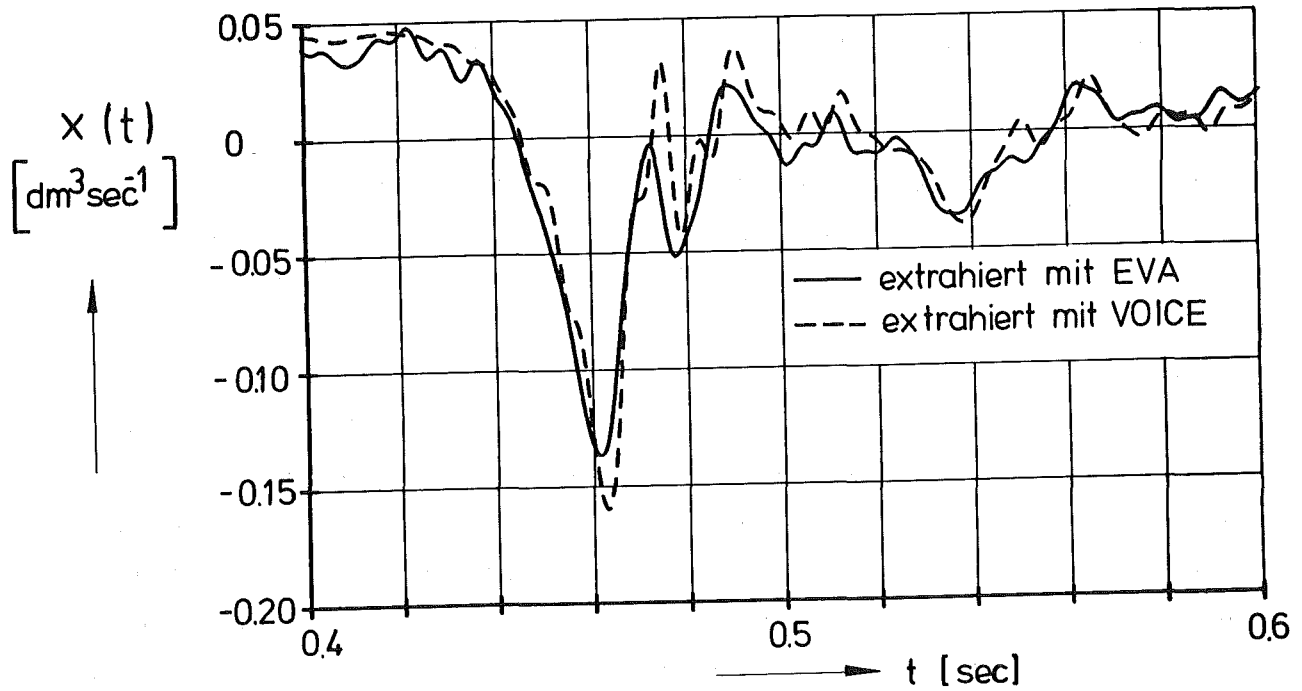
Abb. 7: Betrag der Frequenzgangfunktion des Druckes (Meßstelle 36,  $\alpha = 5,0\text{‰}$ ,  $e = 0$ )



KfK

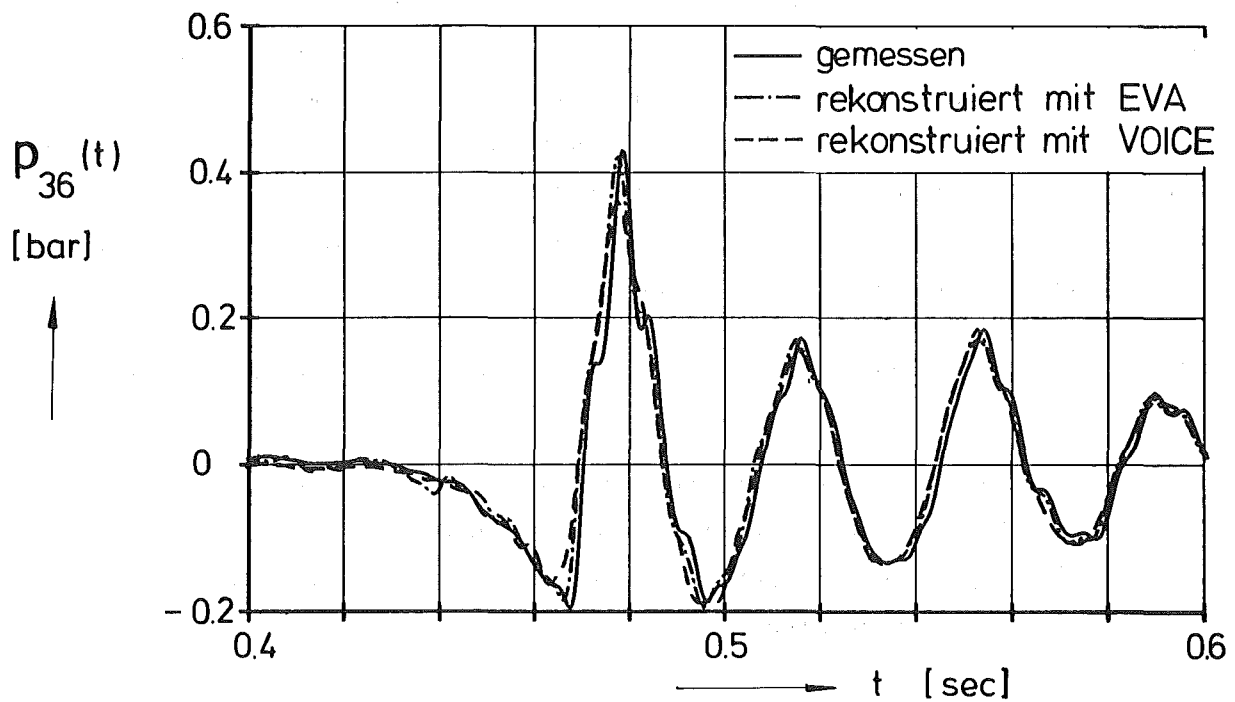
Abb. 8: Impulsantwortfunktion des Druckes (Meßstelle 36,  $\alpha = 5,0\text{‰}$ ,  $e = 0$ )





KfK

Abb.9: Typische Quellfunktion  $x(t)$  ( $e=0$ ,  $\alpha=50\%$ ,  $\vartheta_{ov}=32^\circ\text{C}$ ,  $m=0,5\text{kg/s}$ )



KfK

Abb.10: Vergleich der gemessenen und rekonstruierten Druckantwort in der Kondensationskammer

06.01.19 Thermoermüdung und Thermoschockverhalten von  
Reaktorkomponenten

06.01.19/03A Experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Ermüdungs-  
PNS 4160 rißausbreitung unter zyklischer Thermoschockbelastung  
(G.Czuck, R. Rintamaa<sup>+</sup>), D. Munz, H. Stamm; IRB/ZSM)

**Abstract:**

Die Ermüdungsrißausbreitung unter zyklischer Thermoschockbelastung wurde in einer Stahlplatte experimentell und theoretisch untersucht. Die Platten, die einen durch mechanische Ermüdung erzeugten halb elliptischen Oberflächenriß enthalten, werden mittels eines Wasserstrahls gekühlt und mehreren tausend thermischen Lastwechseln ausgesetzt. Entlang der gesamten Rißfront wird Ermüdungsrißwachstum beobachtet, wobei unter dem Rasterelektronenmikroskop typische duktile Streifenbildung sichtbar wird. Unter Benutzung der Gewichtsfunktionsmethode wurden Spannungsintensitätsfaktoren berechnet und damit Rißausbreitungsberechnungen durchgeführt. Die Vorhersagen werden mit experimentellen Ergebnissen verglichen.

**1. Einführung**

Wiederholte thermische Transienten, die aufgrund von Notkühlungen aber auch unter normalen Betriebsbedingungen in Leichtwasserreaktoren vorkommen, können, bedingt durch die dadurch in der Behälterwand erzeugten hohen thermischen Spannungen, in Teilen des Reaktordruckbehälters Ermüdungsrißwachstum von bereits vorhandenen Rissen verursachen. Das Ziel der folgenden Studien ist, die bruchmechanischen Berechnungsverfahren zur Vorhersage des Ermüdungsrißwachstums unter zyklischer Thermoschockbelastung zu verifizieren.

Das gesamte Untersuchungsprogramm ist in drei Teilprogramme unterteilt, bestehend aus

- 1) dem eigentlichen thermischen Ermüdungsexperiment
- 2) der theoretischen Rißfortschrittsanalyse
- 3) begleitenden Experimenten zur Charakterisierung des Materialverhaltens.

<sup>+</sup>) Technical Research Center of Finland (VTT), Metals Laboratory,  
SF-02150 Espoo 15, Finland

Die theoretischen Ermüdungsexperimente werden an relativ kleinen, zylindrischen Plattenproben durchgeführt. Dabei wurde besonders auf wohl definierte thermische und mechanische experimentelle Randbedingungen geachtet, um Unsicherheiten bezüglich der äußeren Last auszuschließen. Die Verwendung von kleinen Proben bietet den Vorteil, daß Versuchsparameter, z.B. die Ausgangsrißgeometrie, die äußeren Belastungsbedingungen und das zu untersuchende Material leicht variiert werden können. Außerdem besteht hinsichtlich des Spannungszustandes und der Temperaturverteilung durchaus Ähnlichkeit mit den Verhältnissen in realen Bauteilen.

Den Rißfortschrittsberechnungen liegt die linear elastische Bruchmechanik (LEBM) zugrunde, wobei die Paris-Beziehung zur Vorhersage des Rißfortschritts pro Lastwechsel benutzt wird. Die in diese Beziehung eingehenden Rißwachstumsparameter hängen vom Material, den Umgebungsbedingungen, dem Verhältnis  $R = K_{\min} / K_{\max}$  von minimalem zu maximalem Spannungsfaktor eines Zyklus sowie von der Frequenz und der zeitlichen Form der zyklischen Beanspruchung ab. Diese Parameter werden in Teil 3 des Untersuchungsprogramms durch geeignet ausgelegte mechanische Ermüdungsversuche an CT-Proben untersucht.

Die Auswertung der thermischen Ermüdungsexperimente schließt Nachberechnungen des Rißwachstums zum Vergleich von Theorie und Experiment sowie fraktographische Untersuchungen der Rißoberflächen zur Ermittlung des Rißwachstumsmechanismus ein. Im folgenden wird die Vorgehensweise an zwei Proben, die verschiedenen thermischen Belastungen ausgesetzt waren, geschildert.

## 2. Experiment zur thermischen Ermüdung

Für die Ausführung des Experiments wurde eine spezielle Versuchsanlage entworfen und aufgebaut. Als Probe wird eine kreiszylindrische Stahlplatte (22NiMoCr37) mit einem Durchmesser von 150 mm und einer Dicke von 20 mm benutzt (s. Abb. 1). Ausgehend von einer funkenerosiv eingebrachten Kerbe wird ein Ermüdungsriß, der achsensymmetrisch bezüglich der Rotationsachse im Zentrum der Platte liegt, durch mechanische Drei-Punkt-Biegewechselbelastung in einer Resonanzmaschine erzeugt. Mit einem Heißluftgebläse wird die Platte auf eine homogene Temperatur zwischen 200°C und 400°C erhitzt. Während der darauffolgenden Kühlphase des Thermoschockzyklus wird die Platte auf der gerissenen Seite mittels eines Wasserstrahls von ca. 20°C für 30 s gekühlt. Hierzu wird mit Hilfe eines Linearverstellers ein Spritzstempel zur Führung des Wasserstrahls einseitig zentrisch gegen die Platte gedrückt. Es schließt sich eine Heizphase von etwa 3 bis 5 Minuten an, während der der Spritzstempel von der

Platte weggefahren wird und die Platte auf ihre ursprüngliche Temperatur erhitzt wird. Danach beginnt ein neuer Zyklus. Nach mehreren tausend Zyklen (s. Tabelle 2) wird die Probe bis zum endgültigen Bruch wieder einer mechanischen Wechselbelastung ausgesetzt.

Zur Bestimmung der thermischen Last wird die räumliche und zeitliche Temperaturverteilung mit 15 Ni-Cr-Ni Thermoelementen, die auf verschiedene Positionen im Innern einer ungerissenen Referenzprobe verteilt sind, gemessen. Darüber hinaus ist die Probe mit 4 Hochtemperaturdehnmeßstreifen bestückt, die auf der Plattenoberfläche außerhalb des Kühlbereichs angebracht wurden. Unter der Annahme von Konvektionsrandbedingungen mit einer Wärmeübergangszahl von  $h = 20 \frac{\text{kW}}{\text{m}^2 \text{K}}$  in einem Kühlbereich, der dem Querschnitt des gesamten Spritzstempels entspricht, konnte eine ausgezeichnete Übereinstimmung zwischen gemessener und berechneter Temperaturverteilung erzielt werden. Die Berechnungen wurden mit dem Finite Element Programm ADINAT/ADINA [1,2] ausgeführt.

### 3. Experimentelle Ergebnisse

Die Tabellen I und II enthalten die Materialdaten, Belastungsbedingungen und Rißgeometrien der beiden untersuchten Platten. Die Rißgeometrie wird näherungsweise durch zwei Längen, die Rißtiefe  $a$  am tiefsten Punkt und die Rißlänge  $2c$  an der Probenoberfläche erfaßt. Eine makroskopische Ansicht der Risse zeigen die Abbildungen 3 und 4. Wie man sieht, erfolgte das Rißwachstum aufgrund der zyklischen Thermoschocklast (heller Saum) entlang der gesamten Rißfront des mechanischen Ermüdungsrisse (dunkle Fläche). Da nahe der Probenoberfläche Rißverzweigungen auftreten, bereitet die Bestimmung der Rißausbreitung in diesen Gebieten Schwierigkeiten. Besonders auffallend ist das schnellere Rißwachstum in oberflächennahen Bereichen.

Die oben beschriebenen Risse wurden am VTT in Finnland mit dem Rasterelektronenmikroskop untersucht. Die Oxidschicht wurde durch eine ENDOX-Behandlung [3] entfernt. Das thermisch induzierte Rißwachstum erfolgte mit einem duktilen, transgranularen Mechanismus. Die typische duktile Streifenbildung kann man in den Abbildungen 5 und 6 erkennen. In Tabelle III werden die lokal gemessenen Streifenabstände mit dem mittleren Rißwachstum pro Zyklus verglichen. Während bei der Probe 50 die beiden so bestimmten Abstände konsistent sind, ist dies bei der Probe 35 nicht der Fall. Diese Probe wurde unterschiedlich hohen Temperaturdifferenzen ausgesetzt. Die in Tabelle III angegebenen Streifenabstände wurden in einem Gebiet gemessen, in dem das Rißwachstum mit einer hohen Temperaturdifferenz beim Thermoschock erzeugt wurde, so daß ein größerer Strei-

fenabstand als der Mittelwert aus allen Zyklen zu erwarten ist.

Betrachtet man die Morphologie des gesamten, durch thermische und mechanische Wechsellast erzeugten Risses, so fällt auf, daß während des Rißfortschritts unter thermischer Last sekundäre Mikrorisse gebildet werden. In der Übergangzone zwischen dem mechanisch und thermisch erzeugten Riß können Rißverzweigungen beobachtet werden.

#### 4. Rißwachstumsanalyse

Für die Rißfortschrittsberechnungen wird der mechanische Ermüdungsriß durch einen halbelliptischen Oberflächenriß mit der Rißtiefe  $a$  und Länge  $2c$  idealisiert (s. Abb. 1). Das Rißwachstum pro Zyklus  $da/dN$  am tiefsten Punkt A der Halbellipse und  $dc/dN$  am Oberflächenpunkt C wird mit Hilfe der Paris-Beziehung beschrieben:

$$\frac{da}{dN} = C_1 (\Delta \bar{K}_A)^{n_1}$$

$$\frac{dc}{dN} = C_2 (\Delta \bar{K}_C)^{n_2}$$

$\Delta \bar{K}_A$  bzw.  $\Delta \bar{K}_C$  ist die Differenz zwischen dem maximalen und minimalen Wert des gewichtet gemittelten Spannungsintensitätsfaktors  $\bar{K}_A$  bzw.  $\bar{K}_C$  am Punkt A und C während eines Lastzyklus.  $\bar{K}_A$  und  $\bar{K}_C$  werden mit Hilfe der Gewichtsfunktionsmethode bestimmt. Die Herleitung einer geeigneten Näherung für die benötigte Gewichtsfunktion ist in [4] gegeben. Zur Berechnung der Spannungsintensitätsfaktoren muß die Spannungsverteilung in der ungerissenen Struktur bekannt sein. Sie wurde mit der Finite Elemente Methode bestimmt, wobei die Temperaturabhängigkeit der thermo-elastischen Materialparameter berücksichtigt wurde. Im Experiment spielen nur die thermisch induzierten Spannungen aufgrund der momentanen Temperaturverteilung eine wesentliche Rolle. Daher kommt der ausgezeichneten Übereinstimmung zwischen gemessenen und berechneten Temperaturverteilungen eine große Bedeutung zu.

Abb. 7 zeigt den Vergleich von experimentellen Ergebnissen mit der theoretischen Vorhersage des Rißwachstums. Da geeignete Rißwachstumsparameter  $C$  und  $n$  aus dem Teilprogramm 3 noch nicht zur Verfügung stehen, wurden Daten aus dem ASME-Code [5], die für ferritische Stähle gelten, benützt:

- a) ASME Luft  $C = 4.771 \cdot 10^{-10}$   $n = 3.726$
- b) ASME Wasser  $C = 1.377 \cdot 10^{-11}$   $n = 5.95$  für  $\Delta K < 19.5 \text{ MPa } \sqrt{\text{m}}$   
 $C = 2.134 \cdot 10^{-6}$   $n = 1.95$  für  $\Delta K > 19.5 \text{ MPa } \sqrt{\text{m}}$

Beim Datensatz a) wird der korrosive Einfluß der Druckwasserumgebung nicht berücksichtigt während er im Datensatz b) enthalten ist. Das Rißwachstum in Tiefenrichtung wird beträchtlich überschätzt, wenn sowohl am Punkt A als auch am Oberflächenpunkt C die ASME-Wasser Daten verwendet werden. Es wird unterschätzt, falls an der Oberfläche weiterhin ASME-Wasser Daten eingesetzt werden, am Punkt A jedoch ASME-Luft Daten. Die Vorhersage des maximalen Rißwachstums parallel zur Oberfläche ist in beiden Fällen einigermaßen gut. Diese Ergebnisse deuten darauf hin, daß eine korrosive Wirkung des Kühlwassers am tiefsten Punkt des Risses vorhanden, jedoch weitaus geringer ist als im oberflächennahen Bereich.

Die tiefe, nach innen gerichtete Rißkontur neben dem Hauptriß wurde nicht durch die thermische Belastung erzeugt, sondern wahrscheinlich durch mechanische Scherdeformation während der mechanischen Wechselbelastung im Anschluß an die thermische Ermüdung.

#### Zusammenfassung

Der Bericht gibt eine kurze Übersicht über den Stand der Thermoschockuntersuchungen am IRB/ZSM. Der Teil 3 des Untersuchungsprogramms, der hier nicht dargestellt wurde, wird zur Zeit parallel zu den jetzt laufenden thermischen Ermüdungsversuchen bearbeitet. Die ersten Ergebnisse bestätigen die erwartete Abhängigkeit der Rißwachstumsparameter von der Frequenz der zyklischen Belastung, wenn die mechanischen Ermüdungsversuche im Wasserbad durchgeführt werden. Einige weitere Proben wurden bereits thermisch ermüdet und werden z.Z. fraktographisch untersucht. Begleitende Rißwachstumsanalysen werden ebenfalls durchgeführt.

Table I: Material characteristics of 22 NiMoCr 3 - 7 (1.6751)

	Temperature (°C)					
	20	100	200	300	400	0... 800
Density (g/cm <sup>3</sup> )	7.85					
Thermal expansion between 20°C and		11.1	12.1	12.9	13.5	
Thermal conductivity (W/m·°C)	44.4	44.4	43.2	41.8	39.4	
Specific heat (J/g·°C)	0.45					0.55
Young's modulus (10 <sup>3</sup> N/mm <sup>2</sup> )	206	199	190	181	172	

Table II: Conditions of loading and geometry, cooling time 30s

		Specimen 35			Specimen 50
Number of cycles		303	1000	2441	4592
Averaged temperature difference		170.6	195.9	298.1	371.5
Initial crack geometry after mechanical, cyclic loading	a (mm)	4.456			2.410
	2c (mm)	13.154			6.054
	a/c	0.678			0.796
	a/w	0.223			0.121
Measured crack sizes after thermal shock	a (mm)	4.738			3.308
	2c (mm)	16.555			20.499

Table III: Striation spacings

Specimen	(da/dN) <sub>av</sub>	(da/dN) <sub>loc</sub>
	[μm / load cycle]	
50	0,1955	0,1903
35	0,0745	0,1639
		0,1311
		0,1336

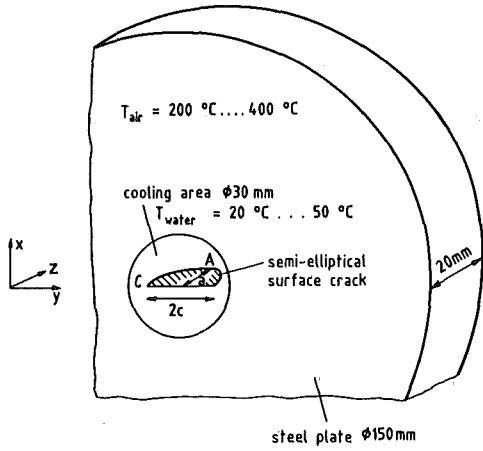


Abb. 1: Proben und Rißgeometrie

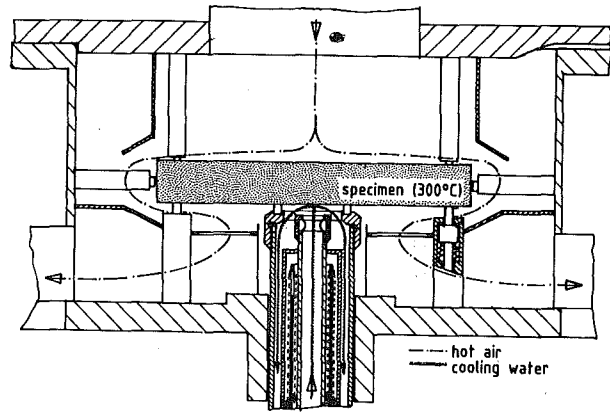


Abb. 2: Querschnitt des Prüftopfs

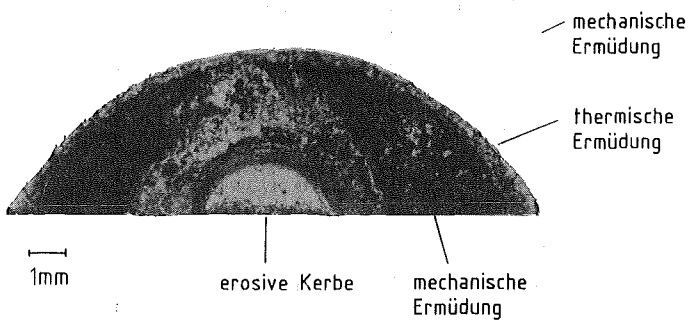


Abb. 3: Rißoberfläche der Probe 35

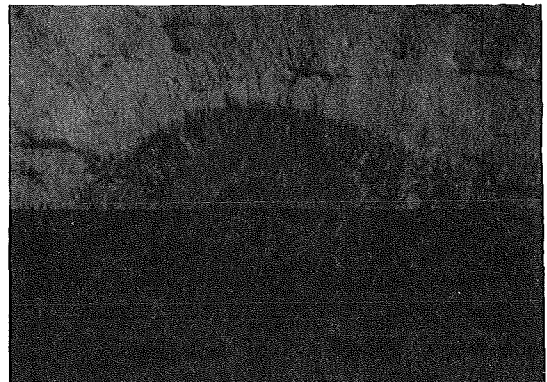


Abb. 4: Rißoberfläche der Probe 50



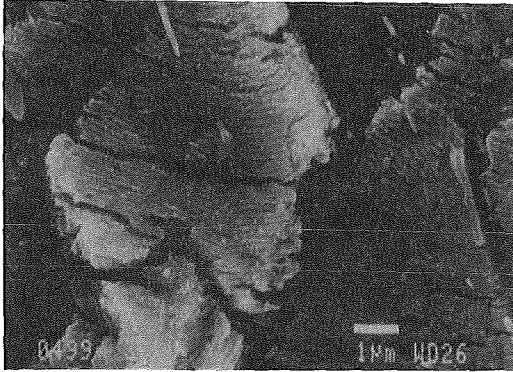


Abb. 5: Duktile Schwingungsstreifen nahe der Rißspitze in Probe 35

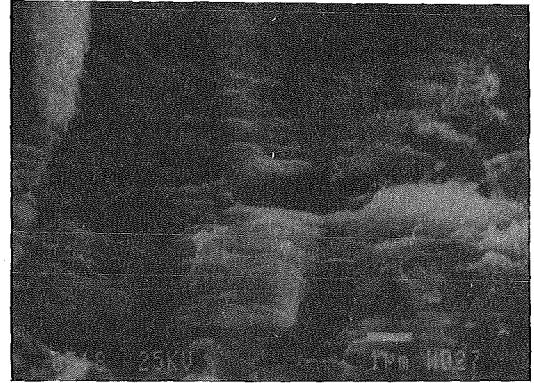


Abb. 6: Duktile Schwingungsstreifen nahe der Rißspitze in Probe 50

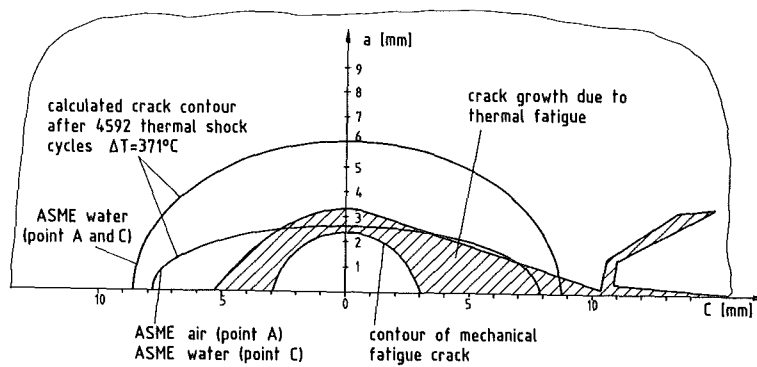


Abb. 7: Vergleich von experimentellem und theoretischem Rißfortschritt

Literaturverzeichnis

- /1/ ADINAT, "A Finite Element Program for Automatic Dynamic Incremental Nonlinear Analysis of Temperatures", Report AE 81-2, ADINA Eng. Inc. Watertown Mass. USA (1981).
- /2/ ADINA, " A Finite Element Program for Automatic Dynamic Incremental Nonlinear Analysis", Report AE 81-1, ADINA Eng. Inc. Watertown Mass. USA (1981).
- /3/ KEMPAINEN, M., TÖRRÖNEN, K., "An evaluation of oxide removal from corrosion fatigue fracture surfaces"; Technical Research Center of Finland; VTT-NET B-43, 24 p. (1982).
- /4/ MATTHECK, C., MORAWIETZ, P., MUNZ, D., "Stress Intensity Factor at the Surface and at the Deepest Point of a Semi-Elliptical Surface Crack in Plates under Stress Gradients", Int. J. of Fracture 23 (1983) 201-212.
- /5/ ASME, Boiler and Pressure Vessel Code, Sec. XI; ed.(1980).

- 06.01.21            Thermo- und fluiddynamische Analysen von LWR-Störfällen  
                    (H. Borgwaldt, G. Jacobs, W. Baumann, G. Willerding; INR,  
                    S.H. Mansoor, IAEA, M. Cigarini, C. Ferrero; EURATOM)
- 06.01.21/03A        Vorausrechnung eines kleinen Lecks mit Hilfe von RELAP5  
PNS 4270            (G. Jacobs; INR, S.H. Mansoor, IAEA-Fellow)

Im Rahmen eines internationalen Codeanwendungsvergleichs (Standard Problem 18 der Nuclear Energy Agency) wird eine blinde Vorausrechnung durchgeführt, und zwar die eines integralen Experiments an der umgebauten LOBI-Versuchsanlage in Ispra, das der Simulation eines kleinen Lecks (1 %) in einem Leichtwasser-Reaktor vom KWU-Typ dienen soll.

Die Rechnungen werden durchgeführt mit der im KfK/INR erstellten IBM-Version des Leichtwasserreaktor-Sicherheitscodes RELAP5/MOD1 (Zyklus 19). Für Testzwecke steht außerdem die Originalversion des Codes mit Zyklus 25 zur Verfügung, die hierfür auf einer CYBER 176 in Brüssel installiert wurde.

Es wurde in 1984 ein vollständig neuer Eingabedatensatz für RELAP erstellt, was mehrere Monate beanspruchte. Dieses Eingabemodell von LOBI-MOD2 sieht eine relativ feine Nodalisierung vor mit insgesamt 260 Knoten (in der RELAP-Terminologie: Volumen und Verbindungen) und knapp 300 Wärmestrukturen. Es wurde besonders darauf geachtet, daß die Knotenabstände (= Strömungslängen der Volumen) möglichst gleichmäßig lang sind und unter 1 m liegen. Die Wärmestrukturen bilden das elektrisch beheizte (8x8)-Bündel im Reaktorkessel-Simulator und die Rohrbündel in den Verdampfern auf einen Stab bzw. Rohr mit entsprechender Wärmeübergangsfläche ab und erfassen außerdem alle übrigen wärmeleitenden Strukturen wie Wandungen und Füllkörper sowie Isoliermäntel.

Nach Bekanntgabe der gemessenen Anfangs- und Randbedingungen des stationären Zustands des Experiments vor dem Beginn der eigentlichen Leck-Transiente wurde der Eingabedatensatz zunächst in Teilen (Reaktorkessel, Verdampfer) und dann als Ganzes durch viele RELAP-Rechnungen schrittweise in der Weise angepaßt, daß der stationäre Zustand durch die Rechnung zufriedenstellend wiedergegeben wird. Dabei waren allerdings an einigen Stellen größere Abänderungen von zuvor



Die Optimierung des Codes erfolgte parallel auf den KfK-Rechenanlagen und einer CYBER-205 an der Universität Karlsruhe. Es wurde eine auf IBM-kompatiblen Computern mit doppelter Genauigkeit lauffähige Basis-Version in Standard-FORTRAN 77 erstellt, von der die für die CYBER-205 optimierte Version nur wenig abweicht. Alle notwendigen Abweichungen werden durch sog. Korrektur-Decks mit Quellcode-Verwaltungs-Programmen (UPDATE von CDC, HISTORIAN von OpCode Inc.) eingebracht. Solche, der Vektorisierung dienenden Korrektur-Decks erfassen nunmehr 15 von 70 Routinen und etwa 430 von 7800 Zeilen Quellcode. Dies sind nicht mehr als 5,5 Prozent.

Die Vektorisierung des Codes erforderte folgende Reorganisations-Maßnahmen:

- (a) Umspeicherung der kompakt gespeicherten Variablen aus jeweils drei Ebenen in linear adressierte Hilfsfelder (Vektoren).
- (b) Ebenenweise, separate Iteration der einzelnen Variablen in einer vorgegebenen Reihenfolge.
- (c) Berücksichtigung von Rand- oder Symmetrie-Bedingungen durch nachträgliche Behandlung spezieller Gitterpunkte im Anschluß an die reguläre Behandlung aller Gitterpunkte einer Ebene.
- (d) Globale und lokale Vorausberechnung aller invarianten Größen des Codes.
- (e) Ebenenweise Berechnung aller Stoffwert-Funktionen.
- (f) Umstellung aller Berechnungen vom Typ Interpolation, Regula falsi oder Newton'sche Näherung auf Vektor-Schemata.

Die letztgenannten Maßnahmen zeigten bei weitem die größten positiven Einzeleffekte.

Bei der Optimierung war zunächst nur ein Fluid berücksichtigt worden. Die im Berichtszeitraum durchgeführten Arbeiten bestanden einerseits in der Weiterentwicklung der obigen, zum Teil schon früher beschriebenen Maßnahmen, andererseits in der konsequenten Einbeziehung aller vom Code zu behandelnden Fluide, d.h. Wasser, Natrium und 4 Gase.

Zur Beurteilung des Fortschritts dient ein stationäres Testproblem mit 55 Gitterpunkten in der (x,y)-Ebene und 32 axialen Schritten. Während bei der ersten direkten Implementierung von BODYFIT vor der Optimierung die relative Performance der 1-Pipe CYBER-205 gerade ein Faktor 2 zur IBM-3033 war, liegt dieser Wert jetzt im Bereich 7 bis 10, je nach

Fluid. Zudem wurde der Code durch die Reorganisation auch auf IBM-Anlagen um mehr als 50 Prozent schneller, sodaß für die CYBER-Version im Bezug zur ersten Implementierung der Performance-Gewinn bei einem Faktor größer 5,5 liegt. Dies ist für einen konservativen Testfall mit relativ kurzen Basisvektoren sehr befriedigend.

Tests auf einer 2-Pipe-Konfiguration der CYBER-205 brachten nur etwa 15 Prozent bessere Performance, offenbar verursacht durch die kurzen Basisvektoren.

Die vektorisierte, portable Basisversion von BODYFIT-1FE konnte auch, innerhalb von 2 Tagen, über das EARN-Netz auf der CRAY X-MP in der KFA Jülich implementiert werden. Danach wurden einige anlagen-spezifische Optimierungen durchgeführt. Sie lagen, im Gegensatz zur CYBER-205, mehr auf der Software- als auf der Hardware-Ebene. Die wenigen Maßnahmen zur Optimierung erbrachten auf der CRAY X-MP eine um 50 Prozent über der CYBER-205 liegende Performance. Dies kann weitgehend dadurch erklärt werden, daß eine Vektorlänge von 55 für die CRAY X-MP fast optimal ist, für die CYBER-205 dagegen am unteren Rand liegt.

06.01.21/04A      Einführung und Anwendung von COMMIX-1B,  
PNS 4271            einer Weiterentwicklung von COMMIX-1A.

(W. Baumann, G. Willerding; INR)

In 1984 wurde COMMIX-1B, eine Weiterentwicklung des 3D-Thermohydraulik-Codes COMMIX-1A, vom ANL übernommen. Es handelt sich um eine vorläufige Version, die im wesentlichen zum Austesten mit Experimenten im Rahmen des HDR-Sicherheitsprogramms freigegeben wurde. COMMIX-1B unterscheidet sich von COMMIX-1A in folgenden Punkten:

#### A) Turbulenzmodelle

Den in COMMIX-1A /2/ enthaltenen 4 Optionen wurde in COMMIX-1B ein weiteres Modell, das sog. Zwei-Gleichungs- oder  $k-\varepsilon$ -Modell hinzugefügt. Damit bietet COMMIX-1B insgesamt 5 Turbulenzmodelle zur Auswahl:

### 1. "Constant Turbulent Viscosity Model"

Die Terme der turbulenten Transporteigenschaften werden generell als konstant und für alle Zellen einheitlich angenommen. Die Werte können direkt gesetzt werden. Falls nur  $\eta_t$  angegeben wird, kann ein entsprechender Wert für  $\lambda_t$  mithilfe der turbulenten Prandtl-Zahl bestimmt werden.

Die turbulente Prandtl-Zahl wird nach dem Vorschlag von Nijsing und Eifler /3/ wie folgt berechnet:

$$\text{Pr}_t = 0.8[1 - \exp(-6 \cdot 10^{-5} \text{Re Pr}^{1/3})]^{-1} \quad (1)$$

### 2. "Zero-Equation Turbulence Model"

Die turbulente Viskosität wird aus der lokalen Fluid-Dichte  $\rho$ , einem lokalen Geschwindigkeitsgradienten VG und einer charakteristischen Länge L wie folgt ermittelt:

$$\eta_t = \rho L^2 \text{VG} \quad (2)$$

$\lambda_t$  folgt über die als Eingabe vorgesehene Prandtl-Zahl.

### 3. "One-Equation Turbulence Model", Typ A

Die Differentialgleichung der turbulenten kinetischen Energie mit Produktions-, Dissipations-, Quell- und Auftriebstermen wird zellenweise gelöst, jedoch ohne Berücksichtigung von Wandeffekten. Die turbulente Viskosität ergibt sich dann aus der Beziehung:

$$\eta_t = c_1 \rho k^{1/2} L \quad (3)$$

$c_1$  ist ein Koeffizient,  $\rho$  die örtliche Dichte des Fluids,  $k$  die örtliche turbulente kinetische Energie und L eine charakteristische Länge.

### 4. "One-Equation Turbulence Model", Typ B

Hier handelt es sich um ein Ein-Gleichungsmodell mit Berück-

sichtigung von Wandeffekten. Die turbulente Viskosität wird über die Beziehung

$$\eta_t = c_2 \rho k^2 / \varepsilon \quad (4)$$

berechnet, wobei  $c_2$  ein Koeffizient,  $\rho$  die örtliche Dichte des Fluids,  $k$  die örtliche turbulente kinetische Energie und  $\varepsilon$  die Dissipation von  $k$  ist, die sich aus der Beziehung

$$\varepsilon = c_2^{0.75} k^{1.5} / L \quad (5)$$

ergibt.  $L$  bedeutet eine charakteristische Länge.

#### 5. "Two-Equation Turbulence Model"

Dieses ist das in COMMIX bisher umfassendste Turbulenzmodell. Die Differentialgleichungen sowohl der turbulenten kinetischen Energie als auch der Dissipation der turbul. kinet. Energie werden beide für alle Zellen des betrachteten Systems gelöst und die Wandeinflüsse berücksichtigt, allerdings vorläufig nur bei Anwendung des voll-impliziten Lösungsverfahrens.

#### B) Numerische Diffusion

Wenn die Strömungsrichtung in hohem Maße von der Richtung der Netzklinien abweicht, kann numerische Diffusion auftreten. Sie macht sich durch eine Art "Verschmierungseffekt" im Temperaturfeld bemerkbar. Grund für die Rechenungenauigkeit ist das sog. "pure-upwind"-Verfahren, das zur Differenzenbildung bei der Diskretisierung von Impuls- und Energieerhaltung benutzt wird. Als Abhilfe gegen numerische Diffusion wurde in COMMIX das sog. "skew-upwind"-Verfahren implementiert, das mit verschiedenen Attributen wie "einfach", "volumengewichtet" oder "längenangepaßt" anwählbar ist.

#### C) Iterationskontrolle

Beim Lösungsvorgang in COMMIX werden Impuls- und Energieerhaltung nacheinander in abwechselnder Reihenfolge durchlaufen, bis die



Konvergenzschwelle erreicht ist. COMMIX-1B bietet dem Benutzer die Möglichkeit, das Durchlaufen der Erhaltungsgleichungen nach einem bestimmten vorzugebenden Muster zu steuern. So kann beispielsweise die Energiegleichung bei "eingefrorenem" Geschwindigkeitsfeld, die Impulserhaltung bei "eingefrorenen" Temperaturen konvergiert werden.

Vorteile durch diese Option sind dann zu erwarten, wenn die iterativen Änderungen in Temperatur- und Geschwindigkeitsfeld nicht gleichmäßig sind, d.h. wenn eines der beiden Felder sich vergleichsweise wenig ändert.-

Der Code COMMIX-1B wurde zwischenzeitlich zur Vorausrechnung von Thermoschock-Experimenten eingesetzt, bei denen die Temperaturschichtung in Ringraum und Einspeisestutzen des HDR untersucht wird. Erste Teilergebnisse hierzu liegen vor.

Als Beispiel zeigt Abb.1 den Verlauf der Isothermen im Strömungsbereich etwa 9 Sekunden nach dem Beginn der Kalteinspeisung in einen Stutzen des Reaktors. Wie man daraus ersieht, entwickelt sich im Stutzen eine Strömung mit ausgeprägter horizontaler Schichtung.

Die Abbildung wurde mit DISSPLA, einem neu implementierten universellen Plotsystem erzeugt.

### Literatur

1. Brian C-J. Chen et al.,  
BODYFIT-1FE: A Computer Code for Three-dimensional Steady-state/  
Transient Single-phase Rod-bundle Thermal-Hydraulic Analysis,  
Draft Report, NUREG/CR-1874 and ANL-80-127
2. H. M. Domanus, R. C. Schmitt, W. T. Sha, and V. L. Shah,  
COMMIX-1A: A Three-Dimensional Transient Single-Phase Computer  
Program For Thermal Hydraulic Analysis of Single and Multicomponent  
Systems, Volume I: Users Manual  
NUREG/CR-2896 Vol.I, ANL-82-25 Vol.I (Dec. 1983)
3. R. Nijssing and W. Eifler,  
Temperature Fields in Liquid Metal Cooled Assemblies,  
Prog. Heat Mass Transfer 7, p.115 (1973).

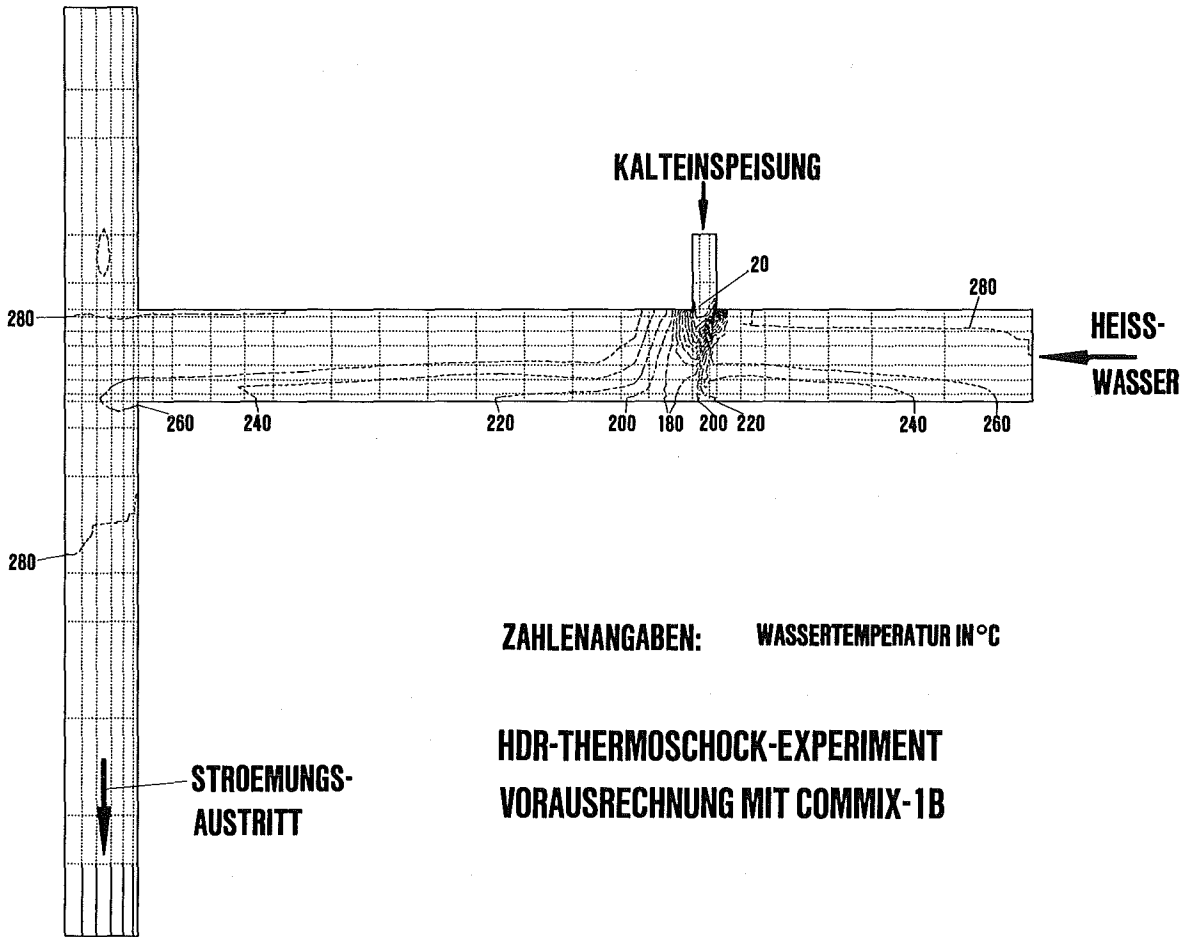


Abb.1: Vorausrechnung eines HDR-Thermoschock-Experiments mit COMMIX-1B

06.01.21/05A      Teil I: Nachrechnung des FEBA-Versuchs Nr. 216  
PNS 4272            (M. Cigarini; INR (EURATOM) )

## 1. Einführung

Der FLUT Code, der bei der GRS (Garching) entwickelt wurde, ist ein ein-dimensionales, mehrkanaliges Programm zur Analyse der Wiederauffüll- und Flut- phase eines DWR. Es benutzt ein 2-Fluidmodell mit sechs Grundgleichungen und drei konstitutiven Gleichungen für die Phaseninteraktion.

Um die Brennstäbe und die Strukturelemente zu simulieren, steht ein ein-dimensionales Wärmeleitungsmodell zur Verfügung; das bedeutet, daß die axiale Wärmeleitung vernachlässigt wird. Jeder Wärmeleiter kann durch 3 radiale Zonen aus verschiedenen Stoffen modelliert werden; zwischen je zwei Zonen kann man noch einen Spalt simulieren.

Ein auf empirischen Korrelationen begründetes Wärmeübergangsmodell verbindet das Heizleitermodell mit dem Fluidmodell.

Die Geschwindigkeiten der oberen und unteren Quenchfront werden anhand analytischer Korrelationen berechnet /1/.

Die Fortran 77 Version dieses Programms (FLUT Nr. 4) wurde auf der DV-Anlage des KfK implementiert. Damit wurde der FEBA Versuch Nr. 216 nachgerechnet.

Die Teststrecke der FEBA Anlage (KfK-IRB) besteht aus einem 25-Stabbündel mit DWR-Abmessungen in einem Stahlkasten von 6,5 mm Wandstärke /2/.

Die wesentlichen Flutbedingungen des nachgerechneten Versuchs sind /3/:

- konstante Flutrate	3,81 cm/s
- Temp. des eingespeisten Wassers	40 °C
- Systemdruck	4,12 bar
- beheizte Stablänge	3,9 m.
- max. Hüllrohrtemperatur	800 °C (bei Flutbeginn)
- max. Kastenwandtemperatur	650 °C (bei Flutbeginn)
- max. Leistung	200 kW (bei Flutbeginn)

Für die Rechnungen wurde die folgende Nodalisierung verwendet:

- der Fluidkanal wird durch ein Rohr mit 13 Zellen simuliert;
- das Stabbündel mit gleichförmiger radialer Leistung besteht aus 25

- Stäben mit je 60 axialen und 8 radialen Abschnitten;
- 12 unbeheizte Leitersegmente bilden die dicke Stahlkastenwand;
- das obere und untere Plenum werden als Knotenzellen dargestellt.

Für die Anfangs- und Randbedingungen gilt folgendes :

- der Bündelleistungsverlauf (112% der ANS-Standardkurve, siehe /2/) wird an 17 Zeitpunkten eingegeben;
- die Anfangstemperaturen der Stäbe und der Kastenwand werden auch durch Punktwerte zu jedem Segment eingegeben;
- der Druck im oberen Plenum wird auf einen konstanten Wert von 4,12 bar gesetzt;
- die Flutrate am kalten Bündelende hat einen konstanten Wert von 3,81 cm/s, der bei einer Wassertemperatur von 40 °C, einem Massenstrom von 0,1472 Kg/s entspricht.

## 2. Ergebnisse der Rechnungen

### Rechnung A

Mit den o.g. Daten wurde eine erste Rechnung durchgeführt, in der die Standardoptionen für den Wärmeübergang gebraucht wurden:

- das Quenchmodell für die Brennstäbe, das heißt:
  - . SEMERIA + MARTINET Korrelation für die Geschwindigkeit der unteren Quenchfront
  - . YAMANOUCI Korrelation für die Geschwindigkeit der oberen Quenchfront
  - . geeignete empirische Korrelationen für die verschiedenen Wärmeübergangsbereiche (siehe /1/)
- ein einfacheres Strukturwärmemodell für die Kastenwand (geschwindigkeitsunabhängige Berechnung des Wärmeübergangszahl).

Die Abb. 1 und 2 zeigen die berechneten Hüllrohr- und Kastenwandtemperaturen im Vergleich mit den Meßergebnissen /3/.

In der Abb. 1 kann man sehen, daß die berechneten Kurven für die niedrigsten Positionen des Brennstabs die gemessenen Verläufe gut wiedergeben, für die höheren Stellen aber eine wachsende Verzögerung der Benetzungsfront entsteht. Im Gegensatz dazu sieht man am oberen Bündelende eine frühzeitigere Quenchfront, die experimentell nicht zu beobachten

ten ist. Erwähnungswert sind auch die erheblichen Schwankungen im berechneten Temperaturverlauf vor der Benetzung. Diese Schwankungen haben ihre Ursache in den zu großen Fluidzellen in der Nähe der Quenchfront. Eine feinere Diskretisierung des Systems würde aber eine entsprechend große Steigerung der CPU-Zeit mit sich bringen. Die maximale Hüllrohrtemperatur wird jedoch mit einer guten Annäherung geschätzt, auch der durchschnittliche Temperaturverlauf wird genügend gut bestimmt. Unbefriedigend sind dagegen die berechneten Werte der Kastenwandtemperaturen (Abb. 2), da durch das benutzte, vereinfachte Strukturwärmemodell die Benetzung der Wand nicht richtig berechnet werden konnte.

#### Rechnung B

Die Nodalisierung des Systems und die eingegebenen Anfangs- und Randbedingungen bleiben für diese Rechnung dieselben wie für die Rechnung A. Folgende Änderungen wurden dagegen für das Wärmeübertragungsmodell eingeführt:

- um die Wirkung der Wasserunterkühlung auf die Geschwindigkeit der Quenchfront zu berücksichtigen, wurde eine Korrektur der Leidenfrost-Temperatur benutzt (siehe /1/ und /4/);
- für das Problem der oberen Quenchfront wurde eine Änderung am Programm durchgeführt; dazu ist anzumerken, daß die verwendete YAMANOUCHI Korrelation /5/ aus 'Spray Cooling' Experimenten erzielt wurde. Deswegen enthält sie kein Kriterium, das Vorhandensein einer ausreichenden Menge Wasser für den Benetzungsbeginn zu überprüfen; ein solches Kriterium nach HSU und YOUNG /6/ wurde neu ins Programm eingebracht; es besteht einfach aus einem Test, der die obere QF nur einstellen läßt, wenn der volumetrische Dampfgehalt in der Fluidzelle am oberen Stabende niedriger als 0.95 ist, und gleichzeitig die Temperatur des letzten Leitersegments niedriger als 540 °C ist;
- letztlich wurde auch für die Kastenwand das Quenchmodell verwendet.

Die wichtigsten Ergebnisse dieser Rechnung sind in den Abbildungen 3 und 4 zu sehen.

In der Abb. 3 sind die Hüllrohrtemperaturen über der Zeit aufgetragen. Für die untere Stabhälfte ( $h = 1.2$  m.) sind die Ergebnisse, im Vergleich mit denen der Rechnung A, nicht sehr unterschiedlich; der Verlauf am oberen Stabende ( $h = 3.9$  m.) ist dagegen ganz anders.

Die Einführung des Hsu-Young Kriteriums verhindert die Bildung der oberen Quenchfront schon am Anfang der Rechnung, und die Benetzung des oberen Stabendes fängt erst ca. 400 Sek. nach Experimentbeginn an. Der Vergleich mit den Ergebnissen der Rechnung A zeigt noch eine Steigerung der schon bemerkten Verzögerung der unteren Quenchfront. Das ist auf die unterschiedliche Bestimmung der Wärmeübertragung aus der Kastenwand zurückzuführen. Die Abb. 4 zeigt, daß die Benetzung der Wand richtig berücksichtigt wurde; damit nahm die Wärmezufuhr an das Fluid erheblich zu; daraus resultiert die höhere QF-Verzögerung, die auch durch die benutzte Korrektur der Leidenfrost-Temperatur nicht verhindert wurde.

### 3. Schlußbemerkungen

Die Nachrechnung des FEBA-Versuchs Nr. 216 dient dazu, das Wärmeübergangsmodells des FLUT Programms zu überprüfen.

Die erzielten Ergebnisse zeigen, daß der Code die maximalen Hüllrohrtemperaturen während der Flutphase gut berechnen kann; die berechnete Benetzungszeit des Brennstabs stimmt auch mit den experimentellen Daten gut überein.

Die Rechnung B zeigt die Nützlichkeit des Hsu-Young Kriteriums; die Bildung einer späteren (im Vergleich mit der Rechnung A) oberen Quenchfront ist jedoch noch zu beobachten. Das hat seinen Grund in der Unmöglichkeit, den Wasserabscheider der experimentellen Anlage in der Rechnung zu simulieren.

Literatur

- /1/ A.Hora,Ch.Michetshläger,H.G.Sonnenburg,V.Teschendorff:  
Analysis of Reflood Phenomena by the Two Fluid Code FLUT  
Spitzingsee/Schlrirsee, Aug.31-Sept.3,1982
- /2/ P.Ihle,K.Rust:  
FEBA - Flooding Experiments with Blocked Arrays, Evaluation Report  
KfK 3657, Feb. 1984
- /3/ P.Ihle,K.Rust:  
FEBA - Flooding Experiments with Blocked Arrays,  
Data Report 1, Test Series I through IV  
KfK 3658, Feb. 1984
- /4/ D.Hein:  
Hydraulics during Reflood  
Europ. Two-Phase Flow Group Meeting, Glasgow, 1980
- /5/ A.Yamanouchi:  
Effect of Spray Cooling in Transient State after Loss of Coolant  
Accident  
Journal of Nuclear Science and Tecnology, 5|11|,Nov.,1968
- /6/ Y.Y.Hsu,M.W.Young:  
A Criterion for the Onset of Quench for Low Flow Reflood  
NUREG 0915 - July,1982.

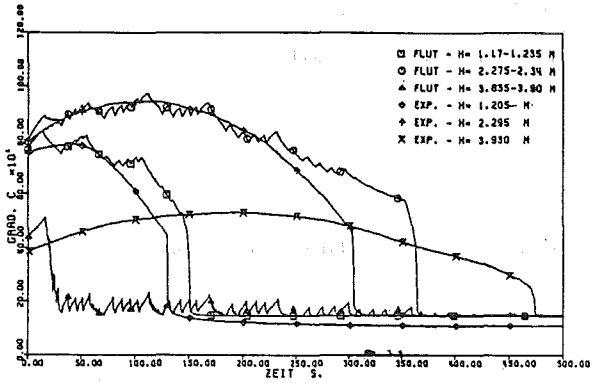


Abb. 1 : FEBR 216 - HUELLAHTEMPORATUREN  
FLUT RECHNUNG A UND EXPERIMENT

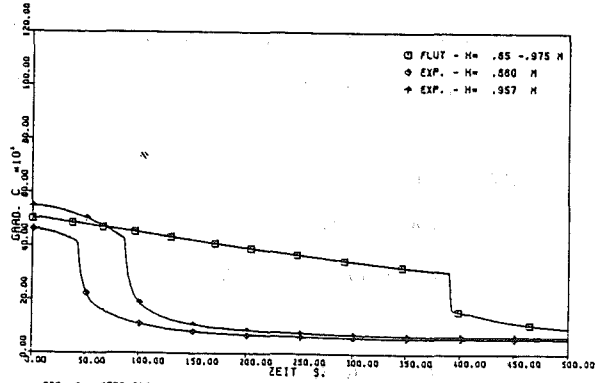


Abb. 2 : FEBR 216 - KASTENWANDTEMPORATUREN  
FLUT RECHNUNG A UND EXPERIMENT

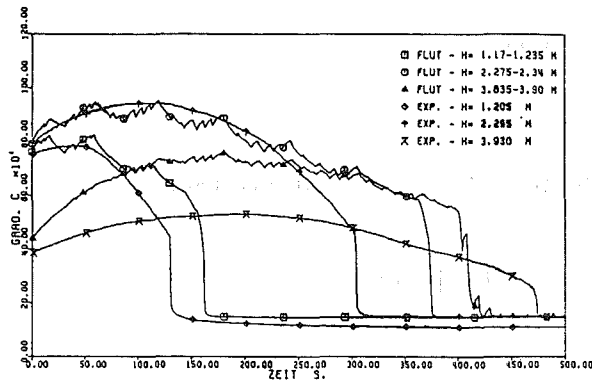


Abb. 3 : FEBR 216 - HUELLAHTEMPORATUREN  
FLUT RECHNUNG B UND EXPERIMENT

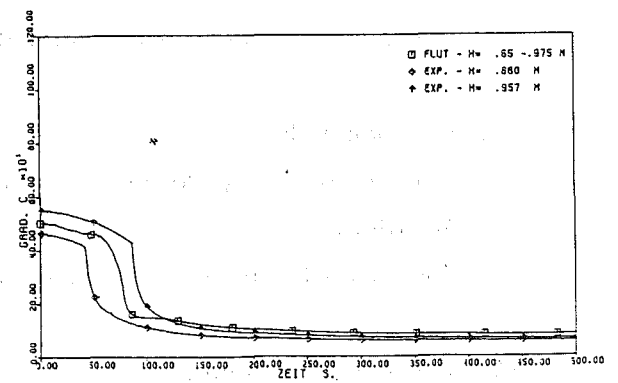


Abb. 4 : FEBR 216 - KASTENWANDTEMPORATUREN  
FLUT RECHNUNG B UND EXPERIMENT



06.01.21/05A Teil II: Erste LOCA-Untersuchungen zum FDWR  
PNS 4272 (C. Ferrero; INR (EURATOM) )

Im Rahmen der Untersuchungen zum Störfallverhalten fortgeschrittener Druckwasserreaktoren (FDWR) wurden Vergleichsrechnungen zwischen einem homogenen FDWR und einem DWR (KWU-1300 MW-Anlage) mit dem Sicherheitscode RELAP5/Mod1 zur Simulation eines doppelendigen Bruchs (200% LOCA) zwischen der Hauptkühlmittelpumpe und dem Reaktordruckbehälter durchgeführt.

Unter den verschiedenen FDWR-Entwürfen wurde einer /2/ gewählt, dessen wesentliche Eigenschaften in der Tabelle 1 zusammen mit denen des Referenz-DWR angeführt sind.

Das für RELAP5 benötigte Eingabemodell ist aus der Abbildung 1 zu ersehen. Die Nodalisierung besteht aus 185 Volumina, 190 Verbindungen und 54 Wärmestrukturen und erfaßt die ganze Anlage. Sie gilt für beide Reaktoren (DWR und FDWR) mit Ausnahme einiger notwendigen Abänderungen im Reaktordruckkessel. Mehrere verschiedene Nodalisierungen wurden anhand der Ergebnisse überprüft. Diejenige mit zwei Kanälen für den Kern und mit dem Bypass hat sich dabei als die günstigste bewiesen. Ein Kanal ist dazu da, das Heißbrennelement darzustellen, während der andere die restlichen Bündel abbildet. Sie sind aus konservativen Gründen voneinander getrennt. Allerdings wäre der Code auch kaum in der Lage 2-dimensionale Effekte wiederzugeben, da radiale Querströmungen im Kern nur bedingt modelliert werden können. Die mehrkanalige Darstellung läßt sich aus RELAP5-Rechenverfahrensgründen empfehlen /4/, da sie unphysikalische Situationen, die von dem Rückströmungsmodell bewirkt sein können, vermeidet.

Die Rechnungen wurden anhand der folgenden pessimistischen Annahmen für das Notkühlssystem durchgeführt:

- 5 Druckspeicher (statt 8) stehen zur Verfügung
- 3 Nachkühlpumpen (statt 4)
- 3 Sicherheitseinspeisepumpen (statt 4)

Als weitere Annahme wird die Stableistungsverteilung für den DWR am Zyklusende betrachtet (Axialer Leistungsfaktor  $\phi_{ax} = 1.2$ ). Die Leistungsverteilung für den FDWR ist kosinusförmig, mit einem Axialfaktor von 1.48.

Der gesamte Heißkanalfaktor an der höchstbelasteten Stelle des Kerns beträgt für beide Reaktoren 2.57.

Die ersten Ergebnisse unserer Rechnungen (s. Abb. 2a,2b) zeigen deutlich, daß der Temperaturanstieg infolge des Störfalls begrenzt bleibt. Insbesondere liegt beim FDWR die maximale Heißstellentemperatur der Hüllrohre bei ungefähr 800°C.

Diese Temperatur beträgt beim DWR ca. 930°C und ist in guter Übereinstimmung mit anderen Ergebnissen /3/. Die niedrigere Temperatur für den FDWR ist nicht ganz unerwartet, aufgrund seiner geringeren mittleren Stableistung.

In den letzten 10 Sekunden der Transienten nach dem Beginn der Notkühlein-  
speisung neigt der Code dazu, niedrigere Temperaturen gegenüber anderen  
Codes /3/ zu berechnen.

In den Abb. 3a und 4a, 4b sind die Druckverläufe und die Kühlwasserdurchsätze  
im Kern gegenüber der Zeit für beide Fälle aufgetragen.

Eine Kopplung der Codes RELAP5 und FLUT zum Zwecke einer Gesamtanalyse der  
LOCA-Vorgänge ist geplant.

Darüber hinaus sind neue FDWR-spezifischen Druckverluste und Wärmeübertragungs-  
Korrelationen für RELAP5 vorgesehen.

### Literatur

- /1/ V.H. Ransom, R.J. Wagner, J.A. Trapp et al.  
RELAP5/Mod1 Code Manual, Vol. 1&2, NUREG/CR-1826, EGG-2070, INEL, 1982
- /2/ C. Broeders, M. Dalle Donne  
Conceptual Design of a Heterogeneous or Homogeneous (Pu,U)<sub>2</sub>O<sub>2</sub> Core with a  
Tight Fuel Rod Lattice for an Advanced Pressurized Light Water Reactor,  
Technical Committee Meeting on ALWR and AHWR Technology, IAEA,  
26-29. November 1984, Vienna, Austria.
- /3/ S. Schumann  
Emergency Core Cooling Examinations for the Light Water High Conversion  
Reactor (LWHCR)  
Advanced Light and Heavy Water Reactor Technology Meeting, Vienna,  
Austria, Nov. 1984
- /4/ R.H. Ullrich  
Experiences in the Use of the RELAP5 Code for Small and Intermediate  
Size LOCA Analyses.  
OECD Workshop on Computing Aspects of the RELAP5 Program, Paris, Nov. 1983

Nennleistungsdaten für DWR und FDWR

	Referenz-DWR	Homogener FDWR
BS-Durchmesser d (mm)	10.75	9.5
Verhältnis: Teilung zu BS-Durchmesser p/d	1.33	1.20
Volumenverhältnis $V_{H_2O}/V_{UO_2}$	1.25	0.62
Anzahl der Brennstäbe pro Brennelement	236	313
Anzahl der Brennelemente	193	301
Aktive Kernhöhe H (m)	3.90	2.2
Druckabfall durch den Kern $\Delta p$ (bar)	1.25	2.28
Kernströmungsquerschnitt (m <sup>2</sup> )	5.6	4.27
Hydr. Durchmesser (mm)	13.5	3.69
Gesamter Massenstrom (kg/s)	18800	18189
mittl. spezif. Stableistung $q_m$ (W/cm)	207	180
Reaktorwärmeleistung Q (MW)	3765	3730

Tabelle 1

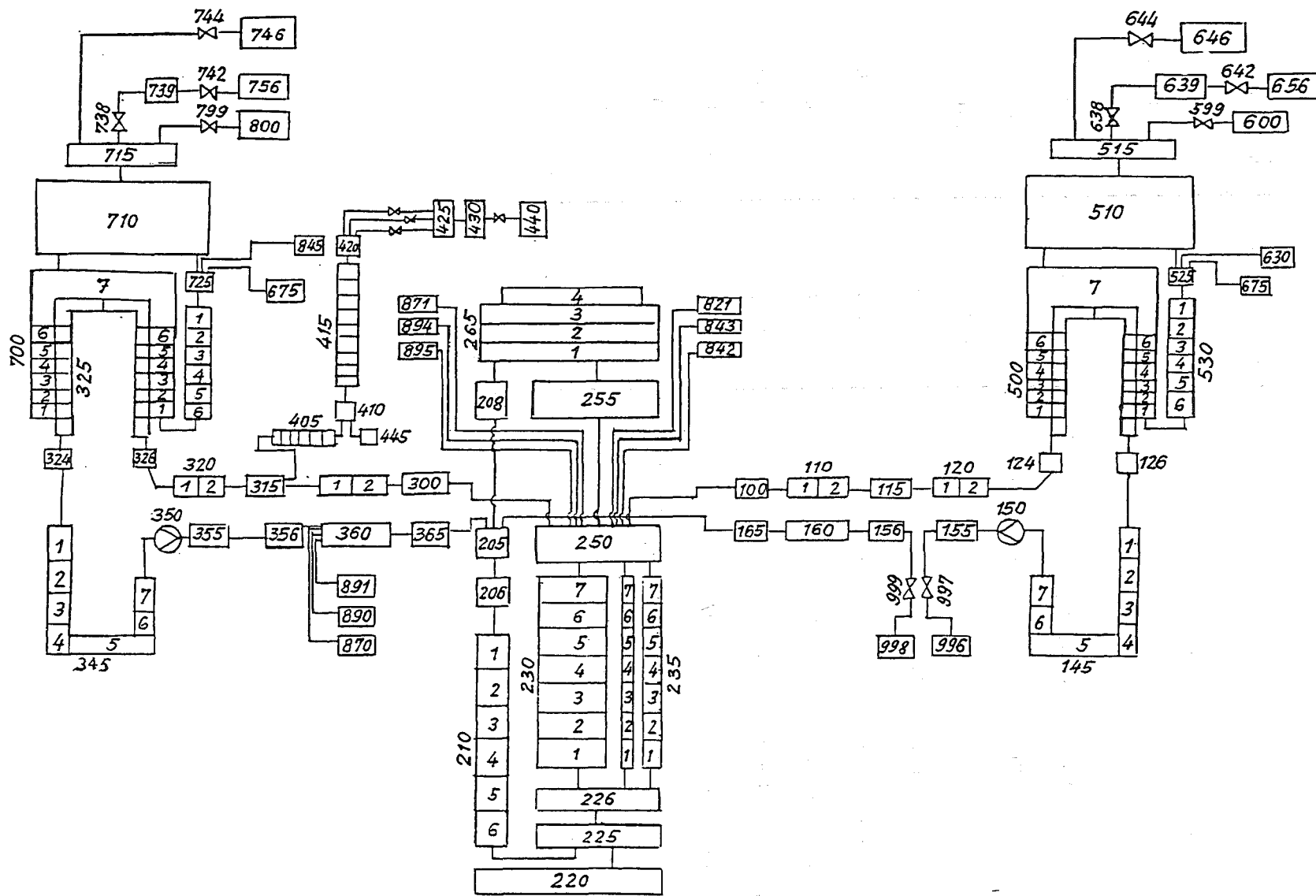


Abb.1 RELAP 5 Nodalisierung für einen LOCA (Modell mit Parallelkanälen)

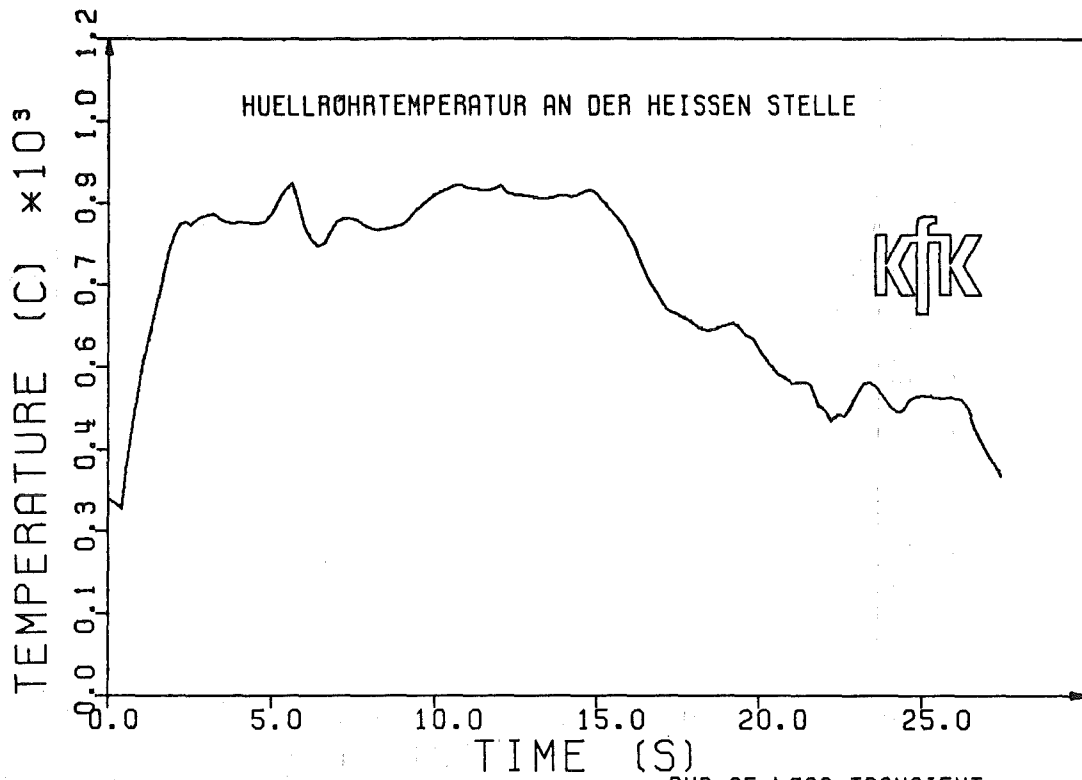


Abb. 2a

DWR 2F-LOCA TRANSIENT

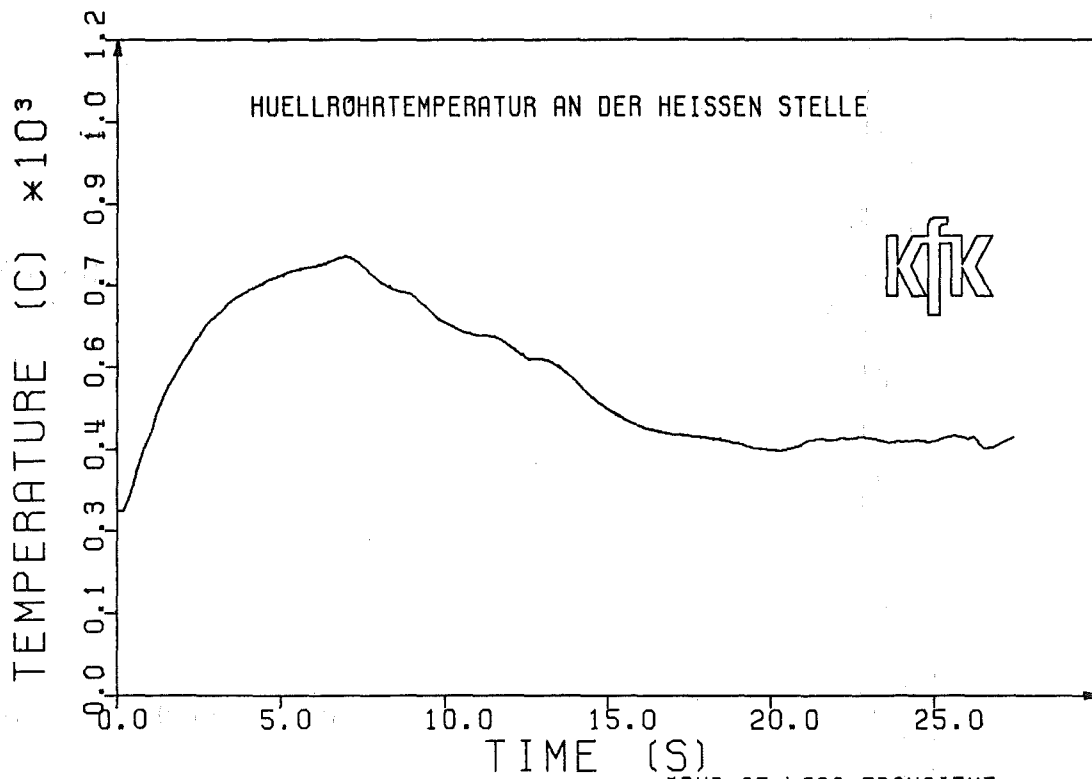
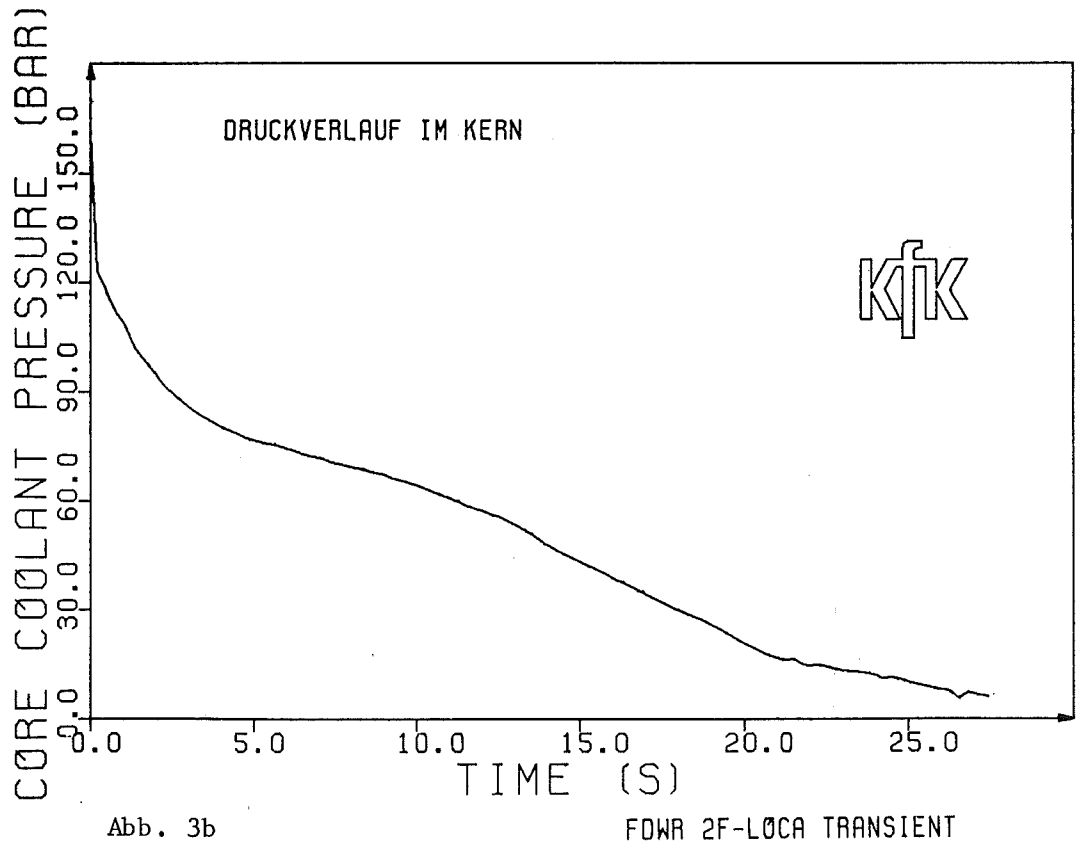
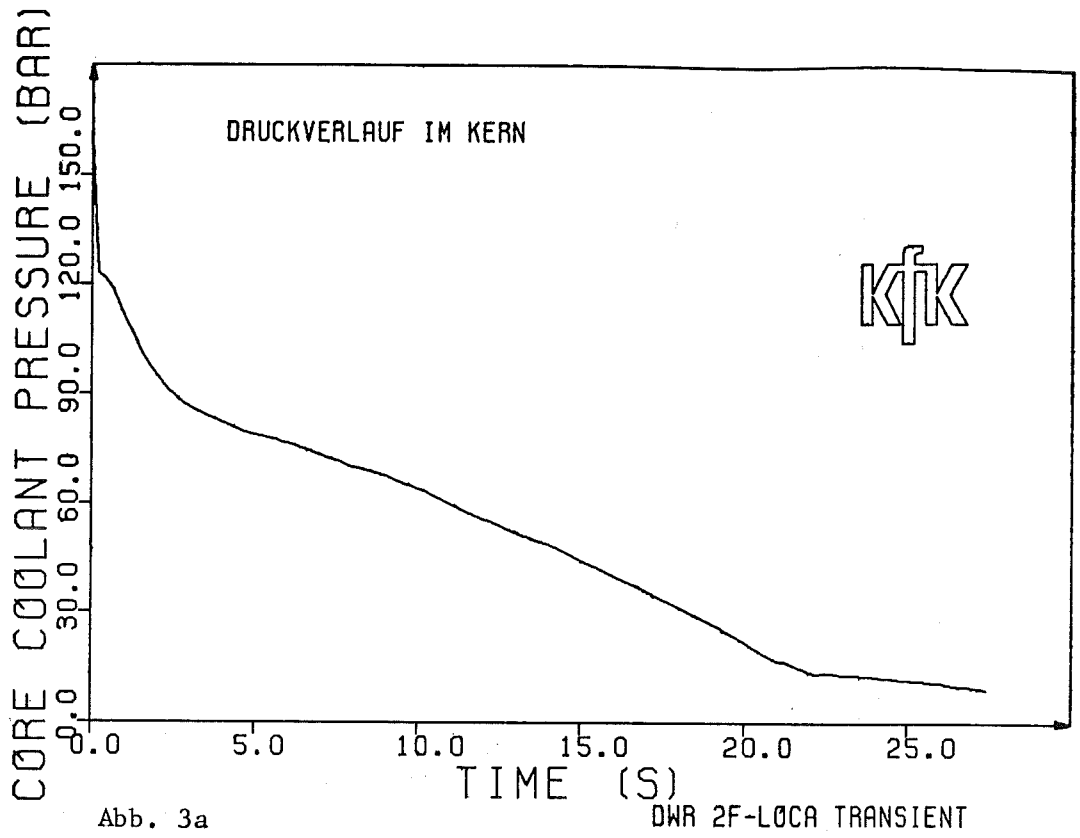


Abb. 2b

FDWR 2F-LOCA TRANSIENT



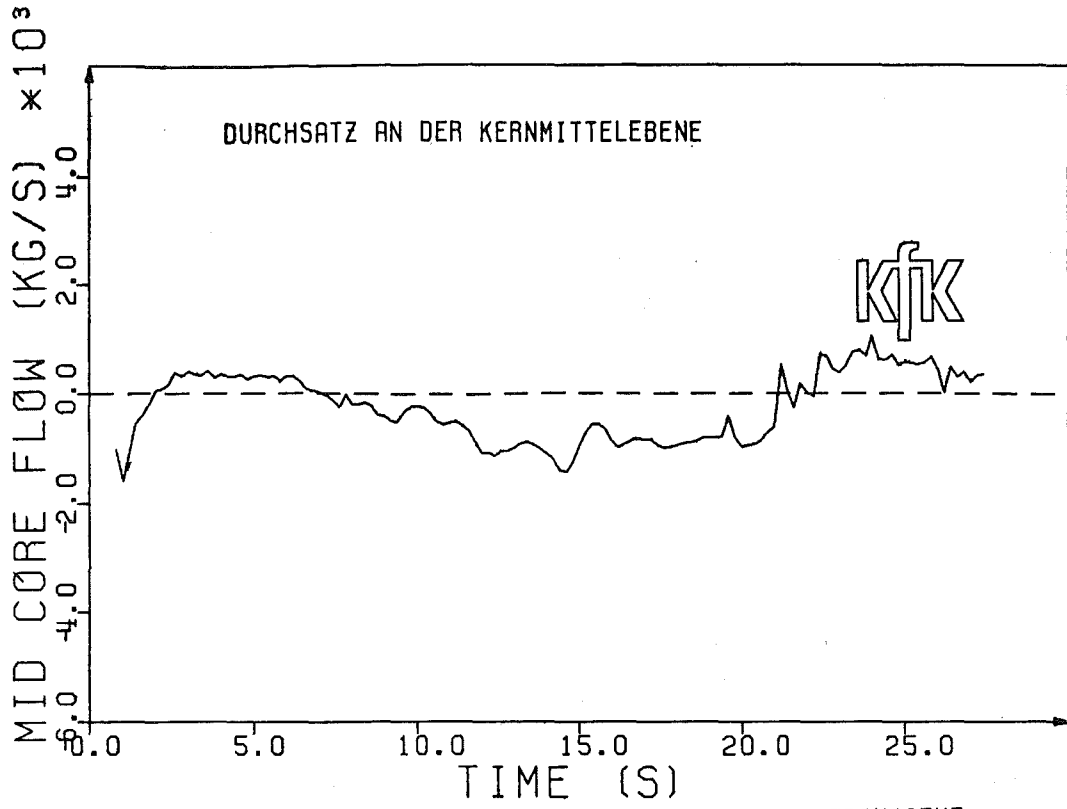


Abb. 4a

DWR 2F-LOCA TRANSIENT

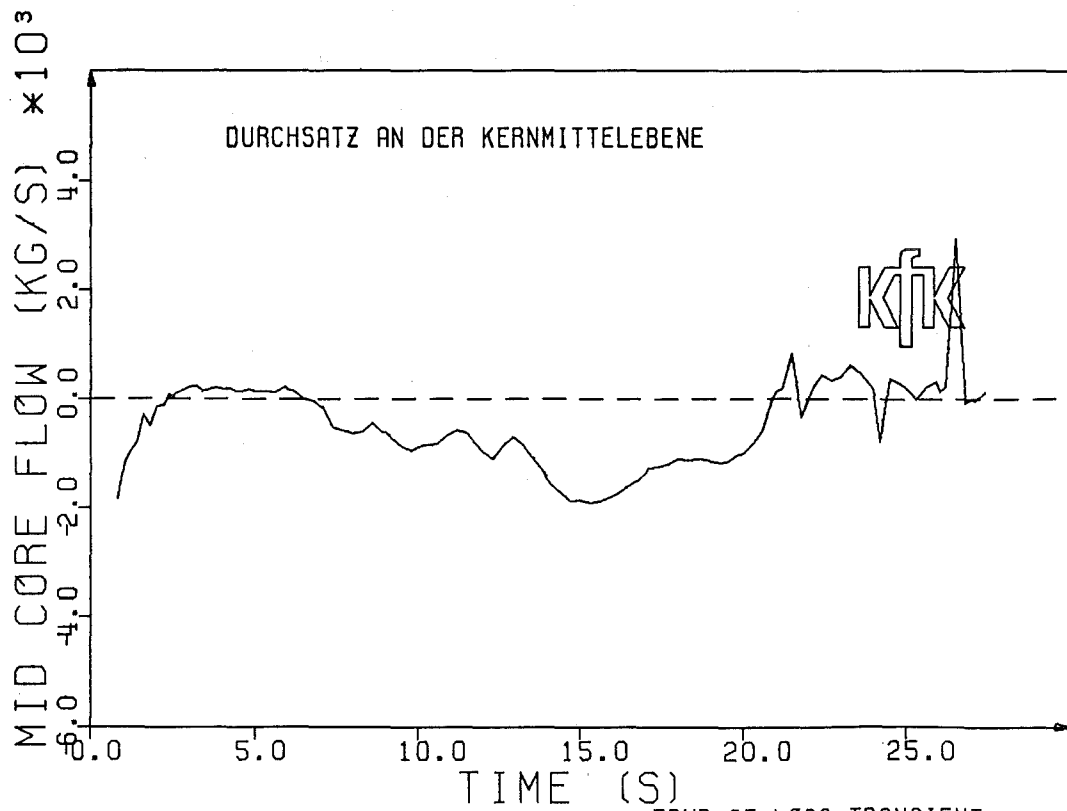


Abb. 4b

FDWR 2F-LOCA TRANSIENT

06.01.22/01A Untersuchungen zu transienten Austauschvorgängen in Zwei-  
PNS 4280 phasenströmungen (NOVA-Programm)  
(G.Class, R.Meyder, W.Sengpiel, P.Philipp, K.-H.Lang,  
E.Stratmanns)

### 1. Einleitung.

Gas-Flüssigkeits-Zweiphasenströmungen - experimentelle Untersuchungen zum Zwecke des Verständnisses der physikalischen Mechanismen ebenso wie die theoretische Beschreibung mit Rechenprogrammen - haben innerhalb der Reaktorsicherheitsforschung eine zentrale Bedeutung. Die zuverlässige Beschreibung des zeitlichen Verlaufs eines Reaktorstörfalles setzt die Kenntnis momentaner Zweiphasen-Strömungsformen voraus denn diese bestimmen Wärmeabfuhr und Wärmetransport, Strömungswiderstände und andere thermofluiddynamische Einflußgrößen. Existierende Modelle für die Bestimmung der Strömungsformen und des Übergangs von einer Strömungsform in eine andere basieren auf sogenannten Strömungskarten, die aus experimentellen Beobachtungen an stationären ausgebildeten Strömungen in einfachen Geometrien gewonnen worden sind. Sie sind üblicherweise statischer Natur und haben a priori keine Gültigkeit bei schnellen Transienten und bei Einlaufströmungen, bei Strömungsverhältnissen also, wie sie in den Komponenten von Reaktorkreisläufen unter verschiedenen Störfallbedingungen überwiegend auftreten können. Eine allgemeiner gültige Beschreibung der Strukturen von Gas-Flüssigkeits-Zweiphasenströmungen, die transiente und nichtvollausgebildete Strömungsverhältnisse in realen Kanalgeometrien einschließt, muß die komplexen Phasentransport- und Verteilungsmechanismen berücksichtigen und setzt ein detailliertes Verständnis der lokalen Wechselwirkungen und Austauschvorgänge an den Phasengrenzflächen voraus. Ziel des NOVA-Vorhabens ist es, am Beispiel von Blasenströmungen einen Beitrag zur Klärung der Phasentransport- und Verteilungsmechanismen und damit zur Entwicklung von Methoden für die analytische Bestimmung von Strömungsformen zu leisten. Die Untersuchungen der Pha-



senverteilungen und Strömungsstrukturen in Wandnähe werden zum verbesserten Verständnis der Wärme- und Impulsübertragung bei Blasenströmung und zur Entwicklung von Modellen für Wärmeübergang und Reibungsdruckverlust führen.

## 2. Einzelzielsetzung und Stand des Wissens.

Das Vorhaben ist zunächst konzentriert auf adiabate Luft-Wasser-Blasenströmungen in senkrechten Kanälen. Dabei sollen für Aufwärts- und Abwärtsströmung die lokalen Phasenverteilungen und andere charakteristische Strömungseigenschaften wie Blasengeschwindigkeiten, Blasen Größen und turbulente Intensitäten der flüssigen Phase experimentell studiert werden und auf der Basis der experimentellen Daten analytische Modelle zur theoretischen Beschreibung des Blasentransports entwickelt werden. Schwerpunkt dabei wird die Klärung der Einflüsse der Turbulenzstruktur in Blasenströmungen und von Querkräften auf Grund des Kutta-Joukowski-Effektes auf die radialen Blasenverteilungen sein. Am Anfang steht dabei die Untersuchung des Einzelblasenverhaltens (Blasenströmungen mit geringen Blasenkonzentrationen) im Vordergrund, um den Einfluß von Wechselwirkungen zwischen den Blasen auszuschalten. Danach wird der mittlere volumetrische Gasanteil bis auf Werte über 20 % erhöht, so daß auch der Übergangsbereich zum 'slug flow' in die Untersuchungen miteinbezogen wird.

Die oben umrissene Aufgabenstellung - experimentelle Untersuchung und theoretische Beschreibung der räumlichen Verteilung der dispersen Phase und anderer Strömungsparameter in einer dispersen Zweiphasenströmung - ist eines der komplexesten Probleme innerhalb der Forschung auf dem Gebiet der Mehrphasenströmung. Dabei spielen über die Reaktorsicherheitsproblematik hinaus auch z. B. Anwendungsbereiche der chemischen Verfahrenstechnik eine wichtige Rolle; dementsprechend sind es neben Blasenströmungen insbesondere Gas-Feststoffpartikel-Strömungen, die untersucht werden. Den gegenwärtigen experimentellen und theoretischen Kenntnisstand auf dem Gebiet der Blasenströmungen kennzeichnen gut die Arbeiten von Serizawa et al. / 1/ bzw. Drew und Lahey / 2/. Für den Bereich der Gas-Feststoffpartikel-Zweiphasenströmungen seien hier die Arbeiten von Lee und Durst genannt / 3/. An den Fragestellungen der Anwendung von Blasenströmungen innerhalb der chemischen Verfahrenstechnik sind die experimentellen Untersuchungen von

Börner / 4/ und Franz / 5/ orientiert. Beide Arbeiten sind hier von besonderem Interesse, da sie wichtige Beiträge zur Anwendung und Weiterentwicklung der Meßtechnik für die Untersuchung der lokalen fluid-dynamischen Strukturen in Blasenströmungen liefern. Für die Zielvorstellungen innerhalb des NOVA-Vorhabens dienen insbesondere die genannten experimentellen Arbeiten von Serizawa et al. und die theoretischen Arbeiten von Drew und Lahey als wertvolle Ausgangspunkte. Serizawa's Datenbasis ist jedoch sehr unvollständig bezüglich der gewählten Bereiche der Versuchsparameter und bezüglich des lokalen Auflösungsgrades der Messungen, so daß sie als Grundlage für Modellentwicklungen nicht ausreichend ist. Das Fehlen einer umfangreichen Basis detaillierter experimenteller Daten beeinträchtigte die bisherigen Modellentwicklungen stark. Hier haben u.a. Drew und Lahey interessante Ansätze für die Entwicklung von Turbulenzmodellen für disperse Zweiphasenströmungen geliefert, ohne daß es bis heute gelungen ist, ein brauchbares Modell zur Beschreibung turbulenter disperser Zweiphasenströmungen in Kanalgeometrien zu entwickeln. Die Modellierung des Einflusses der Turbulenzstruktur der kontinuierlichen Phase auf die räumliche Verteilung der dispersen Phase ist jedoch allein nicht ausreichend, um die beobachteten qualitativ unterschiedlichen Phasenverteilungen bei Aufwärts- und Abwärtsströmungen zu beschreiben. Es ist vielmehr sehr wahrscheinlich, daß radiale Migrationskräfte auf Grund des Kutta-Joukowski- (oder Magnus-) Effektes den entscheidenden Beitrag zur Entwicklung der Phasenverteilungen in einer Blasenströmung liefern / 6/. Das NOVA-Vorhaben ist darauf konzentriert, die Frage nach den Beiträgen der verschiedenen Phasentransport- und -verteilungsmechanismen zu den resultierenden Blasenverteilungen in senkrechten Blasenströmungen zu klären. Dabei ist das parallele experimentelle und theoretische Vorgehen innerhalb des Gesamtvorhabens von großer Bedeutung.

### 3. Experimentelles und theoretisches Programm.

Die Experimente werden am Wasserkreislauf des Instituts für Reaktorentwicklung durchgeführt. Eine schematische Darstellung dieses Kreislaufs mit der integrierten Zweiphasen-Teststrecke zeigt Abb. 1. Die senkrechte Teststrecke aus Plexiglasrohr hat eine Länge von ca. 5 m und einen Innendurchmesser von 70 mm. In der Teststrecke werden Ge-

schwindigkeiten des Zweiphasengemisches von bis zu 6 m/s erreicht, wobei die Teststrecke zunächst nur für Aufwärtsströmung konzipiert ist. Eine erweiterte Teststrecke, die auch die Untersuchung von abwärtsgerichteten Blasenströmungen erlaubt, ist in Entwicklung. Das experimentelle Untersuchungsprogramm an aufwärts- und abwärtsgerichteten Blasenströmungen mit mittleren volumetrischen Gasgehalten bis zu ca. 20 % umfaßt die Messung folgender Größen:

- radiale Voidverteilungen an verschiedenen axialen Positionen (von Einlaufströmung bis zu vollausgebildeter Strömung)
- radiale Verteilungen der Blasengeschwindigkeiten und des Blasengrößenspektrums
- radiale Verteilungen der zeitlich gemittelten Wassergeschwindigkeiten
- radiale Verteilungen der richtungsabhängigen turbulenten Intensitäten des Wassers, Ableitung des Tensors der Reynolds'schen turbulenten Spannungen aus diesen Daten.

Die Messungen werden mit elektrischen Widerstandssonden (Voidverteilung Blasengeschwindigkeiten, Blasendurchmesser) und mit Heißfilmsonden nach der Methode der Konstant-Temperatur-Anemometrie (Wassergeschwindigkeiten und Turbulenzgrößen) durchgeführt.

Darüberhinaus ist der Einsatz der Computertomographie auf der Basis der Mehrstrahl-Gamma-Durchstrahlungsmeßtechnik vorgesehen / 7/. Damit wird es möglich sein, ein genaues räumliches Bild der Voidverteilung im Strömungskanal zu erhalten.

Die Modellentwicklungen sind zunächst allein ausgerichtet auf einen Ansatz für ein verbessertes Turbulenzmodell für Blasenströmungen und ein Modell zur Beschreibung der radialen Migrationskräfte auf die Blasen auf Grund des Kutta-Joukowski-Effekts. Sie fließen ein in die Rechenprogramme K-FIX / 8/ und EFFF / 9/, die zur theoretischen Unterstützung der NOVA-Experimente an der Rechenanlage des KfK implementiert worden sind.

#### 4. Bisher durchgeführte Arbeiten.

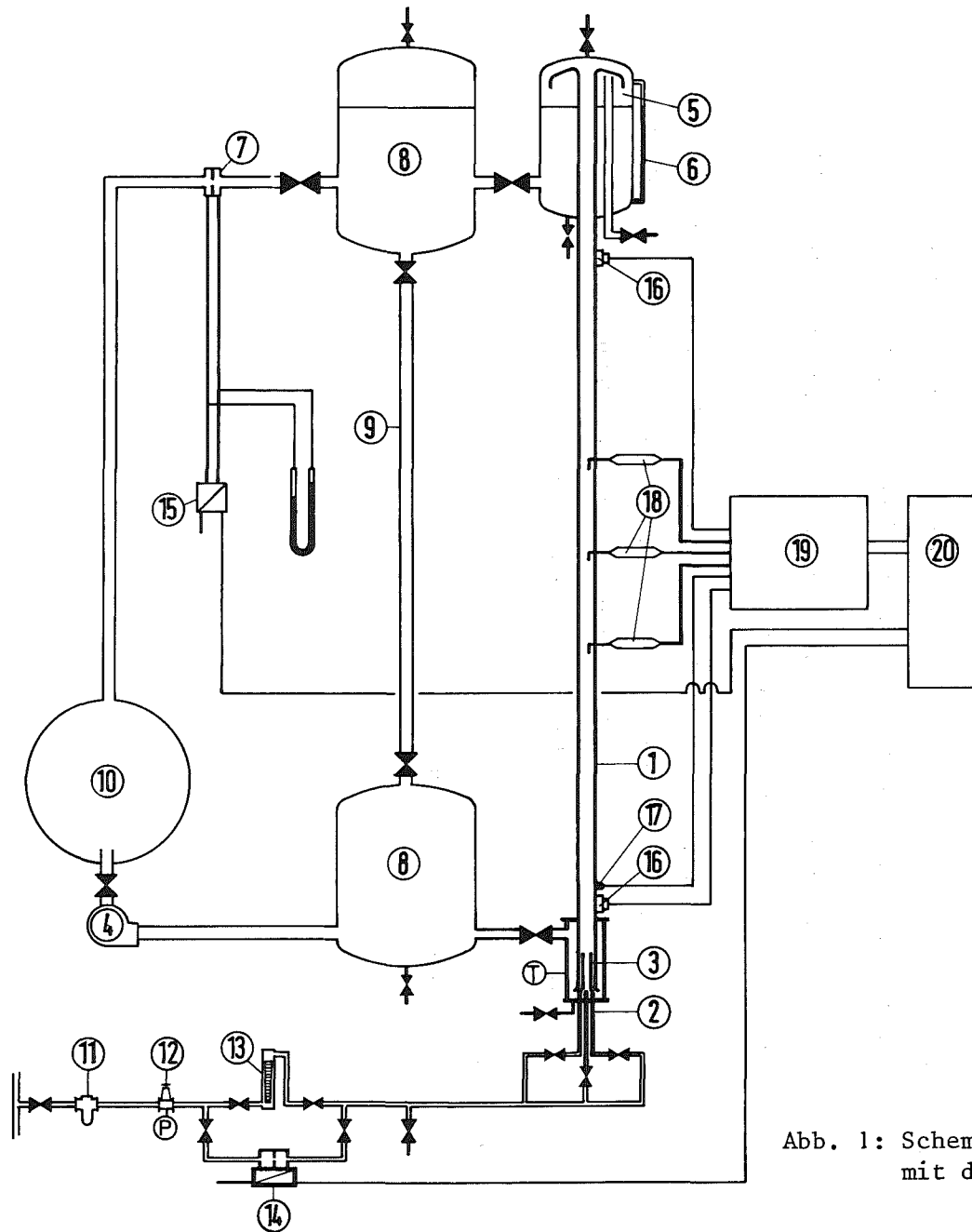
Mit der Instrumentierung der Teststrecke ist begonnen und der Versuchskreislauf ist in Betrieb genommen worden. Schwerpunkt der experimentellen Arbeiten war bisher die Erprobung der lokalen Meßtechniken einschließlich der Entwicklung von elektrischen Widerstandssonden zur Messung lokaler relativer Gasgehalte und Blasengeschwindigkeiten /10/. Abb. 2 zeigt eine solche Sonde und Abb. 3 Blasensignale, die von den beiden in Strömungsrichtung versetzt angeordneten Sensoren der Sonde beim Durchlauf einer Blase erzeugt wurden. Abb. 4 zeigt eine Meßstelle in der Teststrecke mit einer verschiebbaren Heißfilmsonde. Das Signal in Abb. 4a charakterisiert den zeitlichen Verlauf der turbulenten longitudinalen Geschwindigkeitsschwankungen an der Meßstelle; diesem Signal wird beim Durchlauf einer Blase ein Blasensignal überlagert, wie es in Abb. 4b gezeigt ist.

Im Rahmen der theoretischen Arbeiten zum NOVA-Vorhaben wurden die in der Literatur veröffentlichten numerischen und physikalischen Modelle zur Beschreibung der Fluidodynamik disperser Zweiphasenströmungen studiert. Dabei wurde deutlich, daß der Einfluß der turbulenten Diffusion auf den Transport der dispersen Phase sehr unterschiedlich behandelt und oft vernachlässigt wird. Da diese Diffusion zusammen mit Migrationskräften auf Grund des Kutta-Joukowski-Effektes und turbulenten Spannungen zur radialen Verteilung der Phasen beiträgt, muß sie im System der Erhaltungsgleichungen berücksichtigt werden. Der vollständige Satz von Erhaltungsgleichungen unter Einschluß der Effekte des Massen- und Impulsaustausches durch turbulente Diffusion ist abgeleitet worden /11/ und dient als Grundlage der weiteren Modellentwicklungen.

#### 6. Literatur.

- / 1/ A. Serizawa, I. Kataoka, I. Michiyoshi, Turbulence Structure of Air-Water Bubbly Flow, Parts I-III, Int. J. Multiphase Flow 2, S. 221-259, 1975
- / 2/ D. A. Drew, R. T. Lahey, Jr., Phase Distribution Mechanisms in Turbulent Two-Phase Flow in Channels of Arbitrary Cross Section, J. Fluids Engineering 103, S. 583-589, 1981

- / 3/ S.L. Lee, F. Durst, On the Motion of Particles in Turbulent Duct Flows, Int. J. Multiphase Flow 8(2), S. 125-146, 1982
- / 4/ Th. Börner, Einsatz von Laser-Doppler- und Heiß-Film-Anemometrie zur Ermittlung von Strömungsstrukturen in Blasensäulen, Dissertation Universität Dortmund, 1983
- / 5/ K. Franz, Untersuchungen zur Turbulenzstruktur in Blasensäulen mittels einer neu entwickelten richtungsspezifischen Heißfilm-Anemometertechnik, Dissertation Universität Dortmund, 1983
- / 6/ W. Sengpiel,  
unveröffentlichter Bericht, 1984
- / 7/ G. Class,  
unveröffentlichter Bericht, 1984
- / 8/ W.C. Rivard, M.D. Torrey, KFIX: A Computer Program for Transient, Two-Dimensional, Two-Fluid Flow, LA-NUREG-6623, 1977
- / 9/ B. Schönung, Numerische Simulation teilchenbeladener vertikaler Rohrströmungen, Dissertation Universität Karlsruhe, 1983
- /10/ G. Boßler, Entwicklung und Erprobung einer elektrischen Widerstandssonde für Messungen lokaler relativer Gasgehalte und Blasen-geschwindigkeiten in Luft-Wasser-Blasenströmungen, Diplomarbeit Universität Karlsruhe, 1984
- /11/ R. Meyder,  
unveröffentlichter Bericht



- ① Teststrecke
- ② Gasdüsen
- ③ Gleichrichter
- ④ Pumpe
- ⑤ Gasabscheider
- ⑥ Wasserstands-Schauglas
- ⑦ Meßblende-Wasserdurchsatz
- ⑧ Dämpfungsbehälter
- ⑨ Bypassleitung
- ⑩ Vorratsbehälter
- ⑪ Druckluftfilter
- ⑫ Druckregler
- ⑬ Schwebekörper-Durchflußmesser
- ⑭ Blendenbrücke - Gasdurchsatz
- ⑮ Meßumformer
- ⑯ Druckaufnehmer
- ⑰ Temperaturfühler  
Heißfilmsonden
- ⑱ Meßfühler Elektr. Widerstandssonden  
u. a.
- ⑲ Konstant-Temperatur-Anemometersystem (CTA)  
Gleichspannungs-(GV) und Trägerfrequenzverstärker(TFV)
- ⑳ Datenerfassungsanlage

Abb. 1: Schematische Darstellung des NOVA-Versuchskreislaufs mit der Zweiphasen-Teststrecke

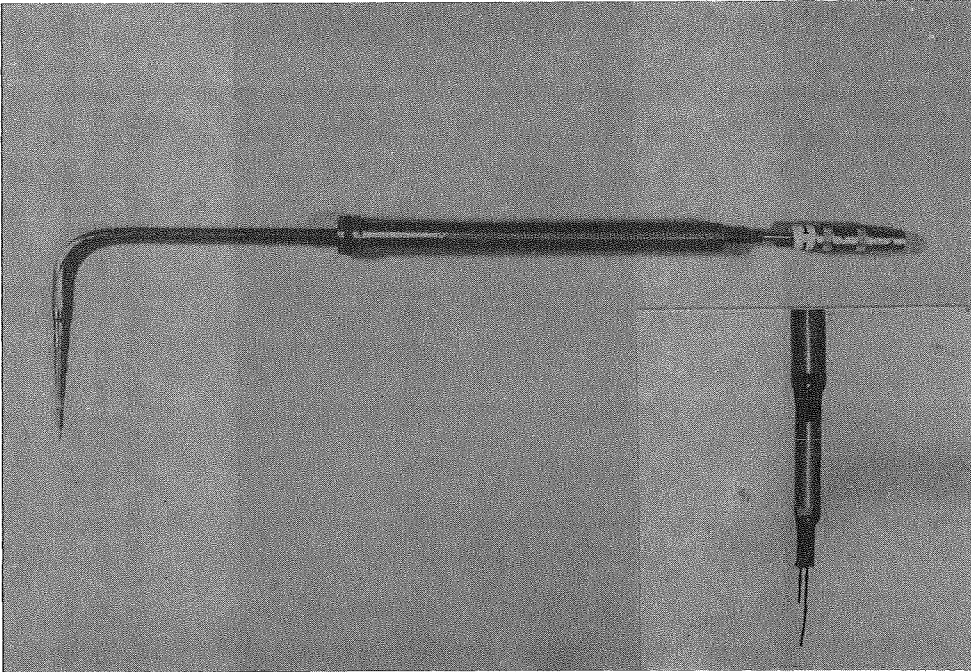


Abb. 2: Elektrische Widerstandssonde mit zwei Meßfühlern zur Messung der Voidverteilung und der Blasengeschwindigkeiten

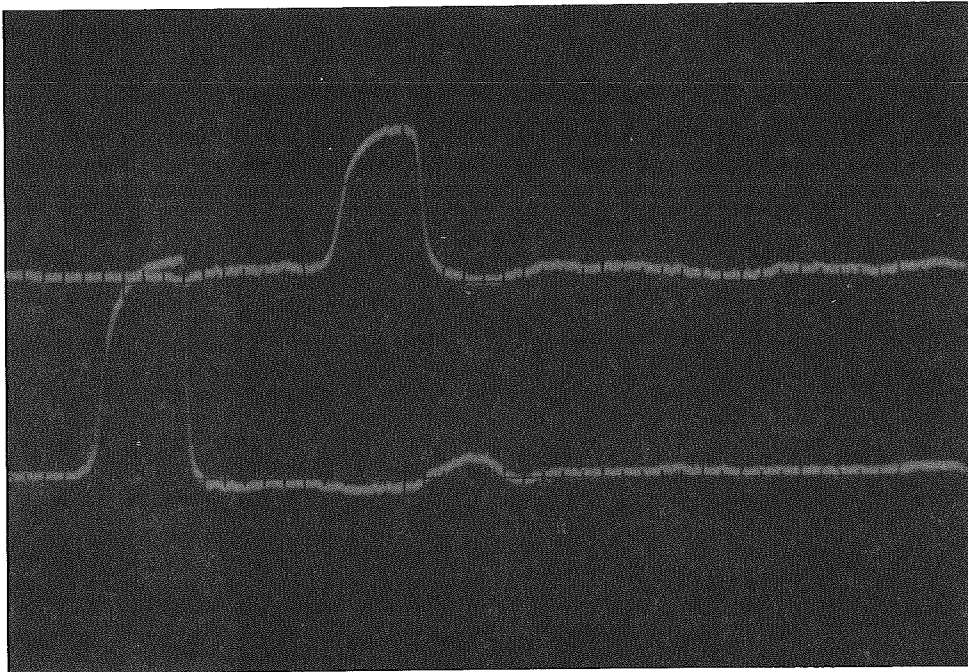


Abb. 3: Charakteristischer Signalverlauf beim Durchgang einer Blase durch die beiden Meßfühler der elektrischen Widerstandssonde

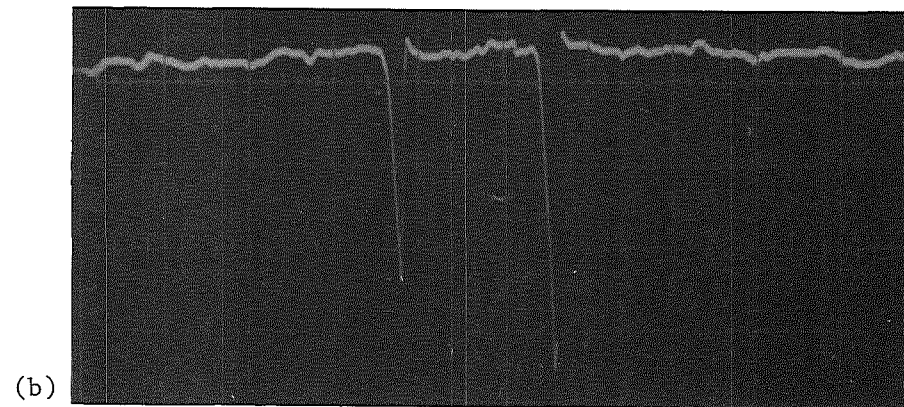
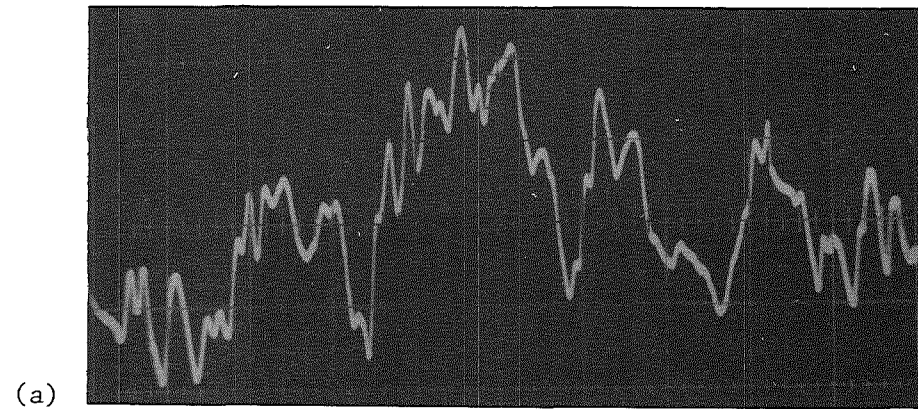
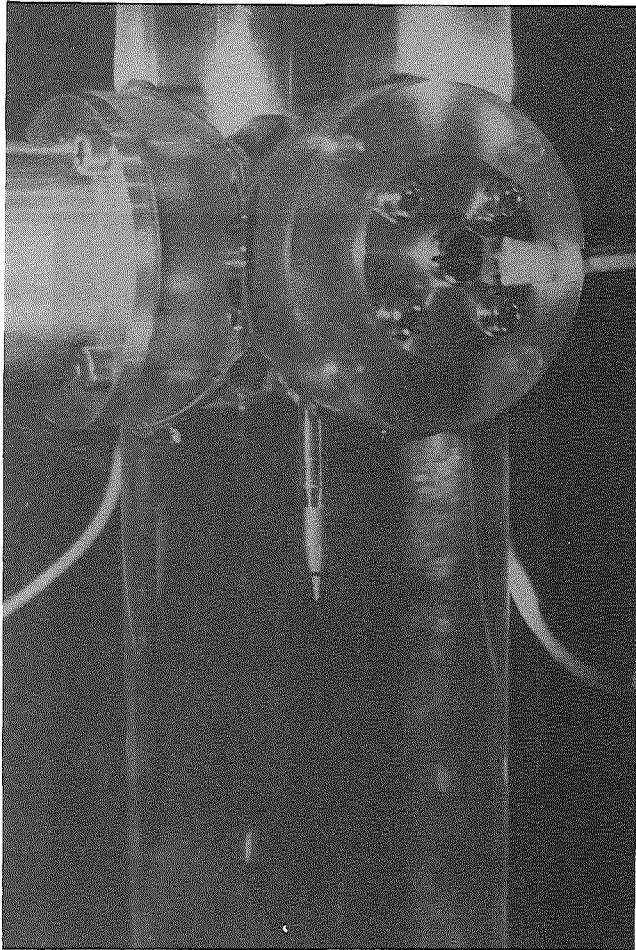


Abb. 4: Meßstelle in der NOVA-Teststrecke mit verschiebbarer Heißfilmsonde zur Messung instantaner lokaler Geschwindigkeiten der flüssigen Phase. Die abgebildeten Signalverläufe kennzeichnen beispielhaft die longitudinalen Geschwindigkeitsschwankungen (a) mit überlagerten Blasensignalen (b)



06.01.03            Entwicklung von Zweiphasen-Massenstrom-Meßverfahren und  
Anwendung bei Blowdown-Experimenten

06.01.03/27A      Versuchsstand für instationäre Zweiphasenmeßtechnik  
PNS 4139            (H.John, S.Barth, A.Demski, G.Eisele, K.Hitzig, S.Kleiber  
A.Megerle, L.Pawlak, J.Reimann, E.Wanner, R.Weinbrecht; IRB)

### 1. Einleitung

Im PNS-Jahresbericht 1983 wurde über Experimente mit verschiedenen Massenstrom Meßmethoden in transients Dampf-Wasserströmung berichtet. Der Test eines Meßeinsatzes mit einer Massenstrominstrumentierung, die im LOBI-Kreislauf Ispra/Euratom zum Einsatz kommt, wurde beschrieben. Die wichtigsten Ergebnisse dieser Versuche mit Turbinenmetern Dragbodies und einem 2-Strahl-Gammadensitometer sollen in diesem Bericht vorgestellt werden.

### 2. Test des LOBI-Meßeinsatzes

Eine detaillierte Beschreibung des Versuchskreislaufes mit der Referenzinstrumentierung und der getesteten LOBI-Instrumentierung wurde in /1/ und /2, 3, 4/ durchgeführt. An dieser Stelle kann daher die Darstellung der Versuchseinrichtung in Kurzform geschehen.

Abb. 1 zeigt schematisch die Anordnung des LOBI-Meßeinsatzes in der waagerechten Teststrecke des Kreislaufes für instationäre Zweiphasenmeßtechnik und das Referenzmassenstrommeßgerät True Mass Flow Meter (TMFM), hinter der Teststrecke.

In den Meßeinsatz mit einem Innendurchmesser von 46 mm und einer Länge von 1 m sind in Strömungsrichtung gesehen eingebaut: 2 Local Flow-Turbinenmeter (in einer Ebene) ein Zweistrahl-Gammadensitometer, 2 Dragbodies (in einer Ebene) und ein Full-Flow Turbinenmeter.

Die lokalen Turbinendurchflußmesser (QT1, QT2), die von der LOBI Instrumentierungsgruppe entwickelt wurden, haben Sondenform und werden in Stützen des Strömungskanals montiert. Die Turbinenläufer, die einen Außendurchmesser von 7 mm haben, sind in Radialkugellager mit einem kugelförmigen Achsschublager

gelagert. Die Kugellager verlangen einen so großen Wasserreinheitsgrad, daß in dem ferritischen Versuchskreislauf viele Ausfälle zu verzeichnen waren.

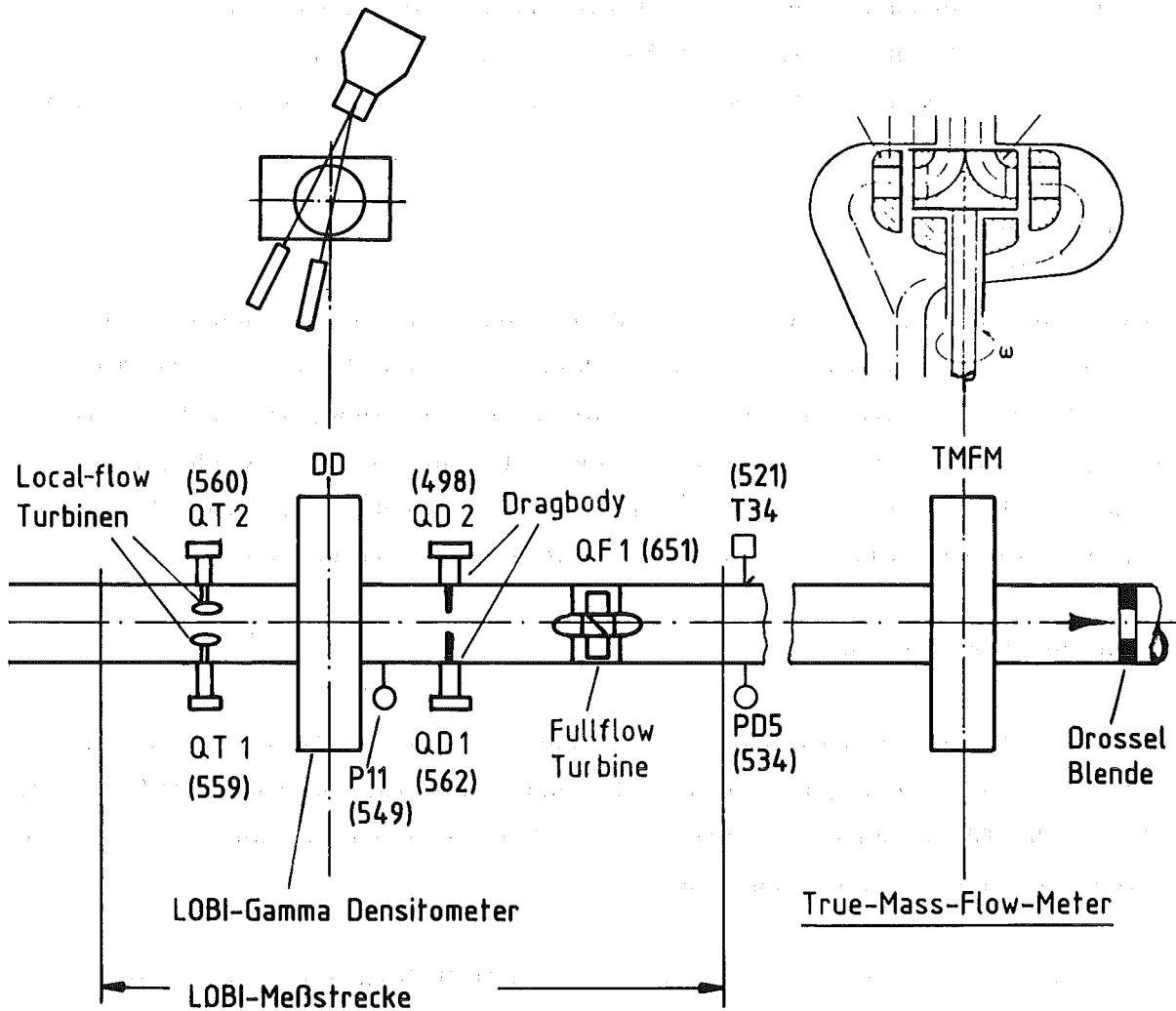


Abb. 1: Instrumentierte Teststrecke

Das Zweistrahl Gammadensitometer (DD) der Firma Exatest arbeitet mit einer 20 Ci Cs-137 Quelle. Die Anordnung der Strahlen ist aus dem Schema Abb. 1 zu ersehen.

Die Dragbodies (QD1, QD2) von Battelle/Frankfurt werden ähnlich den Turbinensonden in Rohrstützen montiert. An einem federnden Hebelarm aus Titan ist eine rechteckige scharfkantige Prallplatte angeordnet. Auf dem Hebelarm ist zur Signalerzeugung eine Dehnungsmeßstreifen-Halbbücke angeordnet. Es kamen

Dragbodies mit 96 und 57 mm<sup>2</sup> Prallfläche zum Einsatz.

Die Full Flow Turbine (QF1) ist eine Entwicklung des CEN Grenoble. Sie ist speziell für Blowdownströmungen entwickelt und überdeckt einen Geschwindigkeitsmeßbereich bis 150 m/s mit einem nutzbaren Meßbereich größer als 100:1.

Diese genannten LOBI Instrumente sind indirekt messende Geräte. Erst durch Kombination der Meßwerte kann der Massenstrom bestimmt werden. Das TMFM ist ein direkt messendes Massenstromgerät. Über Aufbau und Meßgenauigkeit ist in /2-4/ detailliert berichtet.

Für die Berechnung der Massenströme aus den Meßsignalen der LOBI-Geräte wurden die einfachen Modelle, die definitionsgemäß für einphasige Strömung bzw. homogene zweiphasige Strömung gelten, verwendet. Es wurde dabei davon ausgegangen, daß die Signale der einzelnen Geräte, in physikalische Einheiten umgerechnet, folgendes darstellen.

Dragbodies:	$QD = C_1 \cdot \rho \cdot u^2$	/N/ Impulsfluß
Turbinen Meter:	$QT = QF = C_2 \cdot u$	/m/s/ Geschwindigkeit
Gamma-Densitometer:	$DD = \rho$	/kg/m <sup>3</sup> / Dichte

dabei ist

$u$  = querschnittsgemittelte Geschwindigkeit  
im unverengten Kanalquerschnitt

$\rho$  = die querschnittsgemittelte Dichte

$C_{1,2}$  = Gerätekonstanten

Durch entsprechende Kombination der Meßwerte läßt sich der Massenstrom auf die folgende Weise berechnen:

Dragbody + Densitometer:	$\dot{m}_{QD,DD} = K_1 \cdot (QD \cdot DD)^{1/2}$
Turbinen + Densitometer:	$\dot{m}_{QT,DD} = K_2 \cdot (QT \cdot DD)$
Dragbody + Turbinen:	$\dot{m}_{QD,QT} = K_3 \cdot (QD/QT)$

$K_{1,2,3}$  sind Umrechnungsfaktoren, in denen auch der Rohrquerschnitt berücksichtigt ist.

Über eine Versuchsperiode von 10 Blowdowns, von denen die wichtigsten Para-

meter in Abb. 2 und Tab. 1 dargestellt sind, wurden die Meßwerte der Meßeinsatzinstrumente aufgenommen und ausgewertet. In Tab. 1 ist enthalten, welche Geräte einwandfrei gearbeitet haben und welche gestört waren. Daraus ergibt sich der Verfügbarkeitsgrad der einzelnen Geräte.

Die mit dem True Mass Flow Meter gemessenen Massenstromverläufe über der Blowdownzeit sind in Abb. 3 dargestellt. Die mit den genannten Modellen errechneten Massenströme wurden zum Referenzmassenstrom in der folgenden Weise ins Verhältnis gesetzt.

$$\text{Massenstromverhältnis} = \dot{m}_{\text{LOBI}} / \dot{m}_{\text{TMFM}}$$

Da für kleine Werte der Massenströme diese Beziehung keine sinnvollen Ergebnisse liefert, wurden nur Werte größer als 10 % des Referenzauslegungswertes (50 kg/s) aufgetragen.

In Abbn. 4-8 sind die Verhältnisse für Massenströme 10 - 100 % für die Kombinationen: [QD<sub>1,2</sub>, DD], [QT<sub>1,2</sub>, DD], [QF<sub>1</sub>, DD], [QD<sub>1,2</sub>, QF] und [QD<sub>1</sub>, QT<sub>1</sub>] und [QD<sub>2</sub>, QT<sub>2</sub>] über der Blowdownzeit aufgezeichnet.

In diesem Bereich, in dem der wesentliche Teil des Blowdowns abläuft, beträgt der relative Fehler der Referenzmessung im Mittel 3 % vom Meßwert und ist deshalb bei diesen Fehlerabschätzungen zu vernachlässigen.

Für die Verhältniskurven wurden die Einhüllenden gezeichnet, die alle Werte im genannten Bereich einschließen. Geht man davon aus, daß die Blowdownversuche einen großen Bereich möglicher Strömungsformen abdecken, kann man den Mittelwert der Abweichungen vom Referenzwert als mittleren Systemfehler bezeichnen und damit das jeweils verwendete Modell korrigieren. Nach Division der jeweiligen Berechnungsgleichung durch diesen Korrekturwert ergibt sich die von den Einhüllenden begrenzte Bereichsbreite als relative Fehlerbandbreite der Massenstrom-Kombination in Zweiphasenströmung. In Tabelle 2 wurden für die genannten 9 Kombinationen diese Ergebnisse zusammengestellt.

Eine detaillierte Interpretation der Meßergebnisse wird in /1/ durchgeführt.

Literatur:

- /1/ H. John, E. Ohlmer, W. Schulze, G. Weste, J. Reimann, G. Eisele  
Test eines Meßeinsatzes mit 2 Local-Flow Turbinen, 2 Dragbodies einer  
Full-Flow Turbine und einem 2-Strahl-Densitometer der LOBI-Anlage in  
transienter Zweiphasenströmung. KfK 3877, EUR 9607d, 1985
- /2/ John, H.; Hain, K.; Brüderle, F.; Reimann, J.; Schloss, F.: "Test des  
Massenstrommeßgerätes TMFM-50 für Zweiphasenströmungen". KfK-3215, (Okt.  
1981).
- /3/ John, H.; Hain, K.; Brüderle, F.; Reimann, J.; Volmer, T.: "Tests of an  
Advanced True Mass Flow Meter (TMFM) in Gas Liquid Flow". ASME-Paper 82-  
FE-23 (June 1982).
- /4/ John, H.; Reimann, J.; Müller, U.: "Test of Two-Phase Mass Flow Rate  
Instrumentation in Transient Steam Water Flow"; I.U.T.A.M. Symposium,  
Measuring Techniques in Gas-Liquid Two-Phase Flows, Nancy, France, July  
5-8, 1983.

mittlere Teststreckenwerte						LOBI-Instrumente						Drosselblendendurchmesser
Blowdownnummer	Druck vor Blowdownbeginn /bar/	Druck kurz nach Blowdownbeginn /bar/	Temperatur vor Blowdownbeginn /°C/	Temperatur kurz nach Blowdownbeginn /°C/	maximaler Massenstrom	x hat funktioniert o gestörter Lauf						
						QD1	QD2	QT1	QT2	QF1	DD	
019	29	25	221	222	32.5	x	x	o	x	x	x	
023	30	25	200	220	44	x	o	x	x	x	x	Ø 35
024	42.5	33	218	236	43	x	o	x	o	x	x	Ø 35
025	53.5	42	227	250	31.5	x	o	x	x	x	x	Ø 27
026	30.8	29	222	232	19.5	x	o	x	o	x	x	Ø 22
027	22.5	21	192	214	19.5	x	o	x	o	x	x	Ø 22
029	43.2	38.4	211	250	26.5	x	x	o	o	x	x	Ø 22
030	61	55	249	272	29.5	x	x	o	o	x	x	Ø 22
031	80	72.5	280	290	31	x	x	o	x	x	x	Ø 22
033	39.8	32	230	238	41	x	o	x	o	x	x	Ø 32

Tabelle 1

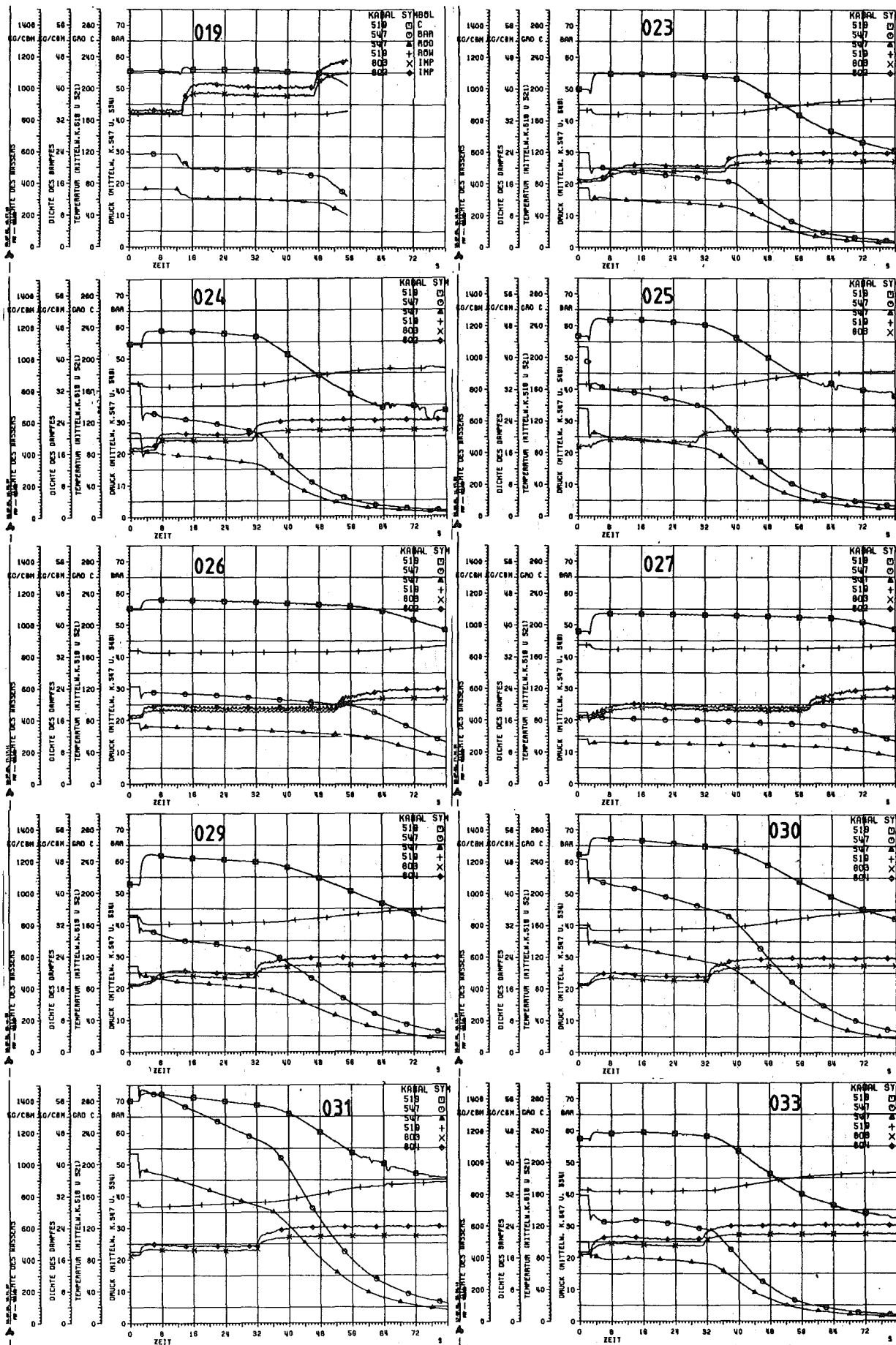


Abb. 2 Grundwerte (längsgemittelt) in der LOBI-Meßstrecke:  
 Temperatur (□)°C, Druck (○)bar, Dampfdichte (△)kg/m<sup>3</sup>  
 Wasserdichte (+)kg/m<sup>3</sup> u. Zählraten des Densimeters (×◇)

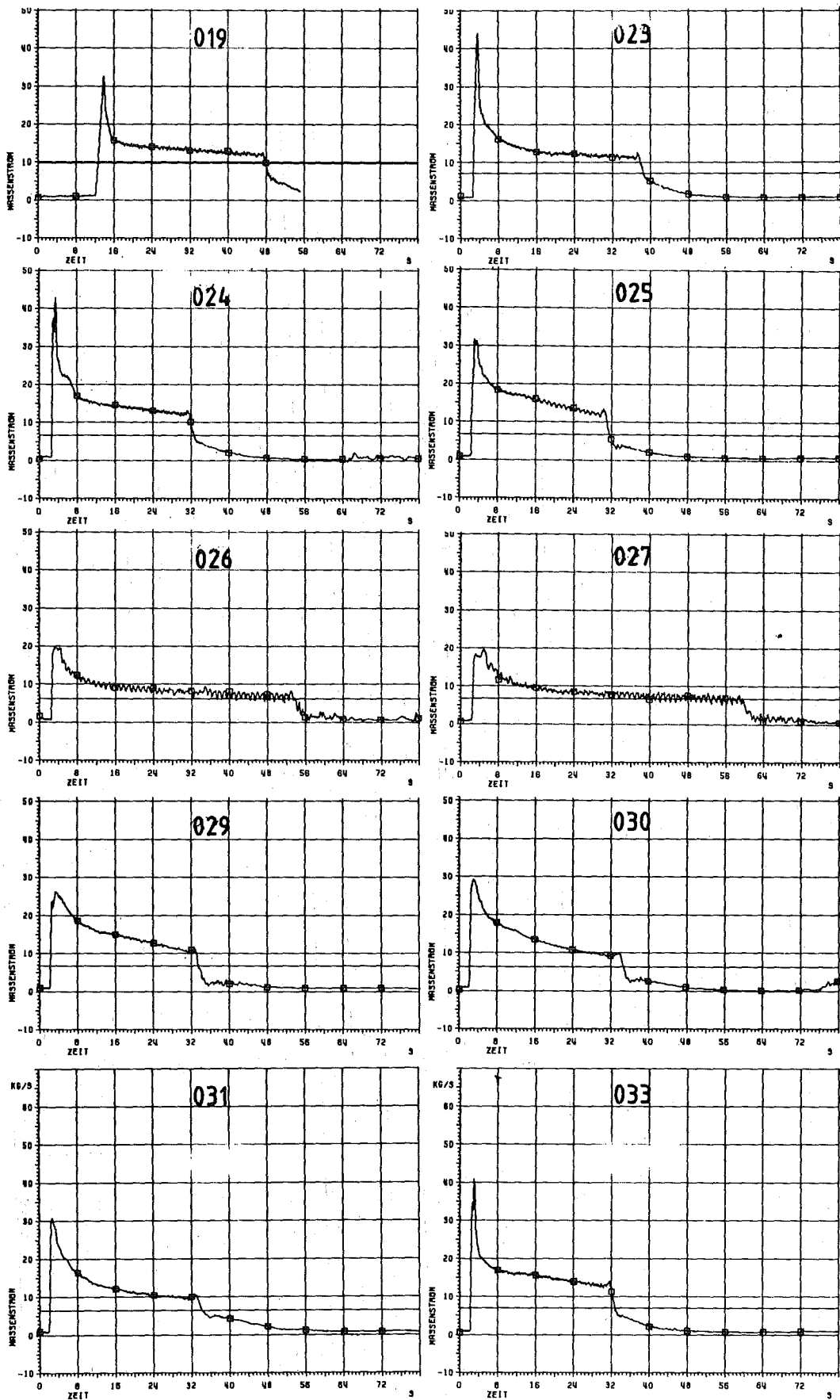


Abb. 3 Referenzmassenstrom (korrigiert) vom True Mass Flow Meter in kg/s



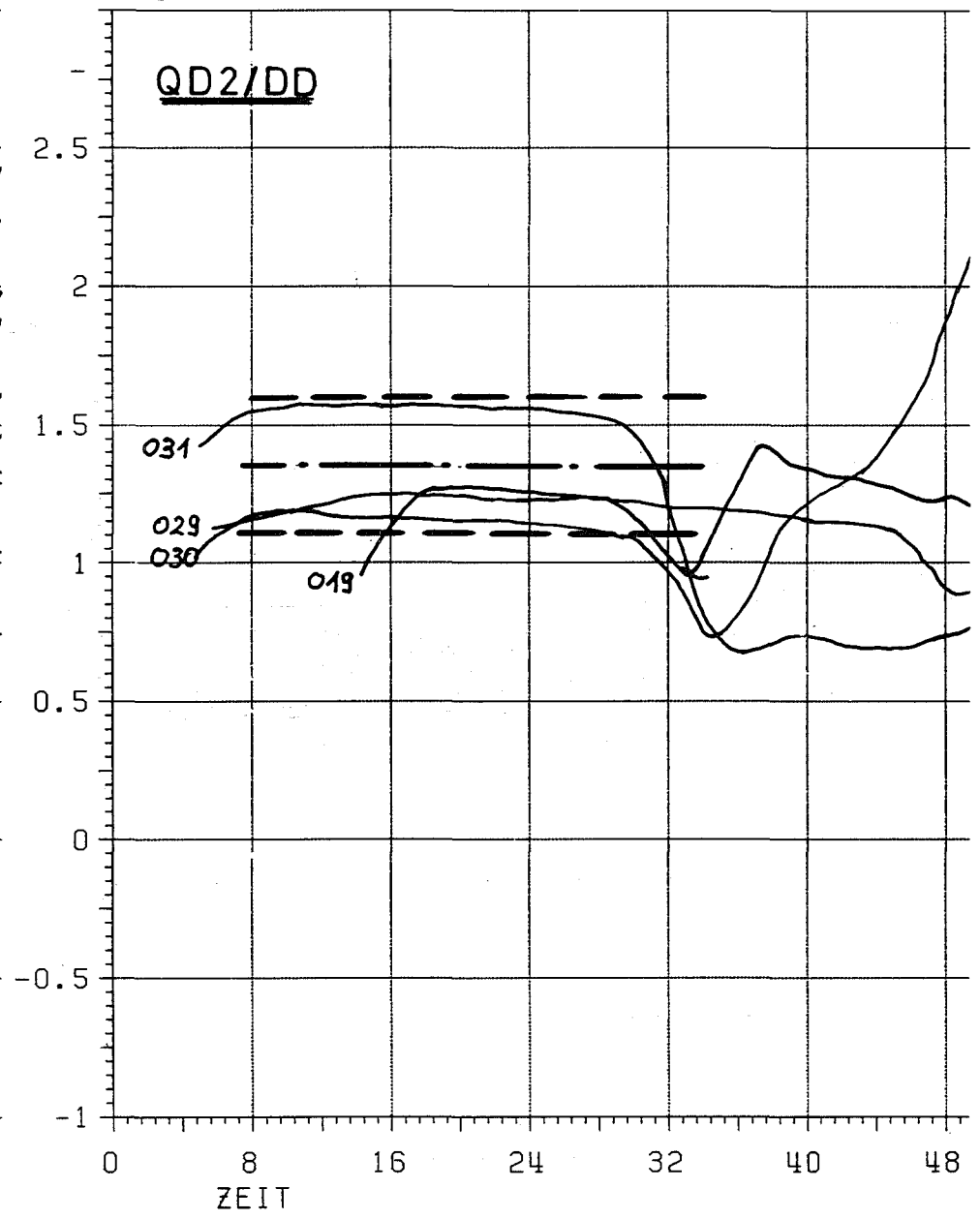
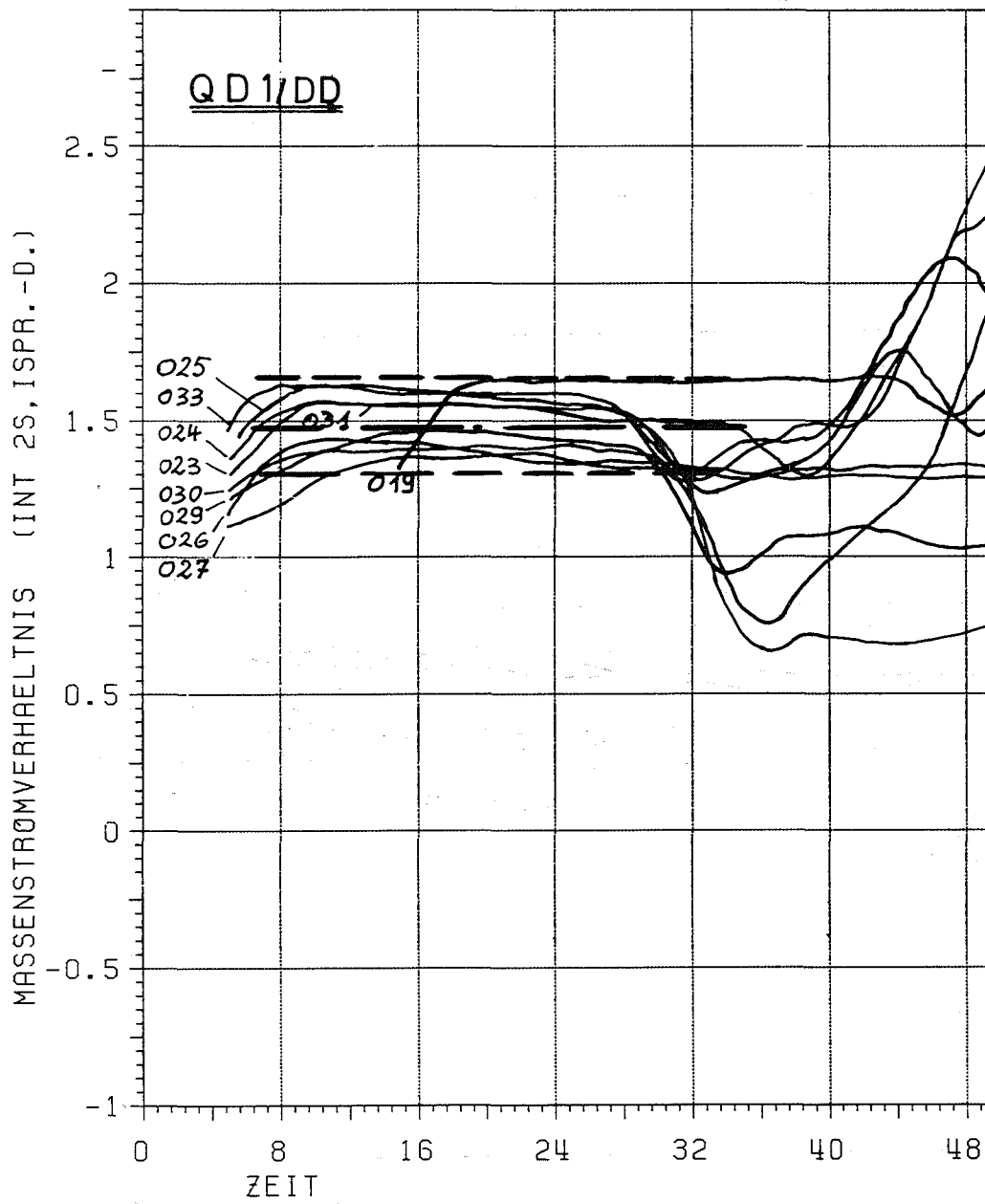


ABB.: 4 MASSENSTROMVERHAELTNIS

$\dot{m}_{\text{LOBI}} / \dot{m}_{\text{TMFM}}$

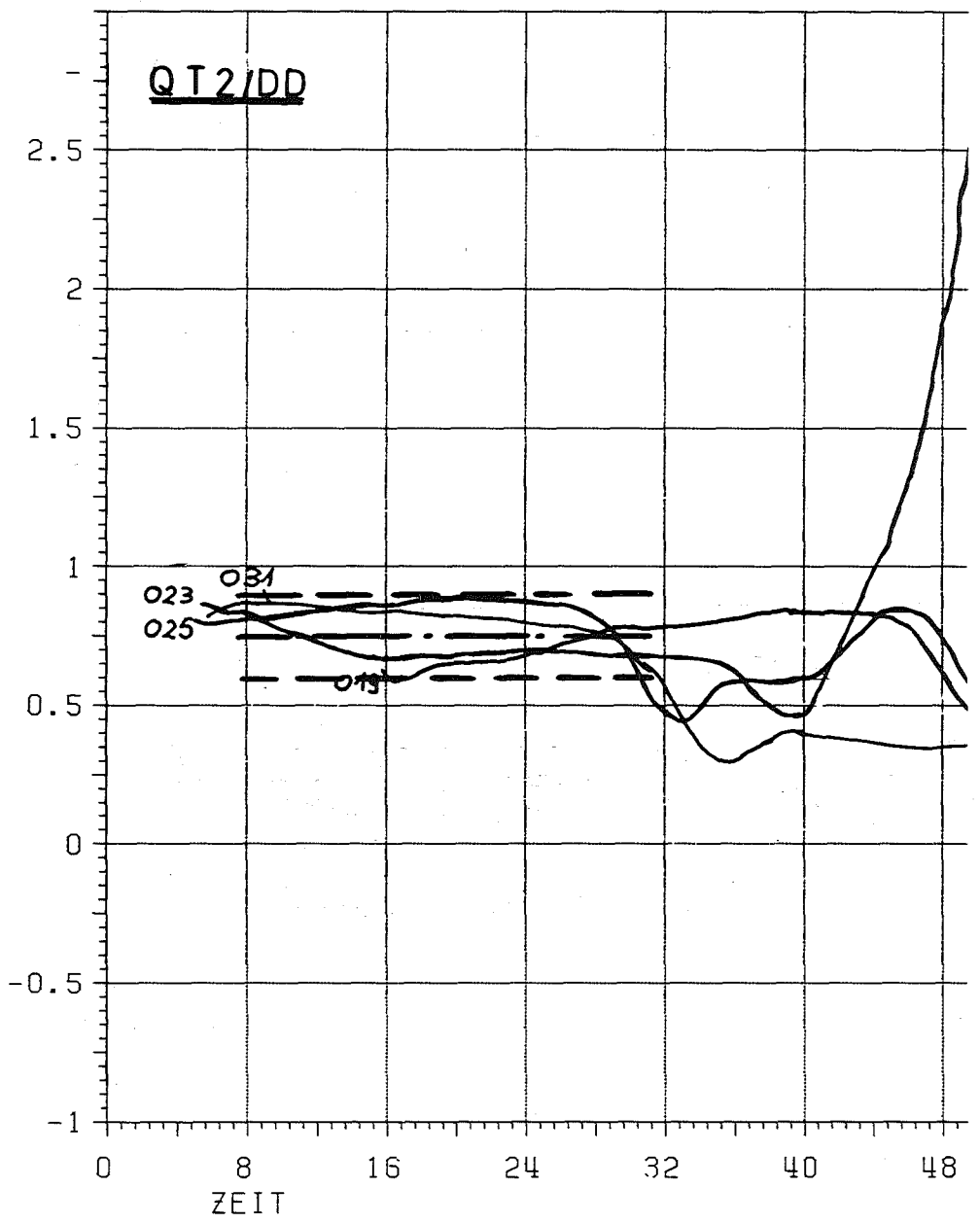
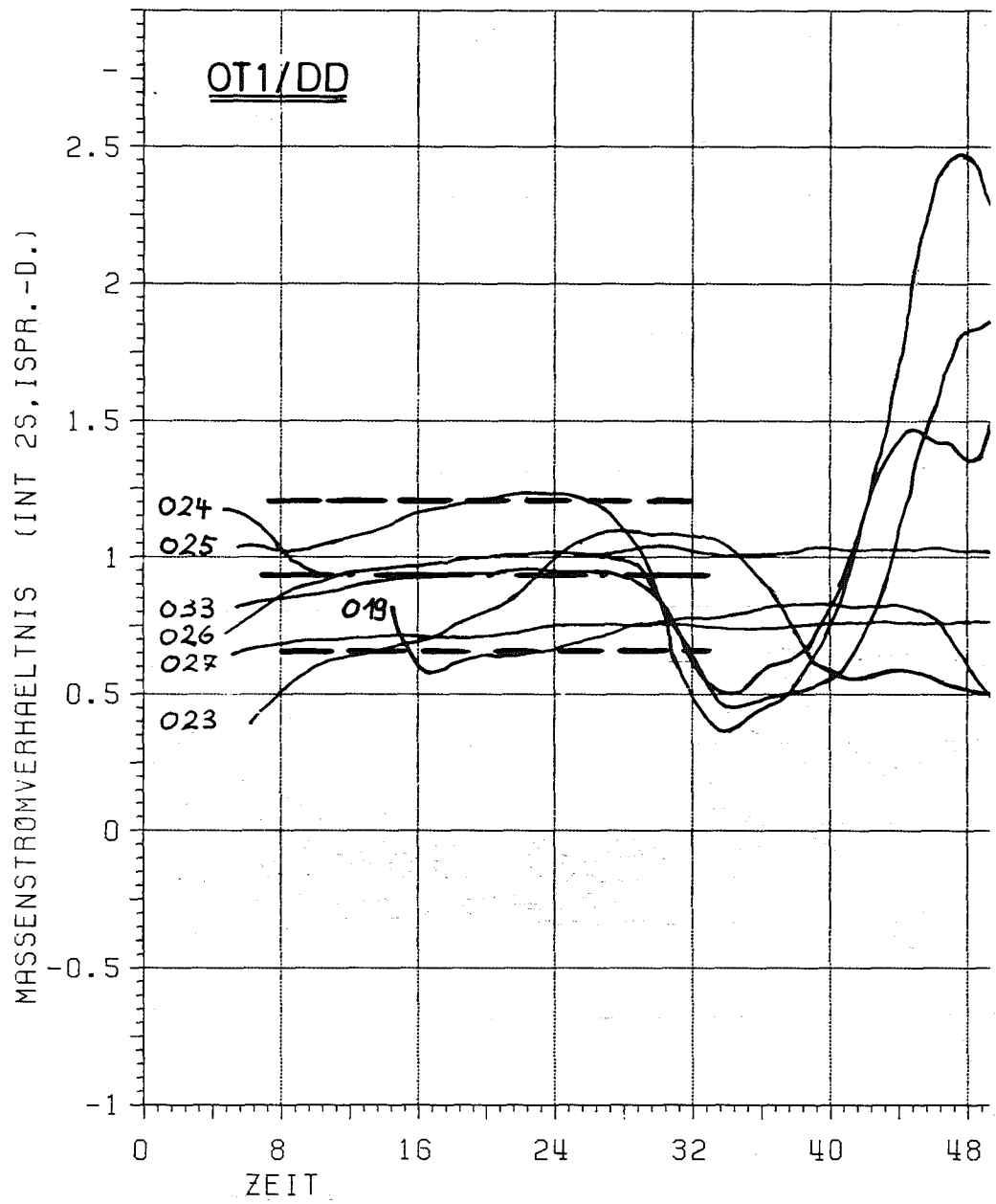


ABB.: 5 MASSENSTRÖMVERHÄLTNIS ZU TMFM

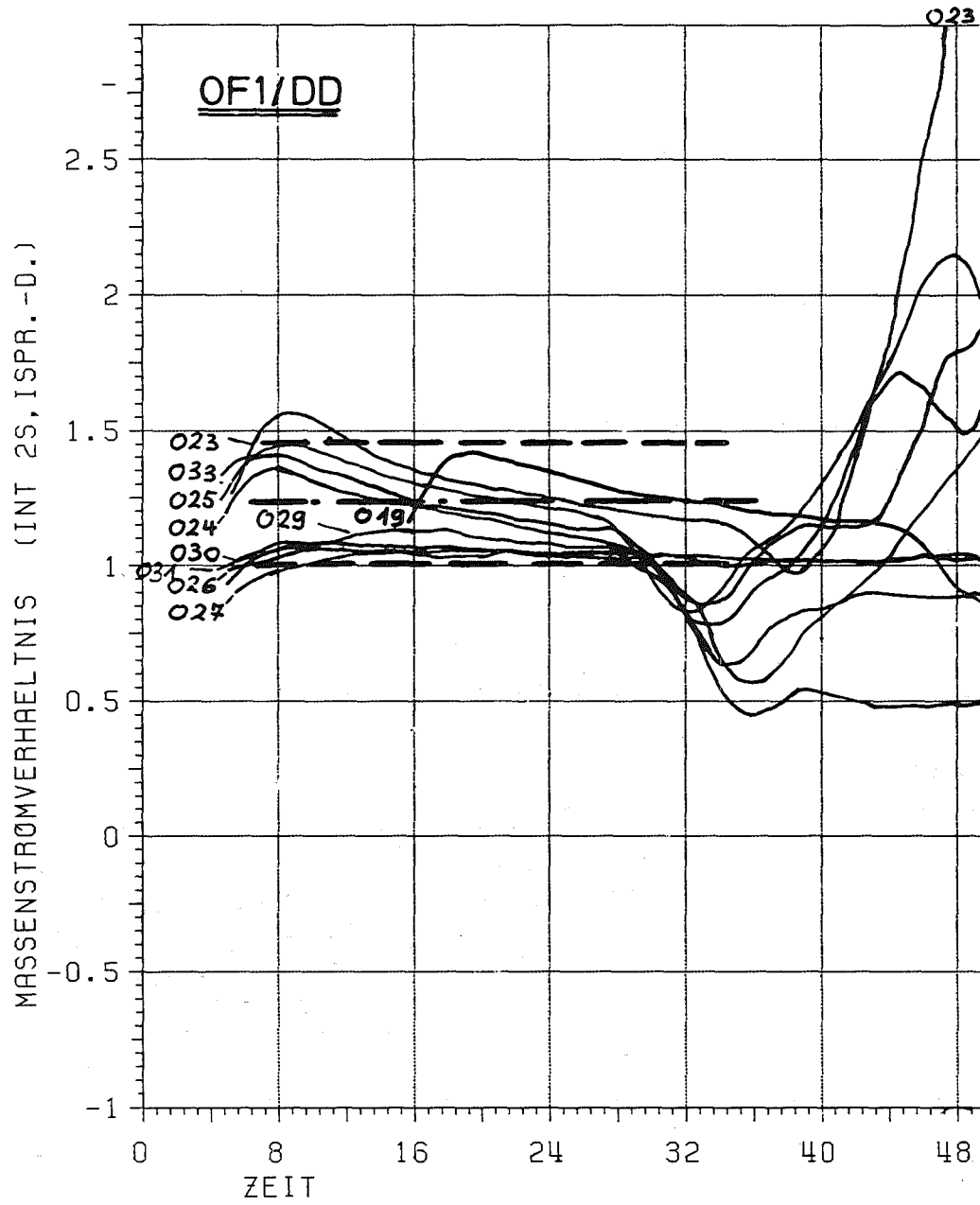


ABB.: 6 MASSENSTRÖMVERHÄLTNIS ZU TMFM

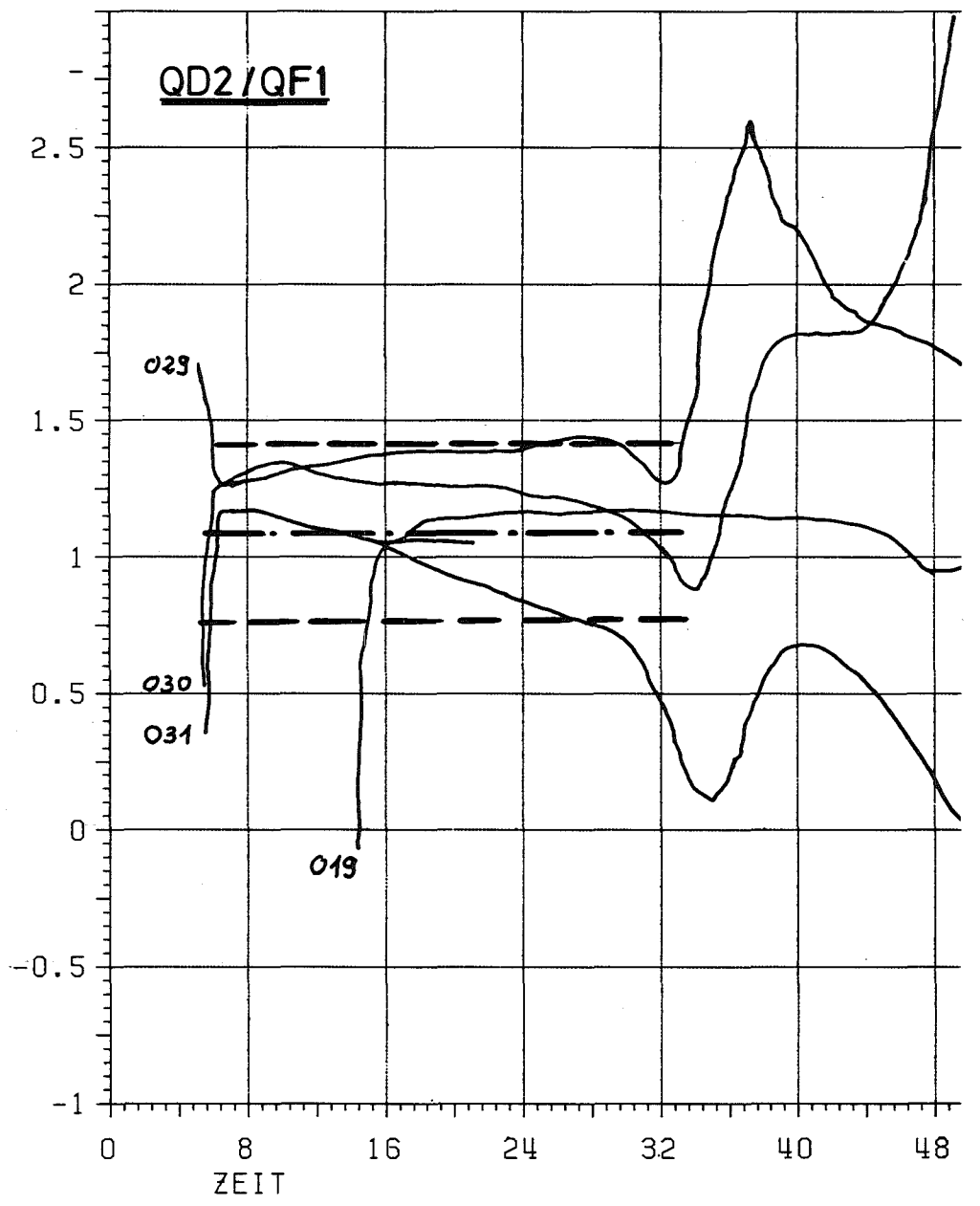
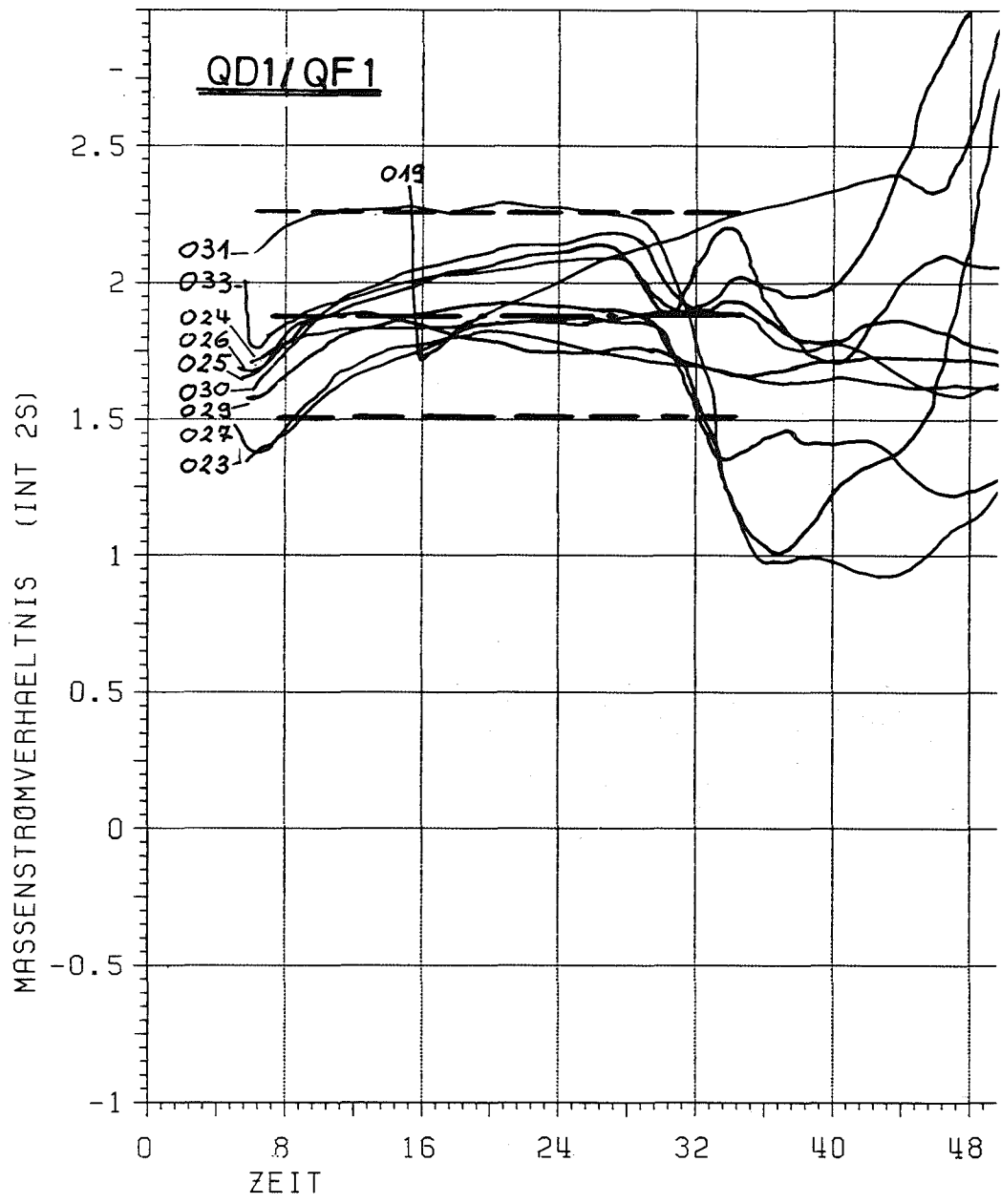


ABB.: 7 MASSENSTRÖMVERHÄLTNIS ZU TMFM

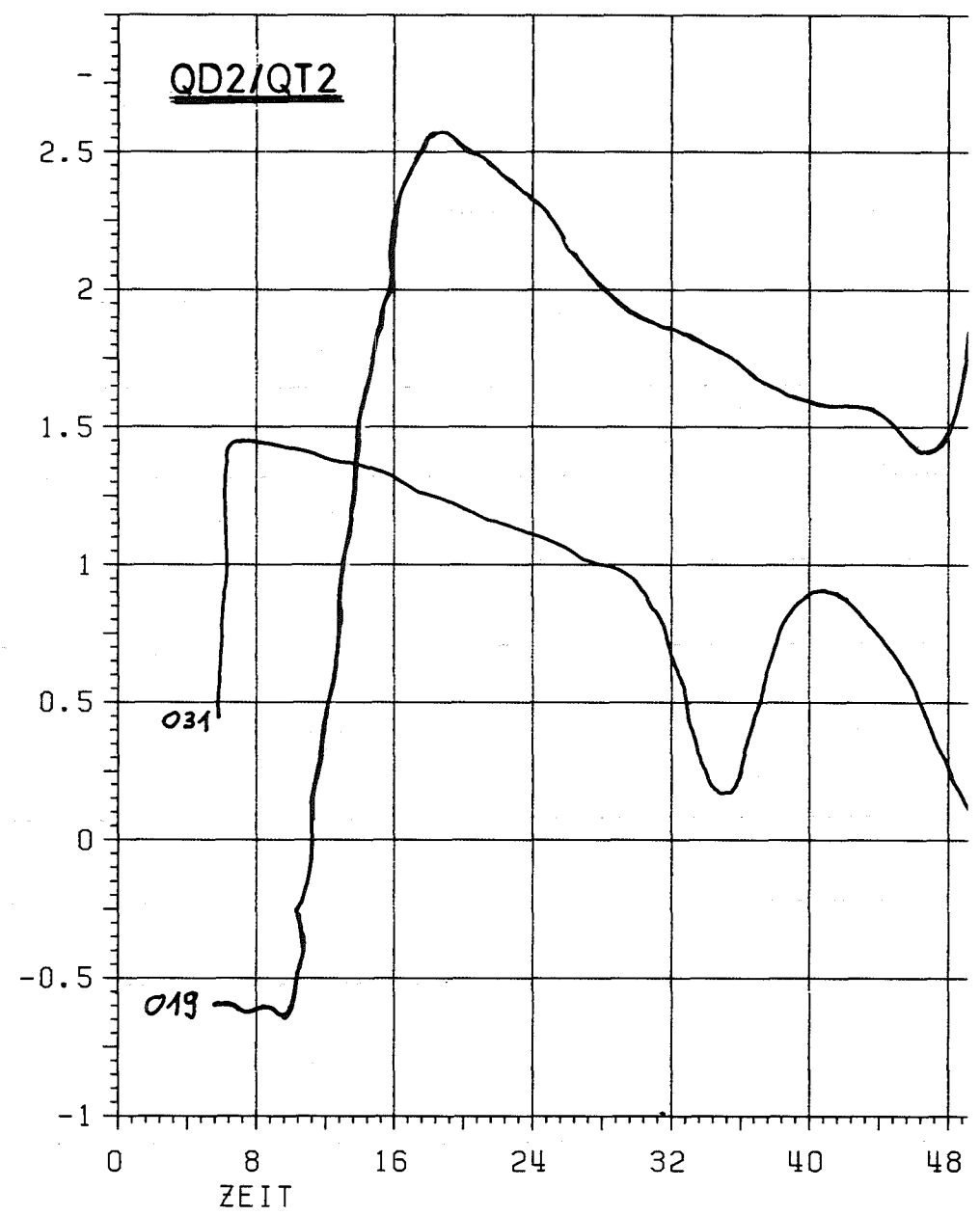
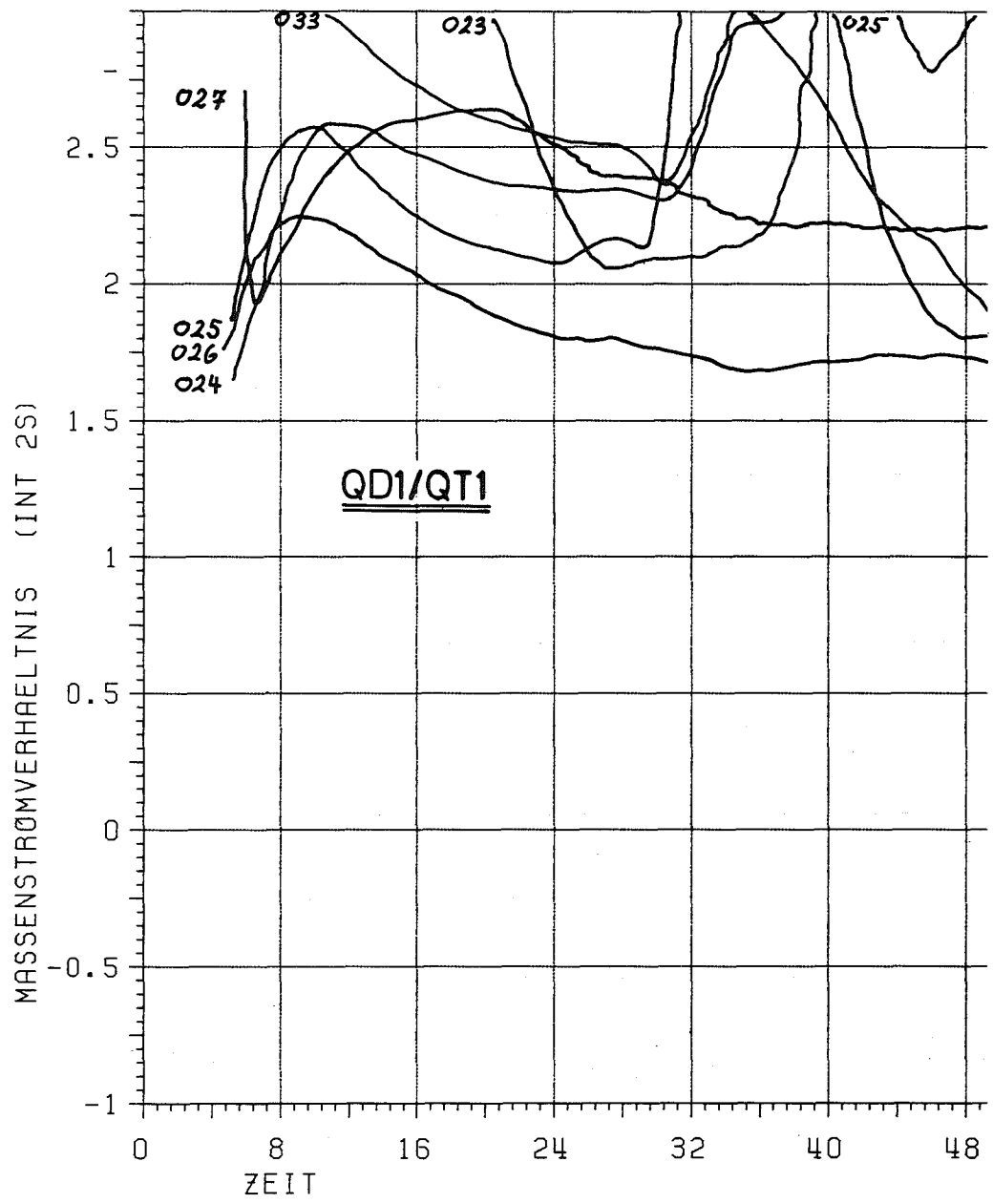


ABB.: 8 MASSENSTRÖMVERHÄLTNIS ZU TMFM

Kombination für Massenstromberechnung	Verfügbarkeit [%]	Streubereich (Einhüllende) [%]	Mittelwert des Streubereiches (Korrekturwert)	relatives Fehlerband [%]
QD1/DD	100	1,3 - 1,65	1,475	± 17,5
QD2/DD	40	1,1 - 1,6	1,35	± 25
QT1/DD	60	0,65 - 1,2	0,925	± 27,5
QT2/DD	40	0,6 - 0,9	0,75	± 15
QF1/DD	100	1,0 - 1,45	1,225	± 22,5
QD1/QF1	100	1,5 - 2,25	1,875	± 37,5
QD2/QF1	40	0,75 - 1,4	1,075	± 32,5
QD1/QT1	40	(1,7 - 2,6)	(2,15)	(± 45)
QD2/QT2	20	unsicher	—	—

Tabelle 2: Massenstromverhältnisse  $\dot{m}_{\text{LOBI}}/\dot{m}_{\text{Ref.}}$  ( $\dot{m}_{\text{Ref.}} \geq 5 \text{ kg/s}$ )

06.01. SICHERHEIT UND UMGEBUNGSSCHUTZ VON KKW

PNS-Teilprojekt 4200 - Brennelementverhalten bei Störfällen

06.01.04	Entwicklung und Verifizierung eines Code- systems zur Beschreibung des Brennelement- verhaltens bei Störfällen	4200 - 1
06.01.09	Brennstabverhalten in der Wiederauffüll- und Flutphase eines Kühlmittelverlust- störfalles	4200 - 10
06.01.20	Brennstabsimulatoreffekte bei Flutexperi- menten (SEFLEX-Programm)	4200 - 17
06.01.16	Untersuchungen zu schweren Kernschäden	4200 - 30
06.01.17	Untersuchungen zum Störfallverhalten fort- geschrittener Druckwasserreaktoren (FDWR)	4200 - 146





06.01.04 Entwicklung und Verifizierung eines Codesystems zur  
Beschreibung des Brennelementverhaltens bei Störfällen

06.01.04/35A Erweiterung von SSYST für Brennstabanalysen im SFD-Temperatur-  
PNS 4231.9 bereich. Quantifizierung verschiedener Einflüsse  
( K. Wagner; IT )

### 1. Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

Die erste Arbeitsversion des zweidimensionalen Wärmetransportprogramms wurde weiterentwickelt und umbenannt in WATRAP.

Dieses Programm wurde eingesetzt für die weitere Nachrechnung des SFD-Ver-  
suchs ESSI-4, der in allen Einzelheiten im Jahresbericht 1984 beschrieben  
wurde.

Um dem tatsächlichen physikalischen Geschehen näher zu kommen, wurde ein  
Modell für die freie Konvektion zwischen Shroud und Isolation entwickelt.  
Es zeigte sich dabei, daß die in der Literatur vorhandenen Angaben zur  
freien und zur erzwungenen Konvektion, die prinzipiell ineinander über-  
führbar sein müßten, zu unterschiedlichen Ergebnissen führen. Diese Tat-  
sache wird Gegenstand weiterer Untersuchungen sein. Hier kann jedoch ein-  
deutig festgestellt werden, daß der Beitrag der freien Konvektion unbe-  
dingt berücksichtigt werden muß. Bild 1 zeigt diesen Sachverhalt sehr  
drastisch.

Bild 2 stellt das Ergebnis der abschließenden Rechnung mit WATRAP dar. Es  
lassen sich daraus einige Schlüsse ableiten:

- a) Der Spalt zwischen  $UO_2$ -Pellets und Hülle schließt sich im Verlauf der  
Aufheizung. Es muß deshalb die  $UO_2/Zry$ -Reaktion berücksichtigt werden,  
was bei den vorliegenden Rechnungen nicht geschehen ist.
- b) Das hier angewendete Modell der Wasserdampf/Zry-Reaktion, das auf der  
rate-equation von Leistikow/Schanz und einer Dynamisierung dieser  
Gleichung von Vollmer aufgebaut ist, reicht für die Beschreibung der  
Vorgänge aus.
- c) Eine Rechnung ohne Begrenzung der Oxidationsrate im Temperaturbereich  
ab ca. 2000 K führt zu einer - an den beobachteten Werten gemessenen -

ganz unrealistisch großen Temperaturskulation. Das legt die Vermutung nahe, daß in diesem Bereich durch Wasserstoffanreicherung an der Oberfläche der Hülle eine zusätzliche sehr wirksame Diffusionsbarriere existiert.

- d) Die Modellierung der freien Konvektion zwischen Shroud und Isolation ist unbedingt notwendig, stößt aber zur Zeit noch wegen sich widersprechender Angaben in der Literatur auf Schwierigkeiten. Für weitere Verifikationsrechnungen sollte deshalb ein Versuch durchgeführt werden, der diese Schwierigkeit vermeidet.
- e) Eine spezifische Eigenschaft des vorliegenden Versuchs liegt darin, daß in der Isolation zu Beginn des Versuchs Wasserdampf kondensiert, gegen Ende des Versuchs Wasser daraus verdampft. Damit sind die Isolationseigenschaften undefiniert. Eine Modellierung dieser Vorgänge wäre nicht von Nutzen, da keine allgemeine Anwendbarkeit gegeben ist.

Es ist wahrscheinlich, daß die im Bild 2 vorhandene Differenz zwischen gemessenem und berechnetem Kurvenverlauf auf diese Vorgänge zurückzuführen ist.

Auch hier wird vorgeschlagen, einen Versuch nachzurechnen, bei dem solche Eigenheiten nicht auftreten.

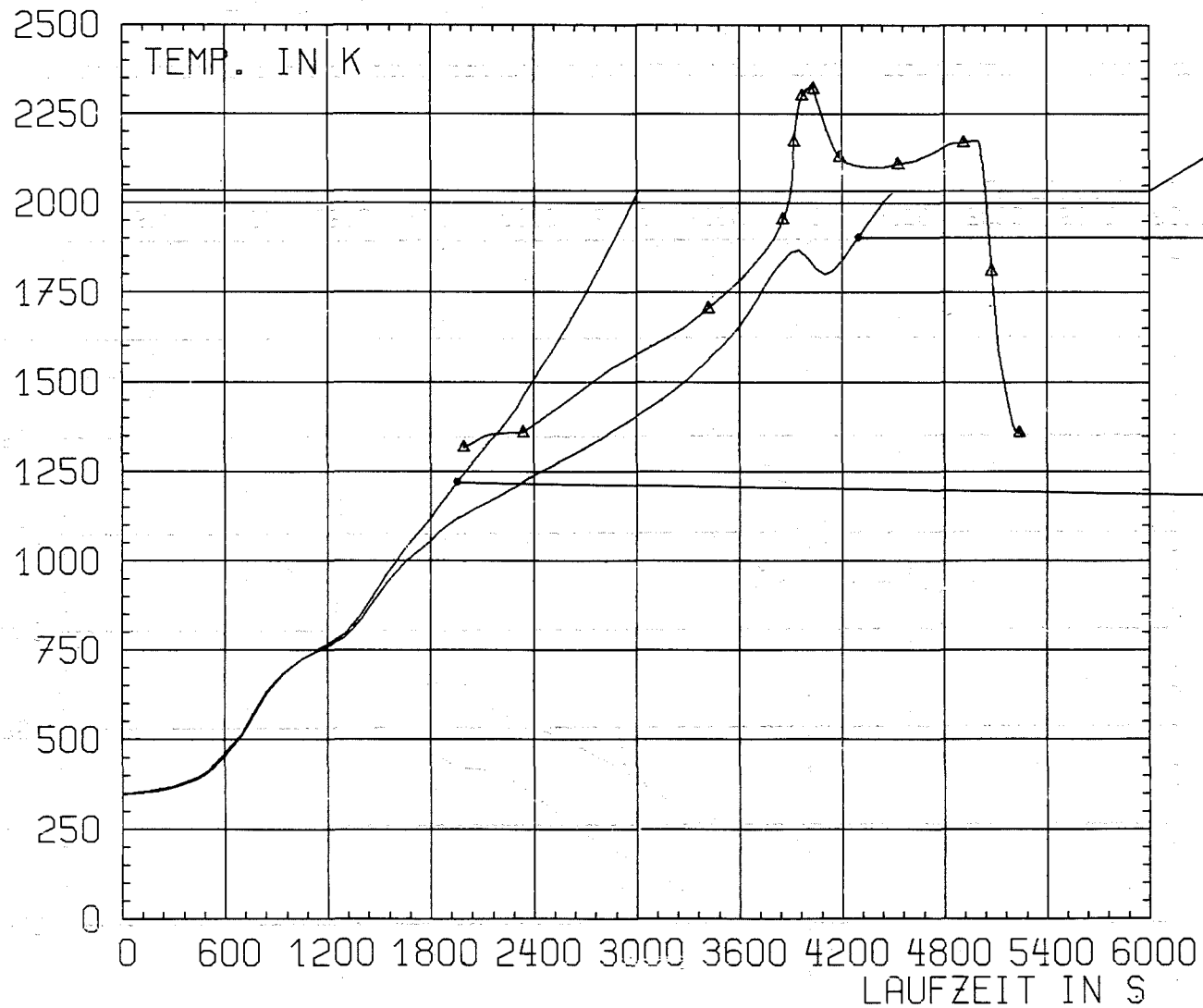
## 2. Weiterführung der Arbeiten

Die Arbeiten werden abgeschlossen mit der Dokumentation der Nachrechnungen des Versuchs ESSI-4 und des Wärmetransportprogramms WATRAP.

Es wird versucht werden, das Wärmetransportprogramm auf einem personal computer zu implementieren.

## 3. Literatur

K. Wagner: STATI-4, ein eindimensionales instationäres Wärmetransportprogramm (FØRTRAN) für Zylindergeometrie, KfK 3348 (1984)



△: Pyrometermessung

SMP

STATI - ZD

5 axiale Maschen,  
Konvektion zwischen  
Shroud und Isolierung  
ca. 10-13W/m<sup>2</sup>/K

STATI - ZD

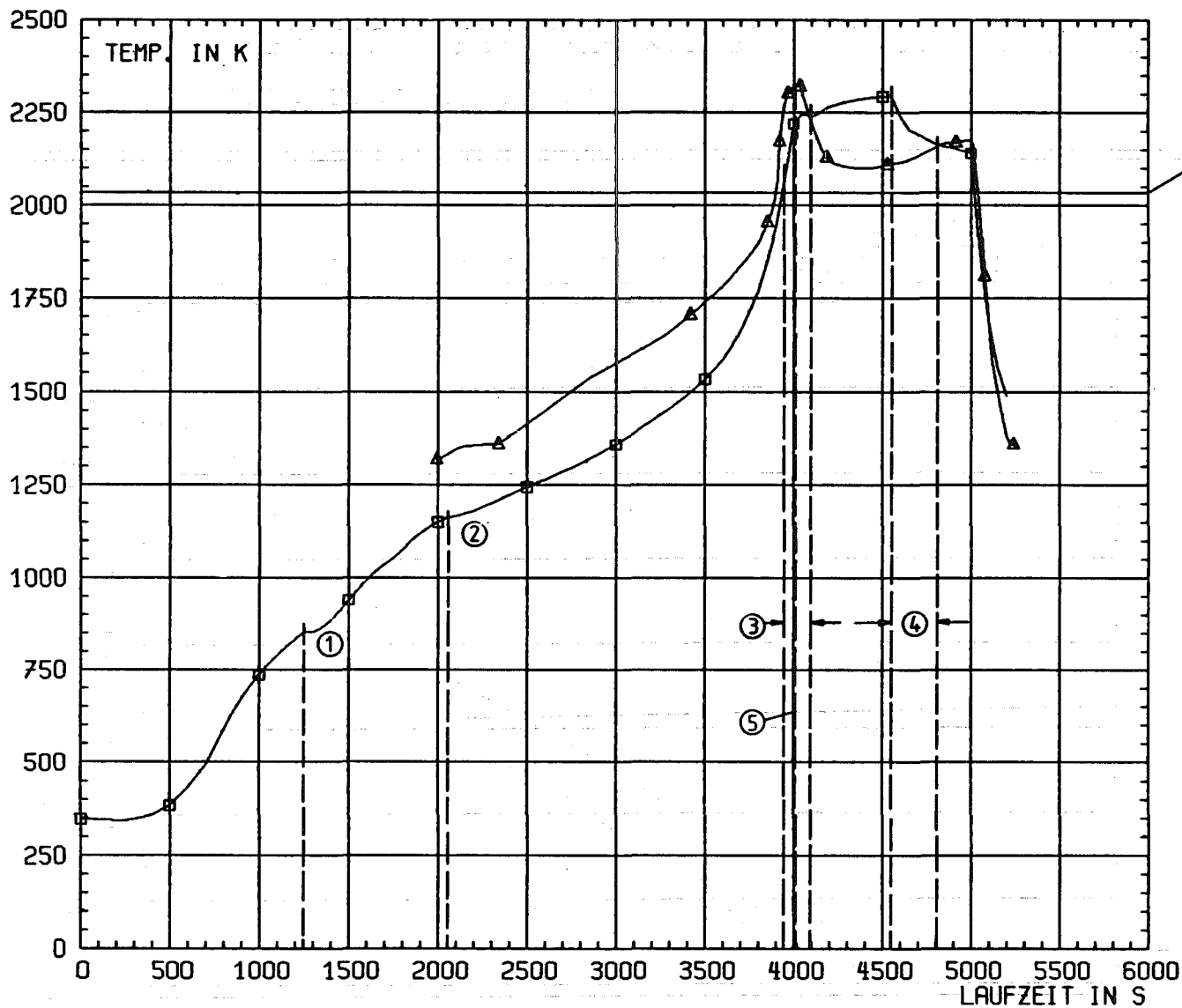
5 axiale Maschen,  
nur Strahlung und  
Leitung zwischen  
Shroud und Isolierung

- 4200-3 -



SFD-VERSUCH ESSI-4

VERGLEICH MESSWERTE MIT RECHENWERTEN STATIZD.



SMP-ZRY4

Δ-MESSWERT TPYR-274

□-RECHENWERT TEMP. HUELLE, AXIALE MASCH=3 (MITTE).

- ① : Onset of steam flow
- ② : Onset of natural convection between shroud and insulation
- ③ : Zry in all axial meshes ( without first ) ( rod and shroud ) are melting.
- ④ : Complete oxidation of the shroud without first axial mesh.
- ⑤ : Gap between  $UO_2$  and Zry-cladding is closed.

- 4200 4 -



IT/PC 84-06-19  
19.12.24

SFD-VERSUCH ESSI-4

VERGLEICH MESSWERTE MIT RECHENWERTEN WATRAP

06.01.04/36A Inbetriebnahme von SCDAP/Mod0 auf der Rechenanlage der KfK  
PNS 423C (R. Meyder, W. Sengpiel; IRE)

## 1. Einleitung

SCDAP steht für 'Severe Core Damage Analysis Package'. Es ist ein Rechenprogramm zur Berechnung des Verhaltens eines Reaktorkernes bei schweren Kernschäden, d.h. bei Unfällen, bei denen die Geometrie der Brennelemente zerstört wird. Es wird bei EG&G im Idaho National Laboratorium der NRC entwickelt. Die Entwicklung erfolgt in mehreren Stufen, wobei der hier beschriebene Zustand den ersten Schritt der Entwicklung darstellt. SCDAP wurde bisher zur Nachrechnung von TMI und zur begleitenden Analyse der SFD-Experimente (Severe Fuel Damage) in der Power-Burst-Facility eingesetzt.

Ziel des Einsatzes von SCDAP in Karlsruhe ist die Analyse der ESSI Einzelstabexperimente und der CORA Versuchsanlage. Zu diesem Zweck waren an der uns im Sept. 1983 übergebenen Programmversion umfangreiche Änderungen erforderlich, die im nächsten Kapitel erläutert werden. Mit den in diesem Bericht beschriebenen Änderungen kann SCDAP/Mod0--KfK zur Nachrechnung der Einzelstabexperimente eingesetzt werden.

## 2. Änderungen an der Originalversion von SCDAP

SCDAP wird auf einer CDC Rechenanlage entwickelt. Dies hat zur Folge, daß eine ganze Reihe von Änderungen vorgenommen werden müssen, um das Programm auf unserer SIEMENS Anlage zu betreiben. Da absehbar ist, daß immer wieder neue Versionen von SCDAP verfügbar werden, wurde zunächst eine Beschränkung derart eingeführt, daß nur eine der vier SCDAP Versionen in Betrieb genommen wurde. Im einzelnen lauten die Versionen:

Name	enthält Modelle für
SCDCOMP	Brennstab, Regelstab, Strömungsführungsrohr (SHROUD)
SCDDEBRIS	wie bei SCDCOMP + Schüttbetten aus verbackenen und losen Brennelementmaterialien (DEBRIS)

SCDAP-CHAN wie bei SCDEBRIS + Thermohydraulik im Bündel nach  
TRAC-BD1/CHAN  
SCDVESSEL wie bei SCDCOMP + Plenum + vereinfachte Thermohydraulik  
im Bündel

Die in Karlsruhe laufende Version entspricht im Grunde SCDVESSEL, wobei die Modelle für die Plena des Reaktorkessels nicht enthalten sind.

Die Änderungen am Programm beim Übergang von der CDC zur IBM bzw. SIEMENS-Rechenanlage beziehen sich auf Länge der Variablennamen, Behandlung von Zeichenketten, Übergabe von Parametern beim Aufruf von Unterprogrammen, FORMAT-Anweisungen u.ä.. Außerdem wurden einige Hilfsroutinen, z.B. zur Auflösung eines linearen Gleichungssystems, durch äquivalente Programme unserer Anlage ersetzt bzw. unwichtige, z.B. ZEIT, DATUM, gestrichen.

Die Änderungen zur Berechnung der Einzelstabexperimente betrafen sowohl die korrekte Modellierung des Simulatorstabes, als auch seiner Beheizungsart. Dazu wurde der in der Subroutine FUELINP festgelegte Aufbau des Brennstabes so abgeändert, daß er jetzt von innen nach außen zunächst einen Wolfram-Heizer von  $3 \cdot 10^{-3}$  (m) Radius dann ein UO<sub>2</sub> Ringpellet mit Außenradius laut Eingabe, Spalt und Zircaloy-Hülle besteht. Die Abmessungen dieser letzten Größen werden ebenfalls durch die Eingabe bestimmt. Die Ohmsche Wärme wird im Wolfram freigesetzt und wird in der Subroutine NEATEF aus dem temperaturabhängigen spezifische Widerstand des Wolfram und der über PPARAY einzugebenden Stromstärke berechnet.

Für die richtige Modellierung des SHROUD waren folgende Änderungen erforderlich: Die Geometrie in der das Shroud beschrieben wird war eben. Dies ist bei unseren Einzelstabexperimenten aber eine unzulässige Modellierung, da bei uns das Verhältnis der inneren zu äußeren Wärmeübertragungsfläche des SHROUD etwa den Wert 0.17 hat. Diese Änderung war besonders schwierig, da die Numerierung der Knoten für das Shroud in SCDAP von außen nach innen läuft, was entgegengesetzt ist zu der üblichen Formulierung wo mit wachsendem Index auch die Wärmeübertragungsfläche zunimmt. Ein weiteres

Problem bei diesem Shroud war, daß bei unseren Einzelstabexperimenten zwischen dem Zircaloy Rohr, das den Strömungskanal zum Einzelstab hin radial abschließt, und der Isolation aus Zircaloy-Dioxid Faserstoff noch ein Gasspalt ist, der einen Strahlungswärmeaustausch zwischen den beiden angrenzenden Oberflächen zuläßt. Dieser Strahlungsaustausch wurde ebenfalls eingebaut.

Bei den ersten Versuchen, das Experiment ESSI 4 nachzurechnen, wurde folgendes Problem der verwendeten SCDAF Version offensichtlich: Der Wärmestrom an der Staboberfläche, der durch Konvektion und durch Strahlung zu den benachbarten Stäben verursacht wird, wird mit der Kühlmitteltemperatur und einer synthetischen Wärmeübergangszahl simuliert. Dies hat drei Nachteile; einmal tritt bei großem Strahlungswärmestrom und kleinem Konvektionswärmestrom unterschiedlicher Stromrichtung eine negative Wärmeübergangszahl auf, zweitens kann die Oberflächentemperatur nicht über die Kühlmitteltemperatur ansteigen und drittens ist die Wärmebilanz nicht erfüllt, wenn die den Wärmestrom treibende Temperaturdifferenz innerhalb eines Zeitschritts sich deutlich ändert. Dieses Problem wurde dadurch gelöst, daß anstelle einer Wärmeübergangszahl und einer Temperatur nunmehr Wärmeströme an den Schnittstellen übergeben werden. Diese Änderung wurde dadurch abgerundet daß eine Zeitschrittautomatik eingebaut wurde, die die Temperaturänderungen innerhalb eines Zeitschrittes in tolerierbaren Grenzen hält.

Im weiteren Verlauf der Analyse wurde festgestellt, daß die Berechnung der Wärmequellen über Strom und Widerstand eine unangenehme Rückkopplung enthält. Da der Widerstand des Wolfram temperaturabhängig ist, spiegelt sich z.B. eine zu niedrig berechnete Temperatur im nächsten Zeitschritt in einer zu geringen Wärmequelle wieder, was die Unterschätzung der Temperatur im Vergleich zum Experiment noch verstärkt u.s.w.. Dennoch sollte diese Modellierung nicht geändert werden, da auf diese Weise Fehler in der Temperaturberechnung offensichtlich werden.

Als weitere wesentliche Änderung ist die Einführung der axialen Wärmeleitung in das Rechenprogramm zu nennen. Es hat sich insbesondere am Temperaturverlauf bei den Nachrechnungen gezeigt, daß nach

anfänglich relativ guter Übereinstimmung plötzlich große Abweichungen auftraten. Ein wichtiger Beitrag zu diesem Verhalten kam aus dem oben beschriebenen Rückkopplungseffekt bei der Berechnung der Heizleistung. Die Ursache für die sich verstärkende Störung wurde in der Vernachlässigung der axialen Wärmeleitung gefunden. Die axialen Enden des Wolframheizers sind mit Wasser gekühlt, außerdem besitzt Wolfram eine relativ gute Wärmeleitfähigkeit, daher fließt nicht, wie in der Modellierung mit dem Rechenprogramm angenommen, alle Wärme in radialer Richtung ab, sondern nur ein Teil. Diese Differenz war die auslösende Störung für die falsche Temperaturberechnung. Das Problem wurde durch die Einführung der axialen Wärmeleitung behoben. Leider ist damit noch kein voll zufriedenstellender Zustand erreicht, da bei den steilen Temperaturgradienten mehr als zehn Knoten in axialer Richtung wünschenswert sind. Diese Änderung ist jedoch auf Grund der Struktur und Programmierungstechnik von SCDAP nur mit großem Aufwand möglich und müsste bei nachfolgenden neueren Versionen stets wieder durchgeführt werden. Aus diesem Grund wurde vorläufig auf diese Änderung verzichtet.

Zur praktischen Handhabung wurde noch eine Verbindung zu PLOTCP hergestellt. Dazu wird normalerweise von SCDAP ein Plotfile erstellt, das sämtliche Daten zeitabhängig auf einen externen Datenträger ausgibt. Diese Datei wird nach dem Produktionslauf von einem zweiten Programm eingelesen. Entsprechend der Eingabe zu diesem Programm werden dann die gewünschten Plotdaten auf eine zweite Datei geschrieben, die von PLOTCP verarbeitet werden kann.

Da SCDAP für die in Frage kommenden Probleme ca. 10. bis 20. (min) Rechenzeit benötigt, kann zur besseren Überwachung des Rechenablaufs schrittweise mit mehreren RESTART's vorgegangen werden.

### 3. Beispiel einer Anwendung.

Als Beispiel einer Anwendung ist hier die Nachrechnung des ESSI-4 Experimentes gezeigt, wobei zur Zeit noch keine anerkannten Stoffdaten für das Isolationsmaterial existieren. Zur besseren Bestimmung dieser Größen sollen noch spezielle Experimente durchgeführt werden. Auf Grund des Versuchsablaufs der ESSI-Experimente sind auch einige Subroutinen noch nicht studiert worden.



Diese betreffen die zweiphasenmodelle der Strömung im Kühlkanal, das Verflüssigen von Materialien und die Freisetzung von Spaltprodukten.

Eine graphische Darstellung der gewonnenen Temperaturgeschichte ist in Fig.1 gegeben. Man erkennt durchaus Abweichungen zwischen Experiment und Rechnung, diese sind aber relativ leicht zu erklären. Wie schon erwähnt, sind die Wärmeleitwerte des Isolationsmaterials nur ungenau bekannt, auf Grund dieser Unkenntnis unterschätzt die Rechnung die Temperaturen bis ca 3000.(s). Die Temperaturskalation bei ca 4100.(s) ist auf den oben besprochenen Rückkopplungseffekt bei der Leistungsberechnung zurückzuführen, bei 4200.(s) sinkt die Temperatur in der Rechnung nicht ab, weil das Abschmelzmodell noch nicht angeschaltet ist.

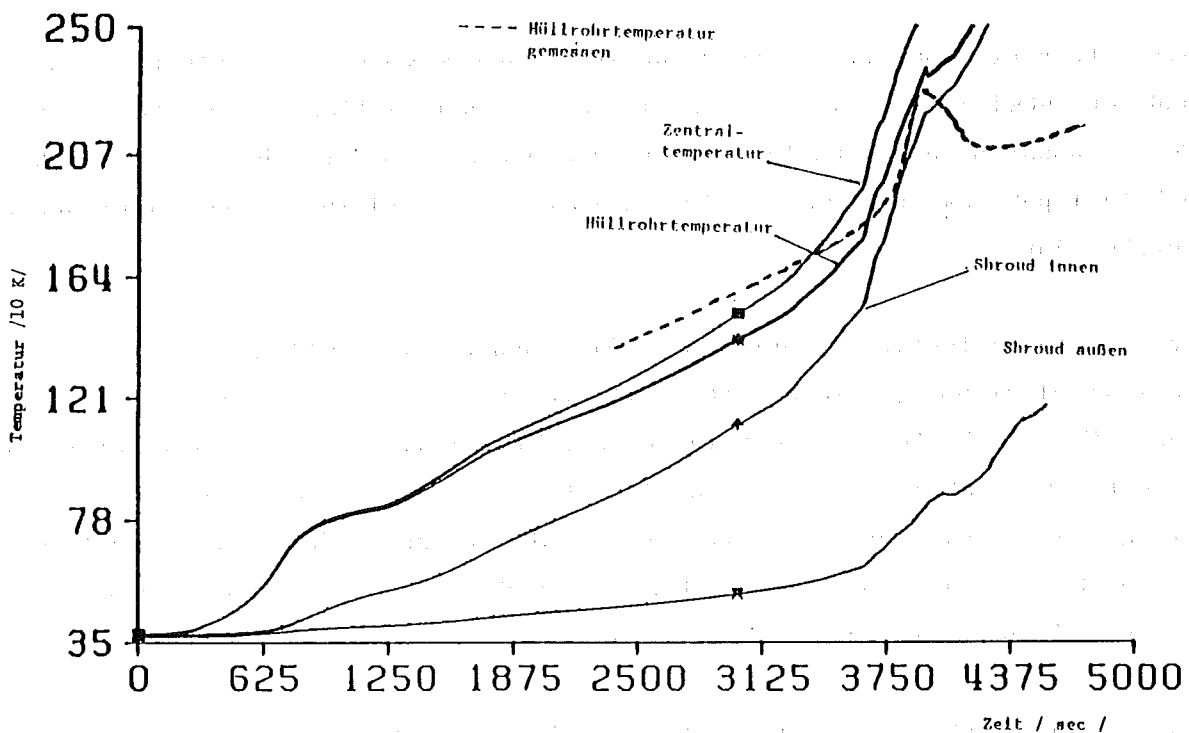


Fig. 1 ESSI 4 Versuch berechnet mit SCDAP

- 06.01.09 Brennstabverhalten in der Wiederauffüll- und Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles
- 06.01.09/07A Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden  
PNS 4238 Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung (REBEKA-Programm)  
(K. Wiehr, F. Erbacher, Ha. Schmidt, E.Vogel; IRB)

Das Vorhaben REBEKA (REaktortypisches Bündel-Experiment Karlsruhe) dient der Ermittlung der Berstdaten von Zircaloy-4-Hüllrohren von Druckwasserreaktoren, sowie entstehender Kühlkanalblockaden zur Beurteilung der Notkühlbarkeit des Reaktorkerns bei einem Kühlmittelverluststörfall.

Die bisher durchgeführten acht Bündelversuche lieferten Aufschluß über das Stabverhalten im Bündelverband mit der Zielrichtung auf die Wechselwirkung zwischen den sich verformenden Zircaloyhüllen und der Kernnotkühlung, auf thermische und mechanische Wechselwirkung von benachbarten Stäben, auf mögliche Versagensfortpflanzungseffekte und schließlich auf das Ausmaß und die Verteilung von Hüllrohrverformungen im Stabbündel sowie die daraus resultierende Kühlkanalversperrung.

Als Interpretationshilfe dieser integralen und komplexen Bündelexperimente und zur Entwicklung und Verifizierung von Rechenmodellen zur Bestimmung von Versagensdaten von Brennelementen über einen weiten Bereich eines möglichen Störfallspektrums wurden Einzelstabversuche parallel zu den Bündelversuchen durchgeführt.

Um das Störfallspektrum sowohl beim 2F-Bruch im kalten Strang einer Hauptkühlmittelleitung (Auslegungsstörfall) als auch bei Störfällen mit kleinen Lecks (kleine Differenzdruckbelastungen, kleine Aufheizraten, bzw. lange Haltezeiten bei nahezu konstanter Hüllrohrtemperatur) abzudecken und darüber hinaus der Entwicklung zur Erhöhung des Zielabbrandes der Brennelemente (hoher Stabinnendruck) Rechnung zu tragen, wurden die Einzelstabversuche in einem weiten Parameterfeld durchgeführt.

In etwa 500 Einzelstabversuchen wurde folgendes Parameterfeld abgedeckt:

- Aufheizraten zwischen 1 - 30 K/s.
- Kriech-Berstversuche bei Temperaturplateau
- Differenzdruckbelastungen der Hülle von 10 - 140 bar
- Kühlmittelatmosphäre: Luft, Wasserdampf, Helium
- thermische Umgebung: von adiabat bis zu Kühlbedingungen der Flutphase.

Alle diese Experimente wurden mit verkürzten Brennstabsimulatoren vom Typ REBEKA mit spannungsarm geglühtem Zircaloy-4-Hüllrohrmaterial aus original DWR-Hüllrohrfertigung durchgeführt und lieferten Information über den Einfluß der Aufheizrate, der Differenzdruckbelastung, der Atmosphäre und nicht zuletzt der azimuthalen Temperaturverteilung auf das Ausmaß der Hüllrohrverformung /1/.

Diese Ergebnisse fanden ihren Niederschlag in dem REBEKA-Berstmodell, welches die Abhängigkeiten zwischen Bersttemperatur, Berstdruck, Aufheizrate und der maximalen Berstumfangsdehnung bei entsprechendem Oxidationsgrad des Zircaloy-Hüllrohrmaterials beschreibt. Um den wichtigen Einfluß der azimuthalen Hüllrohrtemperaturunterschiede auf die Verformung zu berücksichtigen wird ein Modul AZI im Rechenprogramm zugeschaltet.

Für die Konvoi-Anlagen der KWU wird ein höherer Abbrand angestrebt. Gegenüber bisherigen Anlagen sollen teilrekristallisierte Zircaloyhüllrohre eingesetzt werden, da diese eine höhere Dimensionsstabilität (Aufkriechen der Hülle und Längenwachstumsänderungen) bei höherem Abbrand aufweisen. Es ist daher notwendig, Einzelstabdeformationsversuche an teilrekristallisierten Zircaloyhüllrohren durchzuführen. Die Ergebnisse dienen dem Nachweis, ob und inwieweit die bisher im REBEKA-Programm gewonnenen Erkenntnisse für Reaktoren mit teilrekristallisiertem Zry-4-Hüllrohrmaterial anwendbar sind.

Diese Einzelstabversuche werden aus Gründen der Vergleichbarkeit mit den bisherigen transienten Einzelstabversuchen an spannungsarm geglühten Zircaloyhüllrohren unter identischen Randbedingungen durchgeführt.

Da Hüllrohrberstexperimente mit niedriger Aufheizrate meßtechnisch am saubersten beherrschbar sind und zu den höchsten Berstumfangsdehnungen führen, wurden für den direkten Vergleich zwischen spannungsarm geglühtem und teilrekristallisiertem Zircaloy-4-Material Experimente mit einer Aufheizrate von 1 K/s ausgewählt. Bei praktisch stagnierender Wasserdampf Atmosphäre und adiabaten Randbedingungen für das Hüllrohr (kleine azimuthale Temperaturdifferenzen auf dem Hüllrohr und damit große Berstumfangsdehnungen) wurde die Innendruckbelastung zwischen 30 und 120 bar variiert. Der jeweilige Innendruck wurde während der Versuchsdauer konstant gehalten. Wie Abb. 1 zeigt, gelten für teilrekristallisierte Hüllrohre die gleichen Zuordnungen von Bersttemperatur und Berstdruck wie für spannungsarm geglühtes Material.

Die durchgezogenen Kurvenverläufe beschreiben die Abhängigkeiten für 1 K/s und 10 K/s mit Hilfe des REBEKA-Deformationsmodells für letztgenanntes Material. Trägt man die gewonnenen Berstumfangsdehnungen über der Bersttemperatur auf (Abb. 2), so zeigen die Werte für das teilrekristallisierte Zry-4-Material die gleichen Streubreiten wie sie auch bisher ermittelt wurden. In der  $\alpha$ -Phase liegen jedoch die höchsten Berstumfangsdehnungswerte geringfügig oberhalb der für spannungsarm geglühtes Material berechneten Werte.

In einer weiteren Versuchsreihe wurde überprüft, ob die gefundenen Beziehungen zwischen Berstdehnung und azimuthaler Hüllrohrtemperatur auch für teilrekristallisiertes Material Anwendung finden können.

Die Aufheizrate betrug ebenfalls 1 K/s und der Innendruck wurde bei 60 bzw. 70 bar während der Versuchsdauer konstant gehalten. Die Versuche wurden bei schwach abwärtsströmender Wasserdampf-atmosphäre durchgeführt. Versuchsspezifisch für diese Experimente war die Temperatur des Dampfleitungsrohres. Bei adiabater Versuchsführung, d.h. das Dampfleitungsrohr wies stets dieselbe Temperatur auf wie die Zircaloyhülle, konnten sich nur kleine azimuthale Temperaturdifferenzen auf der Hülle ausbilden, was zu großen Berstdehnungen führte. Blieb das Dampfleitungsrohr unbeheizt, so bildeten sich große Temperaturdifferenzen auf dem Hüllrohrumfang aus, was zu niedrigen Berstdehnungen führte. Die mit teilrekristallisiertem Zircaloy-4-Hüllrohrmaterial gemessenen Ergebnisse sind in Abb. 3 dargestellt. Die durchgezogene Linie zeigt die Zusammenhänge zwischen Berstumfangsdehnung und azimuthaler Hüllrohrtemperaturdifferenz, gerechnet mit Hilfe des REBEKA-Deformationsmodells für spannungsarm geglühtes Material.

Die eingetragenen Meßwerte sind unkorrigiert. Zwei Arten von Fehlern sind darin enthalten, die sich unterschiedlich bei einer Korrektur auf die Meßwerte auswirken würden. Der max. Meßfehler der Pallaplatthermoelemente beträgt  $\pm 3$  K. Es werden nackte Thermodrähte von 0,1 mm  $\varnothing$ , die zu einer kleinen Perle verschweißt und auf die Zircaloyhülle aufgekoppelt werden, verwendet. Bei adiabater Versuchsführung ist die sich ausbildende azimuthale Temperaturverteilung  $\Delta T_{az}$  gering. Betrüge bei einem Versuch  $\Delta T_{az}$  Null Kelvin, so würde bei einem maximalen Meßfehler von  $\pm 3$  K bei ungünstiger Verteilung auf die Thermolemente eine azimuthale Temperaturdifferenz von 6 K im Diagramm eingetragen, gleichgültig wie die Meßstellen auf dem Hüllrohrumfang verteilt sind. Bei angenommenen  $\Delta T_{az} = 5$  K würde unter den gleichen Annahmen wie

oben ein Wert zwischen 11 K bzw.  $\pm 1$  K/ eingetragen. Die beiden Beispiele lassen erkennen, daß der mögliche Meßfehler der Thermoelemente dazu führt, zu hohe azimutale Temperaturdifferenzen einzutragen. Das bedeutet, daß sich Meßwerte, die unter adiabaten Versuchsbedingungen gewonnen wurden, mit einer Eichkorrektur zu kleinen  $\Delta$  Taz-Werten verschieben würden.

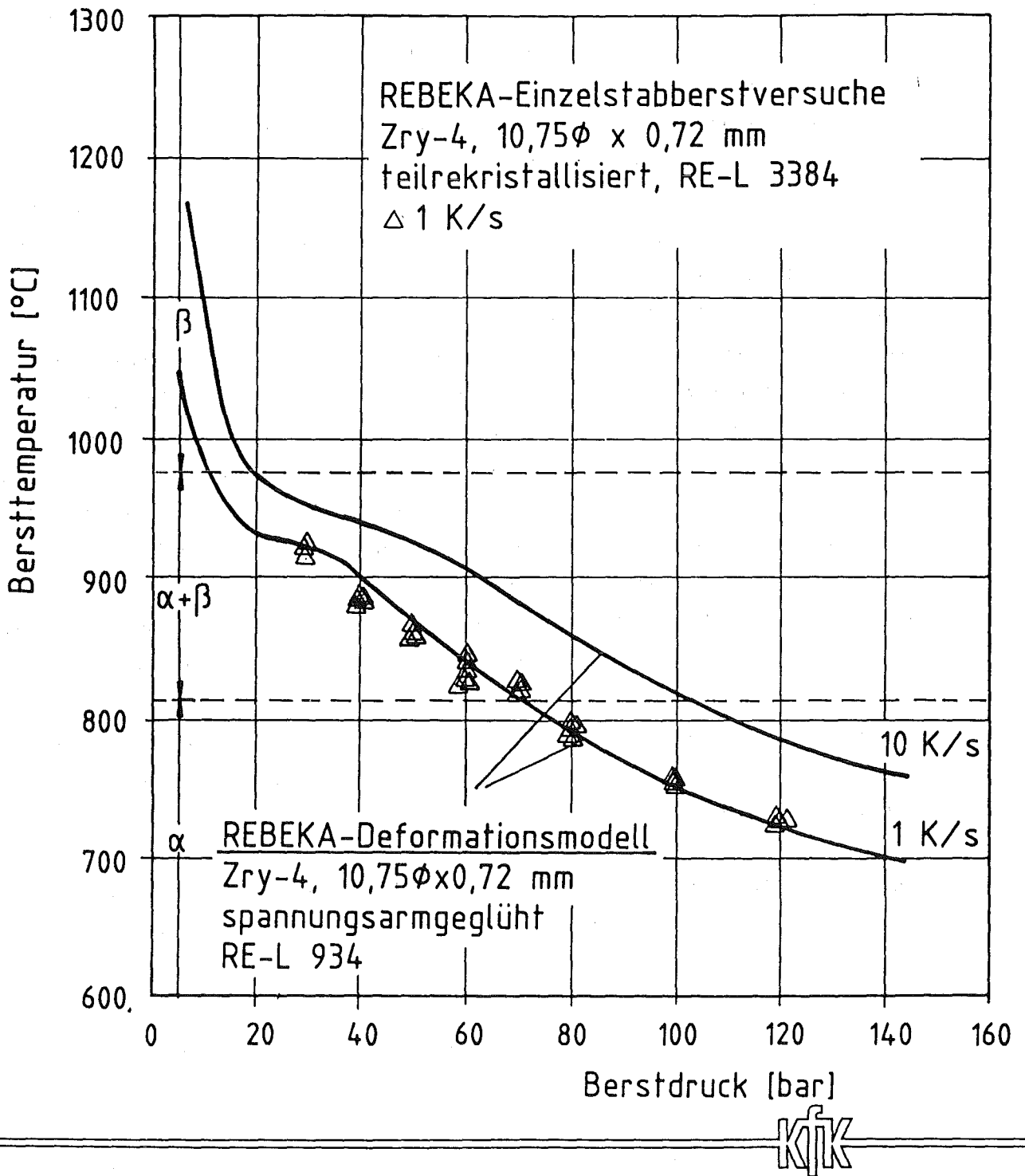
Bei Experimenten mit guter Kühlung des Hüllrohrs sieht die Situation anders aus. Hier wirkt sich die Möglichkeit, daß die Meßebene nicht mit der axialen Berstebene übereinstimmt und bei 3 azimutal unter einem Winkel von  $120^\circ$  angebrachten Thermoelementen nicht die heißeste und gleichzeitig die gegenüberliegende kälteste Stelle am Hüllrohr erfaßt werden können, wesentlich gravierender aus. Als Beispiel sei der mit einem Kreis versehene Meßpunkt herausgegriffen. Die Meßebene befindet sich etwa 30 mm unterhalb der Berstebene. Die Umfangsdehnung beträgt in der Meßebene nur 23,3 % gegenüber 30,9 % an der Berststelle und die Verformung ist auf dem Umfang wesentlich gleichmäßiger als in der Berstebene, was auf eine deutlich geringere azimutale Temperaturdifferenz in der Meßebene zurückzuführen ist. Dazu kommt, daß sich die Berststelle auf einer Mantellinie befindet, die genau zwischen zwei der drei azimutal angebrachten Thermoelemente liegt. Bei einem Experiment mit großer azimutaler Temperaturdifferenz auf dem Hüllrohrumfang wird mit nur 3 Thermoelementen auf dem Umfang die azimutale Temperaturdifferenz immer unterschätzt. Im vorliegenden Fall beträgt der Fehler aus axialer und azimutaler Fehlplatzierung etwa 40 K. Das Gesagte gilt sowohl für spannungsarm geglühtes als auch für teilrekristallisiertes Zircaloy Hüllrohrmaterial.

Die Bilder 1 bis 3 bestätigen, daß sich teilrekristallisiertes Material bezüglich seiner plastischen Verformung genauso verhält wie spannungsarm geglühtes Material.

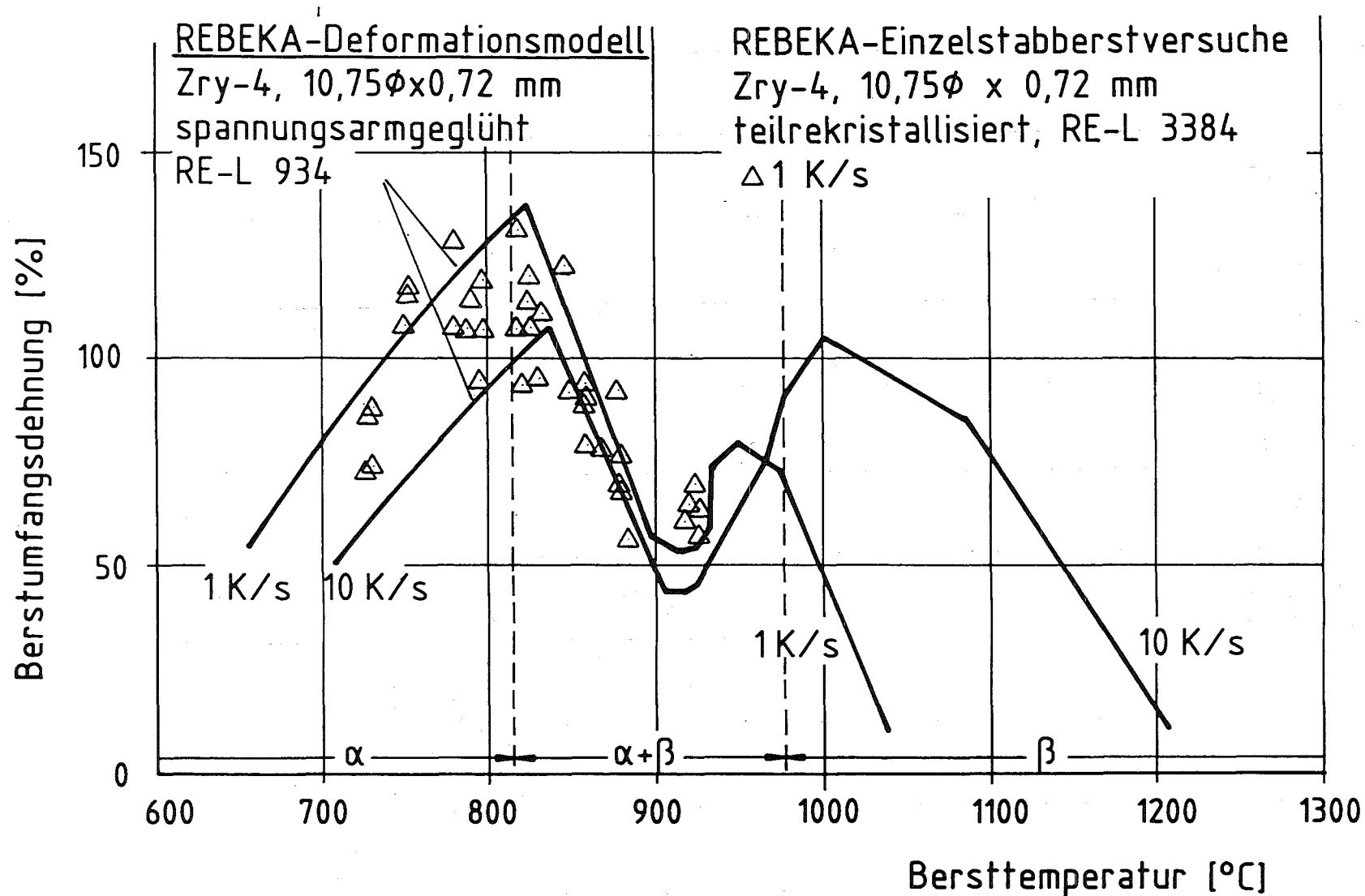
Inwieweit sich die zeitlichen Dehnungsverläufe einander gleichen wird noch aus Filmaufnahmen, die während der Verformung mit 25 Bildern/s aufgezeichnet wurden, ausgewertet.

Anhand der bisherigen Ergebnisse kann jedoch jetzt bereits festgestellt werden, daß alle Ergebnisse, die mit spannungsarm geglühtem Material sowohl aus Einzelstabexperimenten als auch aus Bündelexperimenten gewonnen worden sind, für die sicherheitstechnische Beurteilung von Reaktoren der Konvoireihe herangezogen werden können.

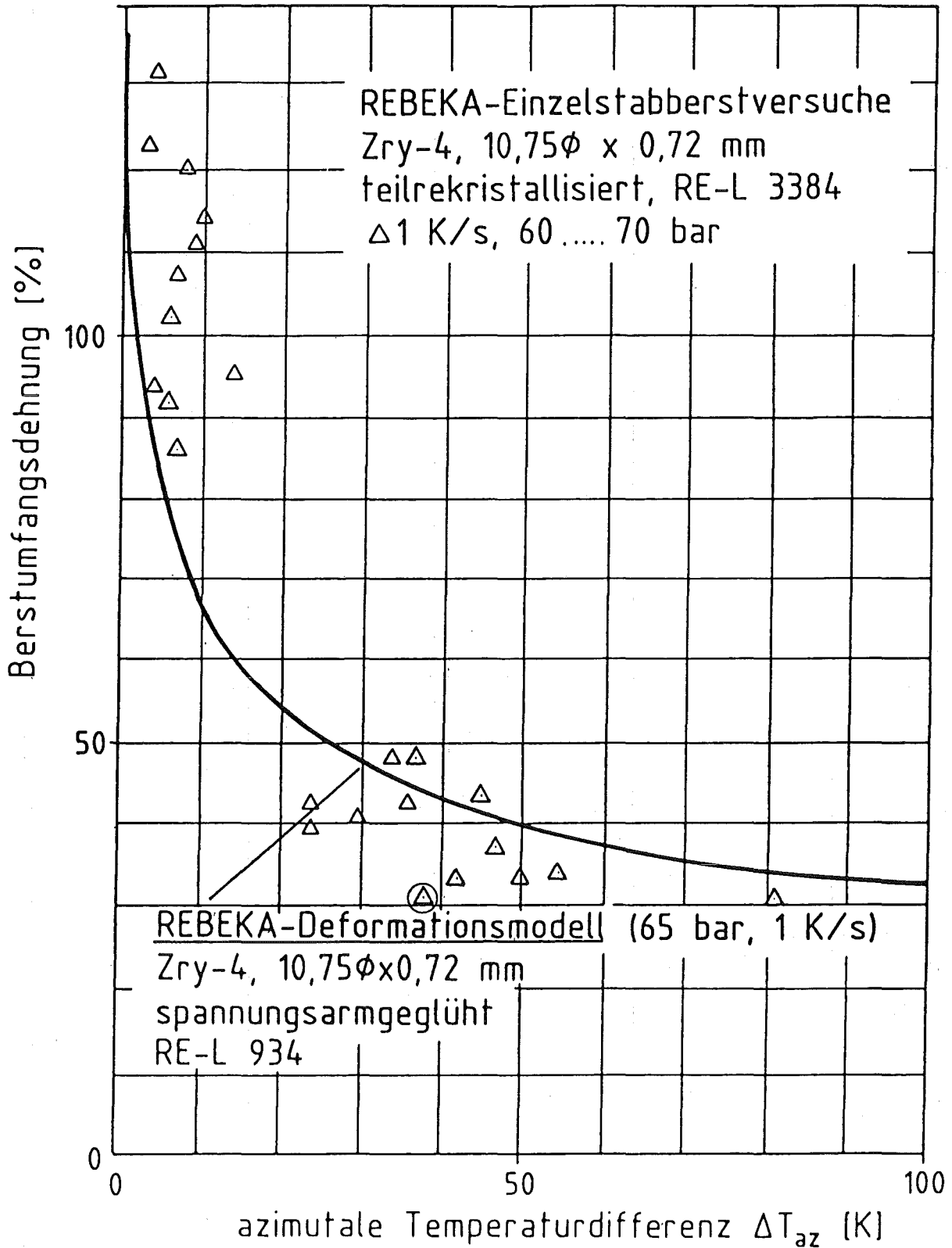
/1/ F. Erbacher, H.J. Neitzel, K. Wiehr, Kühlmittelverluststörfall: Experimente zur Notkühlung in der Anlage REBEKA. Atomwirtschaft, Jahrgang XXVI, Nr. 10, Okt. 81, S. 561-64.



Bersttemperatur über Berstdruck von Zircaloyhüllrohren



Berstumfangsdehnung über Bersttemperatur von Zircaloyhüllrohren  
 (gleichmäßige Temperatur auf Hüllrohrumfang)



Berstumsdehnung als Funktion der azimuthalen Temperaturdifferenz



06.01.20/02A Brennstabsimulatoreffekte bei Flutexperimenten  
PNS 4260 (SEFLEX-Programm)  
(P. Ihle, K. Rust, H. Schneider; IRB)

Ziel dieser Arbeit ist es, den Einfluß des Stabaufbaus verschiedener Brennstabsimulatoren - im Vergleich zu Brennstäben - auf die Hüllrohrtemperaturen während der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles zu bestimmen. Die Ergebnisse dienen zur Verbesserung vorhandener Flutrechnenprogramme und zur genaueren Ermittlung der Sicherheitsreserven bei der Notkühlung.

### 1. Einleitung

Bei in pile Versuchen wie z.B. dem Halden Reaktor Projekt wurde beobachtet, daß nukleare Brennstäbe /1/ wesentlich rascher wiederbenetzt werden als elektrisch beheizte Stäbe mit gutem Wärmekontakt zwischen Edelstahlhüllrohr und Füllmaterial /2, 3/. Im gleichen Projekt zeigte sich, daß REBEKA-Brennstabsimulatoren mit Gasspalt zwischen Zircaloy-Hüllrohren und Aluminiumoxidpellets sich dagegen sehr ähnlich wie Brennstäbe während eines Kühlmittelverluststörfalles (KVS) verhalten /4/.

Der Einfluß der thermischen Eigenschaften verschiedenen Aufbaus von Brennstabsimulatoren auf den Wärmeübergang und das Benetzungsverhalten wurde in Experimenten mit Einzelstäben, deren Hüllrohre aus Edelstahl oder Zircaloy bestanden, untersucht /5/. Ähnliche Grundlagenuntersuchungen sind auch mit einem 4-Stab-Bündel durchgeführt worden /6, 7/. In den meisten Flutversuchen jedoch wurden Brennstäbe durch konventionelle Heizstäbe simuliert, deren Edelstahlhüllrohre durch Hämmern in engen Kontakt mit dem Füllmaterial gebracht sind. Bündel aus solchen Stäben dienten auch zur Untersuchung der thermohydraulischen lokalen Vorgänge an Abstandshaltern und Kühlkanalblockaden, z.B. FEBA /8/, FLECHT-SEASET /9/ und THETIS /10/.

Das Ziel des SEFLEX-Programms (Simulator-Effekte bei Flutexperimenten) ist, den Einfluß verschiedener Brennstabsimulatoren und besonders des Wärmedurchgangs im Spalt unter der Hülle auf den Wärmeübergang und das Fortschreiten der Benetzungsfront in Stabbündeln während der Flutphase eines KVS zu quantifizieren /11, 12/.

## 2. Experimente

Es wurden Flutversuche mit einem 5x5 Stabbündel aus REBEKA-Stäben in der FEBA-Testeinrichtung durchgeführt. Durch Verwendung der FEBA-Anlage konnte der Einfluß von Versuchsrandbedingungen so klein wie möglich gehalten werden. Die mit dem Bündel aus REBEKA-Stäben erzielten Ergebnisse wurden mit den FEBA-Ergebnissen /13/ verglichen.

Die Querschnitte eines FEBA- und eines REBEKA-Stabes sind aus Abb. 1 ersichtlich. Der FEBA-Stab ist charakterisiert durch einen guten Wärmekontakt zwischen dem Hüllrohr aus NiCr 80/20 und dem elektrischen Isolator aus Magnesiumoxid (MgO), in das die Heizwendel eingebettet ist. Der REBEKA-Brennstabsimulator wurde entwickelt, um den Einfluß des Wärmeübergangs auf die Hüllrohrdeformation untersuchen zu können /14/. Er besteht aus einem elektrischen Heizstab von 6 mm Außendurchmesser, der im Zentrum von Ringpellets aus Aluminiumoxid angeordnet ist. Die Pellets sind wie bei einem Brennstab von einem Hüllrohr aus Zircaloy umgeben. Der Spalt von nominell 0.05 mm zwischen Pellet und Hüllrohr war in den SEFLEX-Tests entweder mit Helium oder mit Argon gefüllt, um den Einfluß des Spaltwärmedurchgangs auf das Flutverhalten zu untersuchen.

Die übrigen Daten der 5x5 Stabbündel aus beiden zum Vergleich herangezogenen Stabtypen waren die gleichen: Stabdurchmesser 10.75 mm, Stabteilung 14.3 mm, beheizte Länge 3900 mm, sowie axiale Verteilung der Leistungszonen und axiale Lage der Abstandshalter (s. Abb. 2). Die FEBA-Anlage ist in Abb. 3 schematisch dargestellt. Sowohl das 5x5 FEBA- als auch das 5x5 REBEKA-Stabbündel waren im gleichen quadratischen Edelstahlgehäuse, das zur Verminderung radialer Wärmeverluste außen isoliert war. Die Stäbe waren am oberen Ende in einer Gitterplatte befestigt (axiale Höhe 0) und konnten sich nach unten frei dehnen, um Stabverbiegungen während der Versuche zu vermeiden.

Die Versuchsserien wurden mit beiden Stabbündeln gleichermaßen durchgeführt; d.h. gleiches axiales Temperaturprofil zu Beginn des Flutens, gleiche Bündelleistung (200 kW bei Flutbeginn, dann nach ANS Standard abfallend) gleiche Flutraten (3.8 und 5.8 cm/s Steiggeschwindigkeit des Wassers im kalten Bündel, konstant während der einzelnen Versuche), gleiche Systemdrücke (2.1 und 4.1 bar, konstant während der Versuche) und gleiche Temperatur (40 °C) des Speisewassers.

### 3. Ergebnisse

Das Flutverhalten der Bündel aus 5x5 FEBA- bzw. 5x5 REBEKA-Stäben ist deutlich verschieden. Abb. 4 zeigt den zeitlichen Verlauf von Hüllrohrtemperaturen aus drei Versuchen, die jeweils mit einer Flutrate entsprechend 3.8 cm/s und einem Systemdruck von 2.1 bar durchgeführt wurden: In einem FEBA-Bündel (quadratische Symbole), in einem REBEKA-Bündel mit Helium-Füllung (runde Symbole), und in einem REBEKA-Bündel mit Argon-Füllung (dreieckige Symbole). Die Temperaturen wurden in vier axialen Ebenen gemessen, die jeweils etwa in der Mitte zwischen zwei Abstandshalterpositionen lagen. Unterhalb der Bündelmittenebene war der Einfluß der verschiedenen Stabarten auf die maximale Hüllrohrtemperatur noch nicht ausgeprägt, aber die Benetzungszeiten waren für REBEKA-Stäbe etwa 100 s kürzer als für FEBA-Stäbe (Plot A). Oberhalb der Bündelmittenebene vergrößerten sich die Unterschiede der Maximaltemperaturen und der Benetzungszeiten mit zunehmendem Abstand von der Bündelmittenebene (Plots B, C, D).

Der zeitliche Verlauf der Gehäusetemperaturen gibt Aufschluß darüber, daß die Art der entstehenden Zweiphasenströmung und ihre Kühlwirkung bei den drei Bündeln verschieden war. Die Temperaturen des für alle Versuche identischen Gehäuses fielen schneller, wenn ein Bündel mit REBEKA Stäben geflutet wurde wie Abb. 5 zeigt. Der unterschiedliche radiale Aufbau der Stäbe führte bei REBEKA-Stäben zu größerer Wärmeabfuhr pro Zeiteinheit als bei FEBA-Stäben. Das bewirkte eine intensivere Kühlwirkung der Zweiphasenströmung im noch unbenetzten Teil der REBEKA-Bündel sowie des Bündelgehäuses.

Die Abb. 6 zeigt, daß die Benetzungsfront im REBEKA-Bündel mit Heliumfüllung der Stäbe rascher aufstieg als im FEBA-Stabbündel. Ebenso zeigt diese Abbildung, daß die Benetzungsfront noch schneller vorankam bei Argonfüllung der REBEKA-Stäbe wobei im oberen Teil des Bündels deutlich vorzeitige Benetzung der Hüllrohre jeweils unmittelbar nach den Abstandshaltern auftrat.

Das während des Flutens vom Dampf mitgerissene und aus dem oberen Bündelende ausgetragene Wasser wurde gemessen. Aus Abb. 7 ist ersichtlich, daß während des Flutens von REBEKA-Bündeln weniger Wasser ausgetragen wurde. Da die Wassereinspeisung pro Zeiteinheit in den verglichenen Versuchen gleich war, wurde beim Fluten der REBEKA-Bündel ein größerer Anteil des vom Dampf mitgerissenen Wassers verdampft, denn die Wärmeabfuhr pro Zeiteinheit war in den

REBEKA-Bündeln größer als im FEBA-Bündel.

Die radialen Temperaturprofile der FEBA und der REBEKA-Stäbe geben Aufschluß über die unterschiedlichen Mechanismen der Wärmeauspeicherung während der Hüllrohrbenetzung. Abb. 8 zeigt radiale Temperaturprofile, die für die axiale Bündelebene 1680 mm und für die angegebenen Zeitpunkte berechnet wurden. Zur Lösung des eindimensionalen inversen Wärmeleitproblems wurde das HETRAP-Wärmeleitprogramm /15/ verwendet. Bei plötzlich ansteigendem Wärmeübergang zwischen Hüllrohr und Kühlmittel, wie es z.B. bei Annäherung der Benetzungsfront der Fall war, fiel die Temperatur des Zircaloy-Hüllrohres rasch ab (Plot B und C der Abb. 8). Die im restlichen Teil des Stabes gespeicherte Wärme wurde mit einer gewissen Verzögerung ausgespeichert, nämlich dann, wenn eine ausreichende Temperaturdifferenz zwischen Hüllrohr und Pelletaußenseite entstanden war. Die Temperatur des Hüllrohres konnte dabei umso rascher unter die Benetzungstemperatur fallen je größer der Wärmewiderstand im Spalt zwischen Hüllrohr und Pellet war. Die Benetzungsfront stieg deshalb im REBEKA-Bündel mit Argonfüllung der Stäbe am schnellsten auf. Bei den FEBA-Stäben mußte bei plötzlichem Ansteigen des Wärmeübergangs nahe der Benetzungsfront ein größerer Betrag an gespeicherter Wärme aus dem Hüllrohr und dem eng anliegenden MgO abgeführt werden ehe das Hüllrohr benetzen konnte. Dieser Mechanismus verzögerte das Aufsteigen der Benetzungsfront, verringerte die Wärmeauspeicherung pro Zeiteinheit und verminderte dadurch die Kühlwirkung der Zweiphasenströmung.

In Abb. 9 ist der zeitliche Verlauf der Oberflächenwärmeströme in der axialen Bündelebene 1680 mm dargestellt. Bei FEBA-Stäben war der Wärmestrom am geringsten, bei REBEKA-Stäben mit Argonfüllung am höchsten vom Beginn des Flutens an bis zur Benetzung der Hüllrohre an dieser Stelle.

Zu Beginn des Flutens war die in den REBEKA-Stäben gespeicherte Wärme zwar etwas geringer als in den FEBA-Stäben aufgrund der verschiedenen physikalischen Materialeigenschaften. Der Unterschied wuchs jedoch während des Flutens an wie Abb. 10 zeigt. Das bedeutet, daß trotz der etwas geringeren Speicherwärme zu Beginn des Flutens und gleicher Wärmezufuhr während des Flutens aus REBEKA-Stäben mehr Wärme pro Zeiteinheit ausgespeichert wurde. Nach der Benetzung verblieb im REBEKA-Stab mit Argonfüllung ein höherer Betrag an gespeicherter Wärme, da eine relativ große Temperaturdifferenz über den mit Argon gefüllten Spalt zwischen Hüllrohr und Pellet verblieb. Das Hüllrohr war

hier jedoch auch am schnellsten abgekühlt worden.

Detailliertere Ergebnisse sind den Veröffentlichungen /16 bis 20/ zu entnehmen.

#### 4. Schlußfolgerung

Brennstabsimulatoren mit Zircaloy-Hüllrohren und gasgefülltem Spalt zwischen Hüllrohr und Pellet sind während des Flutens niedrigeren Hüllrohrtemperaturen ausgesetzt als spaltlose Heizstäbe mit Edelstahlhülle.

Mit ansteigendem Wärmewiderstand im Spalt wird die Wärmeabfuhr aus den Stäben größer. Bei nuklearen Brennstäben kann sich der Spaltwärmedurchgang erhöhen durch höhere Spaltgaskonzentration und/oder Aufblähen der Hüllrohre.

Die Ergebnisse bestätigen quantitativ, daß der Sicherheitsabstand bezüglich Kühlbarkeit eines Reaktorkerns während eines KVS größer ist als die mit spaltlosen Heizstäben ermittelten Werte ergeben haben.

5. Literaturverzeichnis

1. Vitanza, C. et al.: "Blowdown/Reflood Tests With Nuclear Heated Rods, (IFA-511.2)". OECD Halden Reactor Project, HPR 248, May 1980.
2. Johnsen, T. and Vitanza, C.: "Blowdown/Reflood Tests With SEMISCALE Heaters, (IFA-511.3, Data Collection)". OECD Hald Reactor Project, HWR 17, May 1981.
3. Johnsen, T. and Vitanza, C.: "Results of LOCA Tests with SEMISCALE Heaters, (IFA-511.5)", OECD Halden Reactor Project, HPR 313, May 1984.
4. Vitanza, C. and Johnsen, T.: "Results of Blowdown/Reflood Tests With REBEKA Electric Simulators, (IFA-511.4, Cycle 2)". OECD Halden Reactor Project, HWR 85, May 1983.
5. Pigott, B.D.G. and Duffey, R.B.: "The Quenching of Irradiated Fuel Pins". Nuclear Engineering and Design, Vol. 32, 1975, pp. 182-190.
6. Dhir, V.K. and Catton, I.: "Reflood Experiments With a 4-Rod Bundle". EPRI NP-1277, December 1979.
7. Dhir, V.K.; Duffey, R.B.; Catton, I.: "Quenching Studies on a Zircaloy Rod Bundle". Journal of Heat Transfer, Vol. 103, No. 2, May 1981, pp. 293-299.
8. Ihle, P. and Rust, K.: "FEBA Flooding Experiments With Blocked Arrays". Evaluation Report, KfK 3657, March 1984.
9. Loftus, M.J. et al.: "PWR FLECHT-SEASET, 21-Rod Bundle Flow Blockage Task, Data and Analysis Report". NUREG/CR-2444, EPRI NP-2014, WCAP-9992, Vol. 1 and 2, September 1982.
10. Pearson, K.G. and Cooper, L.A.: "Reflood Heat Transfer in Severely Blocked Fuel Assemblies". NUREG/CP-0060, December 1984, pp. 643-671.
11. Ihle, P.; Rust, K.; Schneider, H.: "Brennstabsimulatoreffekte bei Flutexperimenten, SEFLEX-Programm". In: Projekt Nukleare Sicherheit, Jahres-

bericht 1983, KfK 3450, Juni 1984, S. 4200-97 bis 4200-111.

12. Nishida, M.: "Fuel Rod Simulator Effects in Flooding Experiments-Single Rod Tests". KfK 3786B, September 1984.
13. Ihle, P. and Rust, K.: "FEBA-Flooding Experiments With Blocked Arrays, Data Report 1: Test Series I Through IV, KfK 3658, March 1984.
14. Erbacher, F.J.: "Interaction Between Fuel Clad Ballooning and Thermal-Hydraulics in a LOCA". KfK 3880/1, December 1984, pp. 299-310.
15. Malang, S.: "HETRAP - A Heat Transfer Analysis Program". ORNL-TM-4555, September 1974.
16. Ihle, P.; Rust, K.; Erbacher, F.: "Temperatur- und Wiederbenetzungsverhalten von Brennstäben beim Kühlmittelverluststörfall: Einfluss des Spaltes zwischen Pellet und Hüllrohr". Jahrestagung Kerntechnik 84. Frankfurt, 22.-24. Mai 1984. Kerntechnische Ges. e.V. Deutsches Atomforum e.V. Eggenstein-Leopoldshafen: Fachinformationszentrum Energie, Physik, Mathematik 1984 S. 65-68
17. Ihle, P.; Rust, K.: "FEBA-Flooding Experiments With Blocked Arrays. Data Report 2, Test Series V Through VIII". KfK-3659 (März 84)
18. Ihle, P.: "Heat Transfer in Rod Bundles With Severe Clad Deformations. Nucl. Sc. and Eng. (88), 206-219 (1984)
19. Erbacher, F.J.; Ihle, P.; Rust, K.; Wiehr, K.: "Temperature and Quenching Behavior of Undeformed, Ballooned and Burst Fuel Rods in a LOCA". KfK 3880/1, December 1984, pp. 516-524
20. Lee, S.L.; Ihle, P.: "A Study of Mist Cooling Enhancement from Grid Spacers in LOCA Reflood of a PWR Combined Gross Heat Transfer and Local Temperature and LDA Droplet Sizing Analysis". NUREG/CP-0058, Vol. 1, pp. 286-306, January 1985.

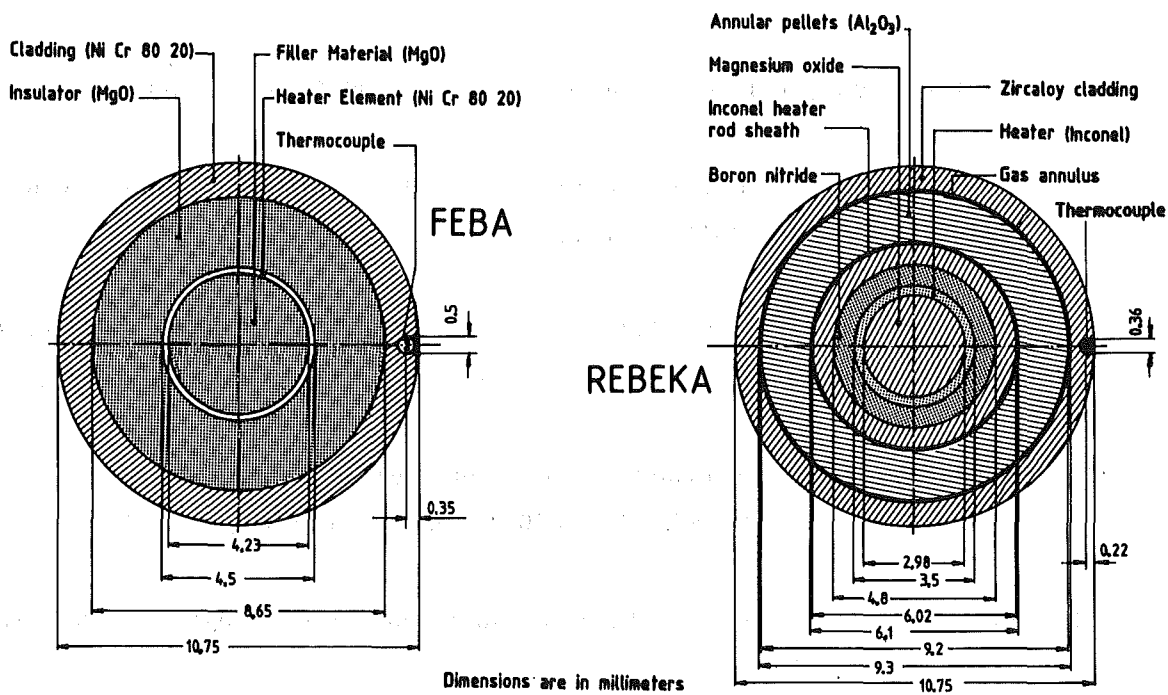


Figure 1. Cross sections of FEBA and REBEKA fuel rod simulators.

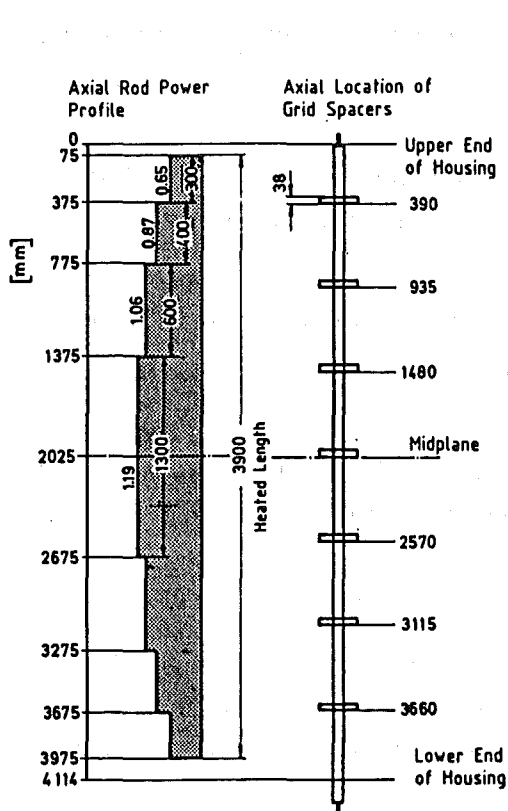


Figure 2. Axial layout of FEBA and REBEKA rods.

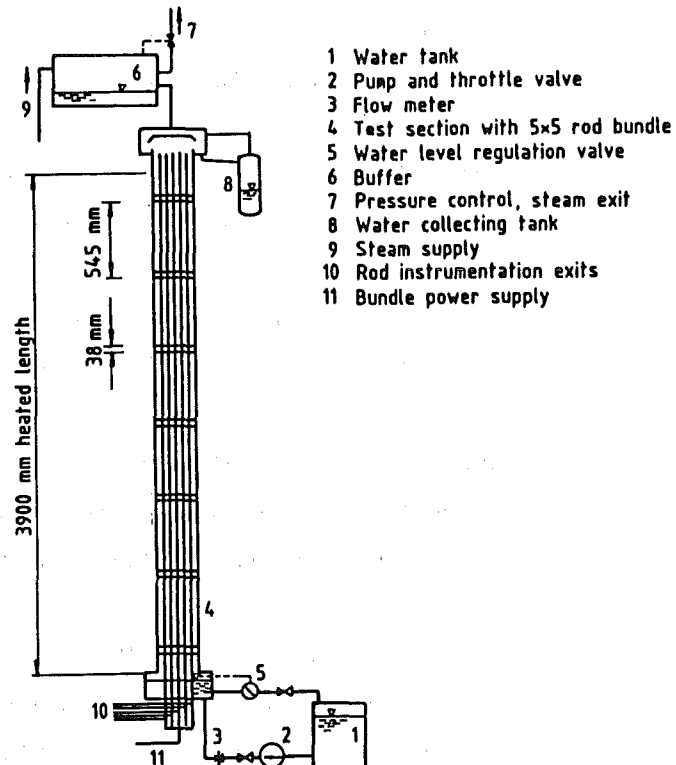


Figure 3. FEBA test facility.



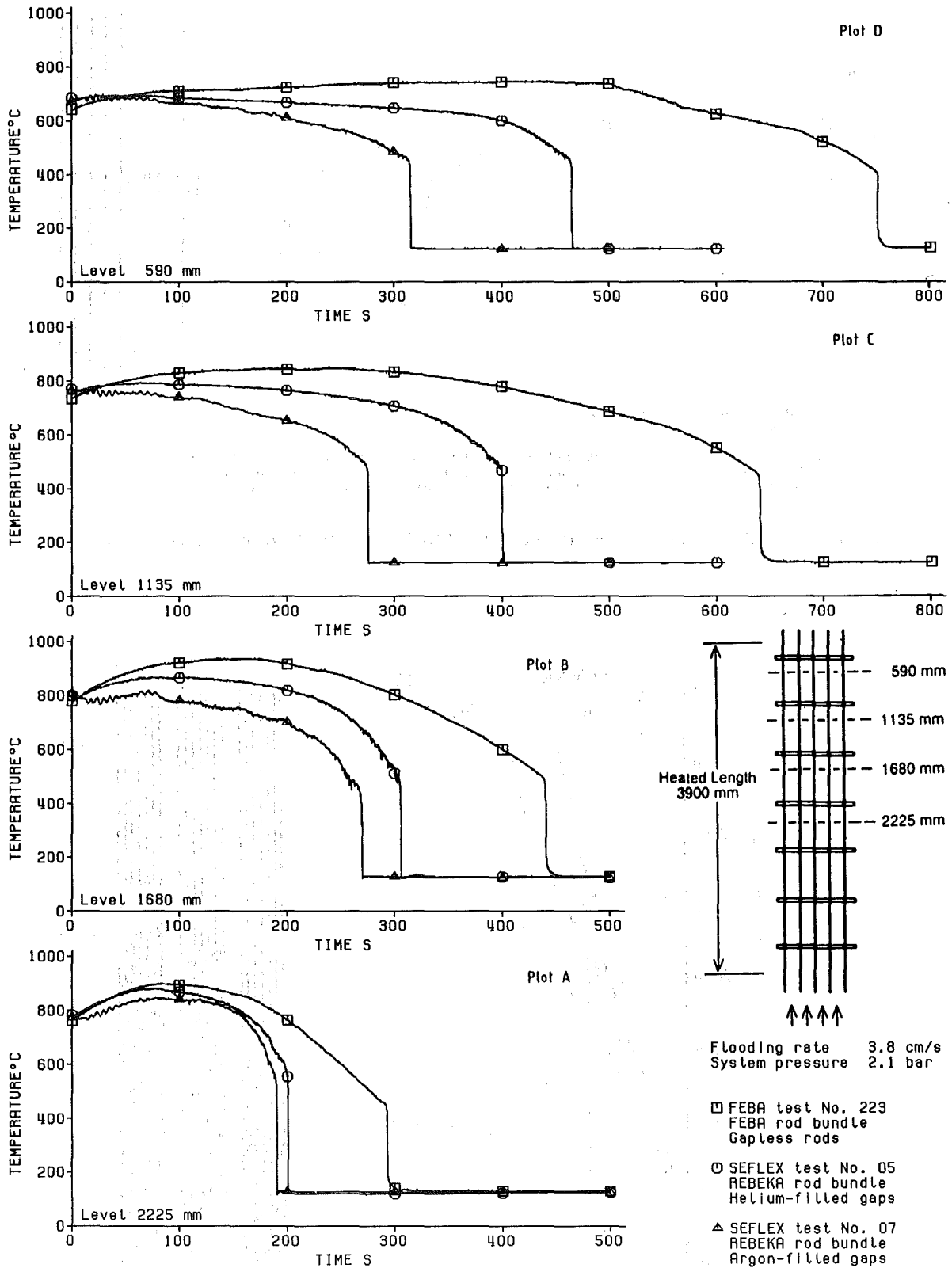


Figure 4. Cladding temperatures measured at four different axial levels in FEBA and REBEKA rod bundles.

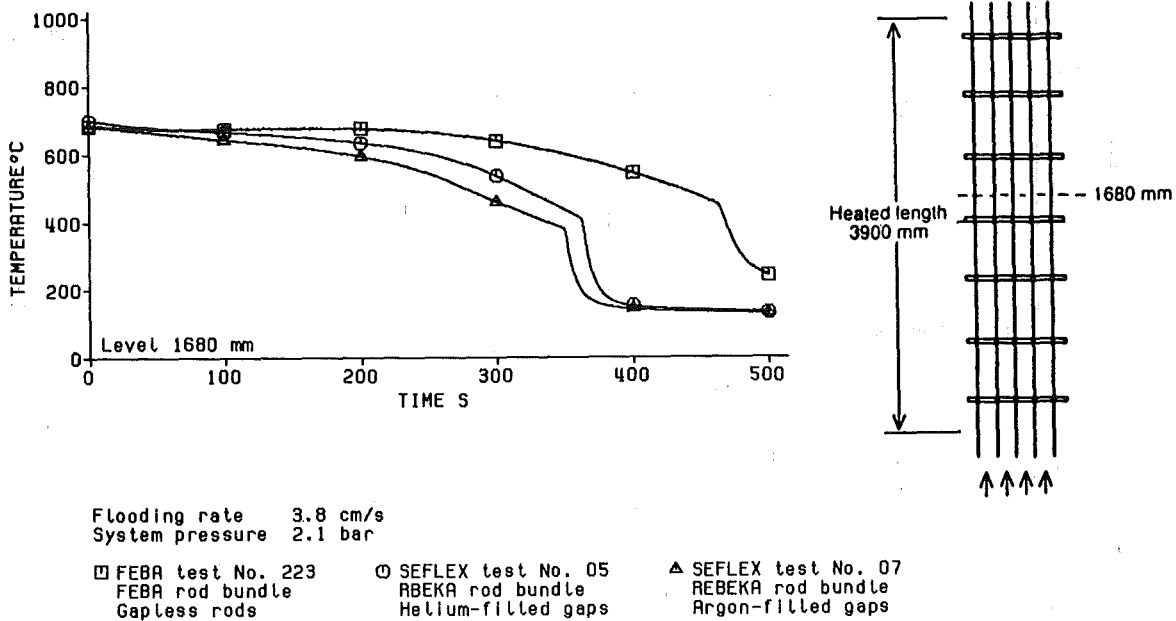


Figure 5. Housing temperatures in FEBA and REBEKA rod bundles.

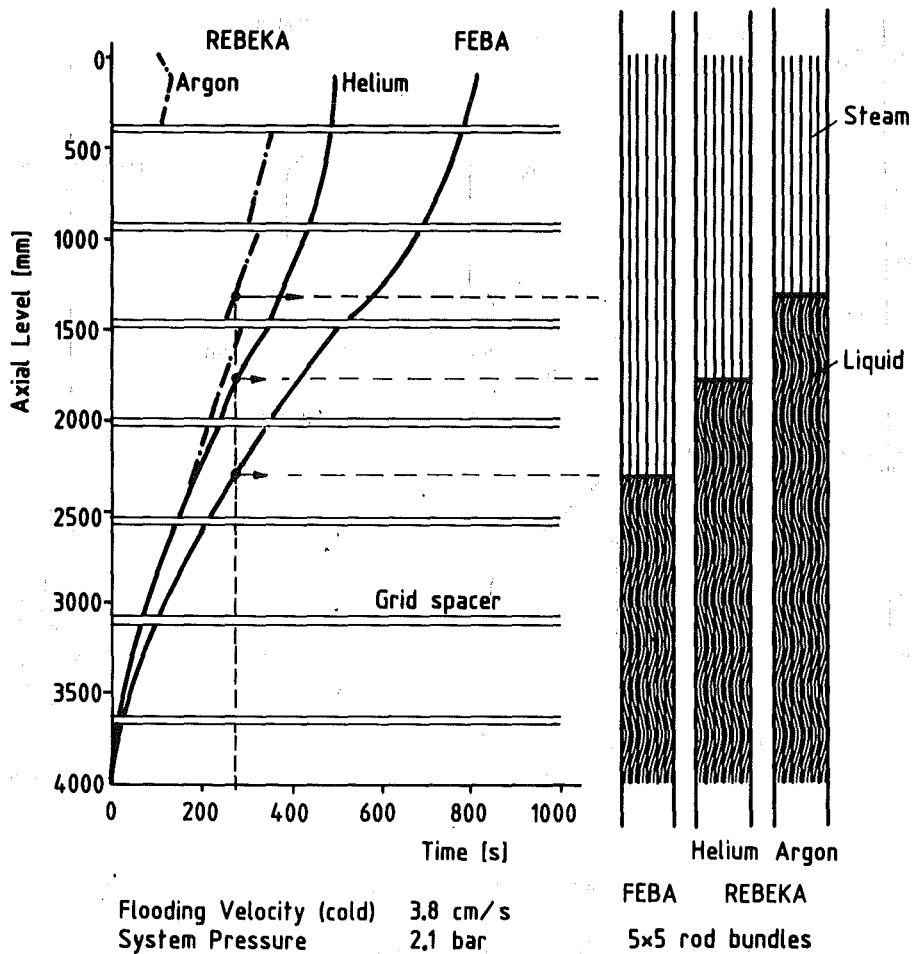
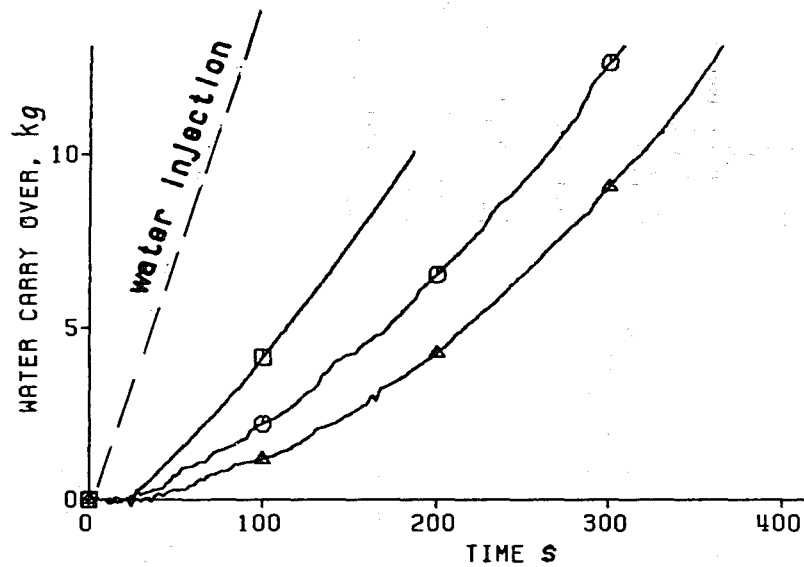


Figure 6. Quench front progression and liquid inventory after 275 s in FEBA and REBEKA rod bundles.



Flooding rate 3.8 cm/s  
 System pressure 2.1 bar

□ FEBA test No. 223  
 FEBA rod bundle  
 Gapless rods

○ SEFLEX test No. 05  
 REBEKA rod bundle  
 Helium-filled gaps

△ SEFLEX test No. 07  
 REBEKA rod bundle  
 Argon-filled gaps

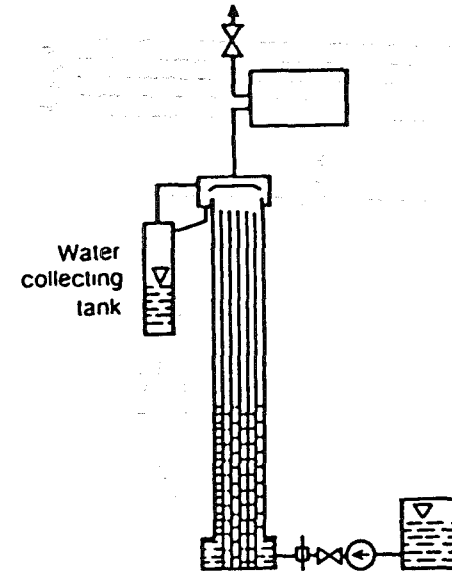
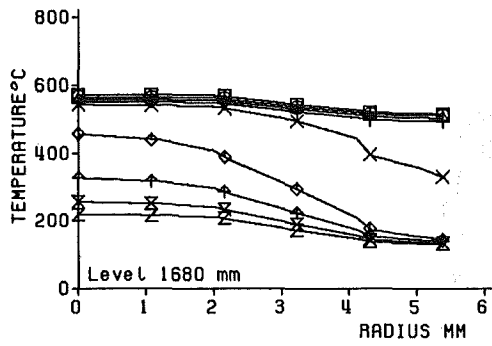
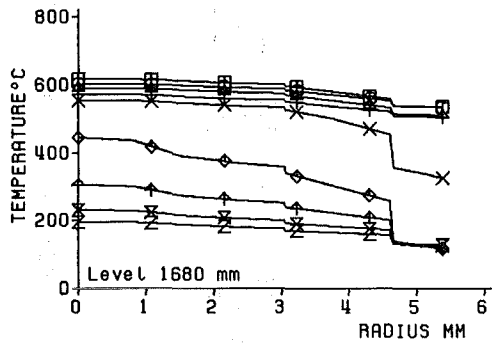
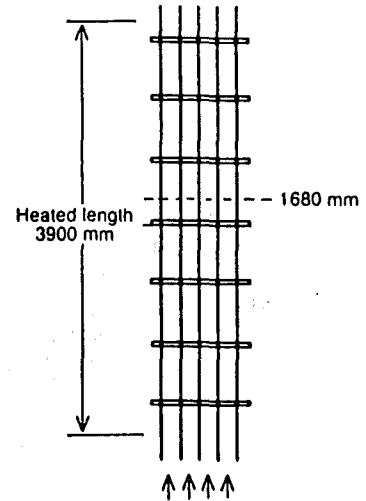


Figure 7. Water carry over in FEBA and REBEKA rod bundles.



Flooding rate 3.8 cm/s  
System pressure 2.1 bar

FEBA test No. 223  
FEBA rod bundle  
Gapless rods

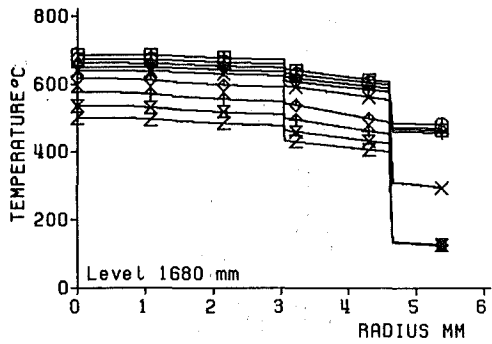


Flooding rate 3.8 cm/s  
System pressure 2.1 bar

SEFLEX test No. 05  
REBEKA rod bundle  
Helium-filled gaps

Shifted time scale

- -10.0 s
- -7.5 s
- △ -5.0 s
- + -2.5 s
- × 0.0 s (surface rewetting)
- ◇ 2.5 s
- ⊕ 5.0 s
- × 7.5 s
- Z 10.0 s



Flooding rate 3.8 cm/s  
System pressure 2.1 bar

SEFLEX test No. 07  
REBEKA rod bundle  
Argon-filled gaps

Analysis:

- One-dimensional inverse heat conduction problem
- Finite element technique
- Explicit time integration
- Temperature-dependent material properties

Figure 8. Radial temperature profiles as function of time during surface rewetting of FEBA and REBEKA rod bundles.

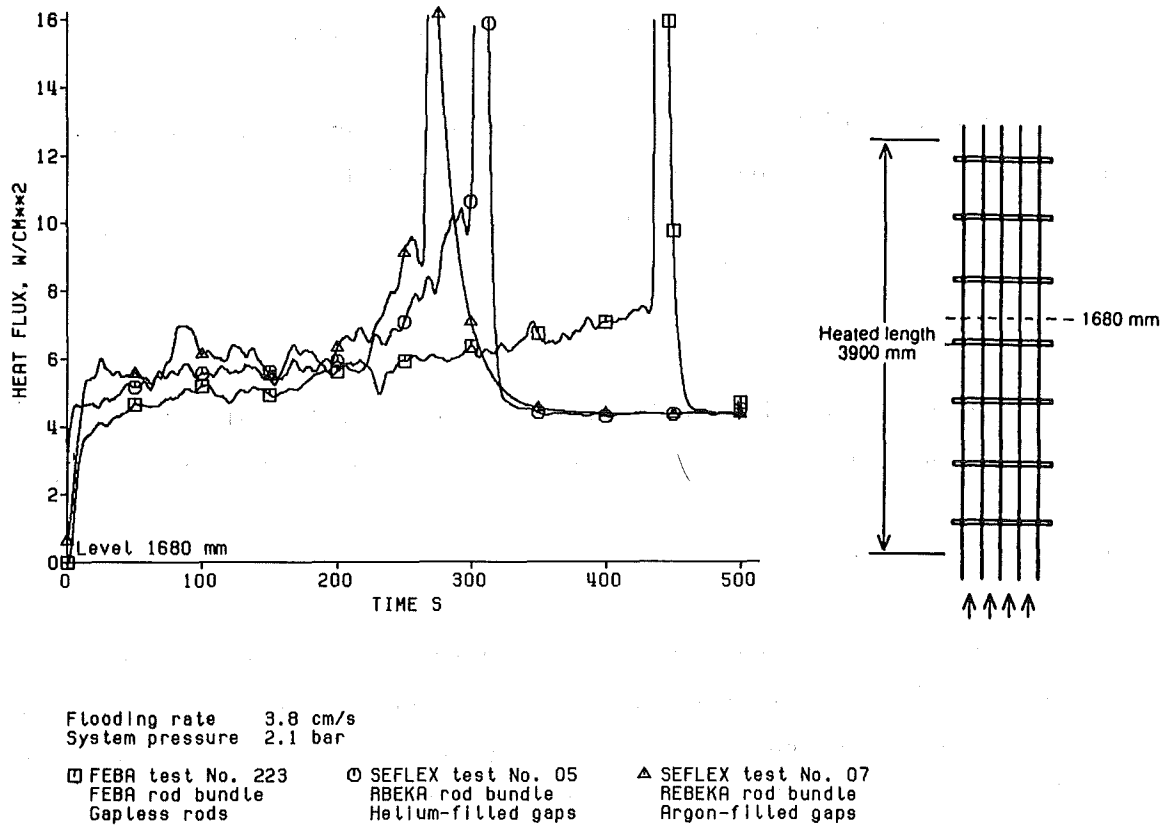


Figure 9. Surface heat flux of FEBA and REBEKA rods.

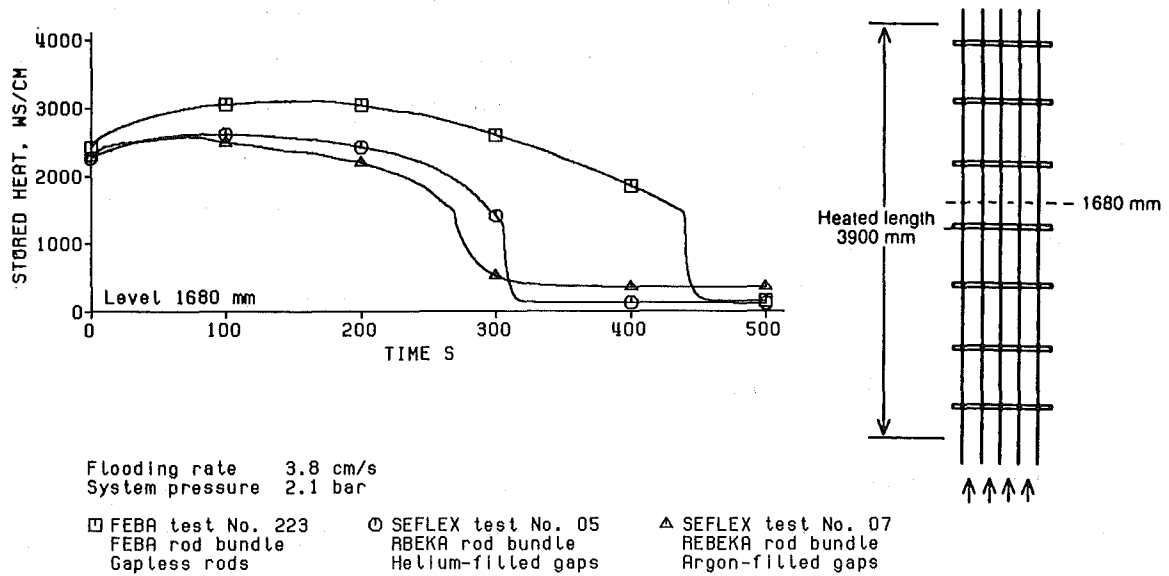


Figure 10. Release of stored heat from FEBA and REBEKA rods.

06.01.16 Untersuchungen zu schweren Kernschäden

06.01.16/23A Oxidationsverhalten von Zircaloy-Hüllrohren bei langsamen  
PNS 4254 Transienten und schweren Kernschäden  
(S.Leistikow, B.Bennek-Kammerichs, H.v.Berg, I.Cambien<sup>+</sup>,  
G.Schanz, H.Uetsuka<sup>++</sup>; IMF-II)

1. Untersuchung des Oxidationsverhaltens von Zircaloy-4-Hüllrohren bei  
reduziertem Dampfangebot und in Dampf-Wasserstoff-Gemischen

1.1 Einleitung

Unter den Bedingungen hypothetischer Reaktorunfälle, die zu schweren Kernschäden führen, ist zu erwarten, daß die Oxidation der Zircaloy-4-Hüllrohre durch starken Dampfkonsum und Aufkonzentration des freigesetzten Wasserstoffs beeinflusst wird. Einige Literaturergebnisse zum Einfluß eines begrenzten Dampfangebots und eines Wasserstoffgehaltes der Atmosphäre liegen vor (1-3). Der insgesamt jedoch unbefriedigende Kenntnisstand war, wie bereits in einem Beitrag zum vorhergehenden PNS-Jahresbericht diskutiert wurde (4), der Anlaß zur Aufnahme eigener Untersuchungen. Im Hinblick auf eine Modellierung des Materialverhaltens wurden möglichst streng definierte Versuchsbedingungen angestrebt, wie sie nur mit strömenden Atmosphären zu realisieren sind. Dazu wurden die Dampfkreisläufe der bisher verwendeten Laborversuchs-Apparaturen entsprechend modifiziert. Die eingesetzten Proben waren 30 mm lange Abschnitte aus DWR-spezifischem Zircaloy-4 Hüllrohrmaterial. In Ergänzung zur Messung der Massenzunahme und der metallographischen Untersuchung wurden ausgewählte Proben auf Dimensionsänderungen vermessen sowie auf ihren Gehalt an Wasserstoff und Sauerstoff analysiert.

1.2 Untersuchungen in Dampf

Bei 1000 und 1300 °C wurden Parameterstudien über 15 min in langsam strömendem Dampf entsprechend Flußdichten im Bereich 3-170 mg/cm<sup>2</sup>min bei Atmosphärendruck

---

<sup>+</sup>) Delegierte, Commissariat à l'Énergie Atomique, Saclay, Frankreich

<sup>++</sup>) Delegierter, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Japan

durchgeführt. Abweichungen vom normalen Oxidationsverhalten ergaben sich dabei erst unterhalb kritischer Dampfangebote: Bei 1000 °C wurde Dampfangebot unterhalb einer Flußdichte von etwa 13 mg/cm<sup>2</sup> min registriert, der zu reduziertem Oxidationsumsatz und erhöhter Wasserstoffaufnahme der Proben führte. Bei 1300 °C wurde im Flußdichtebereich 20-60 mg/cm<sup>2</sup> min eine Beschleunigung der Oxidation und eine Erhöhung der Wasserstoffaufnahme nachgewiesen, die in enger Beziehung zu einer starken Wasserstoffanreicherung in der Atmosphäre standen. Erst unterhalb einer Flußdichte von etwa 20 mg/cm<sup>2</sup> min schloß sich ein abrupter Rückgang des Oxidationsumsatzes an. In oxidationskinetischen Versuchen über 2-60 min bei 1000 °C wurde mit abnehmendem Dampfangebot ein Übergang zu linearer Kinetik beobachtet.

Auf eine detailliertere Darstellung soll hier verzichtet werden, da über einige Ergebnisse dieser Arbeit bereits berichtet worden ist (5) und inzwischen eine abschließende Dokumentation vorliegt (6).

### 1.3 Untersuchungen in Dampf-Argon und Dampf-Wasserstoff-Argon-Mischatmosphäre

#### 1.3.1 Experimentelle Durchführung

Die Untersuchung des Einflusses von Wasserstoff auf die Wasserdampf-Oxidation und seiner Eigenschaften als zusätzlicher Reaktionspartner ist nur dann vollständig, wenn in systematische Parameterstudien auch extrem hohe Wasserstoff/Dampf-Volumenverhältnisse einbezogen werden können. Angesichts des Gefährdungspotentials im Umgang mit Wasserstoff bei hohen Temperaturen wurde eine Verdünnung der Versuchsatmosphären mit dem Inertgas Argon gewählt und ein Arbeiten unter vermindertem Druck vorgezogen. Die Verwendung von Argon erlaubt gleichzeitig Experimente bei erhöhten Strömungsgeschwindigkeiten, womit stagnierende Bedingungen und entsprechend undefinierte Änderungen in der Zusammensetzung der Atmosphäre im Verlauf der Reaktion vermieden werden können. Schließlich wurde durch Eichmessungen nachgewiesen, daß Argon als Trägergas auch die Dosierung kleinster Dampfmen gen erlaubt und den entsprechenden Dampfdurchsatz stabilisiert.

Die eingesetzte Versuchsanlage ist in Abb. 1 dargestellt. Der Argon- und Wasserstoff-Durchsatz wird mit Rotametern eingestellt. Der Dampfdurchsatz ergibt sich aus der gewählten Verdampfer-Temperatur und aus der Wahl einer der beiden Optionen

der Gaseinleitung, wie in Abb. 1 ersichtlich. Das Dampfangebot wird durch Messung des Kondensatvolumens, des Taupunkts der Atmosphäre, der Absorption an Phosphorpentoxid, bzw. bei kleinsten Dampfanteilen durch Ausfrieren in einer mit flüssigem Stickstoff gekühlten Falle bei ca. 150K bestimmt. Auf bereits beschriebene Einzelheiten der Probenvorbereitung, der Versuchseinrichtung und der experimentellen Durchführung wird verwiesen (5).

Die Versuche wurden bei 800 °C begonnen, um zunächst möglichst ideal isotherme Bedingungen zu gewährleisten und eine Wasserstoffaufnahme im Gefügebild der Proben nachweisen zu können. Über Resultate ist bereits berichtet worden (5). Inzwischen liegen die experimentellen Ergebnisse entsprechender Versuche bei 900 und 1000 °C vor, während ihre metallographische und analytische Nachuntersuchung noch nicht erfolgt ist. Im folgenden werden die kinetischen Ergebnisse für 800 - 1000 °C dargelegt und vergleichend diskutiert.

### 1.3.2 Ergebnisse von Untersuchungen bei 800 - 1000 °C

Um an die Bedingungen unbegrenzten Dampfangebots anzuschließen und die Einflüsse reduzierter Dampfströmungsgeschwindigkeit und von Wasserstoff- und Argon-Zusätzen zu untersuchen wurden Versuche in Dampf (800 °C, 2 min-6h) mit entsprechenden in Dampf-Argon und Dampf-Wasserstoff-Argon verglichen. Abb. 2 zeigt, daß die Ergebnisse durch eine einheitliche Massenzunahme-Zeit-Funktion dargestellt werden können und somit weder die Strömungsgeschwindigkeit des Dampfes noch der Zusatz von Wasserstoff und Argon die Kinetik der Oxidation beeinflussen, sofern lediglich das Dampfangebot ausreichend bemessen ist. Die Zusammensetzung der Atmosphären ergibt sich aus dem angegebenen stationären Durchsatz der Komponenten. (Der Wert 6200 ml/min z.B. entspricht Druck/Temperatur-Normalbedingungen und auf den Querschnitt des Reaktionsrohres von 10 cm<sup>2</sup> bezogen einer Dampfströmungsgeschwindigkeit von ca. 40 cm/s bei 800 °C.)

In Parametertests über 15 min wurde das Dampfangebot weiter reduziert und zwischen 0 und 100 ml/min variiert. Während der Argon-Durchsatz konstant gehalten wurde, war der Parameter Wasserstoff zwischen 0 und 100 ml/min abgestuft. Abb. 3 zeigt die Massenzunahme als Funktion des Dampfurchsatzes für 800 °C. Beim größten untersuchten Dampf-Fluß ist ein Einfluß des Wasserstoffs auf die Massenzunahme der Proben kaum mehr nachweisbar. Mit abnehmendem Dampfangebot fächern die Para-



meterkurven auf, entsprechend einer zunehmenden Wasserstoffaufnahme, die sich der Oxidation überlagert (Tab. 1). Auf der Ordinatenachse, also für das Dampfangebot 0, sind die Massenzunahmen aufgrund der Hydrierung abzulesen. Die Parameterkurve der wasserstofffreien Atmosphären ergibt einen deutlichen Rückgang des Oxidationsumsatzes erst unterhalb eines "kritischen" Dampfangebotes von etwa 10 ml/min (entsprechend einer auf den Querschnitt des Reaktionsrohres bezogenen Flußdichte von ca. 0,80 mg/cm<sup>2</sup> min oder einem auf die Probenoberfläche bezogenen Angebot von ca. 0,42 mg/cm<sup>2</sup> min). Offenbar nimmt die Wasserstoffaufnahme mit dem Anteil in der Atmosphäre zu und verschwindet erst oberhalb des kritischen Dampfangebotes. Auf diese Weise erklären sich die Maxima der beiden oberen Parameterkurven: Die steigende Tendenz wird durch zunehmende Oxidation mit zunehmendem Dampfangebot verursacht, das Maximum wird durchlaufen, wenn die zunehmende Oxidation die abnehmende Hydrierung kompensiert und der Kurvenabfall zeigt die verminderte Wasserstoffaufnahme bei bereits konstantem Oxidationsumsatz an. Abb. 4 zeigt die entsprechenden Ergebnisse für 900 °C. Die Parameterkurven sind für diese Temperatur im gleichen Sinn wie bei 800 °C angeordnet und laufen ebenfalls für zunehmendes Dampfangebot zusammen, entsprechend einem abnehmenden Einfluß des Wasserstoffgehalts der Atmosphäre auf die Gesamtreaktion. Das Verschwinden der für 800 °C ausgeprägten Kurvenmaxima bei 900 °C erklärt sich aus dem niedrigeren Niveau der Massenzunahme aus der reinen Hydrierung und dem höheren Niveau des Oxidationsumsatzes, das bei 900 °C erreicht wird. Das "kritische" Dampfangebot für diese Temperatur kann zu ca. 40 ml/min abgeschätzt werden. Abb. 5 zeigt die entsprechenden Verhältnisse für 1000 °C. Der Einfluß des Parameters Wasserstoff ist weiter rückläufig, so daß hier nur Grenzkurven angegeben sind, die für die maximale Parametervariation stehen. Als "kritisches" Dampfangebot sei für 1000 °C ca. 50 ml/min angegeben.

In alternativer Auftragung der den Abb.3-5 zugrundeliegenden Ergebnisse gegen das Wasserstoff-Angebot ergeben sich die Abb. 6-8. In Abb. 6 bestimmt offenbar der Parameter Dampfangebot, hier als prozentualer Volumenanteil des Dampfes in der Atmosphäre ausgedrückt, die Steigung der Parameterkurven.

Während sich für die reine Hydrierung und in den stark dampfverdünnten Atmosphären große positive Steigungen ergeben, wird bei annähernd ausreichendem Dampfangebot eine waagerechte Kurvenlage erreicht, entsprechend einem nicht mehr nachweisbaren Einfluß von Wasserstoff auf die Oxidationskinetik. Die Kurven überschneiden

sich, weil die Hydrierung sogar eine höhere Massenzunahme der Proben verursachen kann als die Oxidation bei unbegrenztem Dampfangebot über gleiche Versuchszeit. Entsprechend der geringeren Wasserstoffaufnahme bei 900 °C sind in Abb. 7 die Parameterkurven deutlicher nach dem zugehörigen Dampfangebot abgestuft. Bei hohem Angebot wird auch hier die horizontale Lage angenähert. Entsprechendes gilt für 1000 °C in Abb. 8.

Die Zeitabhängigkeit der Oxidation unter Dampfangel wurde in wasserstofffreien Atmosphären mit abgestuften Dampfgehalten untersucht. In Abb. 9 sind die für 800 °C erzielten Ergebnisse in Zeitabhängigkeit dargestellt. Zum Vergleich ist die "Grenzkurve" für unbegrenztes Dampfangebot gemäß Abb. 2 eingetragen. Im Vergleich zu dieser Kurve ist das Kurzzeitverhalten unter Dampfangel durch reduzierten Oxidationsumsatz und erhöhte Kurvensteigung gekennzeichnet, die den Übergang von parabolischer zu linearer Oxidationskinetik ausdrückt. Das Langzeitverhalten wird durch das frühere Auftreten des Breakaway-Effektes im Falle mittlerer Dampfangebote und im Vergleich zu unbegrenztem Dampfangebot beeinflusst: Rißbildung innerhalb der Oxidschicht (Abb. 10) führt zum Verlust der Schutzwirkung der Schicht, als Folge wird lineare Oxidationskinetik angestrebt und die Aufnahme von Wasserstoff ermöglicht (Tab. 1). Der aufgenommene Wasserstoff, der die  $\beta$ -Zr-Phase stabilisiert, ist in Abb. 10 an den beobachteten Umwandlungsgefügen zu erkennen. In Abb. 11 sind die entsprechenden Ergebnisse für 900 °C dargestellt, die wie für 800 °C diskutiert zu beurteilen sind. Da bei dieser Temperatur der Breakaway-Effekt bekanntlich in moderierter Form auftritt (7), und dies offenbar auch für begrenztes Dampfangebot gilt, ergeben sich kaum nachweisbare langzeitige Einflüsse auf die Kinetik. Als Grenzkurve ist hier und entsprechend für 1000 °C in Abb. 12 das Ergebnis früherer Versuche bei unbegrenztem Dampfangebot eingetragen (8). Die obige Argumentation ist auch für 1000 °C gültig, jedoch ist für diese Temperatur das verspätete Auftreten des Breakaway-Effektes für eine Dampfströmung von 100 ml/min nachgewiesen.

Die Zeitabhängigkeit der Oxidation unter Dampfangel in wasserstoffhaltigen Atmosphären abgestuften Dampfgehaltenes wurde bei konstantem Wasserstoffangebot von 100 ml/min untersucht. In Abb. 13 sind die Ergebnisse für 800 °C dargestellt. Als "Grenzkurven" können hier die folgenden Parameterkurven betrachtet werden: Die Kurve für das Dampfangebot 0, also die reine Hydrierung sowie

die Kurve für das Dampfangebot 50 ml/min, die bereits weitgehend der Kinetik bei unbegrenztem Dampfangebot entspricht. Die Konkurrenz zwischen Oxidation und Wasserstoffaufnahme führt jedoch in unübersichtlicher Weise zum Überschreiten beider Grenzkurven: Mit wachsendem Dampfangebot kann die zunehmende Oxidation die dadurch bewirkte Abnahme der Hydrierung erst über längere Zeiten kompensieren. Über kurze Zeiten ergibt sich aus Wasserstoff- und Sauerstoffaufnahme annähernd lineare Kinetik des Massenzuwachses. Erst das Dominieren der Oxidation bei höherem Dampfangebot führt zu parabolischer Kinetik und unter Breakaway-Einfluß über längere Zeit zu einem linearen Trend der Kinetik. Abb. 14 zeigt den zunehmenden Einfluß aufgenommenen Wasserstoffs auf das Gefüge parallel zu abnehmender Oxidation mit abnehmendem Dampfangebot (Tab. 1).

Die der Abb. 13 entsprechenden Darstellungen der Ergebnisse für 900 °C in Abb. 15 und für 1000 °C in Abb. 16 zeigen deutlicher den Charakter der Grenzkurven der Hydrierung einerseits und der Oxidation unter unbegrenztem Dampfangebot (6200 ml/min) andererseits. Für letztere stehen frühere Ergebnisse (8) aus Versuchen in Dampf. Für beide Temperaturen wird mit zunehmendem Dampfangebot über die kürzeren Zeiten die jeweilige Grenzkurve der Oxidation systematisch angestrebt, wobei annähernd lineare Kurvenäste auftreten. Während bei 900 °C kaum ein Breakaway-Einfluß erkennbar wird, ist bei 1000 °C im Fall des Dampfangebots 100 ml/min ein verzögert auftretender Breakaway deutlich ausgeprägt.

### 1.3.3 Diskussion und Zusammenfassung

Im untersuchten Temperaturbereich 800 - 1000 °C tritt Wasserstoff als zusätzlicher Reaktionspartner neben Dampf auf und in Konkurrenz zur Oxidation findet Wasserstoffaufnahme statt. Ihr Ausmaß ist in Abb. 17 gegen die Zeit und in Abb. 18 gegen den Wasserstoff-Fluß aufgetragen. Der über längere Zeit erreichte Grenzwert für 800 °C erlaubt im Vergleich mit dem Zustandsdiagramm Zirkonium-Wasserstoff (Abb. 19) die Deutung, daß das angebotene Hydrierungspotential zur Sättigung der  $\beta$ -Phase, jedoch nicht zur Ausscheidung von Hydrid führt. Die nach dem Diagramm unerwarteten, niedrigeren Hydrierungsniveaus für 900 und 1000 °C sind darauf zurückzuführen, daß der Zersetzungsdruck des Zr(H)-Mischkristalls mit der

Temperatur rasch zunimmt, so daß die registrierten Maximalwerte für 900 und 1000 °C nicht mehr der Wasserstofflöslichkeit sondern dem Bildungs/Zersetzungs-Gleichgewicht für den angebotenen Wasserstoffpartialdruck von 0,1 bar entsprechen dürften. Bei der Übertragung der Ergebnisse auf den betrachteten Unfall wäre diese Druckabhängigkeit zu beachten.

In der Untersuchung wurde kein Einfluß des Wasserstoffs auf die Oxidationskinetik gefunden. Zur Beurteilung der in Abb. 6-8 dargestellten Ergebnisse sei erwähnt, daß die in der Literatur (3) beschriebene moderierende Wirkung des Wasserstoffs in Dampf in der vorliegenden Darstellung zu negativen Kurvensteigungen führen würde, so daß dieser "hydrogen blanketing" genannte Effekt im untersuchten Temperaturbereich offensichtlich nicht nachweisbar ist. Da jedoch die Autoren aus Ergebnissen zwischen 1200 und 1700 °C einen mit der Temperatur zunehmenden Effekt abgeleitet haben, wird erst die fortgesetzte Untersuchung bei höheren Temperaturen einen schlüssigen Ergebnis-Vergleich erlauben.

Dampfmangel äußert sich im Übergang zu linearer Oxidation, d.h. von der Festkörperdiffusion von Sauerstoffanionen durch das Oxidgitter als geschwindigkeitsbestimmendem Schritt hin zur Begrenzung durch Transportvorgänge in der Gasphase oder der Materialoberfläche. Die angegebenen Zahlenwerte für das kritische Dampfangebot bei den untersuchten Temperaturen sind aus Parametertests über 15 min abgeleitet worden, und damit etwas willkürlich definiert: Die Abb. 9, 11 und 12 sowie Abb. 13, 15 und 16 zeigen insgesamt, daß die Oxidation unter Dampfangeleinfluß mit veränderter Zeitabhängigkeit fortschreitet. Deshalb würden sich auf der Basis anderer Versuchszeiten auch kritische Dampfangebote definieren lassen, die von den hier angegebenen Werten deutlich abweichen können.

Die laufende Untersuchung wird bei Temperaturen von 1100 - 1300 °C fortgeführt werden. Eine experimentelle Komplikation wird hierbei darin bestehen, das Überschwingen der Proben temperatur zum Beginn der exothermen Oxidationsreaktion zu vermeiden. Während dieses Problem mit zunehmender Temperatur gravierender wird, verkürzt sich gleichzeitig die Zeitbasis bis zum vollständigen Konsum der Rohrwand. Die Untersuchung soll bis zur höchsten Temperatur weitergeführt werden, die noch eine zuverlässige kinetische Auswertung zu gestatten verspricht.

## 2. Rohrinnendruck - Zeitstandversuche in Wasserdampf, Argon und in Gasmischungen Argon-Dampf

### 2.1 Einleitung

Die hier wiedergegebenen Untersuchungen gehen hinsichtlich der Prüfzeiten in Wasserdampf und Argon weit über die bisher unter LOCA-Aspekt durchgeführten Versuche hinaus und finden, was die Versuche unter Argon/Dampf-Gemischen anbetrifft, Anschluß an die im 1. Kapitel beschriebenen Experimente.

### 2.2 Allgemeine apparative Durchführung

Für die Herstellung der Rohrkapseln werden 50 mm lange Rohrabschnitte aus Zircaloy-4 Druckwasserreaktor-Hüllmaterial ( $\phi_1 = 9,30 \pm 0,04$  mm,  $\phi_a = 10,75 \pm 0,05$  mm) der Firma Sandvik verwendet. Die Rohrstücke werden auf einer Seite mit einem Zircaloy-2-Stopfen, auf der anderen Seite über ein Zircaloy-2-Zwischenstück mit einem 1 m langen Zircaloy-2-Druckzuleitungsrohr elektronenstrahlverschweißt.

Die Apparatur besteht aus einem elektrisch beheizten Ofen mit einem eingeschobenen Keramikrohr als Teststrecke, einem Dampf-Argon-Kreislauf zur Versorgung der Kapsel-Außenseite mit strömender Atmosphäre, einer Argon-Druckgasversorgung zur Einstellung des Kapselinnendrucks, sowie Druck- und Temperaturmeßgeräten (Abb. 20).

Zur Entfernung der Luft aus der Probenkapsel vor dem Versuch wird mehrmals evakuiert und wieder Argon nachgefüllt. Der Argon-Innendruck kann mit einem Druckminderer eingestellt und über ein Manometer bzw. einen sehr empfindlichen elektrischen Druckaufnehmer, der an einen Schreiber angeschlossen ist, während des Versuchs ständig kontrolliert werden. Am Zuführungsstopfen der Versuchskapsel wird ein Pt/Pt-10%Rh Thermoelement angeschweißt. Die Schenkel des Thermoelements werden in einem 1 m langen Zwei-Loch-Keramikrohr parallel zum Argonzuführungsrohr der Kapsel aus dem Ofen herausgeführt (Abb. 21).

Diese Anordnung erlaubt es, die Probe samt Thermoelement im kalten Teil der Teststrecke zu deponieren und dann sehr schnell in den bereits aufgeheizten Ofen zu schieben, so daß die Probe in etwa 5-10 min die gewünschte Endtemperatur erreicht. Druck und Temperatur werden gleichzeitig über einen Schreiber

kontrolliert.

Der die Probe äußerlich umströmende Dampf bzw. das Argon oder das Argon-Dampf-Gemisch wird an der der Proben- und Thermoelementeinführung gegenüberliegenden Seite der Teststrecke eingelassen. So wird das Eindringen von Luft durch Leckagen im Bereich der Durchführung verhindert.

### 2.3 Langzeitstandversuche in Argon und in Dampf

Als Ergänzung früherer Experimente in Argon und Dampf (9), die auf 30 min begrenzt waren, sind Berstversuche in diesen Atmosphären bis zu 3 Stunden durchgeführt worden.

#### 2.3.1 Versuchsdurchführung

Die Kapseln werden in das auf Temperatur gebrachte, argondurchspülte Keramikrohr eingeschoben. Wenn die gewünschte Temperatur ( $1000^{\circ}\text{C}$ ) in Argon erreicht worden ist, wird der gewünschte Innendruck aufgegeben. Gleichzeitig wird die Standzeit bis zum Bersten der Probe gemessen.

Bei den Langzeitstandversuchen in ausreichendem Dampfangebot ( $1\text{m/s}$ ) wird der Dampf durch den Ofen geführt, wenn die Probe  $980^{\circ}\text{C}$  in Argon erreicht hat; die Reaktionswärme bringt dann die Kapsel rasch auf  $1000^{\circ}\text{C}$ . Der Innendruck wird erst aufgegeben, wenn der Dampf aus dem Siedegefaß die Kapsel erreicht hat. Die Standzeit wird entsprechend gemessen, Berstzeiten und Berstdrucke werden registriert. Nach jedem Versuch wird die Umfangsdehnung der Kapsel gemessen. Bei den oxidierten Proben werden die Oxid- und die  $\alpha\text{-Zr}(\text{O})$  Schichten am Mikroskop gemessen, an der Berststelle und in der Nähe des Stopfens.

#### 2.3.2 Versuchsergebnisse

Die Berstdaten Druck, Standzeit, maximale Umfangsdehnung und tangential Spannung sind in den Tabellen 2 und 3 zusammengefaßt. Die Berstdrucke bzw. die Berstdehnungen sind in Abb. 22 bzw. 23 gegen die Standzeit aufgetragen. Diese Ergebnisse sind in guter Übereinstimmung mit denen der früheren Experimente (9). Die Kapseln, die in Dampf beansprucht worden sind, zeigen eine höhere Festigkeit (Abb. 22) und eine niedrigere Berstdehnung (Abb. 23) als die, die in reinem

Argon geprüft worden sind. Ab 10 min Standzeit ist jedoch eine leichte Zunahme der Berstdehnung zu bemerken. Die beobachteten Berstdehnungen können wie folgt diskutiert werden: Bei Versuchen in Argon trägt der gesamte Probenumfang zur Verformung bei. Dagegen ist in Dampf die Verformung im wesentlichen auf die Stellen lokalisiert, an denen die Oxidschicht angerissen ist und nicht mehr zur Gesamtfestigkeit beiträgt. Die resultierenden Gesamtdehnungen sind daher in Dampf niedriger als in Argon. Mit abnehmendem Innendruck und damit abnehmender Verformungsgeschwindigkeit wächst der Einfluß der Oxidation. Während sich bei hoher Dehngeschwindigkeit zahlreiche, feine Risse bilden, zeigen langsam gedehnte Kapseln weniger Risse (10). Mit der abnehmenden Zahl von Rissen nimmt auch die Summe der Beiträge lokaler Dehnung und damit die makroskopisch meßbare Berstdehnung mit abnehmender Dehnungsgeschwindigkeit zunächst ab. Bei weiter abnehmender Dehngeschwindigkeit tritt als Langzeiteffekt der Breakaway auf (11), in dessen Verlauf die Dehnung wieder ansteigt: Der Breakaway-Effekt führt zur Bildung zusätzlicher Risse in der Oxidschicht in deren Bereich das Material sich zusätzlich verformen kann (Abb. 24).

Nach der metallographischen Untersuchung der  $ZrO_2$ - (Abb. 25) und der  $\alpha$ -Zr(O)-Schicht (Abb. 26) gibt es keinen Einfluß der Umfangsdehnung entlang der Probe auf die Oxidationskinetik, zumindest nicht an den weniger durch Oxidanrisse geschädigten Stellen, an denen diese Auswertung möglich war. Doch ist eine tiefergreifende Oxidation in der Nähe der Risse zu beobachten, die sich durch die Entstehung frischer metallischer Oberflächen und ihre fortschreitende Oxidation erklären läßt (12).

Bei den Kapseln sind die Oxidschichten jedoch etwa 25% dicker als die, die auf Rohren gemessen worden sind (Abb. 25) (7). Da die Dehnung, wie schon angedeutet, keinen direkten Einfluß auf die Sauerstoffdiffusion hat, kann man vermuten, daß diese verstärkte Oxidation der Kapseln im Vergleich zu Rohren lediglich von einem beschleunigten Sauerstofftransport entlang steilerer Konzentrationsgradienten unter einseitiger Oxidation verursacht wird. Bei doppelseitiger Oxidation werden die Konzentrationsgradienten flacher, sobald sich die Diffusionsfronten von beiden Seiten überlagern. Als weitere Ursache käme ein Chargeinfluß in Frage.

## 2.4 Langzeitstandversuche in Gasmischungen Argon-Dampf

Um den Einfluß der Oxidation unter Dampfangelbedingungen auf die mechanischen Eigenschaften des Zy-4 zu studieren, wurden Berstversuche in zwei verschiedenen Dampf-Argon-Gemischen durchgeführt. Als Mischungsverhältnisse Dampf/Argon wurden gewählt: 5,5/1000 und 27/1000.

### 2.4.1 Versuchsdurchführung

Die Probe wird in das argongespülte Reaktionsrohr des Ofens geschoben und abgewartet, bis sie 1000 °C erreicht hat. Dann wird die Gasmischung eingeleitet, der Druck erst dann aufgegeben, wenn das Gas die Kapsel erreicht hat. Der Berstdruck, die Berstzeit und die maximale Umfangsdehnung werden so wie bereits erwähnt gemessen.

### 2.4.2 Versuchsergebnisse

Die entsprechenden Berstdaten sind in den Tab. 4 und 5 zusammengefaßt. Die Berstdrucke sind in Abb. 22, die Berstdehnungen in Abb. 23 gegen die Standzeit aufgetragen. Hinsichtlich der Oxidationskinetik sind qualitativ ähnliche Verhältnisse wie in Abb. 12 gezeigt anzunehmen.

Die metallographische Auswertung hat gezeigt, daß die Kapseln, die in der Gasmischung Argon/Dampf 1000/5,5 ml/min beansprucht worden sind, sehr unregelmäßig oxidiert sind; da das Dampfangebot zu niedrig ist, kann keine gleichmäßige Oxidschicht gebildet werden sondern können nur oxidierte Flecken entstehen. Die Struktur, die deswegen inhomogen ist, zeigt eine verminderte Festigkeit im Vergleich zu den Proben, die bei ausreichendem Dampfangebot und in Gasmischung Argon/Dampf 1000/27 ml/min oxidiert worden sind (Abb. 22), und die durch eine gleichmäßige, feste Außenschicht geschützt sind. Mit zunehmender Oxidation und Ungleichmäßigkeit der Struktur nimmt erwartungsgemäß die Berstdehnung ab.

Die Oxid- und  $\alpha$ -Zr(o)-Schichten der Kapseln, die in der Gasmischung Argon/Dampf = 1000/27 ml/min über längere Versuchszeiten geprüft worden sind, sind am gleichmäßigsten ausgebildet. Diese Oxidschichten zeigen zahlreiche, feine Anrisse in regelmäßigen Abständen (Abb. 27). Die Kapseln sind auf der gesamten Länge ver-



formt, während in den anderen Atmosphären die Verformung auf die Berststelle konzentriert ist und eine kurze Beule entsteht (Abb. 28). Nach 10 min Standzeit nimmt die Umfangsdehnung bis zum Bruch wieder zu, wie es bei Versuchen in ausreichendem Dampfangebot schon beobachtet worden ist. Die Lokalisierung der Dehnung auf die Stellen, an denen die Oxidschicht aufgerissen ist, war oben bereits als Ursache der geringeren Dehnung oxidierten Materials diskutiert worden. Unter der betrachteten Atmosphäre schreitet das Aufreißen der Oxidschicht über längere Versuchszeiten weiter fort. Zusätzliche Risse bilden sich durch das Auftreten des Breakaway Effektes. Bei zunehmender Anzahl von Rissen steigt die Berstdehnung mit der Standzeit an.

Die für diese Atmosphäre beobachtete gleichmäßigere Verformung der Kapseln über ihre gesamte Länge konnte bisher noch nicht erklärt werden. Es muß angenommen werden, daß das Dampfangebot ausreichend war, um eine gleichmäßige Oxidation über die gesamte Probe zu erlauben und andererseits gering genug war, um eine lokale Überhitzung durch die rasch fortschreitende exotherme Reaktion zu verhindern. Bei der betrachteten Atmosphäre hat sich offenbar eine sehr gleichmäßige Oxidation und Dehnungsverteilung über die Länge der Proben ergeben. Letzteres kann dazu führen, daß sich bei einem entsprechenden Unfall stärkere Kühlkanalblockaden ergeben als unter den entsprechenden Bedingungen bei ausreichendem Dampfangebot.

### Literatur

- /1/ J.V.Cathcart et al.  
Zirconium Metal-Water Oxidation Kinetics IV. Reaction Rate Studies.  
ORNL/NUREG.17 (1977)
- /2/ T.Furuta, S.Kawasaki  
Reaction Behaviour of Zircaloy-4 in Steam Hydrogen Mixtures at High  
Temperature.  
J. Nucl. Mater. 105 (1982) 119-131
- /3/ H.M.Chung, G.R.Thomas  
High Temperature Oxidation of Zircaloy in Hydrogen-Steam Mixtures.  
Proceedings Sixth Internat. Conf. on Zirconium in the Nuclear Industry,  
Vancouver, Canada, June 28-July 1, 1982, ASTM-STP 824 (1984) 793-809

- /4/ S.Leistikow et al.  
Oxidationsverhalten von Zircaloy-Hüllrohren bei langsamen Transienten und schweren Kernschäden.  
PNS-Jahresbericht 1983, KfK 3450, Juni 1984, S. 4200-112 bis 4200-125
- /5/ G.Schanz, H.Uetsuka, S.Leistikow  
Investigations of Zircaloy-4 Cladding Oxidation Under Steam Starvation and Hydrogen Blanketing Conditions.  
Proc. Fifth Intern. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe, 9-13 September 1984 (to be published)
- /6/ H.Uetsuka  
Oxidation of Zircaloy-4 under Limited Steam Supply at 1000 and 1300 °C.  
KfK 3848, Dez. 1984
- /7/ S.Leistikow, G.Schanz, H.v.Berg, E.E.Aly  
Comprehensive Presentation of Extended Zircaloy-4 Steam Oxidation Results (600-1600 °C).  
Proc. OECD-NEA-CSNI/IAEA Meeting, Risø National Laboratory (Denmark), IAEA-Summary Report IWGFPT/16 (1983) 188-199
- /8/ S.Leistikow, G.Schanz  
High Temperature Oxidation of Zircaloy-4 Cladding Tubes in Steam (600-1600 °C).  
Proc. 9th Intern. Congr. on Met. Corrosion, Toronto, Canada, June 1984, Vol. III, p. 282-297 (1984)
- /9/ S.Leistikow, H.v.Berg, D.Jennert, R.Kraft, G.Schanz  
Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy-Hüllrohren.  
PNS-Halbjahresberichte  
2/1975: KfK 2262, 1/1976: KfK 2375, 2/1976: KfK 2425, 1/1977: KfK 2500, 1/1978: KfK 2700, 2/1978: KfK 2750
- /10/ S.Leistikow, R.Kraft  
Creep-Rupture Testing of Zircaloy-4 Tubing under Superimposed High Temperature Steam Oxidation at 900 °C.  
Proc. 6th European Congress on Metallic Corrosion, London, Sept. 1977, 577-584

- /11/ G.Schanz, S.Leistikow  
Microstructural Reasons for Mechanical Oxide Degradation (Breakaway Effect) and Resulting Kinetical Anomalies of Zircaloy-4 Steam High Temperature Oxidation.  
Proc. 8th Intern. Congr. Metallic Corrosion, Mainz, 6.-11.9.1981, Vol. II, 1712-1717
- /12/ D.M.Bradhurst, P.M.Heuer  
The Effects of Deformation on the High Temperature Steam Oxidation of Zircaloy-2.  
Journal Nucl. Mater. 55 (1975) 311-326

A t m o s p h ä r e			W a s s e r s t o f f g e h a l t (ppm) n a c h	
Ar (ml/min)	H <sub>2</sub> (ml/min)	H <sub>2</sub> O (ml/min)	R e a k t i o n s d a u e r	
			15 min	6 h
1000	-	46	10	810
"	-	5	130	230
"	-	0,3	40	100
"	100	50	20	140
"	100	7,3	2200	3600
"	100	0,5	9000	8500

Ursprünglicher Wasserstoffgehalt des Materials ca. 6 ppm

Tabelle 1: Wasserstoffgehalt gemäß Heißextraktionsanalyse nach Reaktion von Zircaloy-4 bei 800 °C in Abhängigkeit von der Atmosphäre und der Versuchsdauer

Innendruck (bar)	Standzeit	Max. Umfangs- dehnung (%)	Tangential - Spannung (N/mm <sup>2</sup> )	
			(Vers.-Beginn)	(Bruch)
7,9	35"	104	4,96	20,6
5,85	1'41"	110	3,6	16
4,55	5'24"	84	2,8	9,5
3,5	13'30"	84	2,1	7,3
2,7	37'50"	78	1,6	5,2
2,5	47'30"	54	1,5	3,6

Tabelle 2: Berstversuche bei 1000 °C in Argon

Innendruck (bar)	Standzeit	Max. Umfangs- dehnung (%)	Tangential - Spannung (N/mm <sup>2</sup> )	
			(Vers.-Beginn)	(Bruch)
20,25	14"	69	12,9	36,8
17,25	20"	90	11	39
13,25	30"	104	8,4	35
9,5	1'05"	63	6,0	16
8,75	1'08"	69	5,5	15,7
10,25	1'30"	42	6,5	13
8,4	1'35"	54	5,3	12,5
7,9	2'	54	4,9	11,8
7,2	7'22"	3,6	4,5	4,8
7,5	10'	12	4,7	5,9
6,95	46'50"	24	4,36	6,7
6,25	1h53'	21	3,9	5,72
6,1	1h54'	33	3,8	6,74
5,9	2h31'	36	3,7	6,81
7,45	t <sub>B</sub> >3h	)	( kein Bersten innerhalb von 3 Stunden	
5,75	t <sub>B</sub> >3h	)		

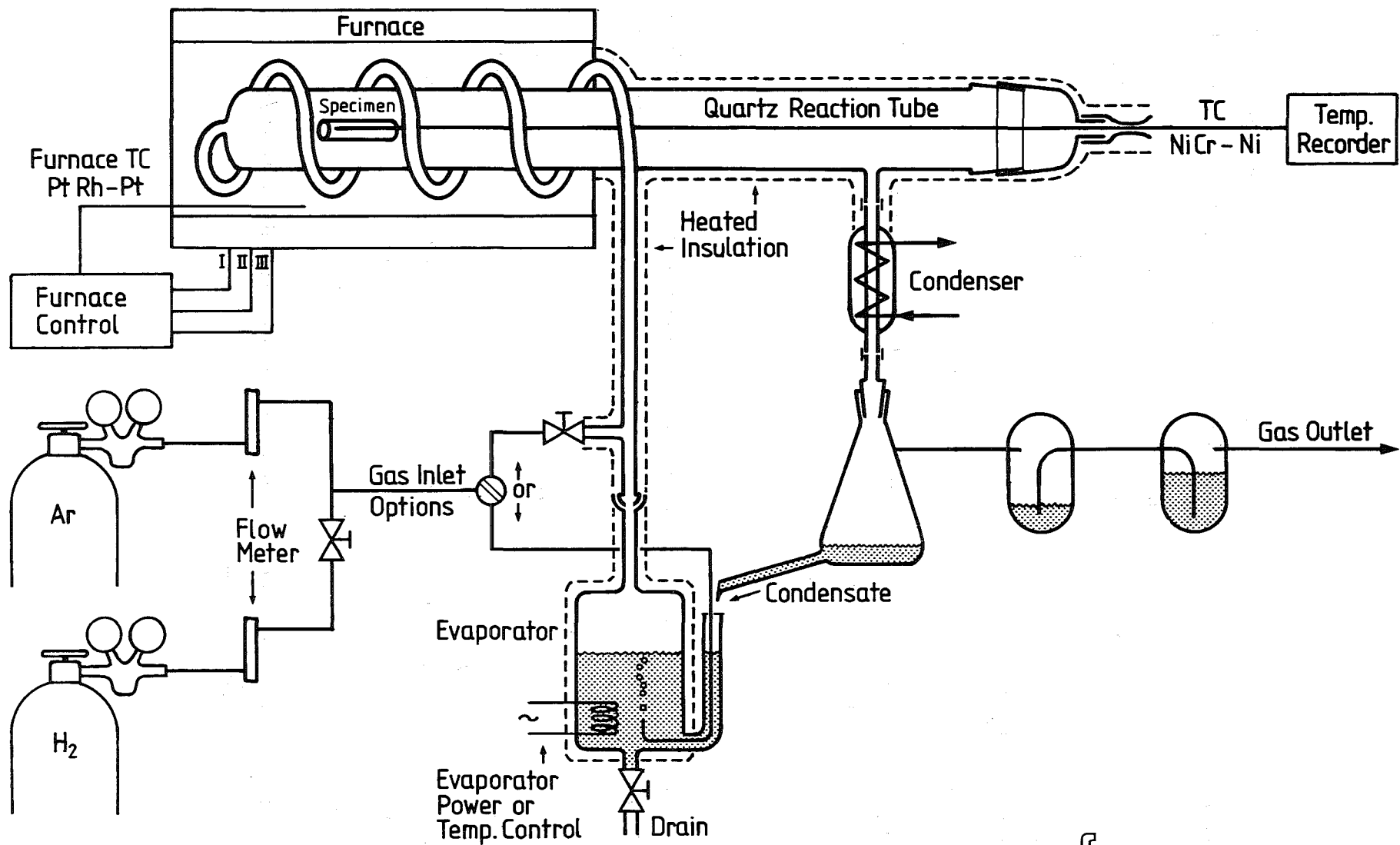
Tabelle 3: Berstversuche bei 1000 °C in ausreichendem Dampfangebot

Innendruck (bar)	Standzeit	Max. Umfangs- dehnung (%)	Tangential - Spannung (N/mm <sup>2</sup> )	
			(Vers.-Beginn)	(Bruch)
6,9	1'10"	63	4,3	11,5
6	2'10"	39	3,7	7,2
5	5'	33	3,1	5,5
5	16'	18	3,1	4,3
4,85	t <sub>B</sub> >3h			

Tabelle 4: Berstversuche bei 1000 °C in dem Gasgemisch Argon/Dampf  
1000/5,5 ml/min

Innendruck (bar)	Standzeit	Max. Umfangs- dehnung (%)	Tangential - Spannung (N/mm <sup>2</sup> )	
			(Vers.-Beginn)	(Bruch)
9,5	19"	45	6,0	12,6
7,8	1'02"	42	4,9	9,9
7,1	4'38"	39	4,4	8,6
6,6	26'	47	4,1	8,9
6,2	32'42"	48	3,9	8,5
5,9	1h12'12"	69	3,7	10,5

Tabelle 5: Berstversuche bei 1000 °C in dem Gasgemisch Argon/Dampf  
1000/27 ml/min



- 4200-48 -

Abb. 1



Apparatus for Reaction Experiments under Mixed Atmospheres of Steam and Gases



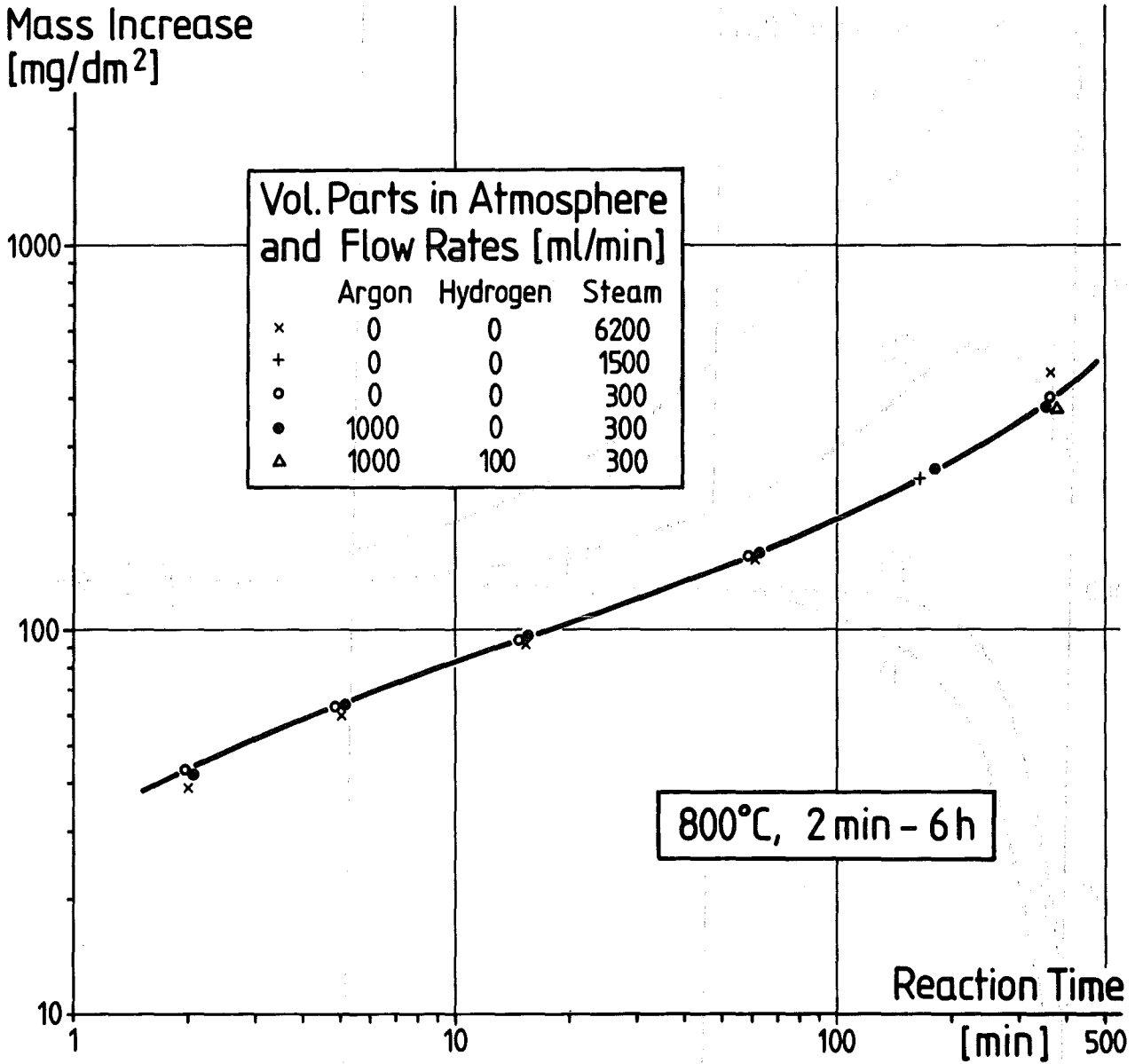


Abb. 2

Time Dependence of Zircaloy-4 Oxidation for unlimited Steam Supply, Independent of Argon and Hydrogen Additions

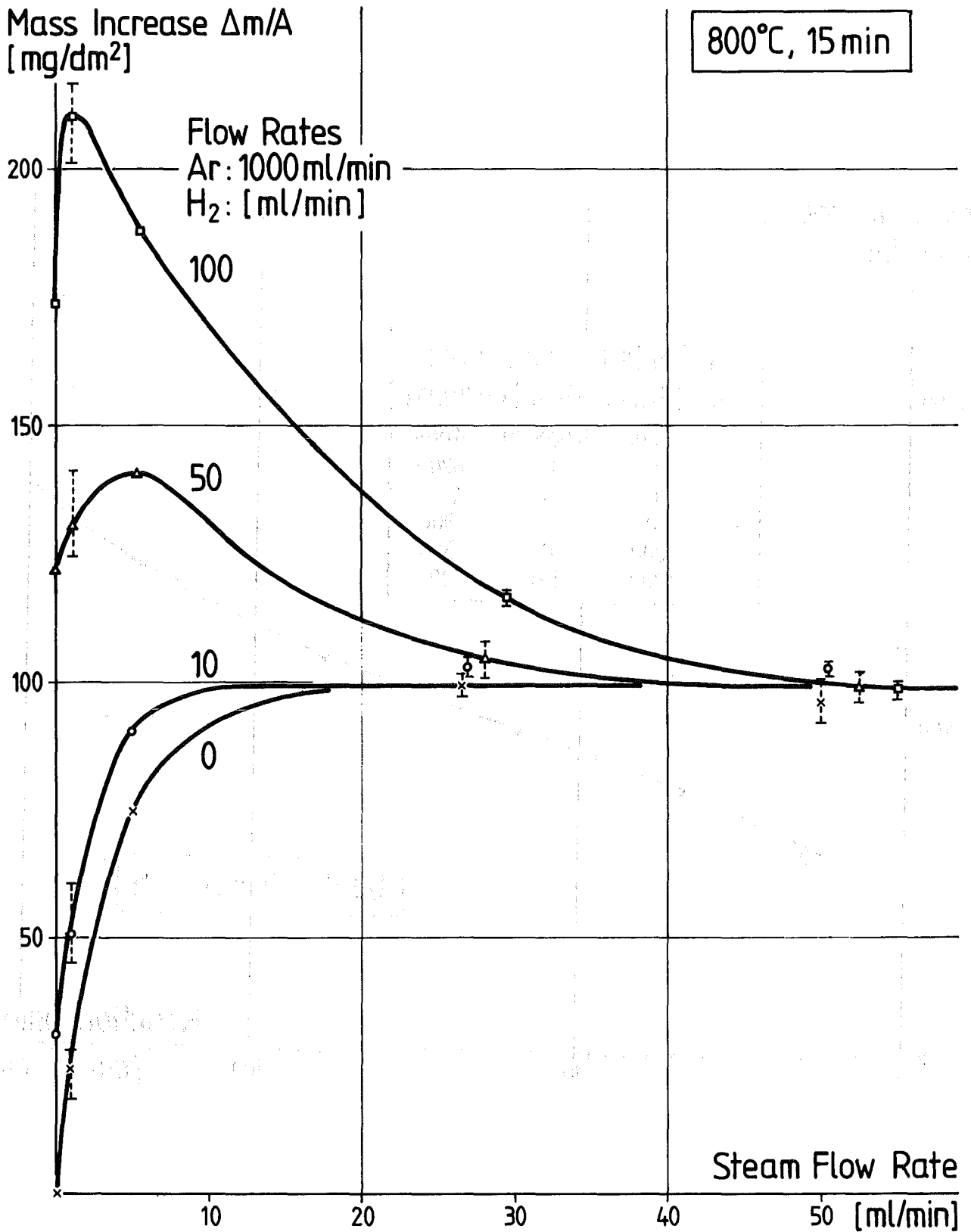


Abb. 3



Zircaloy-4 Reaction Kinetics under simulated Steam Starvation and Hydrogen Blanketing Conditions; Mass Increase in Mixtures of Argon, Hydrogen, and Steam

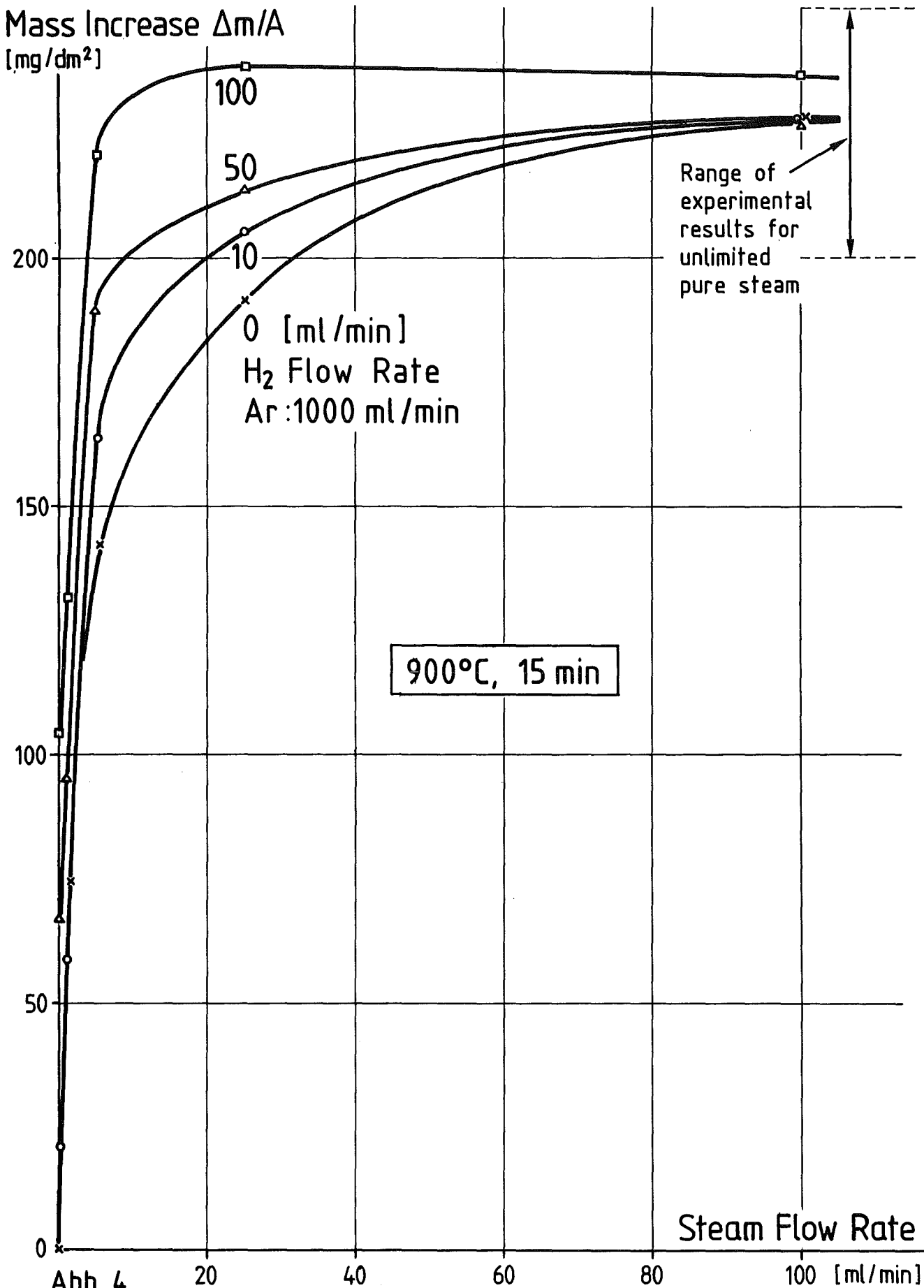


Abb. 4  
Mass Increase of Zircaloy-4 as Function of Steam Flow Rate ( 900°C, 15 min, Argon/Hydrogen/Steam Mixtures )

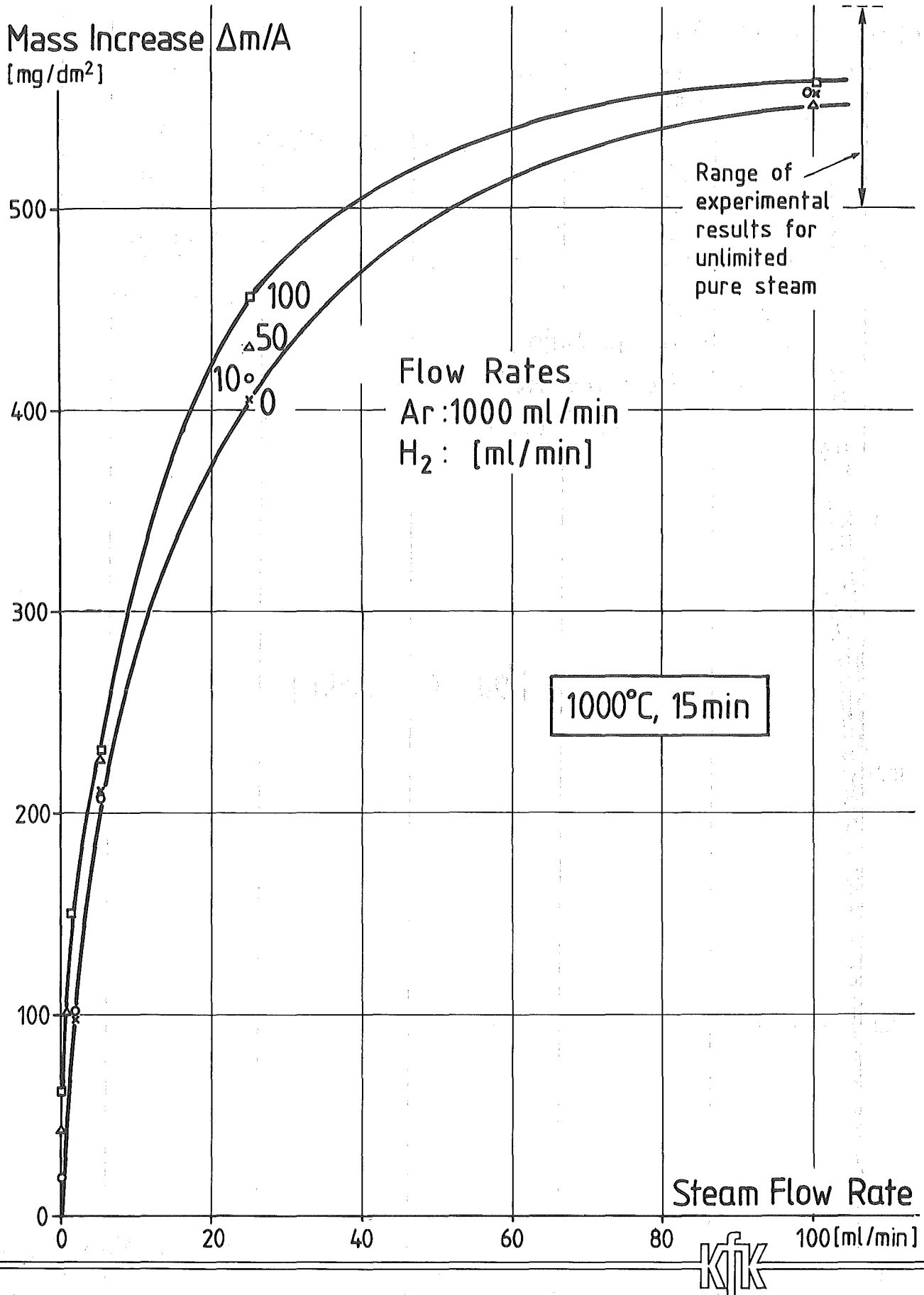


Abb. 5

Mass Increase of Zircaloy-4 as Function of Steam Flow Rate ( 1000°C, 15 min, Argon/Hydrogen/Steam Mixtures )

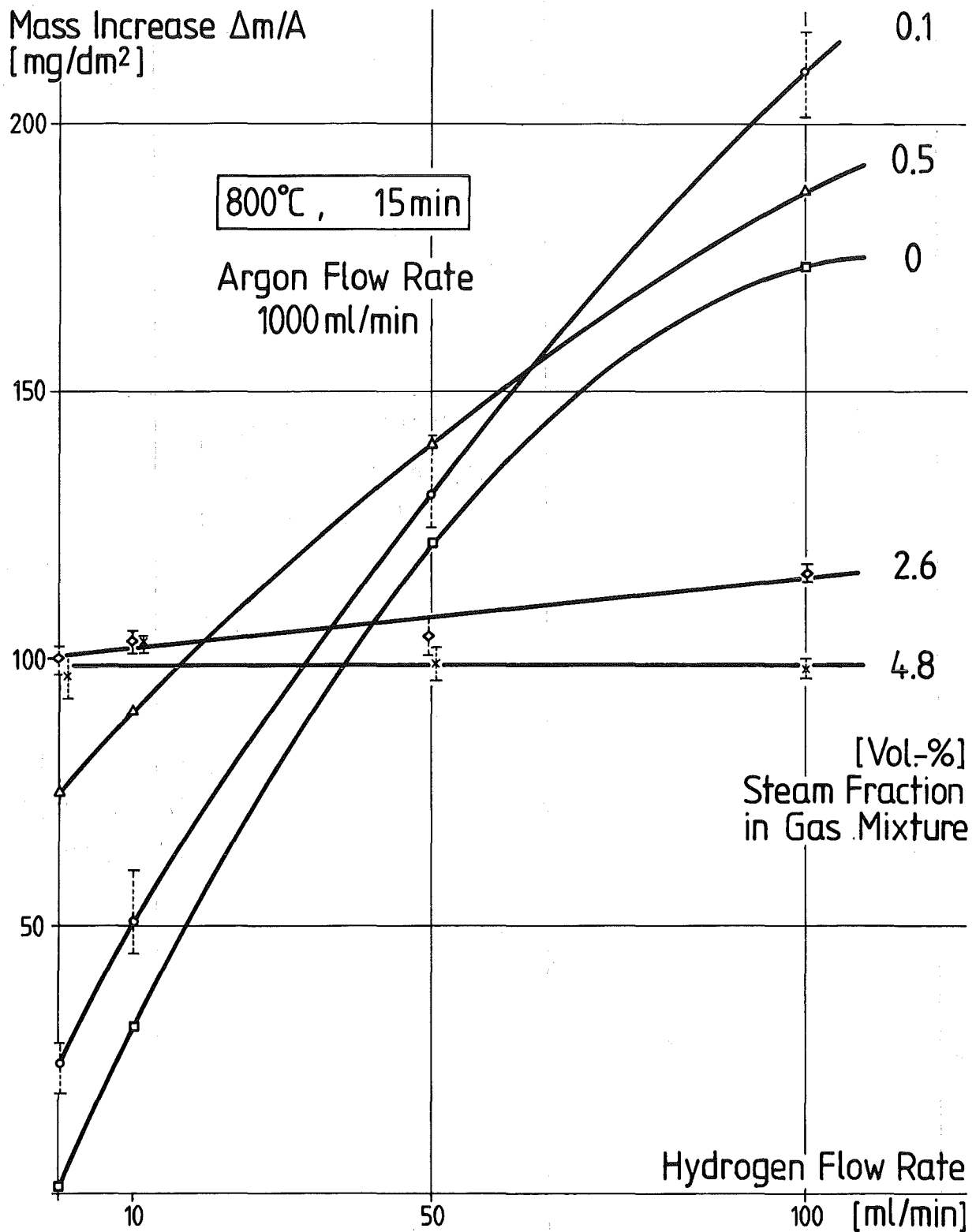


Abb. 6



Zircaloy-4 Reaction Kinetics under simulated Steam Starvation and Hydrogen Blanketing Conditions; Mass Increase in Mixtures of Argon, Hydrogen, and Steam

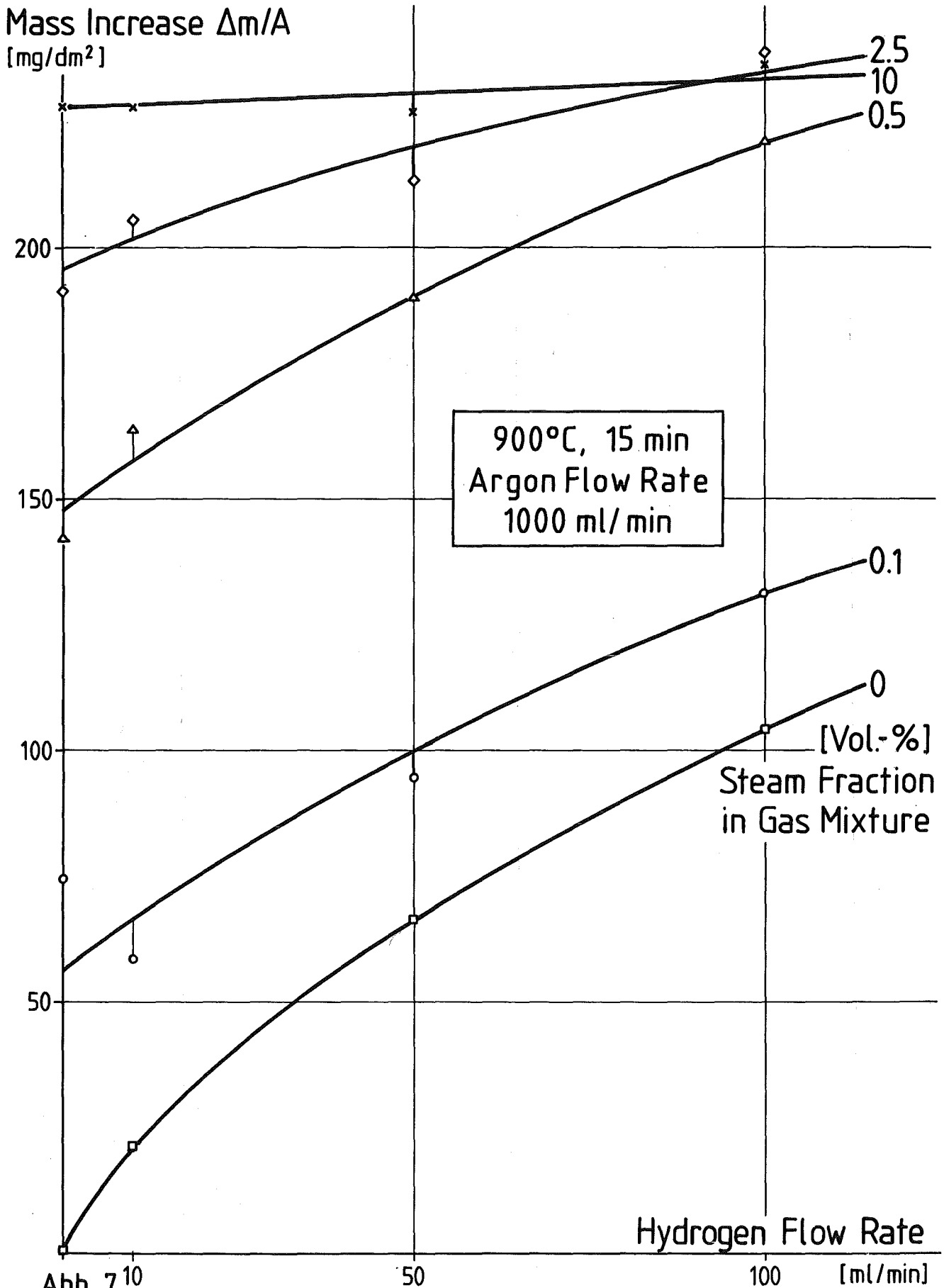


Abb. 7 10

Mass Increase of Zircaloy-4 as Function of Hydrogen Flow Rate ( 900°C, 15 min, Argon/Hydrogen/Steam Mixtures )

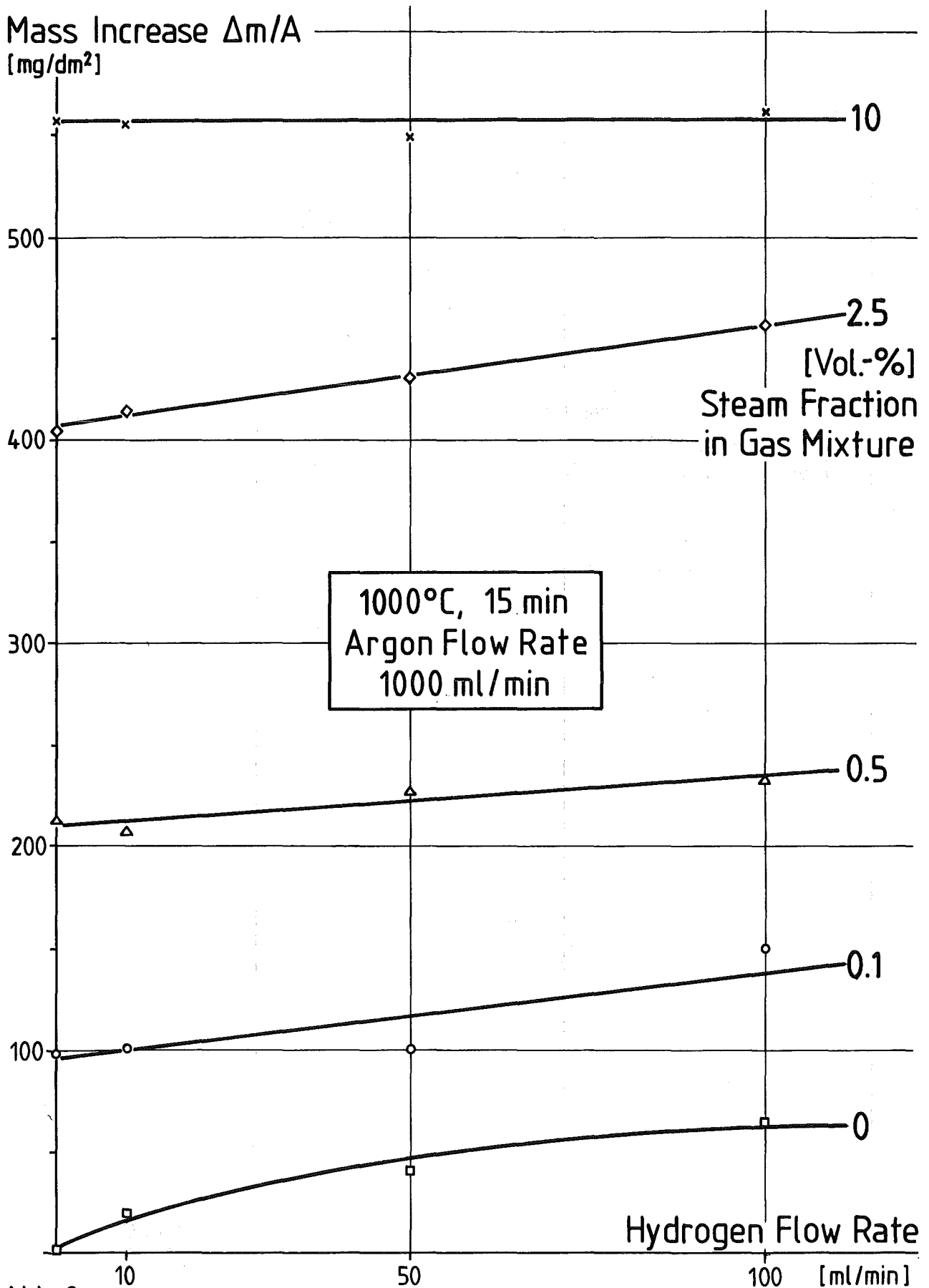


Abb. 8

Mass Increase of Zircaloy-4 as Function of Hydrogen Flow Rate ( 1000°C, 15 min, Argon/Hydrogen/Steam Mixtures )

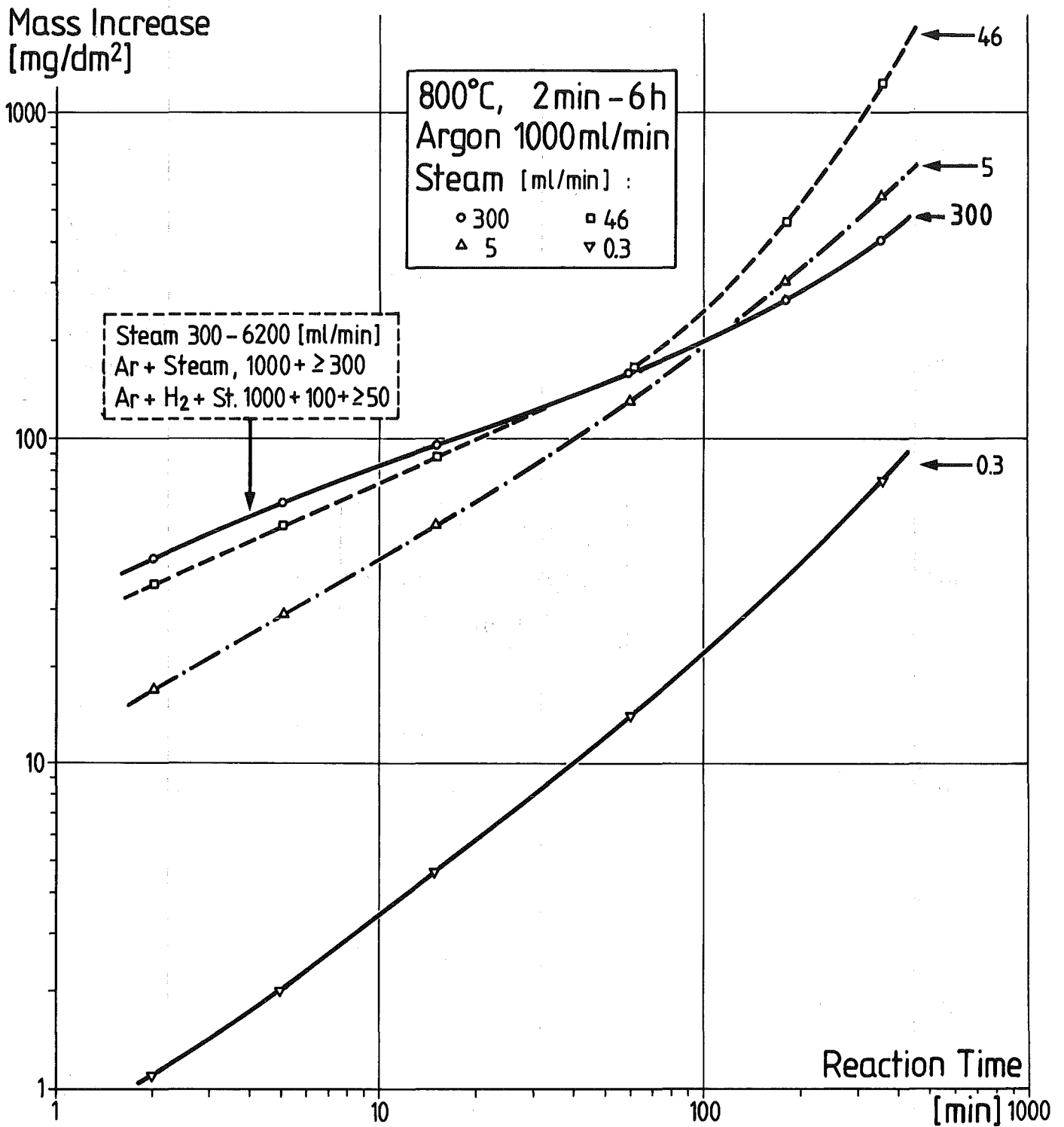


Abb. 9



Time Dependence of Zircaloy-4 Reaction in Mixtures of Argon + Steam



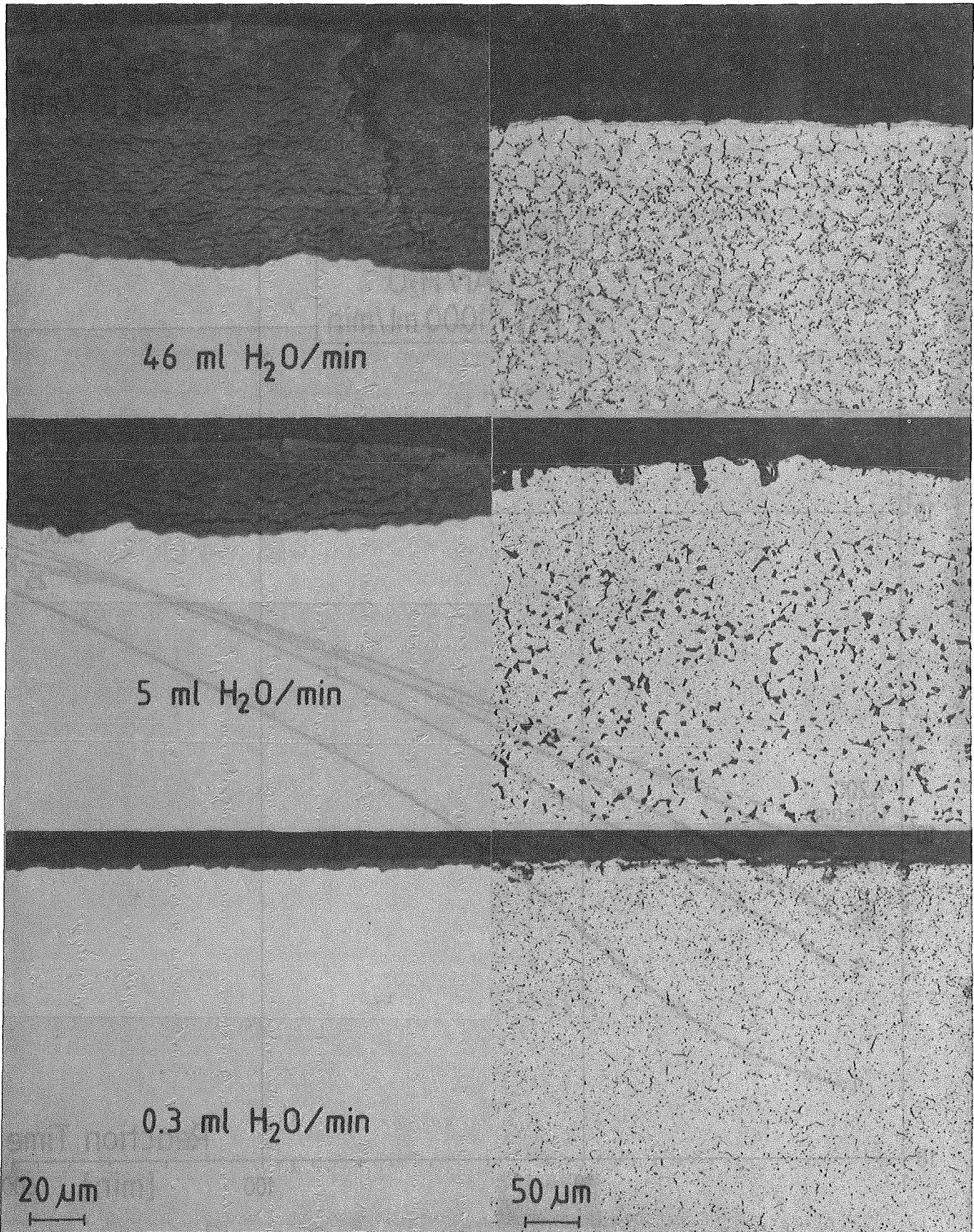


Abb. 10

Zircaloy-4 Reaction in Mixtures of Argon and Steam.  
Influence of Steam Supply Rate on Scale and Microstructure.  
800°C-6h, 1000Ar+H<sub>2</sub>O (ml/min)

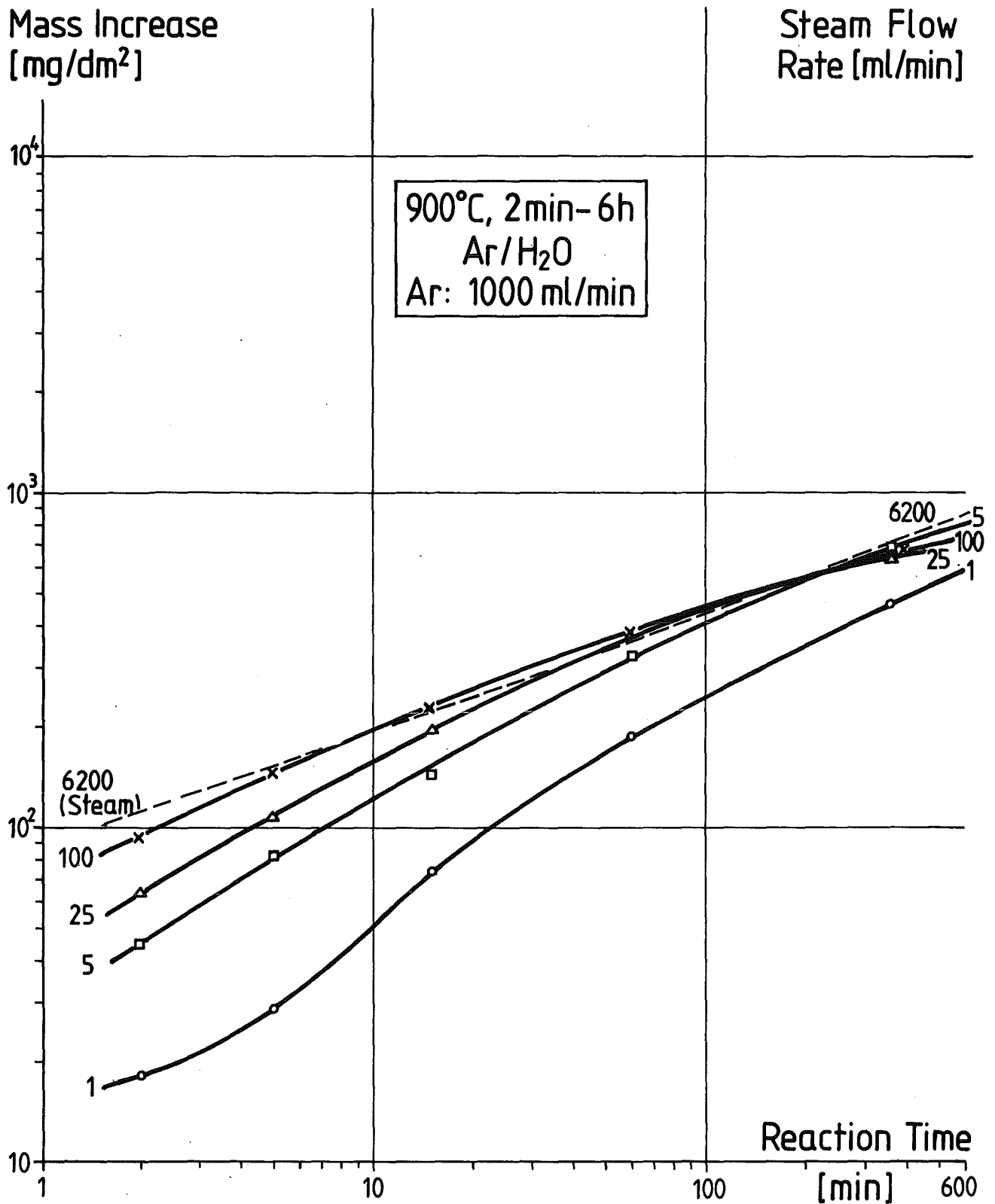


Abb. 11

Time Dependence of Zircaloy-4 Reaction in Mixtures of Argon and Steam (900°C, 2 min - 6 h)

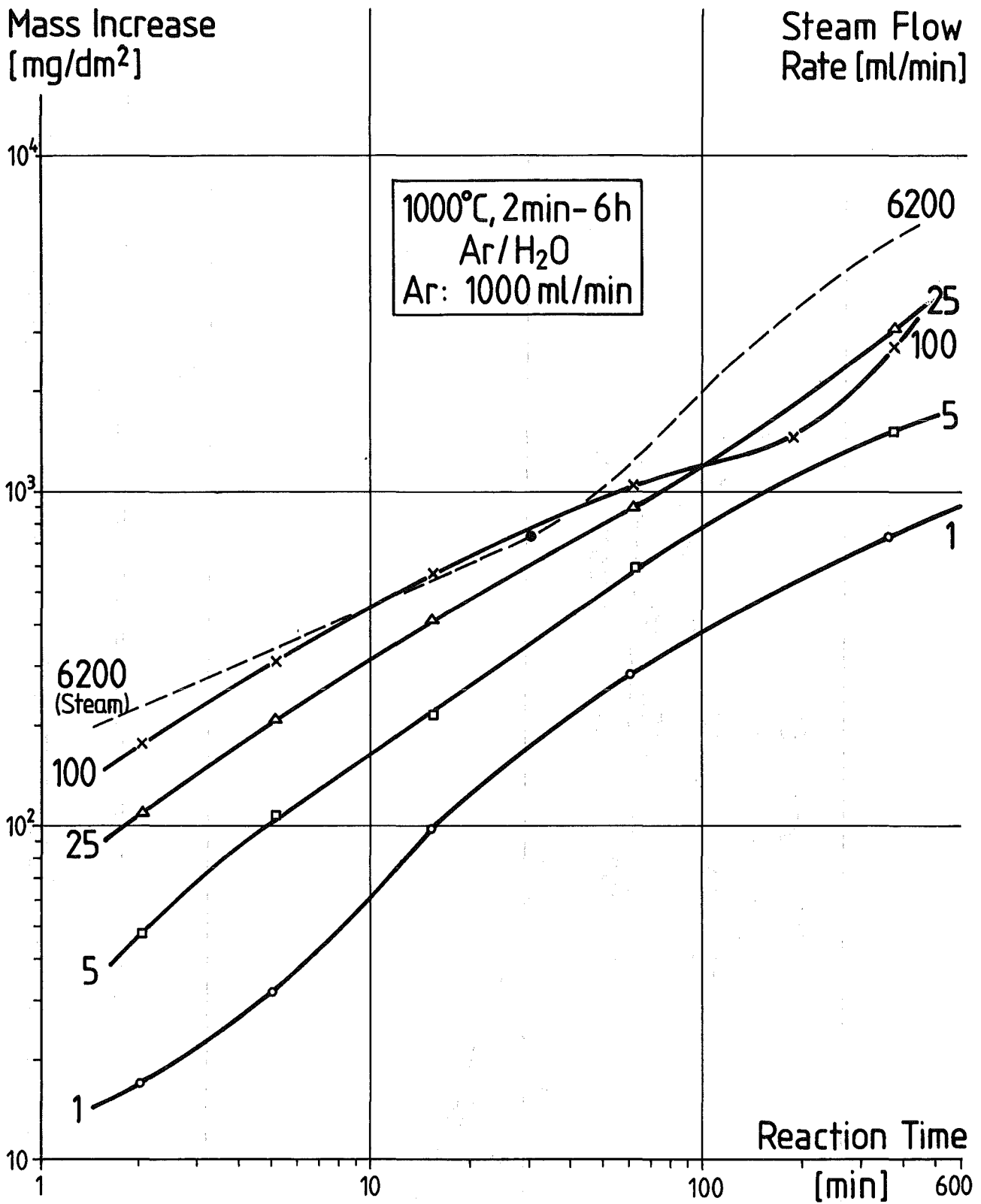
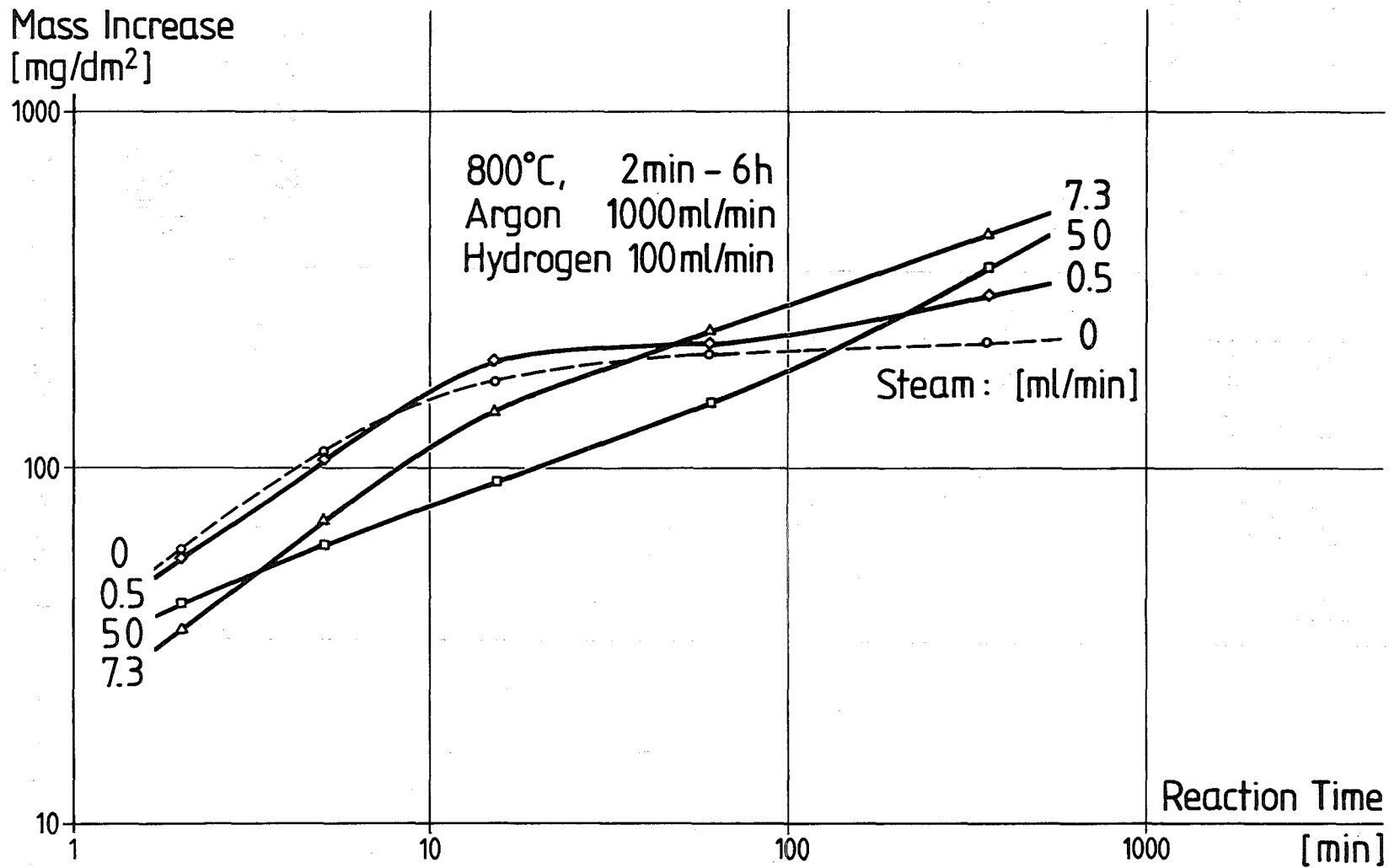


Abb. 12

Time Dependence of Zircaloy-4 Reaction in Mixtures of Argon and Steam (1000°C, 2 min - 6 h)



- 4200-60 -



Abb. 13

Time Dependence of Zircaloy-4 Reaction in Mixtures of Argon, Hydrogen, and Steam



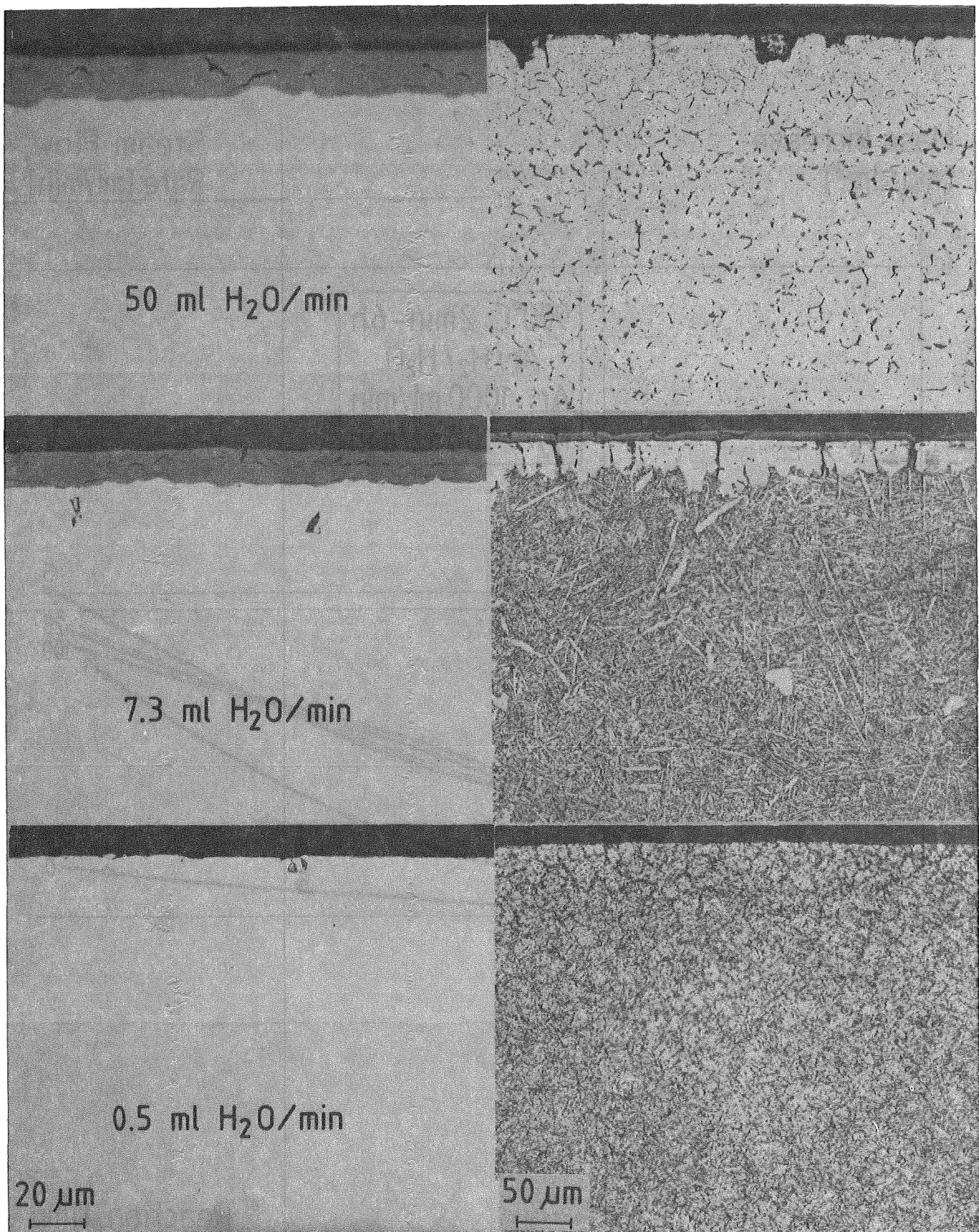


Abb. 14

Zircaloy-4 Reaction in Mixtures of Argon, Hydrogen, and Steam.  
Influence of Steam Supply Rate on Scale and Microstructure.  
800°C-6h, 1000Ar+100H<sub>2</sub>+H<sub>2</sub>O (ml/min)

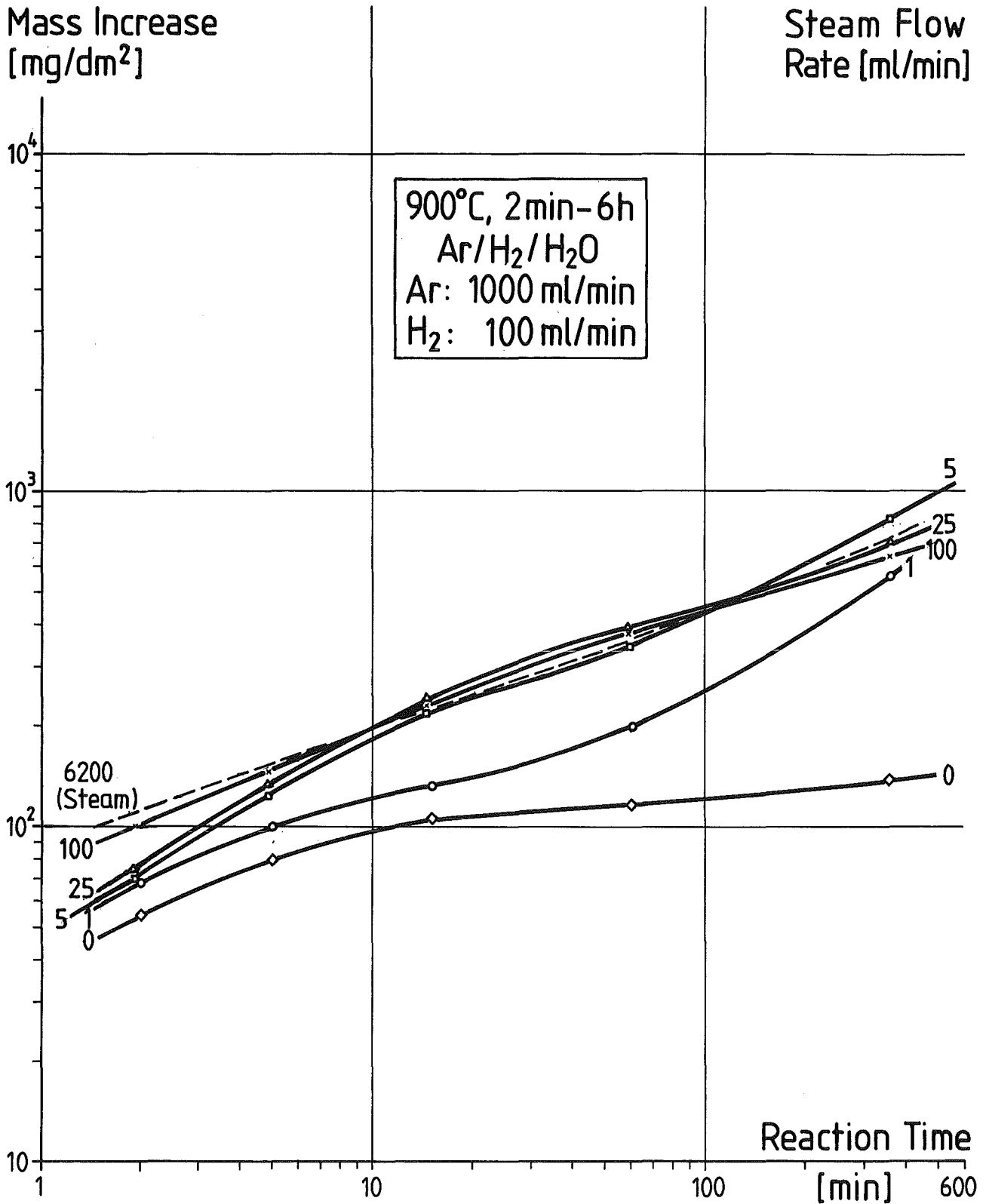


Abb. 15

Time Dependence of Zircaloy-4 Reaction in Mixtures of Argon, Hydrogen, and Steam (900°C, 2 min - 6 h)

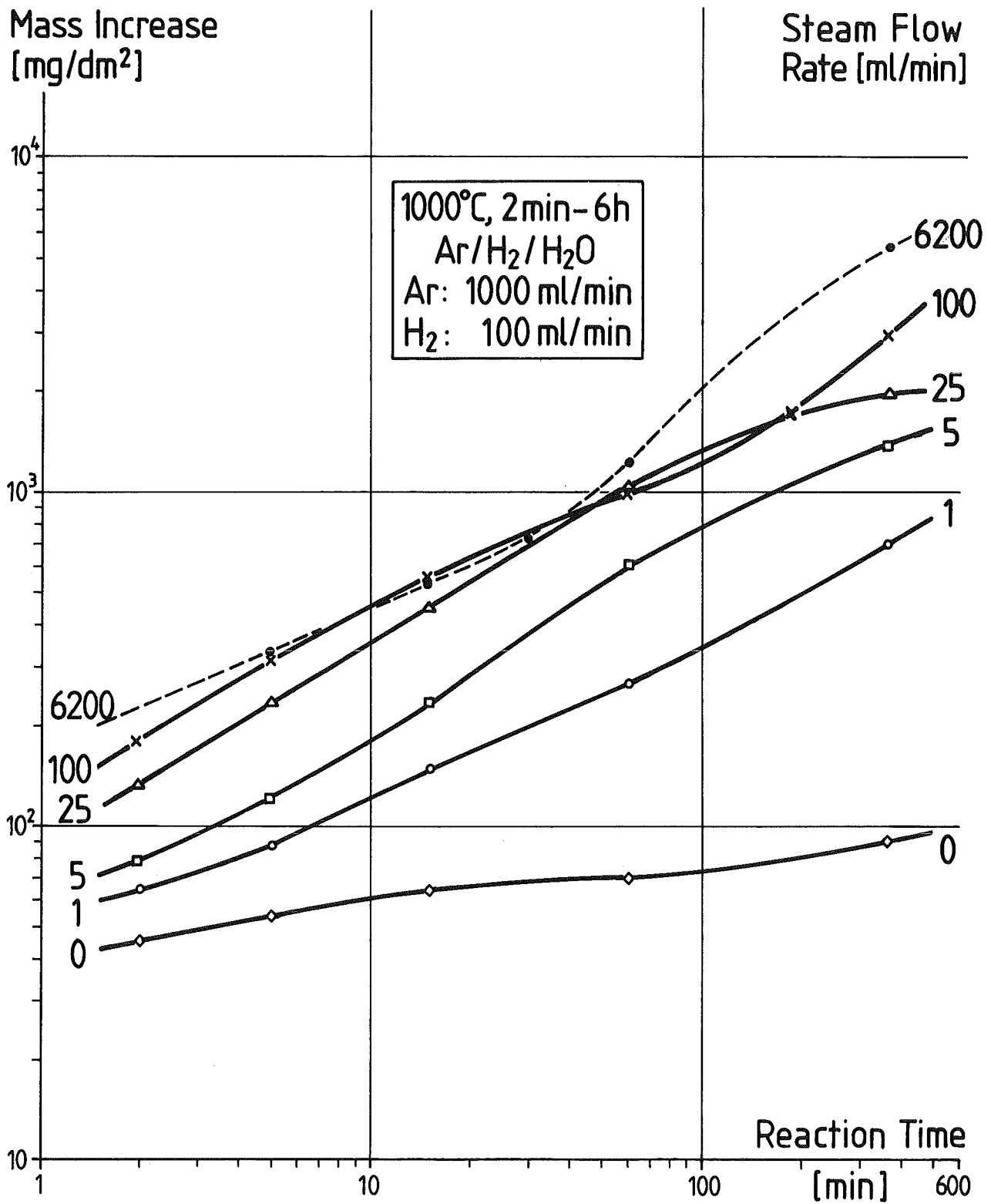
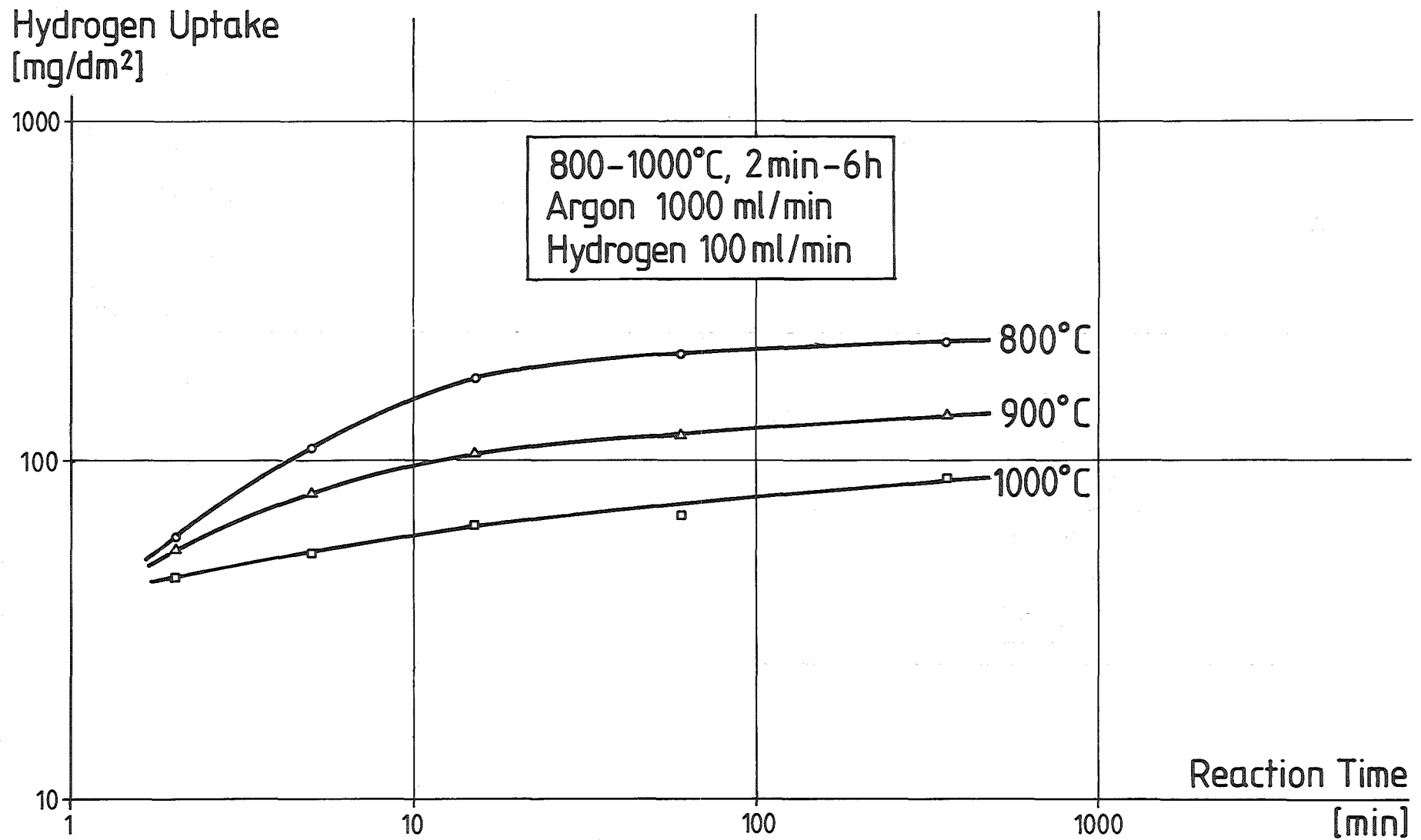


Abb. 16

Time Dependence of Zircaloy-4 Reaction in Mixtures of Argon, Hydrogen, and Steam (1000°C, 2min-6h)



- 4200-64 -



Abb. 17

Kinetics of Hydrogen Uptake of Zircaloy-4 by Reaction in Hydrogen-Argon Mixture



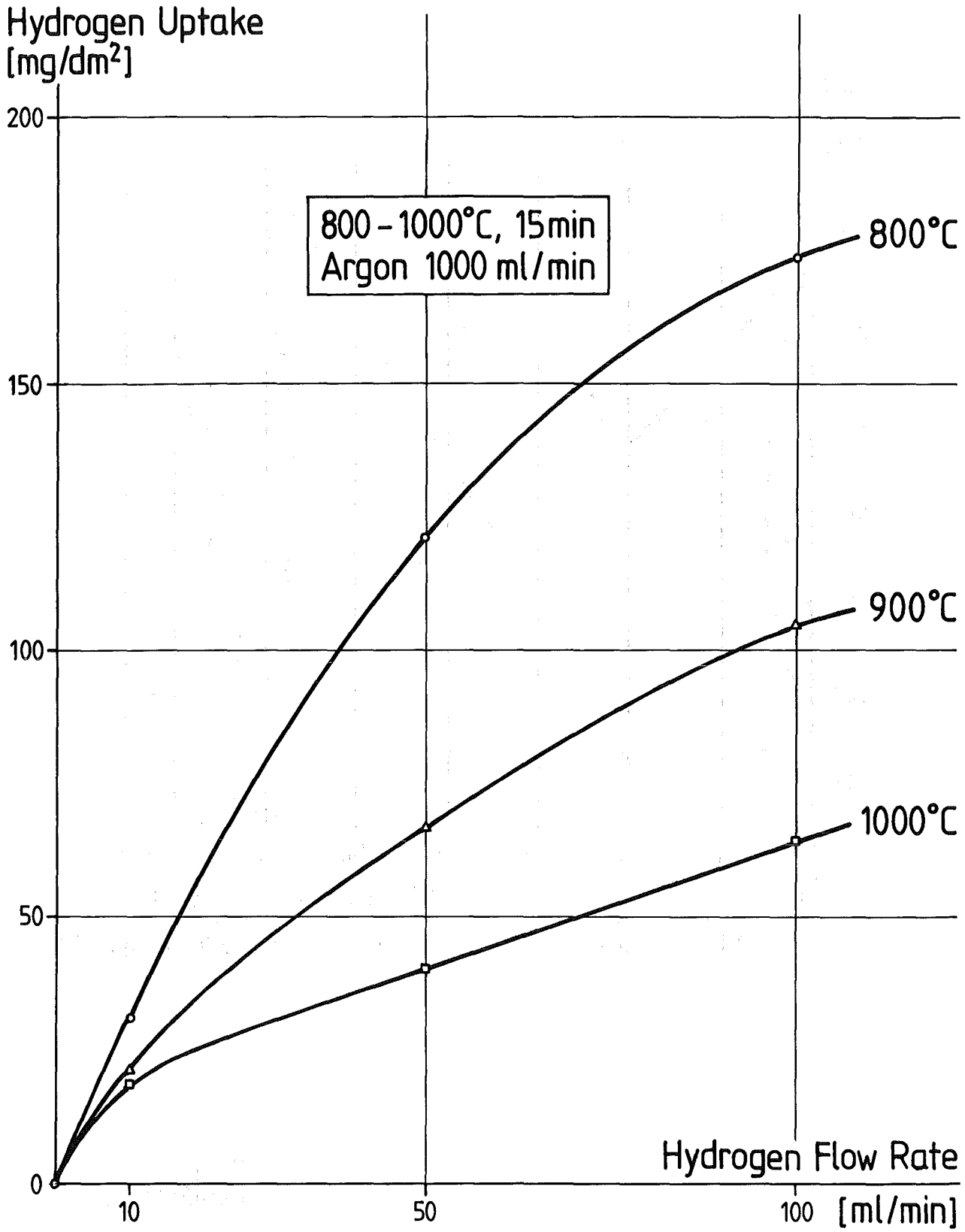


Abb. 18

Hydrogen Uptake of Zircaloy-4 in Hydrogen-Argon Mixtures

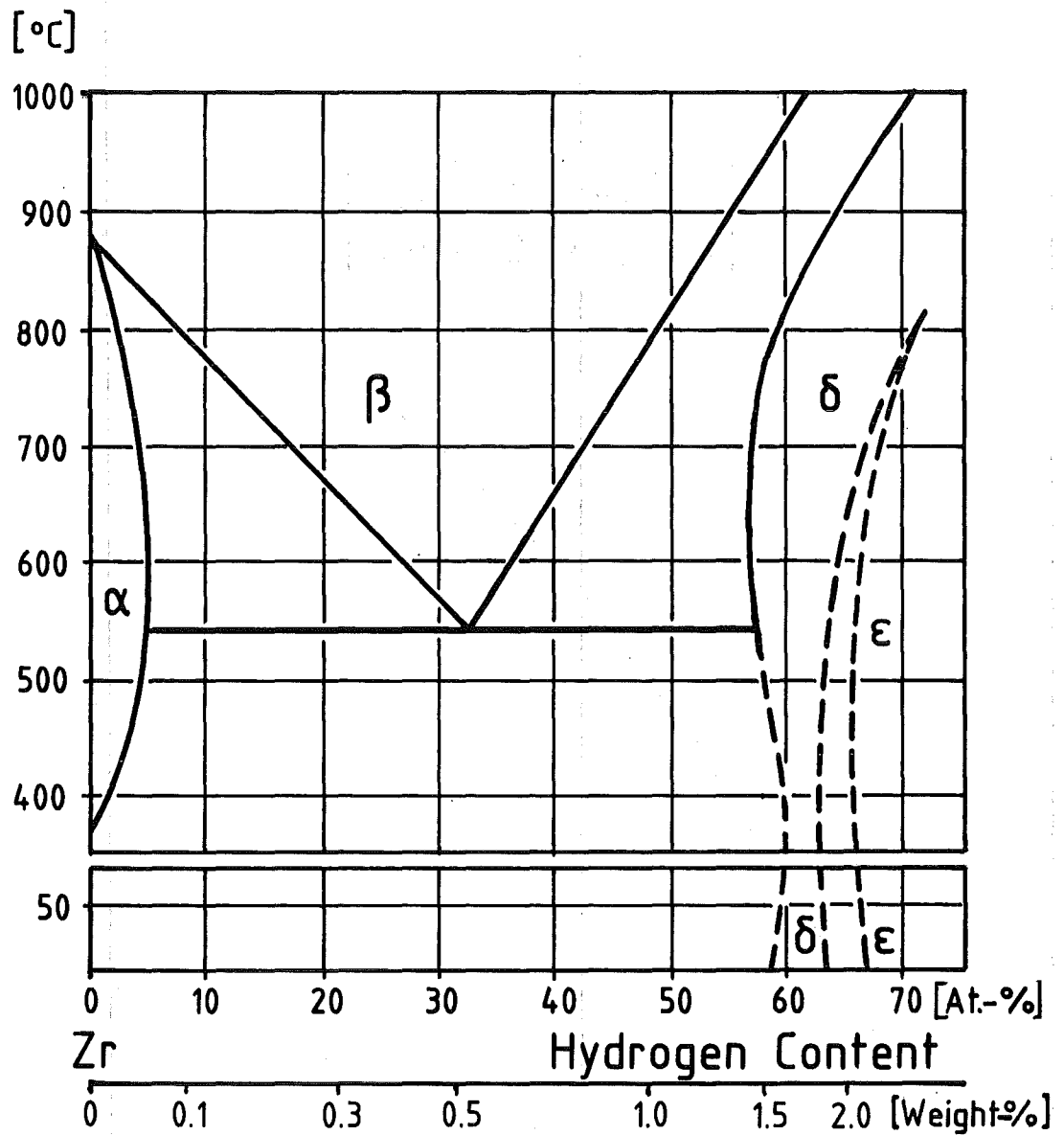
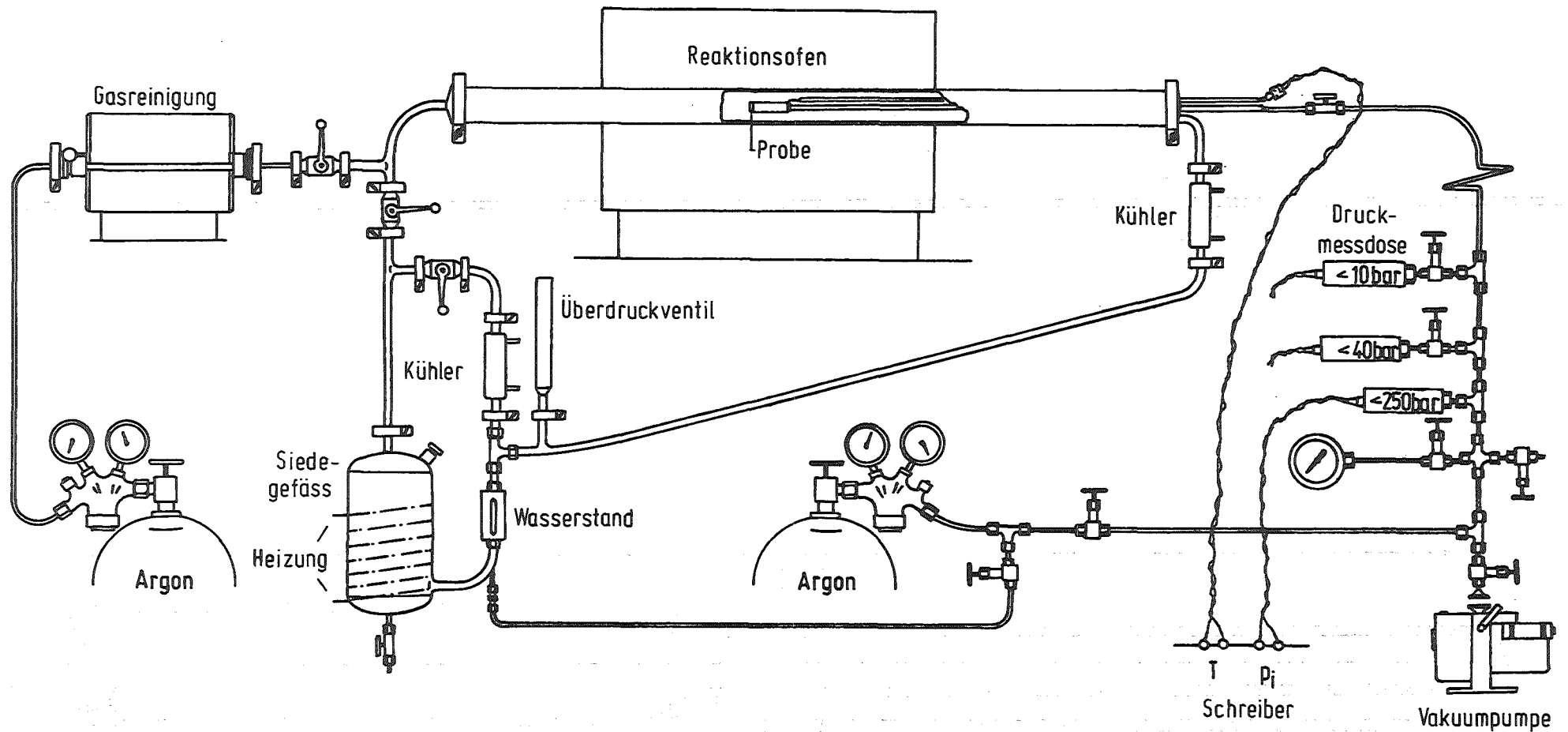


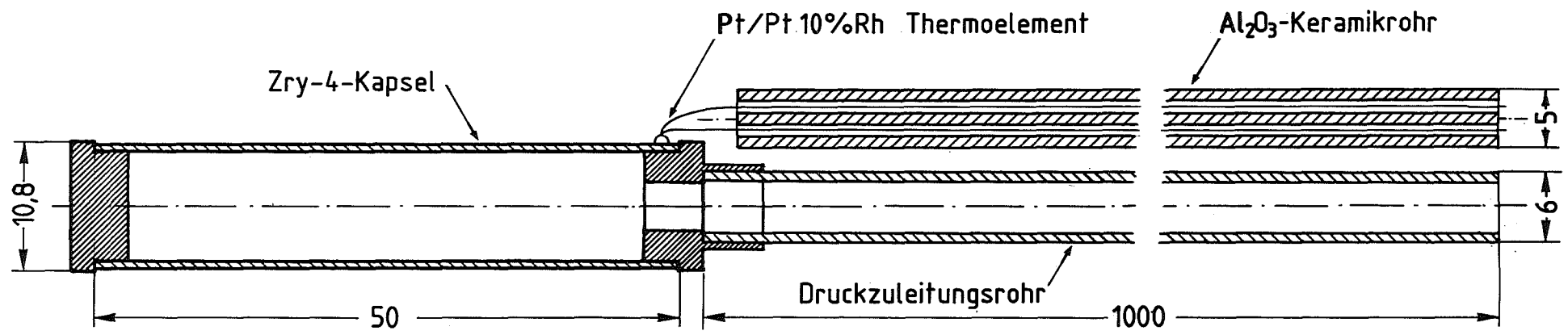
Abb. 19  
Zirconium-Hydrogen Phase Diagram



- 4200-67 -

Abb. 20

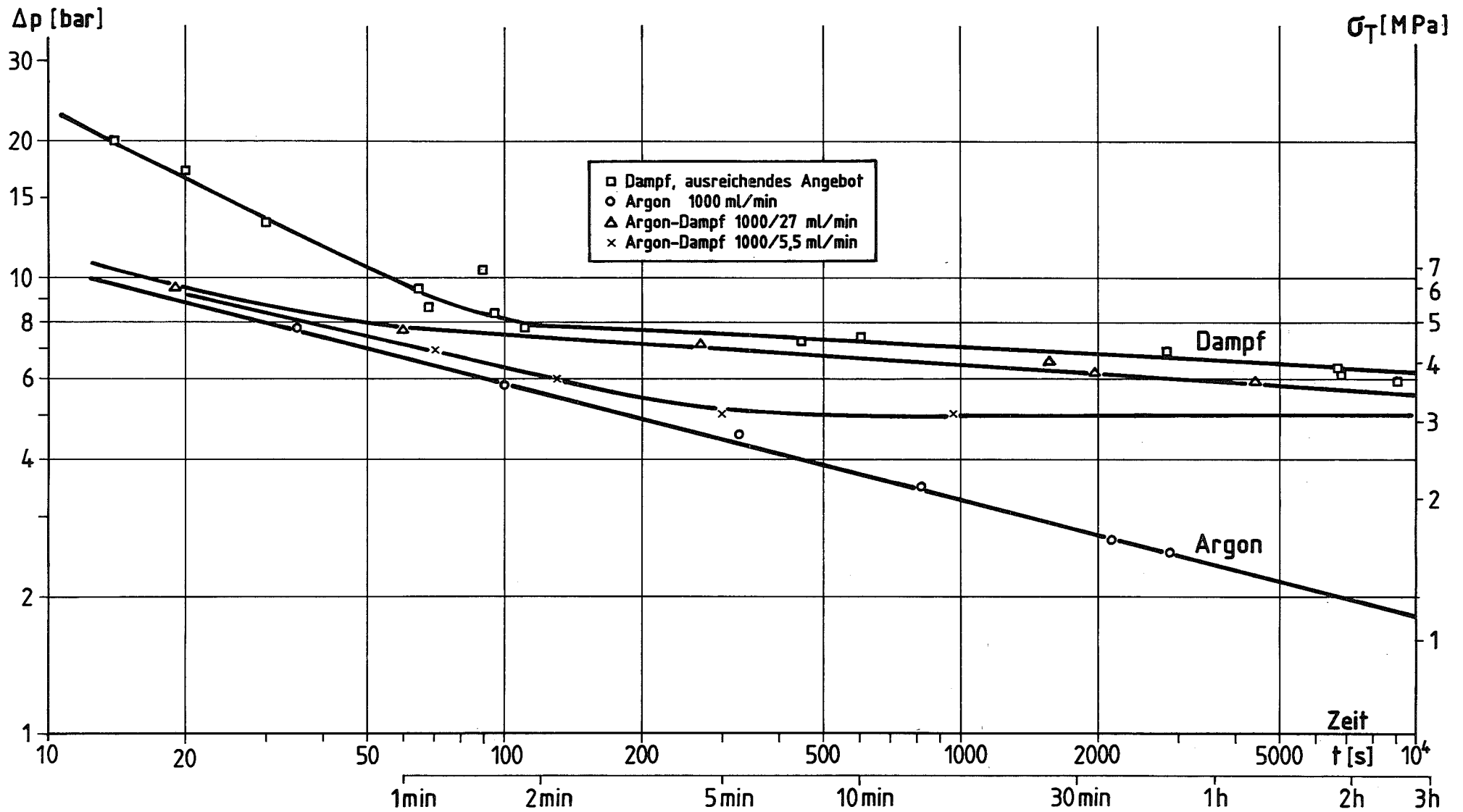
Prüfstand für Rohrinnendruck-Kurzzeitstandversuche in Dampf und Argon



- 4200-68 -



Abb. 21 Rohrkapsel und Thermoelement

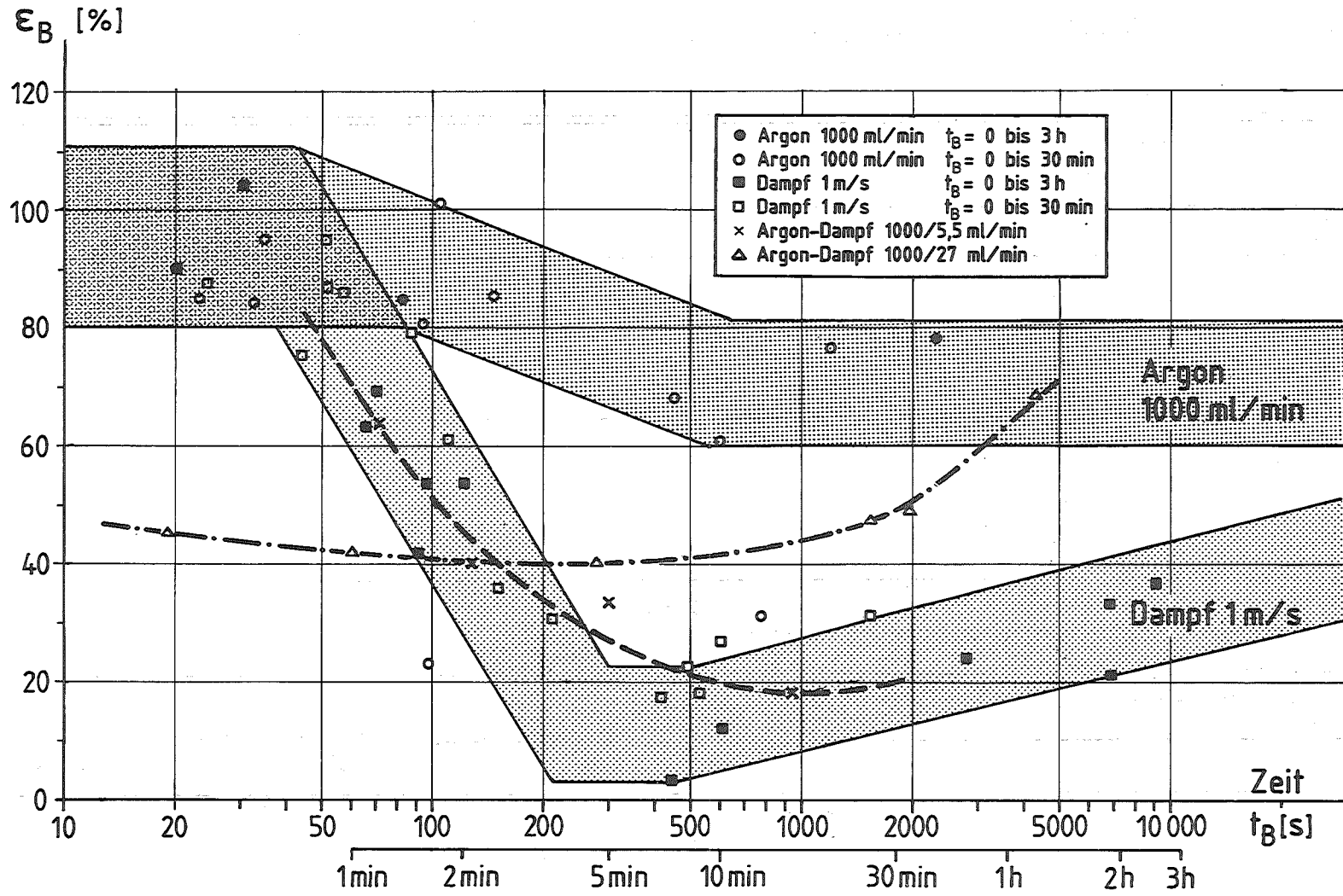


- 4200-69 -



Abb. 22

Rohrberstversuche bei 1000°C in Argon, Dampf und Argon-Dampf-Gemischen. Berstdruck als Funktion der Standzeit



- 4200-70 -

Abb. 23

Rohrberstversuche bei 1000°C in Argon, Dampf und in den Gemischen Argon-Dampf 1000/27 ml/min bzw. 1000/5,5 ml/min. Maximale Umfangsdehnung gegen Berstzeit.



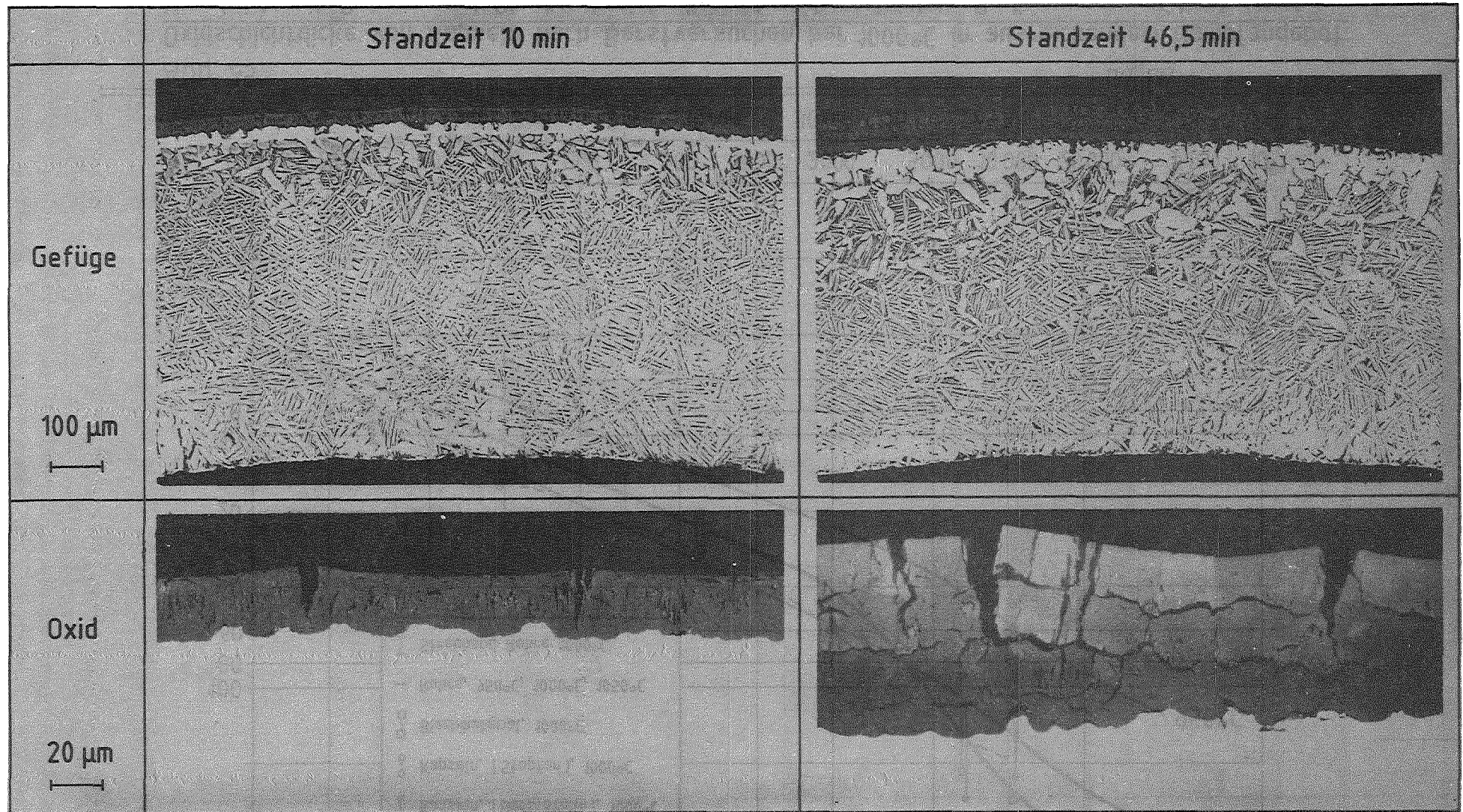


Abb. 24

Gefüge und Oxidschicht von Rohrkapseln nach Berstversuchen bei 1000°C in ausreichendem Dampfangebot

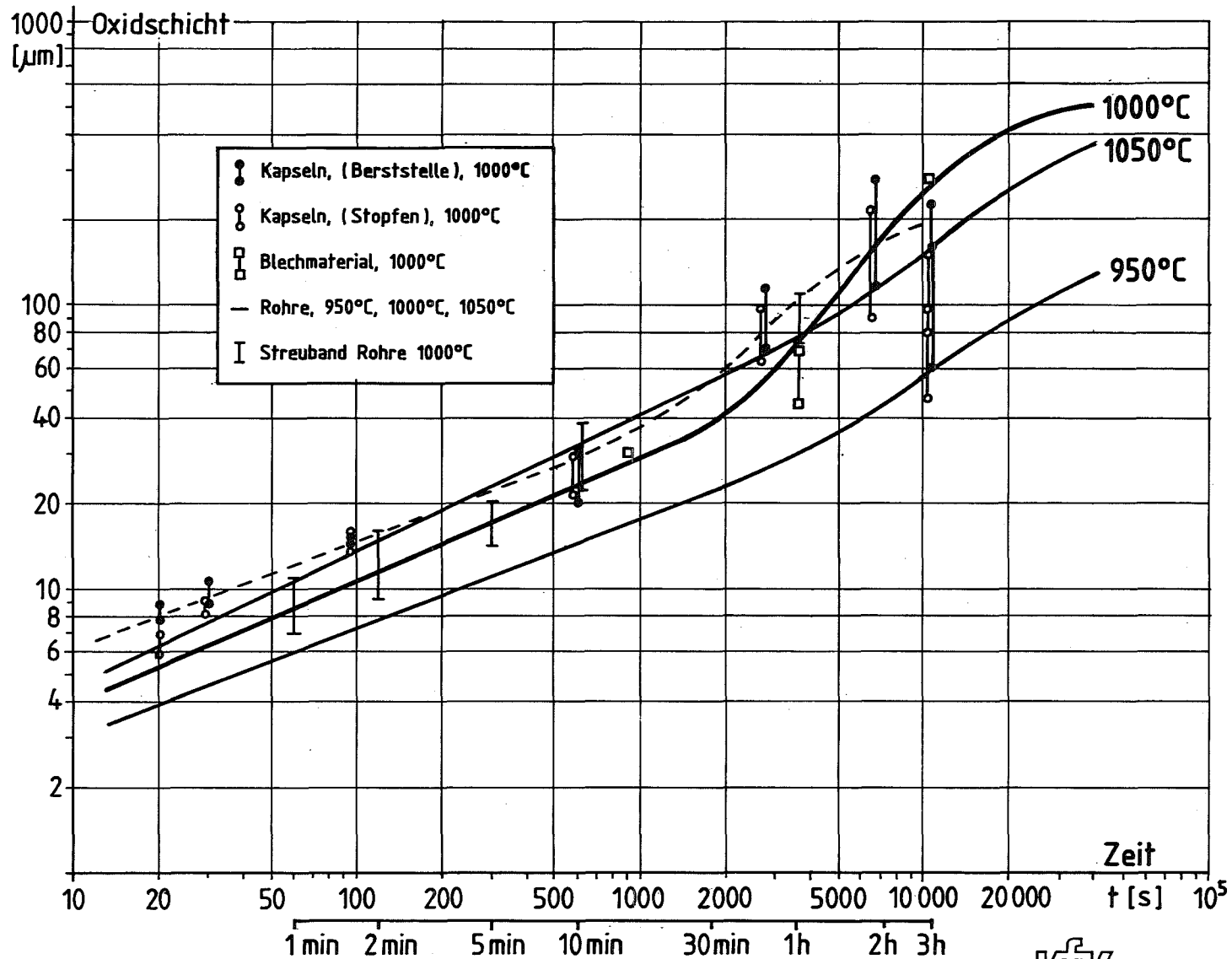


Abb. 25

Oxidschichtdicke von Kapseln nach Berstversuchen bei 1000°C in ausreichendem Dampfangebot  
Vergleich mit Rohren und Blechmaterial, die unter den gleichen Bedingungen oxidiert wurden.





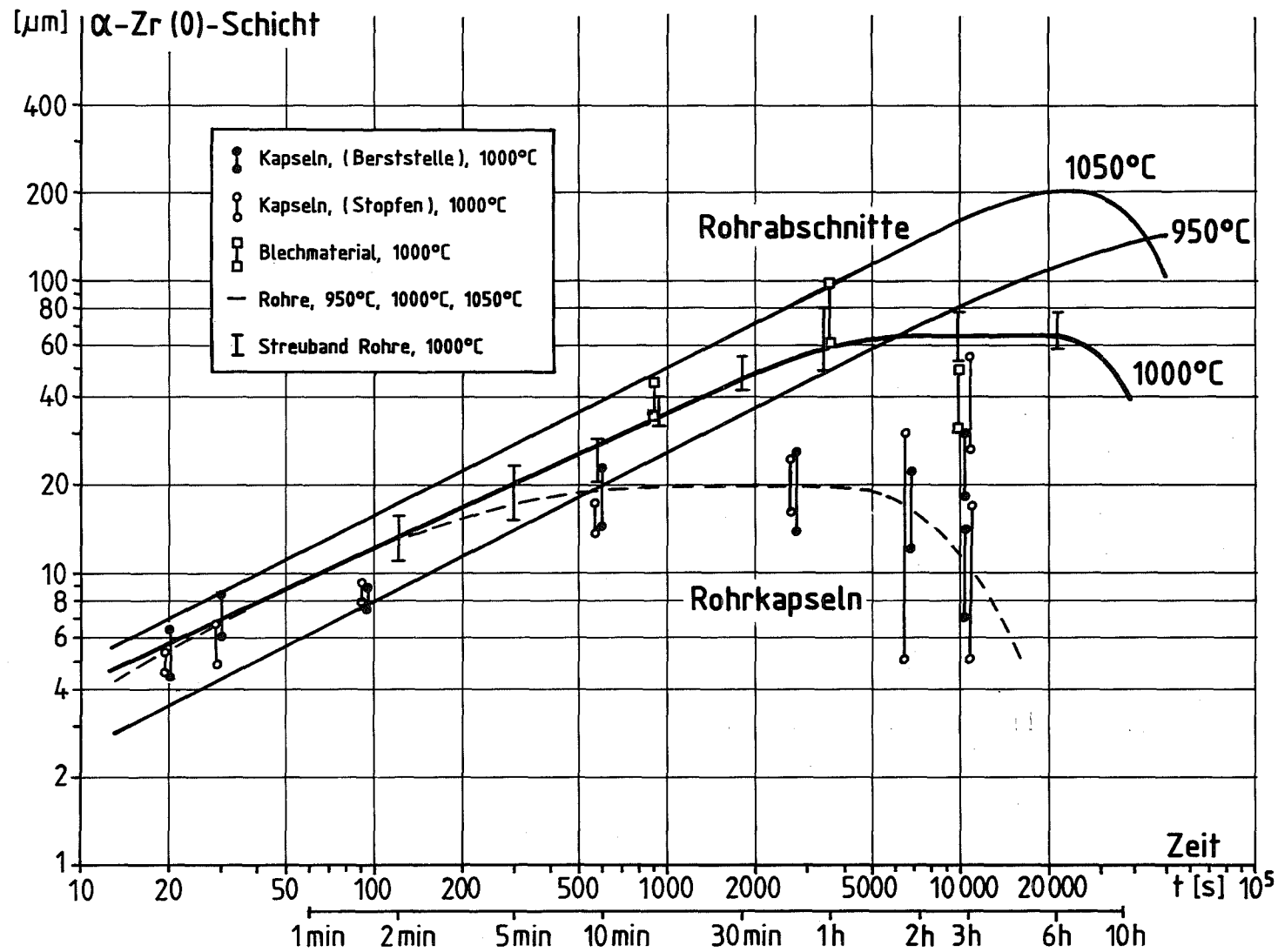


Abb. 26

$\alpha$ -Zr (0)-Schichtdicke von Kapseln im Vergleich zu Rohrabschnitten (950°C - 1050°C) in ausreichendem Dampfangebot



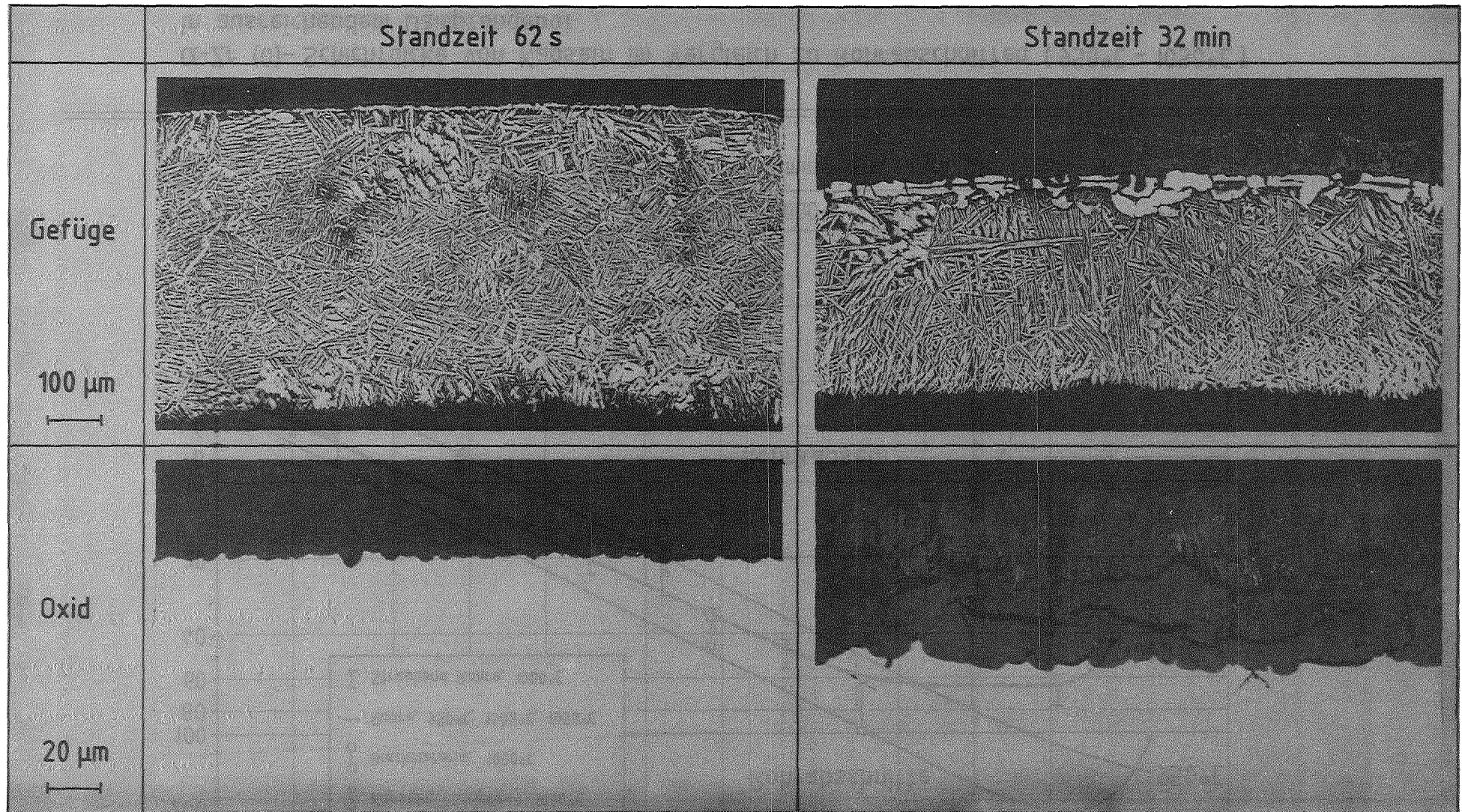


Abb. 27

Gefüge und Oxidschicht von Rohrkapseln nach Berstversuchen bei 1000°C im Gasmisch Argon-Dampf 1000/27



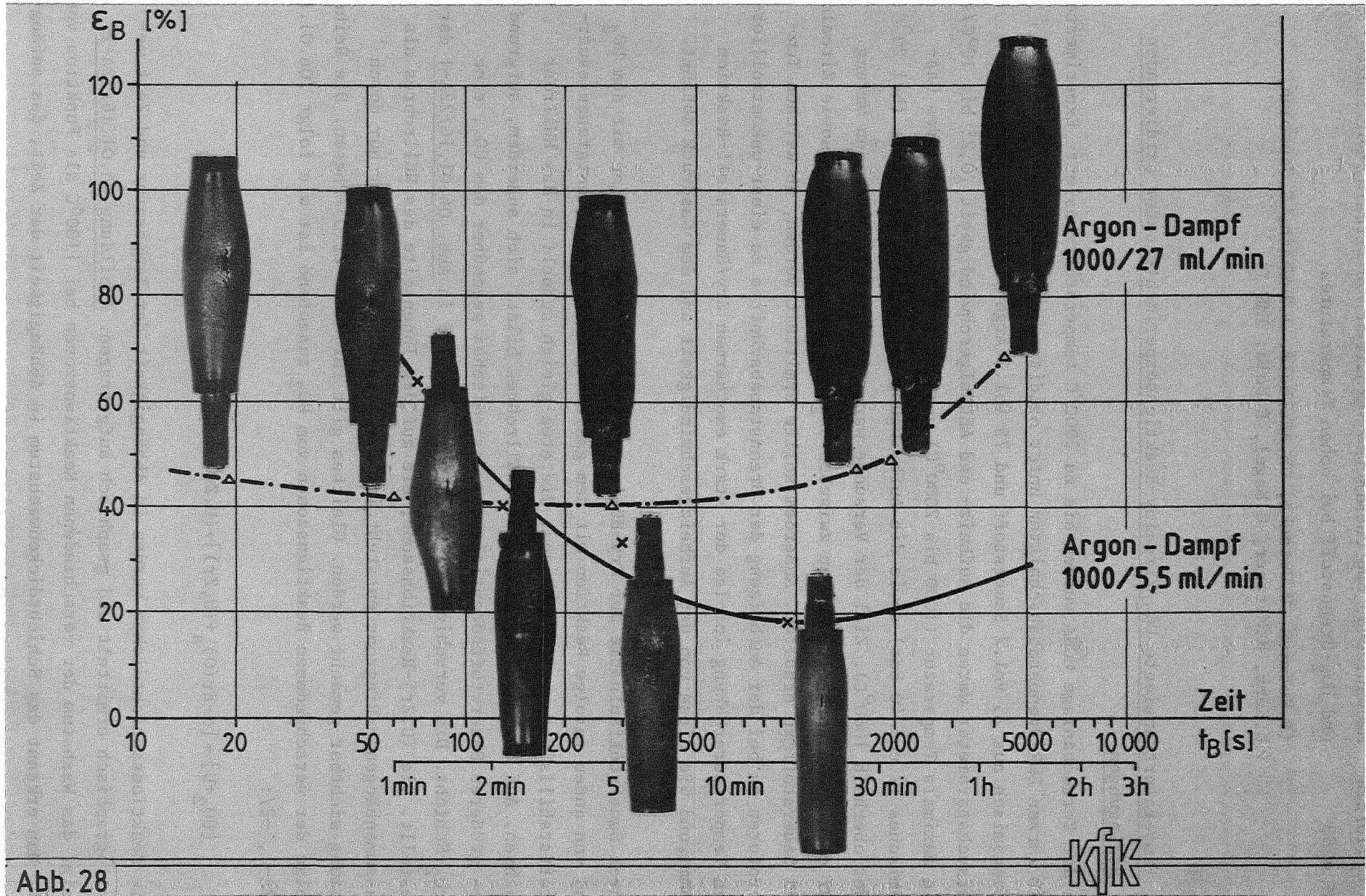


Abb. 28  
Rohrberstversuche bei 1000°C in den Argon-Dampf-Gemischen 1000/27 ml/min bzw. 1000/5,5 ml/min.  
Maximale Umfangsdehnung gegen Berstzeit.



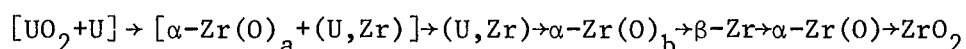
06.01.16/22A Mechanisches und chemisches Verhalten von Zircaloy-Hüllrohren  
PNS 4253 und  $\text{UO}_2$ -Brennstoff bei hohen Temperaturen

(P.Hofmann, H.Uetsuka, Ch.Adelhelm, J.Burbach, G.Gausmann,  
K.Kurz, H.Metzger, G.Nagel, E.Nold; IMF I)

### 1. Temperaturtransiente $\text{UO}_2$ /Zircaloy-Reaktionsexperimente unter oxidierenden Bedingungen

In der Versuchsanlage MONA wurden bis zu  $2000^\circ\text{C}$  temperaturtransiente Experimente mit kurzen LWR-Brennstababschnitten unter oxidierenden Versuchsbedingungen (Gasgemisch aus 25 Vol.% Sauerstoff und 75 Vol.% Argon) durchgeführt. Die Versuchsparameter waren die Aufheiz- und Abkühlgeschwindigkeit ( $0,25$  bis  $10^\circ\text{C/s}$ ), die maximale Temperatur ( $1000$  bis  $2000^\circ\text{C}$ ) und der äußere Überdruck des Gasgemisches ( $1$  und  $40$  bar) sowie die Aufbringung des Druckes im System (bei  $20^\circ\text{C}$  oder oberhalb  $1000^\circ\text{C}$ ). Ziel der Versuche war, Informationen über den Umfang der chemischen Wechselwirkungen zwischen  $\text{UO}_2$  und Zircaloy-4 (Zry) sowie Zircaloy und Sauerstoff zu erhalten. Außerdem sollte ermittelt werden, ab welchen Temperaturen es bei der Aufheizung der Brennstababschnitte zu einer unkontrollierten Temperaturerhöhung infolge der stark exothermen Zry/Sauerstoff-Reaktion kommt, und wie diese von der Aufheizgeschwindigkeit und dem Gasdruck abhängt.

Durch Sauerstoffaufnahme der Zry-Hülle von innen infolge Reaktion mit dem  $\text{UO}_2$  und von außen infolge Reaktion mit dem gasförmigen Sauerstoff entstehen sauerstoffstabilisierte  $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Phasen, die etwa gleich schnell in das Hüllrohr wachsen. Auf der Außenoberfläche des Hüllrohres bildet sich außerdem, aufgrund des größeren Sauerstoffpotentials des Gasgemisches gegenüber dem  $\text{UO}_2$ , eine  $\text{ZrO}_2$ -Schicht. Die verschiedenen Reaktionszonen sind in Abb. 06.01.16/22A-1 dargestellt. Die (U,Zr)-Reaktionszone, die auf der Innenseite des Hüllrohres als zusammenhängende Ringzone entsteht, ist metallisch und kann daher nur durch Ätzung sichtbar gemacht werden. Gleiches gilt für die  $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Phasen. Die Reihenfolge der verschiedenen Reaktionszonen vom  $\text{UO}_2$  ausgehend ist wie folgt /06.01.16/22A-1, -2/:



Die Reaktionsschichtdicken wurden in Abhängigkeit der Temperatur und Zeit metallographisch ermittelt und graphisch aufgetragen. Abbildung 06.01.16/22A-2 zeigt das Wachstum der verschiedenen Reaktionszonen bei  $1100^\circ\text{C}$  als Funktion von  $\sqrt{t}$ . Man erkennt das Schichtdickenwachstum in Abhängigkeit der Zeit, das anfäng-

lich nach einem parabolischen Zeitgesetz verlauft. Auerdem ist eine Durchmesserzunahme der Versuchsproben infolge Volumenzunahme des  $ZrO_2$  festzustellen. Nach ca. 60 min ist bei  $1100^\circ C$  der Anteil des Hullrohres, der nicht durch Sauerstoffaufnahme chemisch beeinflusst wurde (prior  $\beta$ -Zr) und daher nahezu unveranderte mechanische Eigenschaften besitzt, vollstandig in sauerstoffstabilisiertes  $\alpha$ -Zr(O) umgewandelt. Nach dieser Zeit besitzt das oxidierte Hullrohr praktisch keine mechanische Stabilitat mehr, das Zircaloy ist versprodet. Bereits geringe Krafte wahrend der Abkuhlung oder bei der nachfolgenden Handhabung fuhren zum Auseinanderbrechen der Brennstababschnitte. Infolge der kombinierten Auen- und Innenoxidation der Zry-Hulle wird die Zeit bis zu einer vollstandigen Versprodung um etwa den Faktor 4 gegenuber der einseitigen Oxidation reduziert. Bei  $1400^\circ C$  betragt sie z.B. nur einige Minuten (Abb. 06.01.16/22A-3) bei  $1000^\circ C$  ist die Hulle selbst nach der max Versuchszeit von 150 min noch nicht vollstandig oxidiert.

Nach dem Zusammenwachsen der von auen und innen entstehenden  $\alpha$ -Zr(O)-Phasen im Zentrum des Hullrohres dominiert das Sauerstoffpotential des  $(O_2+Ar)$ -Gasgemisches und die  $UO_2/Zry$ -Reaktion kommt zum Stillstand. Die ursprunglich gebildete metallische (U,Zr)-Legierung wandelt sich danach in eine keramische  $(U,Zr)O_2$ -Phase um, die unregelmaig verteilt im  $\alpha$ -Zr(O) vorliegt (Abb. 06.01.16/22A-4). Letzlich wird das Hullmaterial vollstandig in  $ZrO_2$  mit lokalen  $(U,Zr)O_2$ -Phasen umgewandelt (Abb. 06.01.16/22A-5). Die Reaktion des  $(O_2+Ar)$ -Gasgemisches mit dem Zry ist dann als abgeschlossen zu betrachten, d.h. es wurde chemisches Gleichgewicht zwischen dem Zry und dem Gasgemisch erreicht.

Abb. 06.01.16/22A-5 zeigt eine ungleichmaige Oxidation der Zry-Hulle am Probenumfang, die sehr wahrscheinlich durch eine Temperaturvariation am Rohrumfang verursacht wurde. Die Zweiphasigkeit eines Teils des  $ZrO_2$  wurde sehr wahrscheinlich durch einen eutektoiden Zerfall des unterstochiometrischen  $ZrO_{2-x}$  wahrend der Abkuhlung in metallisches  $\alpha$ -Zr(O) und  $ZrO_2$  bewirkt. Die (U,Zr)-Legierung wurde infolge Oxidation bereits vollstandig in  $(U,Zr)O_2$  umgewandelt.

Entsprechend den Experimenten unter inerten Bedingungen /06.01.16/22A-3, -4/ wurden die  $UO_2/Zry$ -Reaktionsexperimente unter oxidierenden Versuchsbedingungen, was die Aufheiz- und Abkuhlgeschwindigkeit sowie die Druckaufbringung des die Proben umgebenden Gases anbelangt, zunachst nach dem gleichen Schema durchgefuhrt. Die LWR-Brennstababschnitte wurden bei einem  $(O_2+Ar)$ -Gasdruck von 1 bar auf die gewunschte Maximaltemperatur aufgeheizt. Nach ca. 60s, die zur Einstellung eines thermischen Gleichgewichts zwischen der beheizten Hulle und dem

Brennstoff dient, wurde der Gasdruck auf 40 bar erhöht und dann die Probe abgekühlt. Durch diesen Versuchsablauf sollte der durch die Aufheiz- und Abkühlvorgänge verursachte Reaktionsumfang ermittelt werden, der zur Korrektur der isothermen Versuchsdaten erforderlich ist. Abb. 06.01.16/22A-6 zeigt die entsprechenden Versuchsergebnisse. Es waren nur Experimente bis zu einer maximalen Temperatur von 1400°C möglich. Ab 1500°C kam es während der Druckerhöhung des (25 Vol.% O<sub>2</sub>/75 Vol.% Ar)-Gasgemisches von 1 auf 40 bar infolge exothermer Reaktion zwischen dem Sauerstoff und Zry-4 zu einer unkontrollierten Temperaturerhöhung mit maximalen Temperaturen zwischen 1900 und 2000°C. Auch eine Verkleinerung der Aufheizgeschwindigkeit (Versuch 173 M), um eine stärkere Voroxidation der Hüllrohr-Außenoberfläche zu erhalten, konnte die Temperatureskala bei Erreichen von ca. 1500°C (Solltemperatur) nicht unterdrücken (Abb. 06.01.16/22A-7). Die unkontrollierte Aufheizgeschwindigkeit beträgt in unserem System mit kalter Umgebung oberhalb ca. 1500°C ca 9°C/s und die Abkühlgeschwindigkeit 7-9°C/s. In einem System mit warmer Umgebung bzw. im Reaktorcore sind schnellere Aufheizraten und eventuell auch höhere Maximaltemperaturen denkbar. Durch die hohen Maximaltemperaturen kommt es zum Schmelzen des metallischen  $\alpha$ -Zr(O) unter gleichzeitiger chemischer Auflösung des UO<sub>2</sub> und ZrO<sub>2</sub>. Abb. 06.01.16/22A-8 zeigt den Querschliff einer temperatureskalierten Reaktionsprobe. Man erkennt in der erstarrten metallischen Schmelze dendritische, keramische (U,Zr)O<sub>2</sub> Ausscheidungen. An einigen Stellen ist das Hüllmaterial nahezu vollständig oxidiert. Die (Zr,O,U)-Schmelze penetriert entlang von Rissen bis in das Zentrum der UO<sub>2</sub>-Pellets.

Um Herauszufinden, unter welchen Randbedingungen es zu einer Temperatureskala-tion der Versuchsproben kommt, wurden temperaturtransiente UO<sub>2</sub>/Zry-Reaktions-experimente mit einer Aufheiz- und Abkühlgeschwindigkeit von 0,25, 1, 5 und 10 K/s bis 2000°C durchgeführt. Der gewünschte (O<sub>2</sub>+Ar)-Gasdruck von 40 bar wurde bereits bei Raumtemperatur aufgebracht und während des Versuches konstant gehalten. Die Versuchsergebnisse sind in den Abbildungen 06.01.16/22A-9 bis -12 dargestellt. Es sind die Dicken der verschiedenen Reaktionszonen in Abhängigkeit der maximalen Temperatur, die für ca. 10s gehalten wurde bevor die Probe wieder geregelt abgekühlt wurde, aufgetragen. Der Reaktionsumfang hängt - neben der maximal erreichten Temperatur - von der Aufheizgeschwindigkeit ab. Die duktile ( $\beta$ -Zr)-Phase wird infolge Oxidation in sprödes  $\alpha$ -Zr(O) umgewandelt; bei 0,25 K/s ist die chemische Umwandlung bei ca. 1300°C, bei 1 K/s bei ca. 1450°C, bei 5 K/s bei ca. 1600°C und bei 10 K/s bei ca. 1650°C abgeschlossen, d.h. das Hüllmaterial ist danach als versprödet zu betrachten. Man erkennt außerdem die Durchmesser-zunahme der Probe infolge ZrO<sub>2</sub>-Bildung, das stabile Reaktionsprodukt der Sauer-

stoff/Zircaloy-Wechselwirkungen. In keinem Fall kam es zu einer unkontrollierten Temperaturerhöhung während des Aufheizens. Offenbar bildet sich bei ausreichendem Sauerstoffangebot eine geschlossene festhaftende Oxidschicht auf der Hüllrohr-Außenoberfläche wodurch der Zry/ $O_2$ -Reaktionsfortschritt durch Diffusion des Sauerstoffs durch die entstehende Oxidschicht bestimmt wird. Bis die kritische Temperaturgrenze erreicht wird, oberhalb der es zu einer Temperatureskalation kommen kann (1400-1500°C), hat die Oxidschicht, selbst bei einer Aufheizgeschwindigkeit von 10 K/s, eine ausreichende Schichtstärke.

## 2. Chemisch analytische Untersuchung der $UO_2$ /Zircaloy-Reaktionsproben

Von isothermen  $UO_2$ /Zry-4-Reaktionsexperimenten, die im Temperaturbereich von 1000-1400°C mit einem Druck von 40 bar und unter 25 Vol.%  $O_2$ -Atmosphäre gefahren wurden, wurde über den Querschnitt der LWR-Brennstababschnitte die U-, Zr- und O-Konzentrationen mit Scanning-Auger Microprobe gemessen. Bis 1100°C Reaktions-temperatur bilden sich auf Grund der Oxidation des Zry 4 durch  $UO_2$  folgende Reaktionsschichten aus, wie sie von den Experimenten unter Inertgasatmosphäre bekannt sind: U-haltige  $\alpha$ -Zr(O)<sub>a</sub>-Phase, sauerstofffreie (U,Zr)-Legierung, uranfreie  $\alpha$ -Zr(O)<sub>b</sub>-Phase, die bei niedrigen Temperaturen in die  $\beta$ -Zr-Phase mündet. Aufgrund des großen Oxidationspotentials des gasförmigen Sauerstoffs wird die Hüllrohräußenseite bis zum  $ZrO_2$  oxidiert. Die Verbindung zwischen  $\beta$ -Zr-Phase bzw.  $\alpha$ -Zr(O)<sub>b</sub>-Phase bildet ein mehr oder weniger steil abfallendes Sauerstoffdiffusionsprofil. Mit zunehmender Temperatur und Reaktionszeit wächst die äußere  $ZrO_2$ -Schicht. Ab 1200°C und 100 min bilden sich in der Hüllrohrinnenseite keine Reaktionszonen nach dem oben beschriebenen Muster aus, sondern man kann verschiedene Phasen identifizieren: In der Nähe des  $UO_2$ , zirkonreiche (U,Zr,O)-Phasen mit einem Sauerstoffgehalt bis zu 8 Gew.%. Dazwischen befinden sich uranreiche (U,Zr,O)-Phasen, deren Metallgehalt mit der früher beobachteten (U,Zr)-Legierung vergleichbar ist, jedoch einen Sauerstoffgehalt bis zu 12 Gew.% aufweist, wie er in der benachbarten Zirkonreichen Phase nicht erreicht wird. Die Bereiche bzw. Phasen, die an die äußere  $ZrO_2$ -Schicht grenzen bestehen aus  $\alpha$ -Zr(O) (bis 8 Gew.%O), die an den Korngrenzen z.T. mit Uran versetzt sind.

## 3. Modellierung der $UO_2$ /Zircaloy- und Zircaloy/Sauerstoff Wechselwirkungen

Die kombinierten chemischen Wechselwirkungen zwischen dem Zircaloy-Hüllmaterial und dem Brennstoff bzw. dem ( $O_2$ +Ar)-Gasgemisch oder Dampf können mit Hilfe des Modells PECLOX /06.01.16/22-2/ beschrieben werden. Das Modell ist in der Lage, die Dicke der Reaktionszonen und die Sauerstoff-Verteilung in den einzelnen Phasen in Abhängigkeit von der Temperatur und Zeit zu berechnen. Das numerische

Model PECLOX beruht auf der Beobachtung, daß die Innen- und Außenoxidation der Hülle durch die Diffusion von Sauerstoff im Hüllmaterial und im Brennstoffpellet kontrolliert wird. Das Model PECLOX löst die Fick'schen Gleichungen für die Sauerstoffdiffusion in den verschiedenen Reaktionsschichten sowie die Stefan-Gleichung für die Bewegung der Phasengrenzen.

Abb. 06.01.16/22A-13 zeigt die berechnete Sauerstoffverteilung im Brennstoff und im Hüllrohrquerschnitt bei  $1100^{\circ}\text{C}$  nach einer Glühzeit von 3000 und 10 000s. Man erkennt das Verschwinden der  $\beta$ -Zr-Phase mit zunehmender Reaktionszeit. Außerdem ist festzustellen, daß die metallische (U,Zr)-Legierung nur einen sehr geringen Sauerstoffgehalt besitzt. Der gesamte Hüllrohrquerschnitt wird letztlich in  $\text{ZrO}_2$  und in  $(\text{U,Zr})\text{O}_2$  umgewandelt. Abb. 06.01.16/22A-14 zeigt die Verschiebung der Phasengrenzen, d.h. die Dicke der Reaktionszonen bei  $1100^{\circ}\text{C}$  in Abhängigkeit der Zeit. Zum Vergleich sind die experimentellen Versuchsergebnisse eingetragen, die bezüglich der Gesamtreaktionszone eine gute Übereinstimmung zeigen. Das Verschwinden der  $\beta$ -Zr-Phase erfolgt in der Berechnung deutlich später als im Experiment. Die Annahme eines Temperaturgradienten im Hüllrohrquerschnitt hat eine Verbesserung zwischen Modell und Experiment zur Folge. Die Ergebnisse einer PECLOX-Berechnung der Reaktionsschichtdicken für ein temperaturtransientes Experiment sind in Abb. 06.01.16/22A-15 dargestellt (Anfangstemperatur:  $900^{\circ}\text{C}$ , Aufheizgeschwindigkeit:  $0,4^{\circ}\text{C/s}$ ). Nach ca. 2400 s ( $\sim 1860^{\circ}\text{C}$ ) ist die Zry-Hülle vollständig oxidiert, das entspricht relativ gut den experimentellen Ergebnissen (siehe Abb. 06.01.16/22A-10). Auch hier ist die Abnahme des  $\text{UO}_2$ -Pelletdurchmessers und die starke Zunahme des Rohrquerschnittes infolge Umwandlung in  $\text{ZrO}_2$  festzustellen.

#### 4. Ermittlung der Reaktionskinetik zwischen Zircaloy-4 und einem $(\text{O}_2+\text{Ar})$ -Gasgemisch

Bei den  $\text{UO}_2/\text{Zry}$ -Reaktionsexperimenten unter oxidierenden Bedingungen in der Versuchsanlage MONA wurde die Temperatur der Versuchsproben mit einem Infrarot- und einem Quotientenpyrometer gemessen. Da eine exakte Temperaturmessung bei hohen Temperaturen i.a. schwierig ist, sucht man nach Methoden, die eine Kontrolle der Temperatur ermöglichen. Im Hinblick auf isotherme Experimente ist es möglich, bei Kenntnis der Reaktionszeit und der Dicke der entstehenden Oxidschichten, die Reaktionstemperatur abzuschätzen. Grundlage einer solchen Abschätzung ist jedoch die genaue Kenntnis der Zircaloy/Sauerstoff-Oxidationskinetik. Um zuverlässige kinetische Daten zu erhalten, wurden deshalb Zry-Rohrproben in einem Rohrfen in einem (25 Vol.%  $\text{O}_2$ /75 Vol.% Ar)-Gasgemisch im Temperaturbereich von 900 bis  $1400^{\circ}\text{C}$  geblüht. Die Glühzeiten variierten zwischen



2 und 60 Minuten. Die Temperatur im Rohrofen wurde auf Werte  $\pm 1^{\circ}\text{C}$  konstant gehalten. Außerdem wurde die Proben temperatur mittels eines Thermoelementes gemessen. Nach den Reaktionsexperimenten wurde die Gewichtszunahme sowie die Dicke der  $\text{ZrO}_2$ - und  $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Schicht ermittelt /06.01.16/22A-5/.

Wie die Versuchsergebnisse zeigen, erfolgt die Zry/Sauerstoff-Reaktion nach einem parabolischen Zeitgesetz. Die Sauerstoffdiffusion im Zry ist der geschwindigkeitsbestimmende Schritt der Reaktion. Die Temperaturabhängigkeit der parabolischen Geschwindigkeitskonstanten ist in Abb.06.01.16/22A-16 dargestellt. Aus Vergleichsgründen wurden Versuchsergebnisse von Zry/Wasserdampf Reaktionsexperimenten eingezeichnet. Die Temperaturabhängigkeit der parabolischen Geschwindigkeitskonstante zeigt eine Unstetigkeit bei  $1100^{\circ}\text{C}$ , die einer allotropen Phasenumwandlung des  $\text{ZrO}_2$  zugeschrieben werden kann. Obwohl die Zry/Sauerstoff-Reaktionsgeschwindigkeit zwischen  $1100$  und  $1300^{\circ}\text{C}$  etwas oberhalb der Zry/Wasserdampf-Reaktionsgeschwindigkeit liegt, kann man das (25 Vol.%  $\text{O}_2$  + 75 Vol.% Ar)-Gasmisch als ein gutes Oxidations-Simulationsmedium für den Wasserdampf betrachten.

Die kinetischen Daten dieser Zry-Oxidationsexperimente im Rohrofen /06.01.16/22A-5/ wurden nun benutzt, die MONA-Experimente /06.01.16/22A-1, -2/ bezüglich der Reaktionstemperatur zu korrigieren. Die Ergebnisse sind in Abb. 06.01.16/22A-17 dargestellt. Man erkennt, daß bei  $900^{\circ}\text{C}$  zwischen der mit dem Pyrometer gemessene Temperatur und der tatsächlichen Proben temperatur kein Unterschied besteht. Zwischen  $1000$  und  $1400^{\circ}\text{C}$  liegt die gemessene Temperatur zwischen 25 und  $70^{\circ}\text{C}$  unterhalb der effektiven Temperatur. Die Glüh temperaturen der  $\text{UO}_2$ /Zry-Reaktionsexperimente unter oxidierenden Bedingungen /06.01.16/22A-1, -2/ müssen deshalb entsprechend korrigiert werden.

#### Literatur

- /06.01.16/22A-1/ P. Hofmann et. al, "Mechanisches und chemisches Verhalten von Zry-Hüllrohren und  $\text{UO}_2$ -Brennstoff bei hohen Temperaturen", PNS-Jahresbericht 1983, KfK 3450 (1984), Seite 4200/126 - 4200/145
- /06.01.16/22A-2/ P. Hofmann, H.J. Neitzel, "External and internal reaction of Zry tubing with oxygen and  $\text{UO}_2$  and its modeling", Fifth International Meeting on "Thermal Nuclear Reactor Safety", September 9-13, 1984 Karlsruhe, FRG

- /06.01.16/22A-3/ P. Hofmann, D.K. Kerwin-Peck, "UO<sub>2</sub>/Zircaloy-4 chemical interactions and reaction kinetics from 1000 to 1700°C under isothermal conditions", Final Report, KfK 3552 (1983)
- /06.01.16/22A-4/ P. Hofmann, D.K. Kerwin-Peck, "UO<sub>2</sub>/Zircaloy-4 chemical interactions from 1000 to 1700°C under isothermal and transient temperature conditions", Journ. of Nucl. Mater. 124 (1984) 80-119
- /06.01.16/22A-5/ H. Uetsuka, P. Hofmann, "Reaction Kinetics of Zircaloy-4 in a 25% O<sub>2</sub>/75% Ar gas mixture from 900 to 1500°C under isothermal conditions", KfK 3917 (1985)

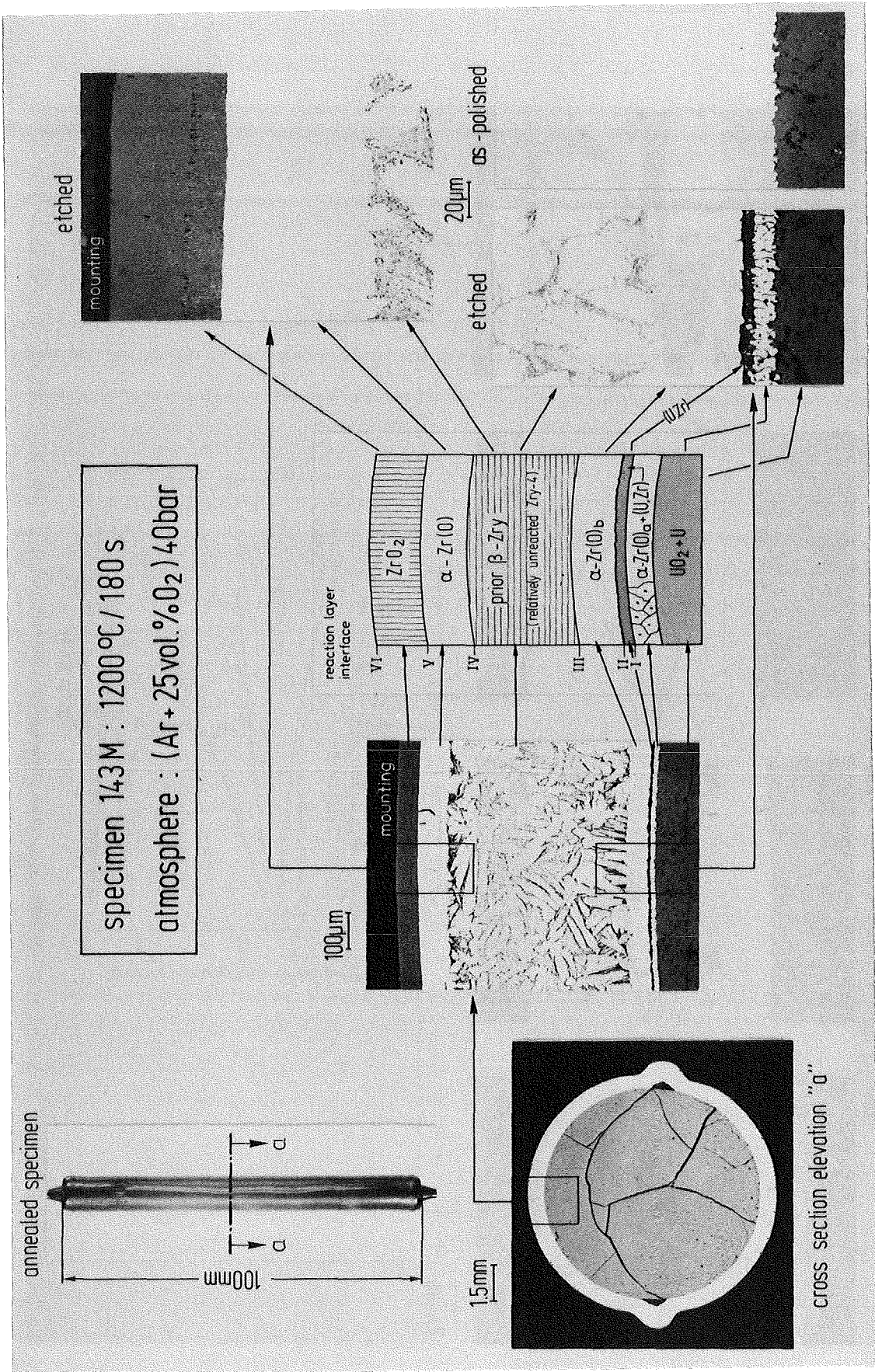


Abb. 06.01.16/22A-1: Reihenfolge der äußeren Zircaloy/Sauerstoff- und der inneren Zircaloy/Brennstoff-Reaktionsschichten in einem LWR-Brennstababschnitt.

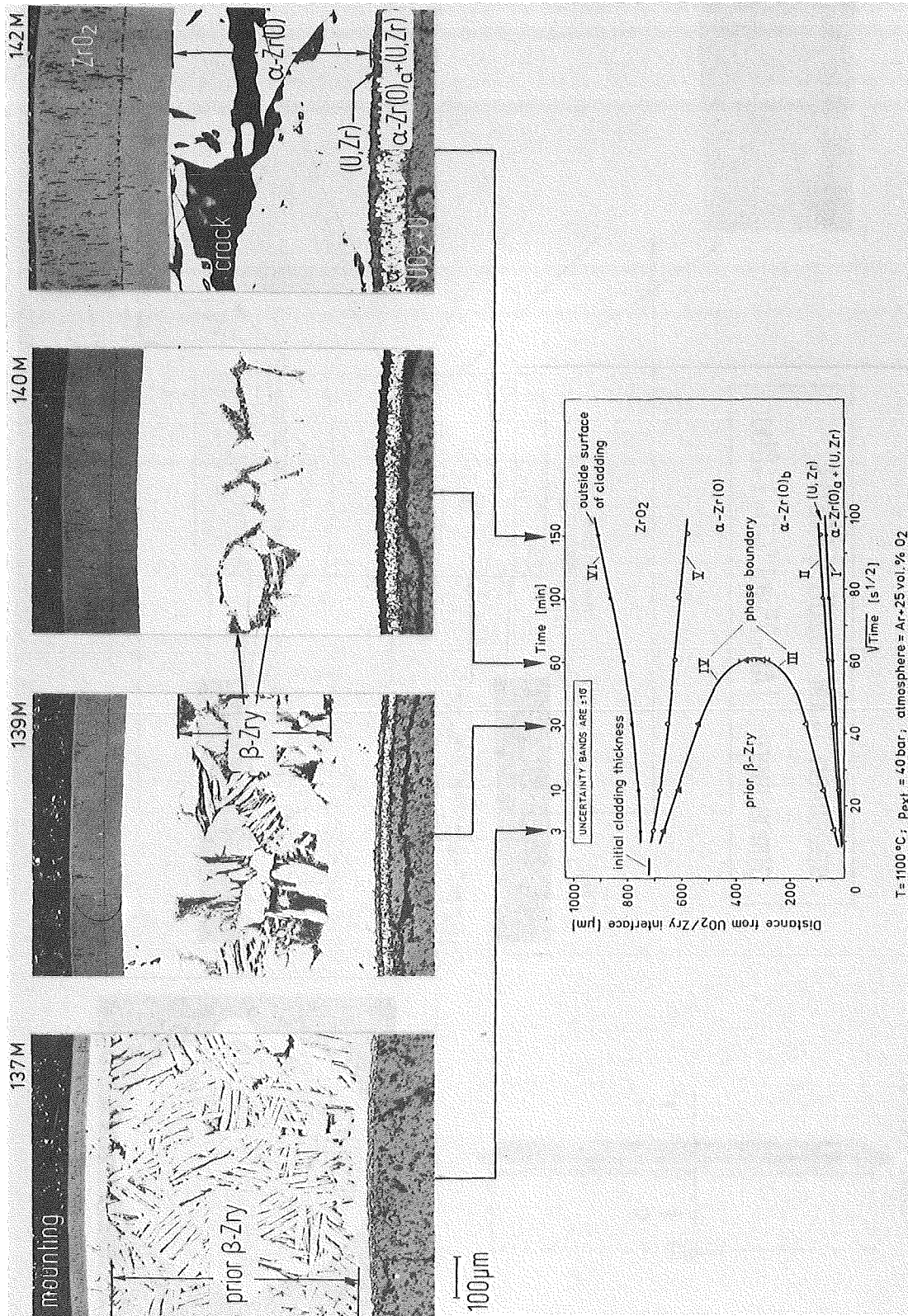


Abb. 06.01.16/22A-2: Zircaloy/Sauerstoff- und Zircaloy/Brennstoff-Reaktionsschichtdicken bei 1100°C in Abhängigkeit der Zeit.



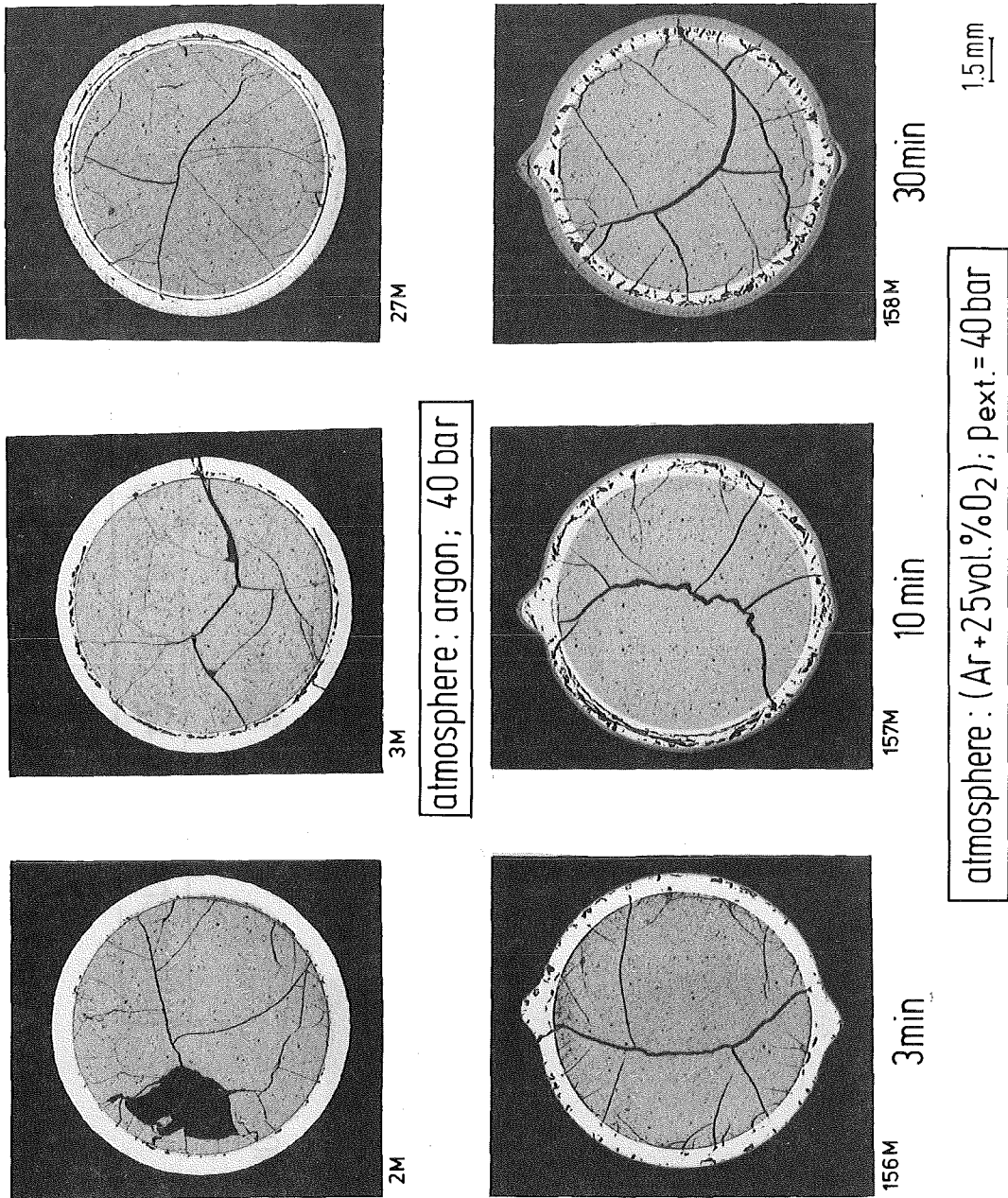


Abb. 06.01.16/22A-3: Querschliffe von UO<sub>2</sub>/Zircaloy-Reaktionsproben in Abhängigkeit der Zeit bei einer Glüh­temperatur von 1400°C. Einfluß der Versuchsatmosphäre (Ar bzw. (O<sub>2</sub>+Ar)-Gasgemisch ) auf das Ausmaß der Hüllrohrversprödung.

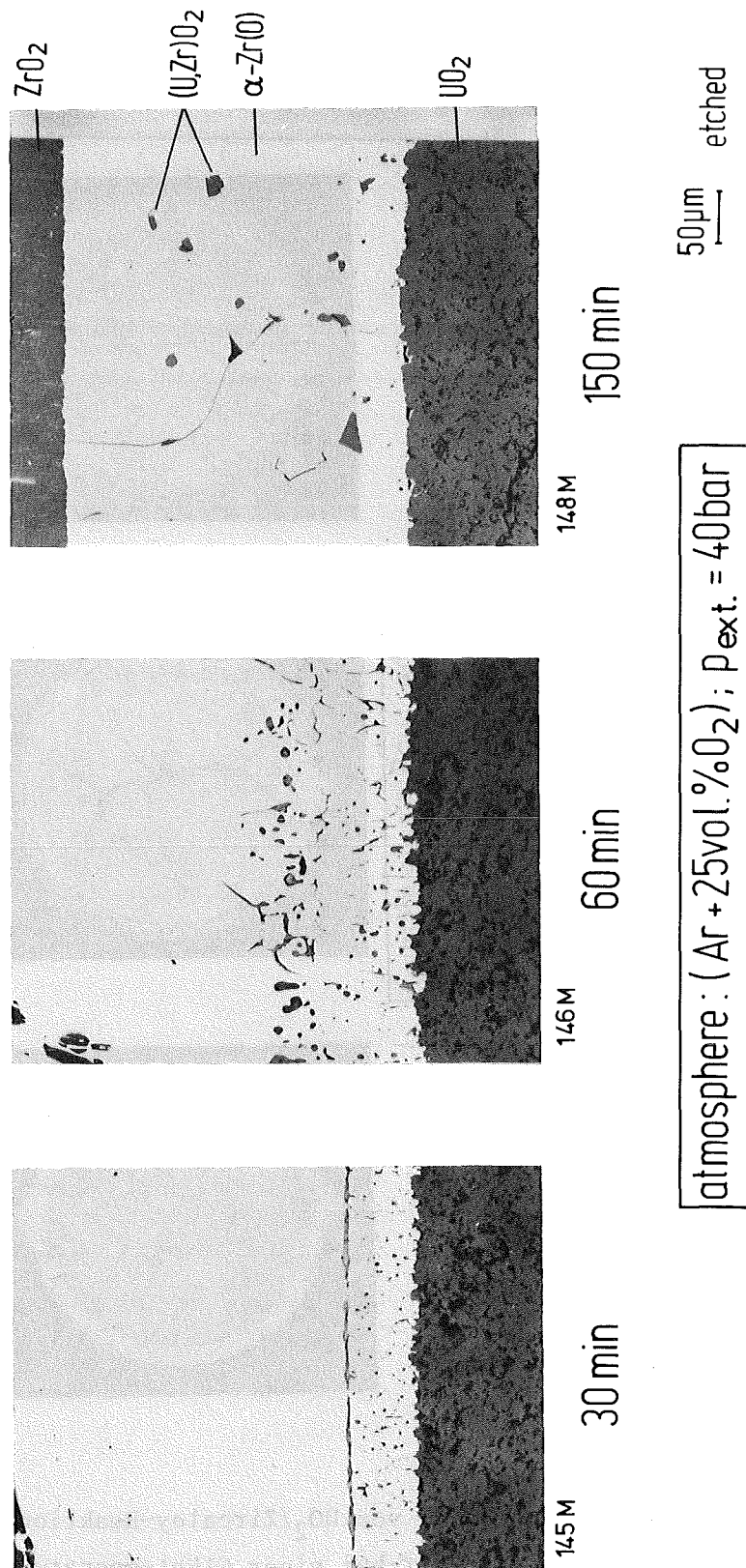


Abb. 06.01.16/22A-4: Umwandlung der metallischen (U,Zr)-Legierung in keramische (U,Zr)O<sub>2</sub>-Partikel infolge Oxidation der Zircaloy-Hülle durch ein (O<sub>2</sub>+Ar)-Gasgemisch bei 1200°C.

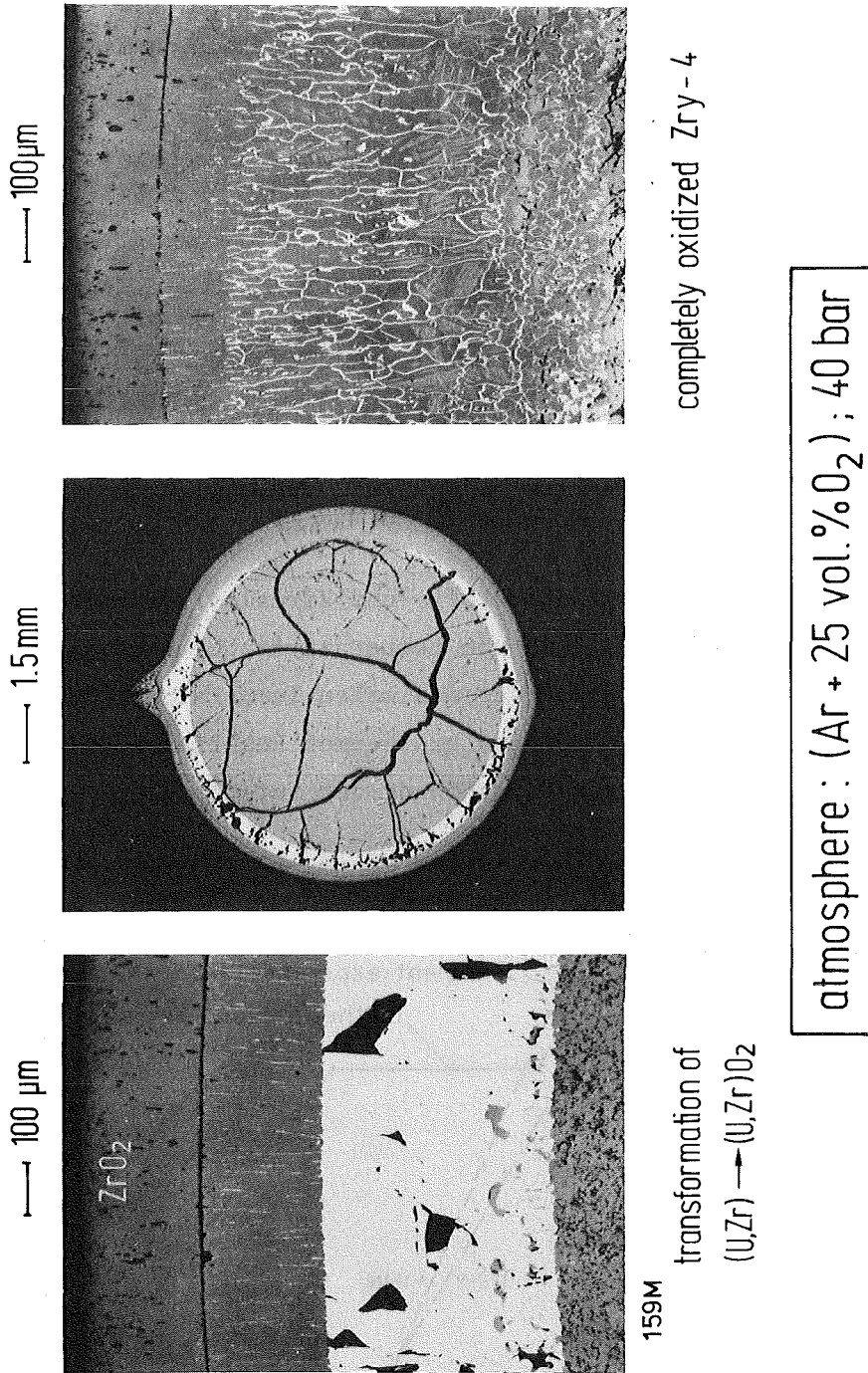
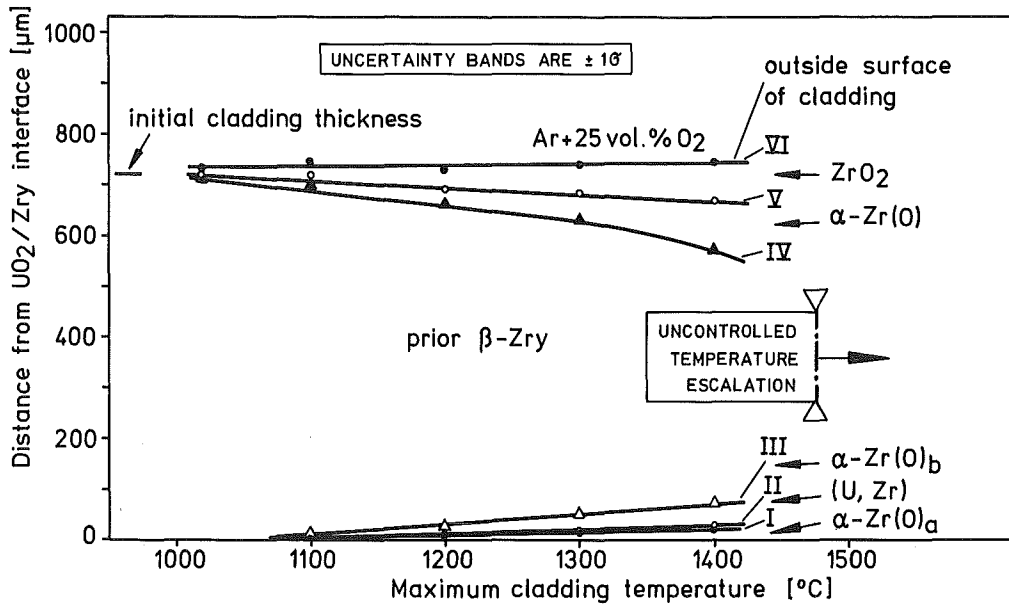
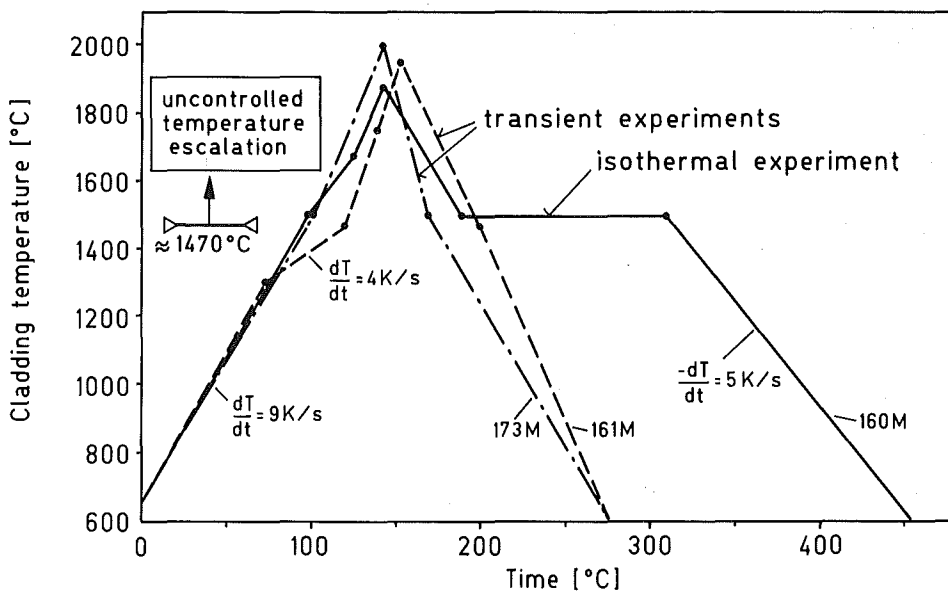


Abb. 06.01.16/22A-5: Phasenbildung in einem LWR-Brennstababschnitt nach einer Glühung bei 1400°C für 38 Minuten in einem (O<sub>2</sub>+Ar)-Gasgemisch. Das Zircaloy-Hüllrohr ist z.T. vollständig oxidiert.



heatup rate: 10 K/s  
 cooldown rate: 5 K/s; initial temperature:  $T_0 = 650^\circ\text{C}$  ( $\Delta p = 1 \text{ bar}$ ); time at  $T_{\text{max.}} = 60 \text{ s}$   
 $p_{\text{ext.}} = 40 \text{ bar}$  (after thermal equilibration, 60 s at  $T_{\text{max.}}$ )

Abb. 06.01.16/22A-6: Zircaloy/Sauerstoff- und Zircaloy/Brennstoff-Reaktionsschichtdicken von temperaturtransienten Experimenten in Abhängigkeit der maximalen Temperatur. Oberhalb  $1400^\circ\text{C}$  kommt es infolge exothermer Reaktion zu einer unkontrollierten Temperaturerhöhung der Versuchsproben.



initial heatup rate: 10 K/s; atmosphere: Ar + 25 vol%  $\text{O}_2$   
 initial temperature:  $T_0 = 650^\circ\text{C}$ ;  $\Delta p = 1 \text{ bar}$  at  $20^\circ\text{C}$ , 40 bar at  $\approx 1500^\circ\text{C}$

Abb. 06.01.16/22A-7: Unkontrollierte Temperaturerhöhung von LWR-Brennstababschnitten infolge exothermer Zircaloy/Sauerstoff-Reaktion oberhalb  $1400^\circ\text{C}$ . Die maximale Temperatur bei den transienten und isothermen Experimenten sollte  $1500^\circ\text{C}$  betragen.



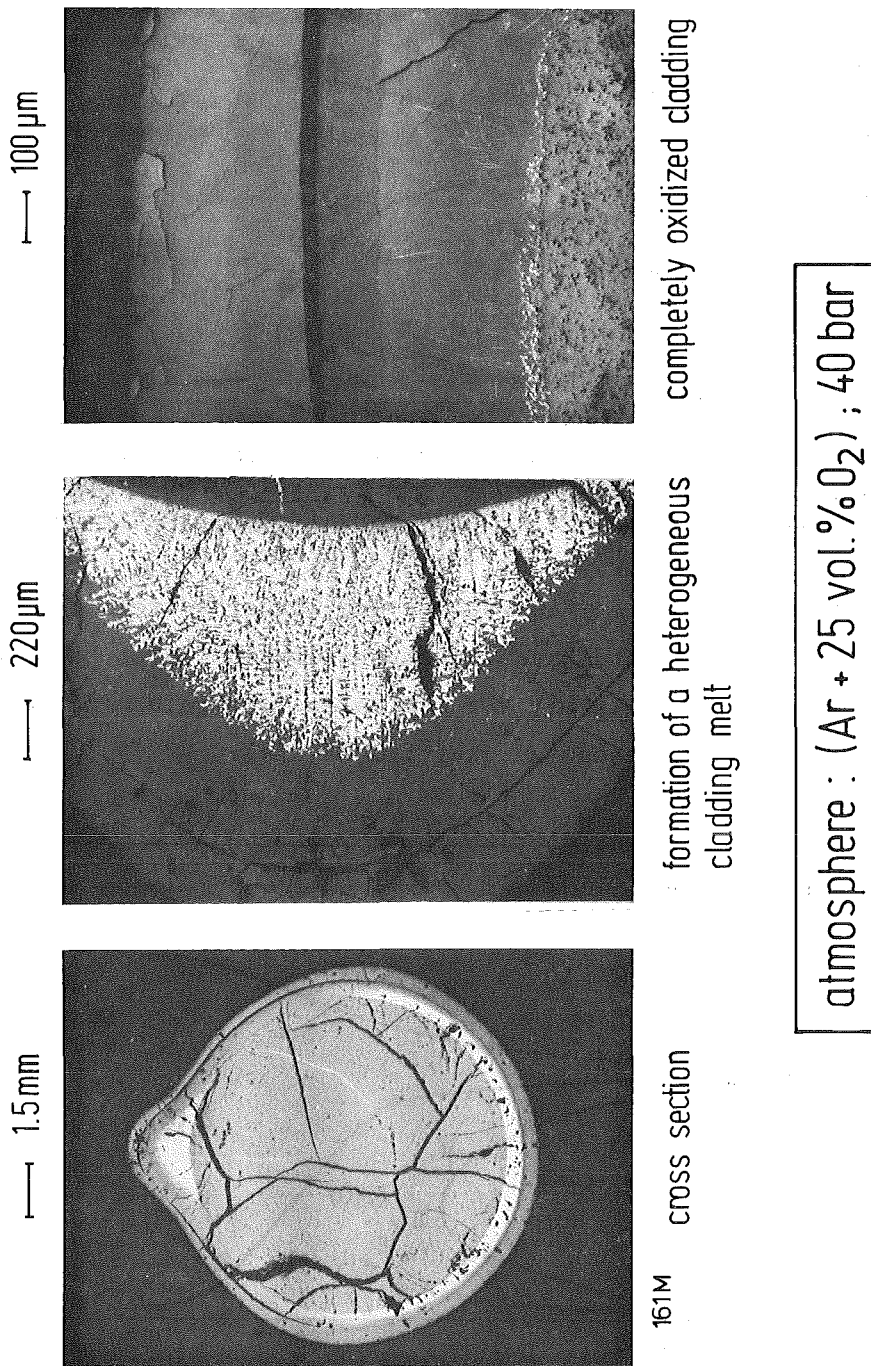
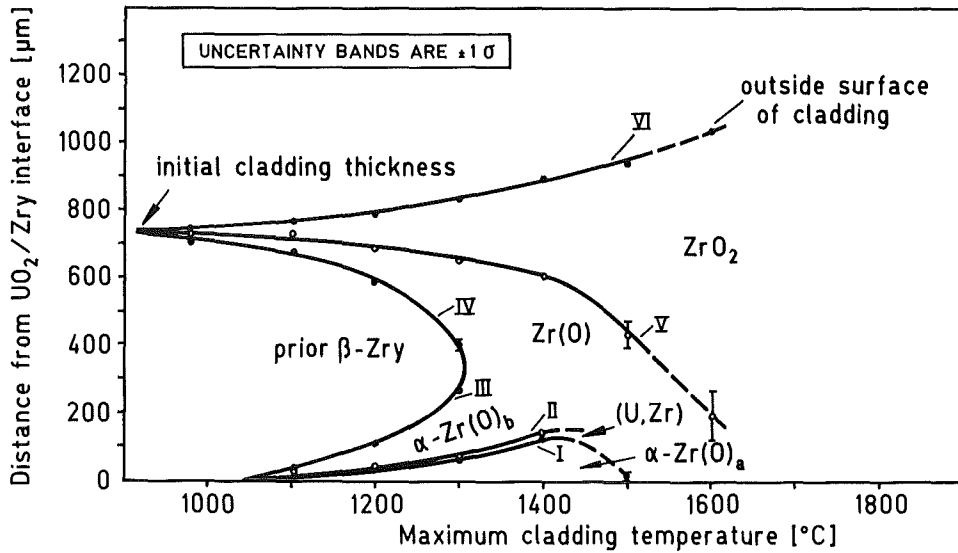
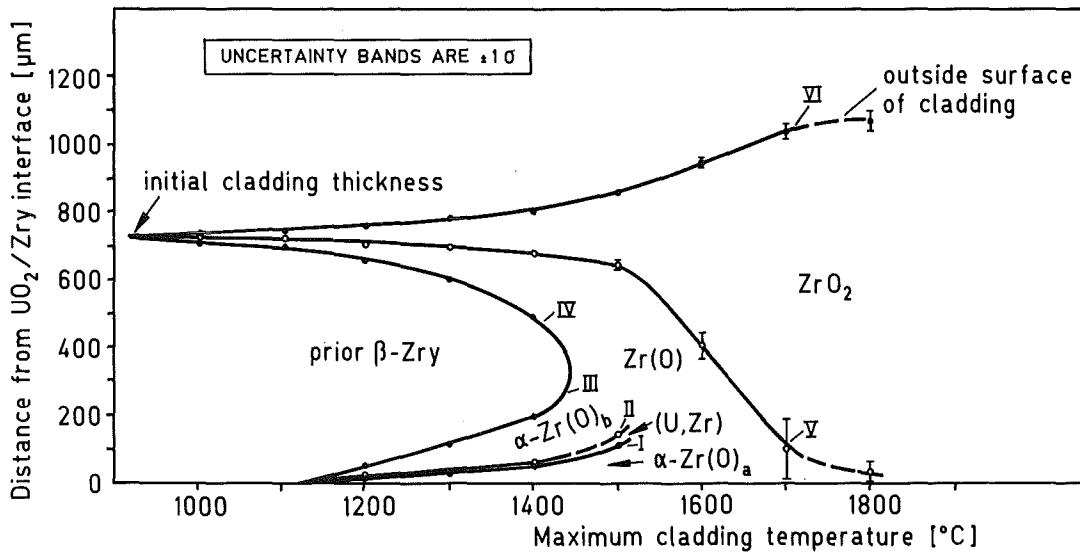


Abb. 06.01.16/22A-8: Phasenbildung in einem LWR-Brennstababschnitt nach einer unkontrollierten Temperaturerhöhung auf ca. 2000°C. Das sauerstoffstabilisierte, metallische  $\alpha$ -Zr(O) schmilzt und reagiert mit dem  $ZrO_2$  und  $UO_2$  unter chemischer Auflösung. Bei der Abkühlung bilden sich dendritische keramische Ausscheidungen in der metallischen Schmelze.



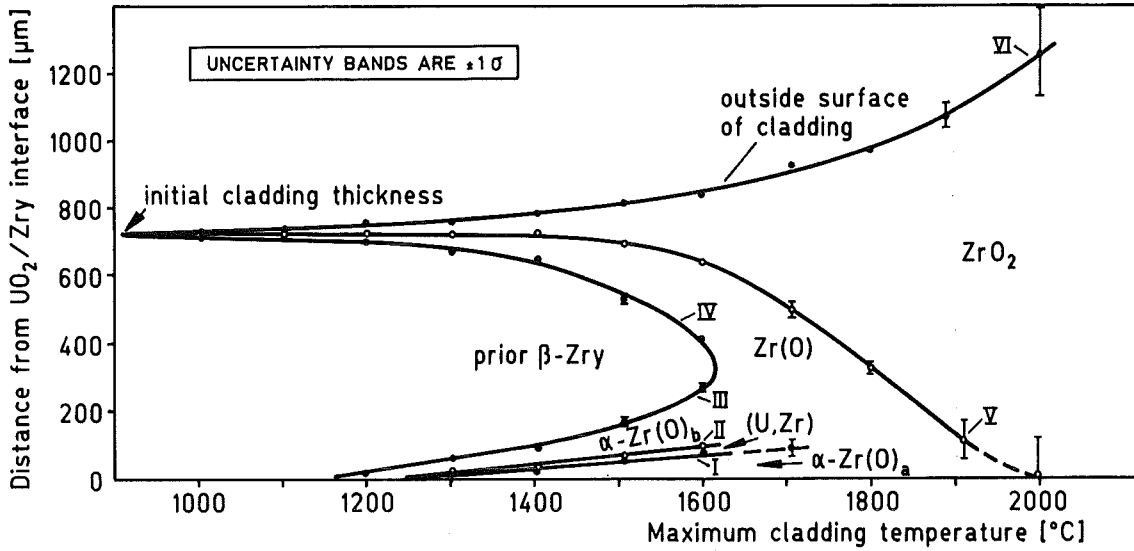
heatup and cooldown rates:  $\pm dT/dt = 0,25 \text{ K/s}$ ; time at  $T_{\max} = 10 \text{ s}$   
 initial temperature:  $T_0 = 650 \text{ °C}$ ;  $p_{\text{ext}} = 40 \text{ bar (20 °C)}$ ; atmosphere: Ar + 25 vol%  $\text{O}_2$

Abb. 06.01.16/22A-9: Zircaloy/Sauerstoff- und Zircaloy/Brennstoff-Reaktionsschichtdicken in temperaturtransienten Experimenten in Abhängigkeit der maximalen Temperatur (Aufheiz- und Abkühlgeschwindigkeit: 0,25 K/s).



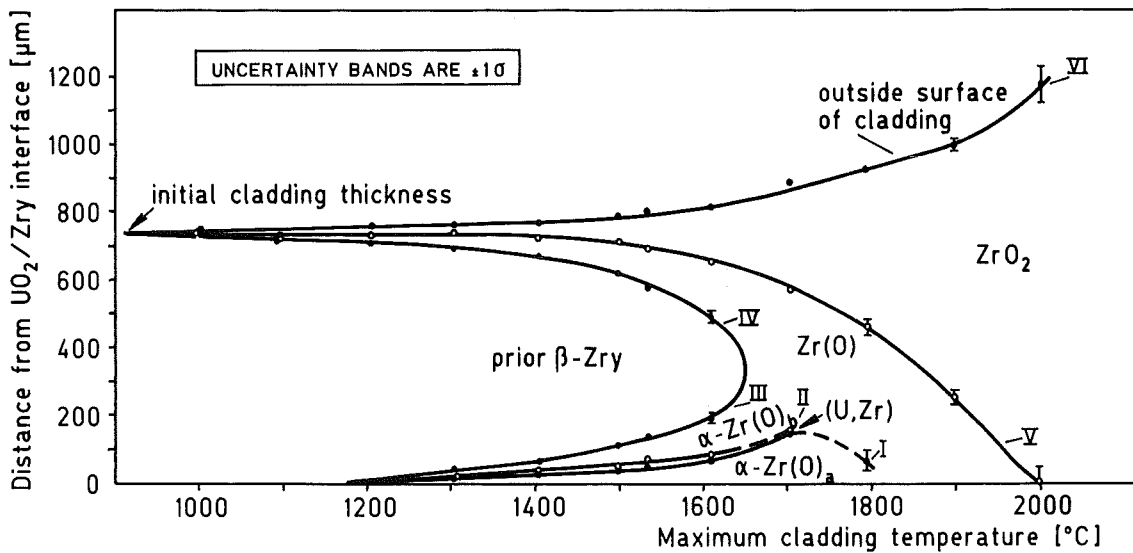
heatup and cooldown rates:  $\pm dT/dt = 1 \text{ K/s}$ ; time at  $T_{\max} = 10 \text{ s}$   
 initial temperature:  $T_0 = 650 \text{ °C}$ ;  $p_{\text{ext}} = 40 \text{ bar (20 °C)}$ ; atmosphere: Ar + 25 vol%  $\text{O}_2$

Abb. 06.01.16/22A-10: Zircaloy/Sauerstoff- und Zircaloy/Brennstoff-Reaktionsschichtdicken in temperaturtransienten Experimenten in Abhängigkeit der maximalen Temperatur (Aufheiz- und Abkühlgeschwindigkeit: 1 K/s).



heatup and cooldown rates:  $\pm dT/dt = 5 \text{ K/s}$ ; time at  $T_{\text{max}} = 10 \text{ s}$   
 initial temperature:  $T_0 = 650 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $p_{\text{ext}} = 40 \text{ bar (20}^\circ\text{C)}$ ; atmosphere: Ar + 25 vol%  $\text{O}_2$

Abb. 06.01.16/22A-11: Zircaloy/Sauerstoff- und Zircaloy/Brennstoff-Reaktionsschichtdicken in temperaturtransienten Experimenten in Abhängigkeit der maximalen Temperatur (Aufheiz- und Abkühlgeschwindigkeit: 5 K/s).



heatup and cooldown rates:  $\pm dT/dt = 10 \text{ K/s}$ ; time at  $T_{\text{max}} = 10 \text{ s}$   
 initial temperature:  $T_0 = 650 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $p_{\text{ext}} = 40 \text{ bar (20}^\circ\text{C)}$ ; atmosphere: Ar + 25 vol%  $\text{O}_2$

Abb. 06.01.16/22A-12: Zircaloy/Sauerstoff- und Zircaloy/Brennstoff-Reaktionsschichtdicken in temperaturtransienten Experimenten in Abhängigkeit der maximalen Temperatur (Aufheiz- und Abkühlgeschwindigkeit: 10 K/s).

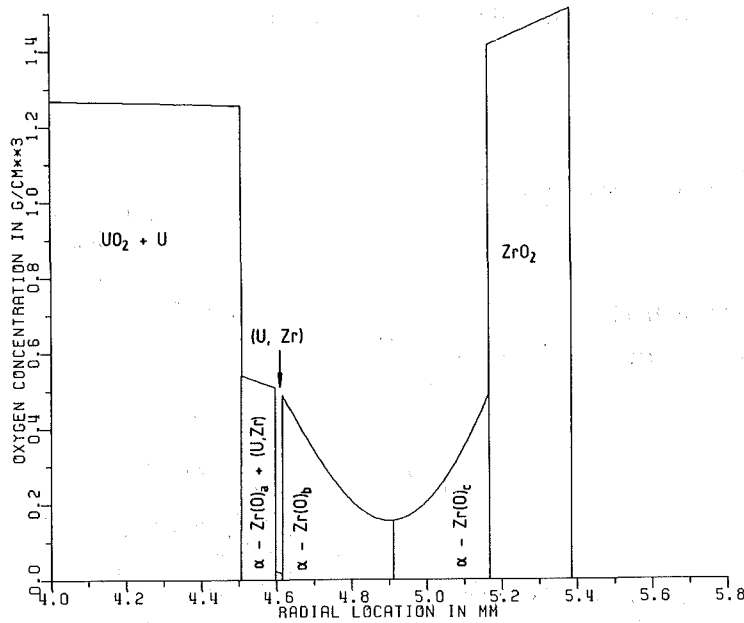
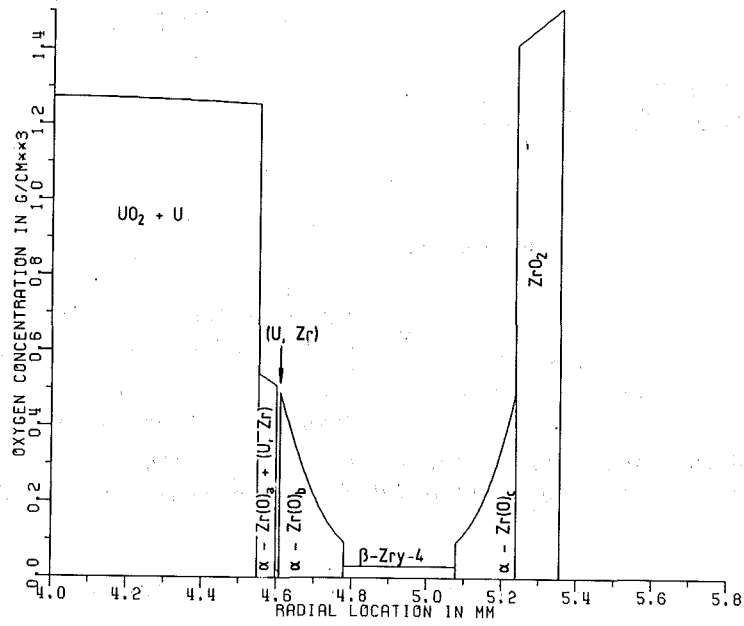


Abb. 06.01.16/22A-13: Berechnete Sauerstoffverteilung in den Reaktionsschichten, die infolge chemischer Wechselwirkungen des Zircaloy mit dem UO<sub>2</sub> und Sauerstoff entstehen. Reaktionstemperatur: 1100°C, Zeit: 3000s (oben) und 10 000s (unten).

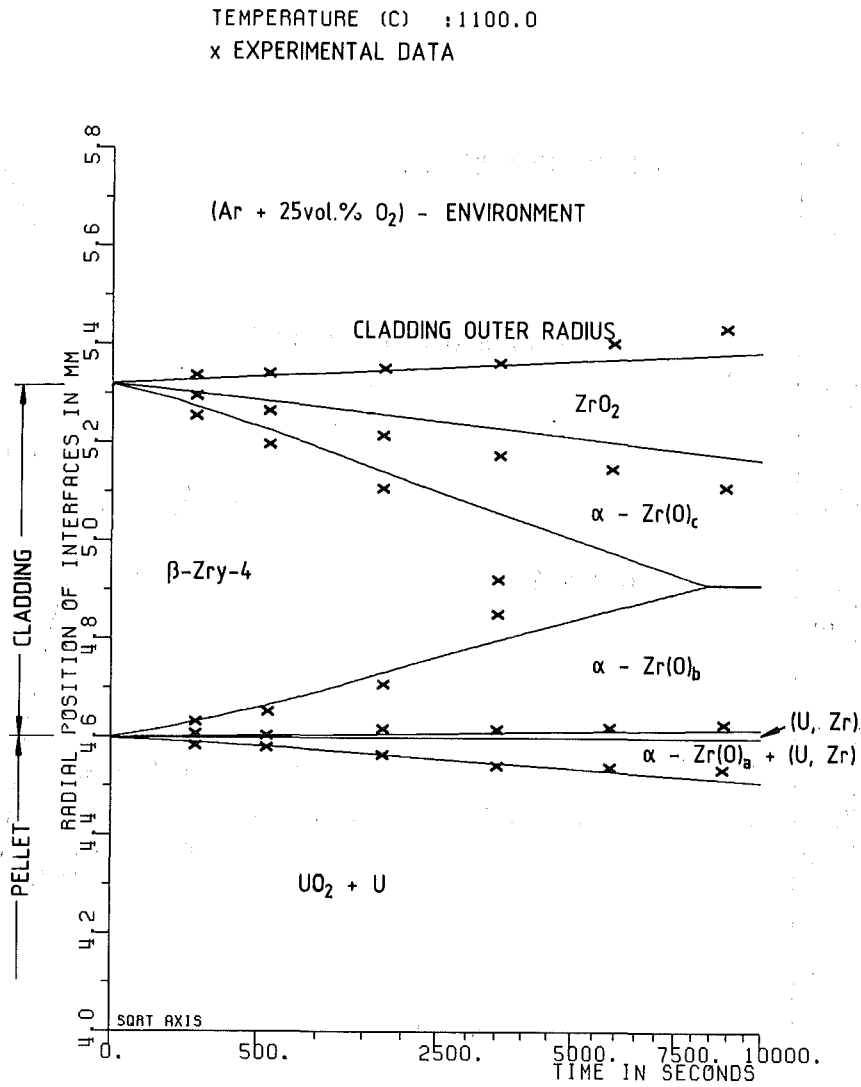


Abb. 06.01.16/22A-14: Berechnung der Phasengrenzverschiebungen, d.h. Dicke der UO<sub>2</sub>/Zircaloy- und Zircaloy/Sauerstoff-Reaktionszonen bei 1100°C in Abhängigkeit der Zeit mit Hilfe des Modells PECLOX. Zum Vergleich sind die Ergebnisse von Experimenten eingetragen.

INITIAL TEMPERATURE (C) : 900.0

TEMPERATURE RATE (K/SEC) : 0.4

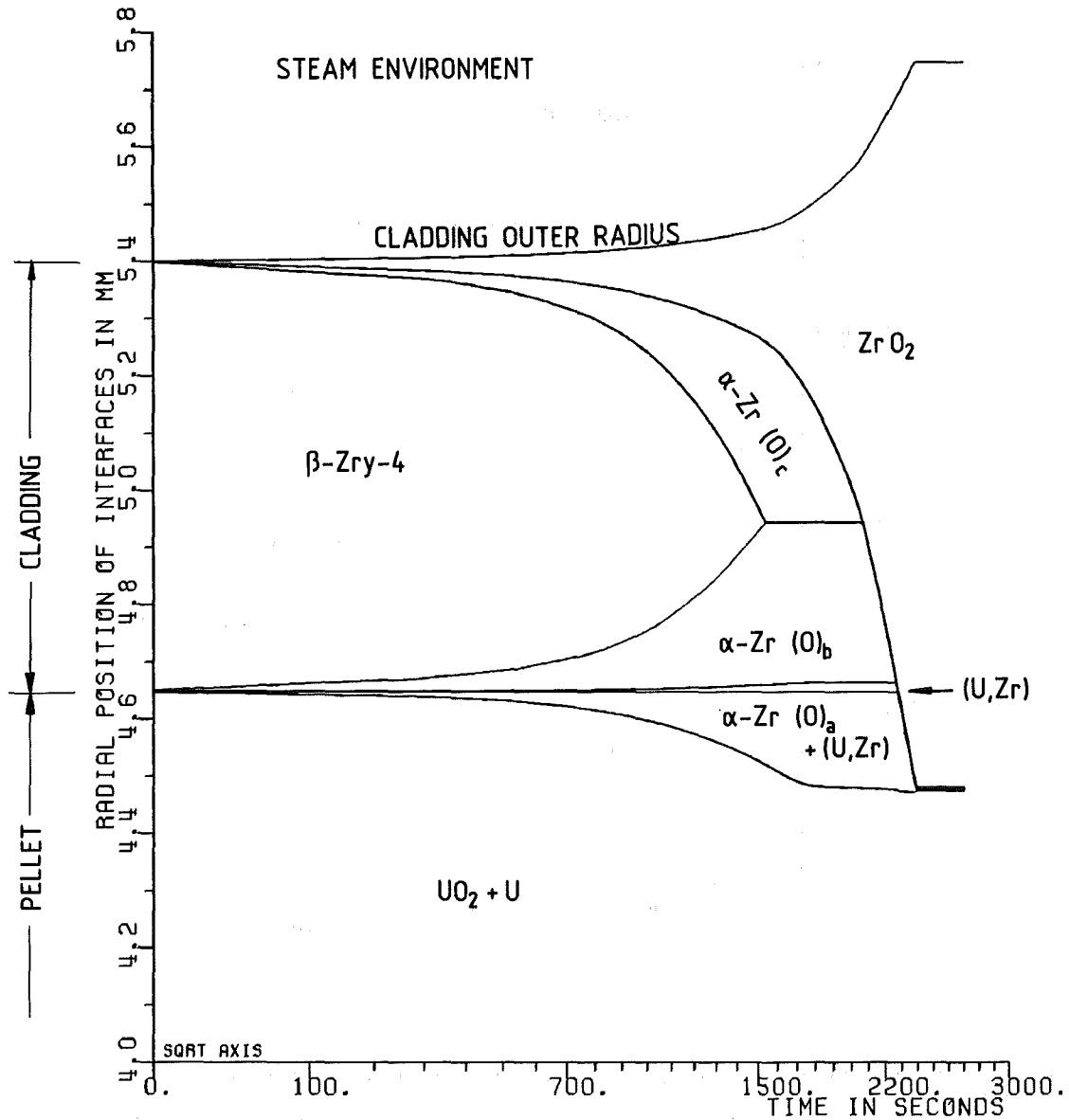


Abb. 06.01.16/22A-15: Dicke der  $\text{UO}_2$ /Zircaloy- und Zircaloy/Sauerstoff-Reaktionszonen in einem temperaturtransienten Experiment. Anfangstemperatur:  $900^\circ\text{C}$ , Aufheizgeschwindigkeit:  $0.4^\circ\text{C/s}$ .

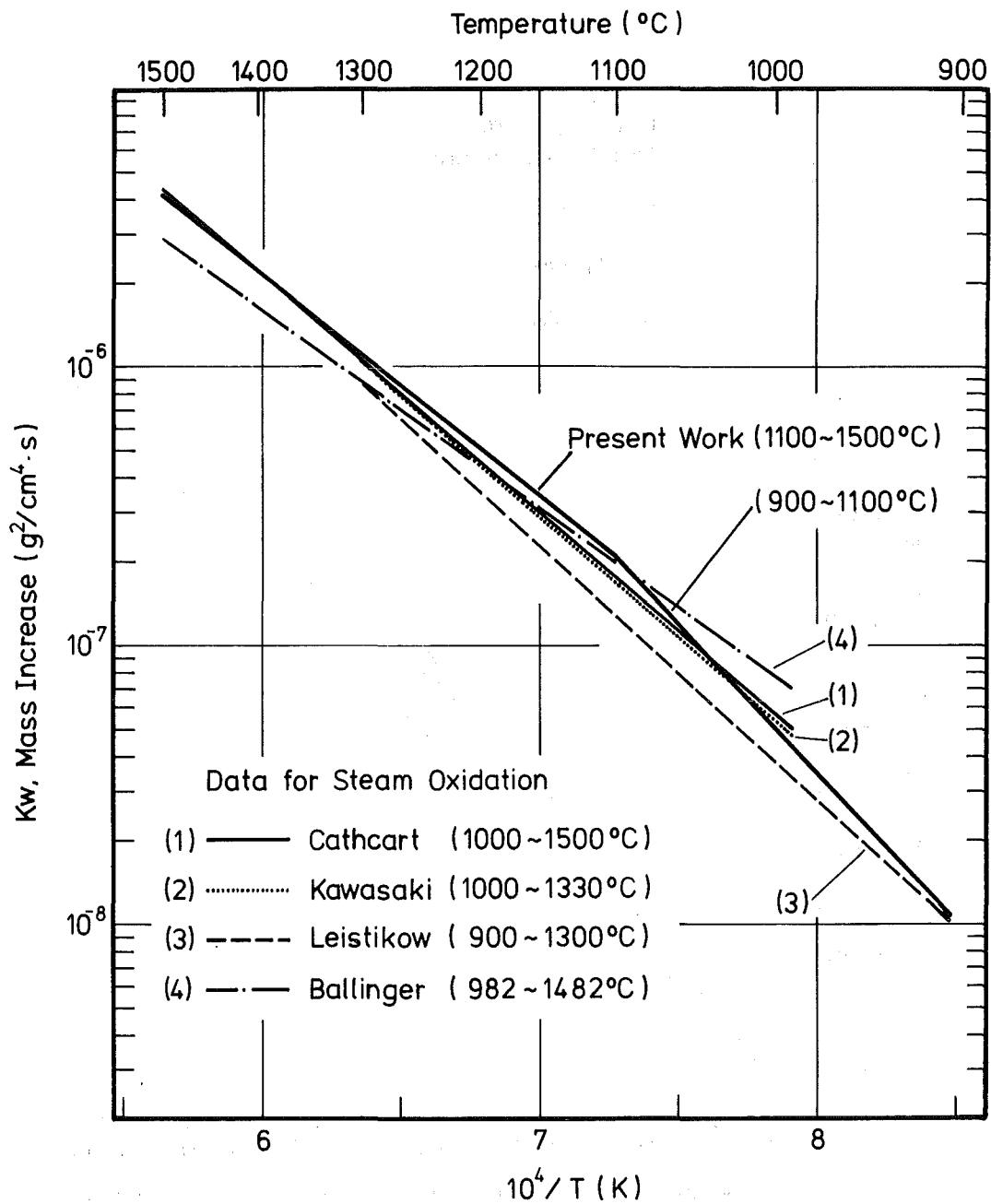


Abb. 06.01.16/22A-16: Vergleich der Zircaloy-Oxidationsgeschwindigkeit in Wasserdampf und einem (25 Vol.%  $\text{O}_2$ /75 Vol.% Ar)-Gasgemisch (present work).

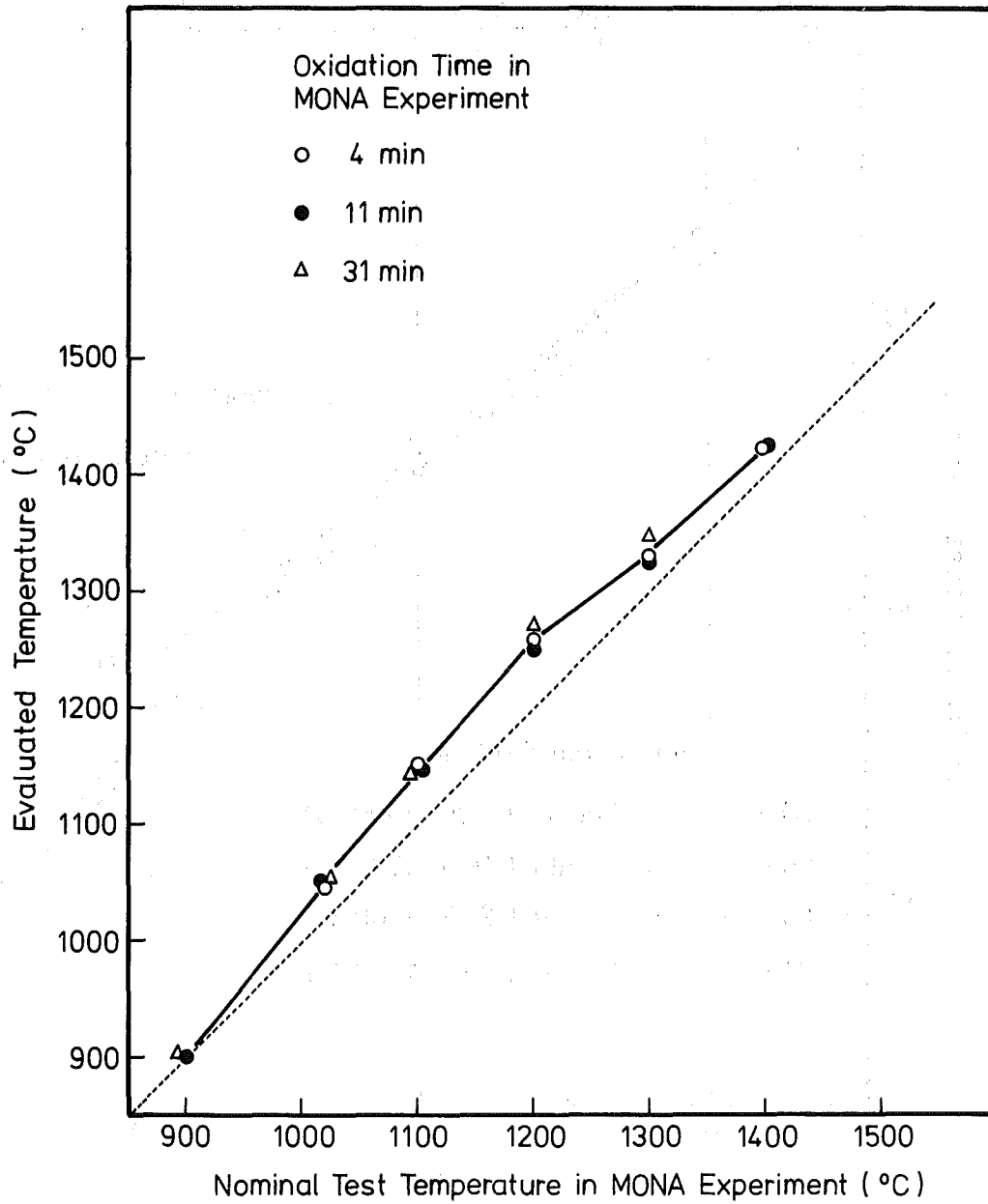


Abb. 06.01.16/22A-17: Korrelation zwischen gemessenen und korrigierten Temperaturen in der Versuchsanlage MONA. Die tatsächlichen Temperaturen sind im Temperaturbereich von 1000 bis 1400°C zwischen 25 und 70°C höher als die gemessenen.



- 06.01.16/20A    Out-of-pile Bündelexperimente zur Untersuchung  
/21A            schwerer Kernschäden (CORA-Programm)
- PNS 4251/52    (S. Hagen, K. Hain, W. Butzer, A. Grünhagen, J. Hanauer,  
G. Harbauer, W. Lange, W. Leiling, H. Malauschek, N. Paroth,  
F. Schloß, T. Vollmer, K.P. Wallenfels; IT  
B. Buescher, EG&G, Idaho)

### Einleitung

Die Out-of-pile Einzelstab- und Bündelexperimente sind Teil des KfK-Gesamtprogramms zur Untersuchung schwerer Kernschäden /1/. Diese Experimente mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren untersuchen die Schadensmechanismen an DWR-Brennelementen im Temperaturbereich bis 2200 °C. Sie klären das Zusammenwirken der in Einzeleffektuntersuchungen im Detail unter gut definierten Bedingungen betrachteten Prozesse. Die Experimente dienen ebenfalls zur Überprüfung der Fähigkeit der Rechenprogramme, das integrale Verhalten der Brennstäbe bei schweren Kernschäden zu beschreiben.

Für die Durchführung dieser Experimente unter realistischen Bedingungen, wird die Versuchsanlage CORA aufgebaut. CORA wird neben unterschiedlichem Temperaturanstieg der elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren im Dampf auch die richtigen Druckverhältnisse und das Quenchen der Brennstabbündel erlauben. Die Fortschritte in der Erstellung dieser Anlage werden im ersten Teil dieses Berichtes beschrieben.

Parallel zum Aufbau der Versuchsanlage CORA werden Experimente in der NIELS-Anordnung durchgeführt. Diese Versuche sollen Informationen zu Fragestellungen liefern, bei denen der Druckeinfluß und das Quenchen keine Rolle spielen. Im Berichtszeitraum wurden Bündelexperimente zum Einfluß der Absorbermaterialien auf das Schadensverhalten durchgeführt. Über den Versuch ABS-1 wird im zweiten Teil dieses Beitrags berichtet.

### Anlagenerstellung CORA

Im Berichtsjahr wurde die CORA-Anlage weiter komplettiert. So wurde die Gleichstromversorgung (3x 40 kW, max. 40 V) für die Bündelaufheizung montiert. Der Quenchwagen wurde instrumentiert und mit Hochtemperaturschirm und Hubeinrichtung in das Containment eingebaut.

Das DIETZ-Rechnersystem von COSIMA wurde an der CORA-Anlage installiert und hardwaremäßig erweitert. Die Software ist soweit erstellt, daß die Erprobung nach Fertigstellung der Meß- und Steuerleitungen erfolgen kann. Die Schaltwarte ist im Aufbau, ebenso das Rechnerinterface. Die Mikroprozessorsteuerung der Luftzumischung zum Abgas ist geliefert.

Mit der Brennstabsimulator-Fertigung wurde begonnen, der frühere BE-Prüfstand des FR2 wurde für die CORA-Bündelmontage umgebaut. Der Verdampfer-Überhitzer für max. 1000 °C Dampftemperatur wurde bestellt. Inzwischen wurde die Anlagenkonzeption auf direkte Umschaltung von Dampf auf Argon erweitert. Einen breiten Raum nahmen die Montagearbeiten für Rohrleitungen und die Elektroinstallation ein, die zu 80% fertiggestellt wurden.

### Bündelversuch ABS-1:

#### Einfluß von AgInCd-Absorberstäben auf das Schadensverhalten unter Bedingungen schwerer Kernschäden.

Im DWR-Brennelement sind an 20 Positionen an Stelle der Brennstäbe Führungsrohre eingebaut. In diesen Führungsrohren können Absorberstäbe eingeführt werden. Bei ca. einem Drittel der Brennelemente im Reaktor werden Absorberstäbe verwendet. Am häufigsten wird die Ag80In20Cd5 Legierung als Absorbermaterial benutzt. Die Resonanzabsorption im Ag und In, zusammen mit der starken thermischen Absorption, macht diese Legierung zu einem guten Neutronen-Absorber im thermischen und epithermischen Bereich.

Die Absorberlegierung ist für das Schadensverhalten aus 2 Gründen wichtig:

1. Der Schmelzbereich dieser Legierung beginnt bei 800 °C. Der Absorber ist damit das Material, welches als erstes im Brennelementverbund seine Form verliert und dann mit der anderen Komponente zu reagieren beginnt.
2. Infolge seines hohen Dampfdruckes ist die Absorberlegierung das am meisten flüchtige Material unter den Strukturmaterialien. Die Wechselwirkung des verdampften Absorbermaterials mit den Spaltprodukten kann die Spaltproduktrückhaltung wesentlich beeinflussen.

Die AgInCd-Legierung ist in einem Edelstahlrohr verschlossen. Damit hat das geschmolzene Absorbermaterial auf das Bündel solange keinen Einfluß, als das Edelstahl-Hüllrohr nicht versagt. Die Schmelztemperatur des Edelstahls liegt bei ca. 1450 °C. Je nach dem Systemdruck im Verlauf des Störfalls könnte der hohe Dampfdruck der Legierung, der im wesentlichen durch das Cadmium bedingt ist, das Hüllrohr schon bei niedrigen Temperaturen versagen lassen.

Die Verteilung des Absorbermaterials wird sowohl die Wechselwirkung mit den anderen Brennelementkomponenten als auch die Aerosolbildung beeinflussen. Der Absorberstab ist unmittelbar von dem Führungsrohr umgeben. Die Verteilung der geschmolzenen Absorberlegierung wird also auch von dem Führungsrohr abhängen. Als Material für das Führungsrohr wird sowohl Edelstahl, als auch Zircaloy verwandt.

Der mechanische Kontakt zwischen Führungsrohr und den Brennstäben ist durch die Abstandshalter angegeben. Als Abstandshaltermaterial wird Inconel 718 oder Zircaloy verwendet. Zwischen Inconel und Edelstahl auf der einen Seite und Zircaloy auf der anderen Seite kann es zu eutektischen Legierungen kommen. Die Legierungsbildung wird durch die oxidierende Wirkung des Dampfes aber stark behindert. Kein Einfluß auf die Stabilität des Führungsrohres (und des Brennstabhüllrohres) ist bei Zircaloy Abstandshaltern zu erwarten.

In dem hier beschriebenen Versuch ABS-1 wird das Verhalten von AgInCd im Edelstahlhüllrohr untersucht, das von einem Zircaloy-Führungsrohr umgeben ist. Es werden Inconel 718-Abstandshalter verwendet.

### Versuchsanordnung

Die schematische Darstellung der Versuchsanordnung ist in Abb. 1 wiedergegeben. Abb. 2 zeigt verschiedene Aufbaustadien des Bündels. Wir verwenden ein 3x3 Bündel von 400 mm Länge. Der Absorberstab befindet sich im Zentrum des Bündels. Der Zylinder aus dem Absorbermaterial hat eine Länge von 331 mm. Über dem Absorbermaterial ist ein Plenum von 14 mm vorhanden. Die beiden Enden des Edelstahlhüllrohres sind dichtgeschweißt. Das Innere des Hüllrohres ist mit He von 1 bar gefüllt.

Der Absorberstab ist von einem 390 mm langen Zircaloy-Führungsrohr umgeben. In 70 mm und 250 mm über Unterkante sind original Inconel Abstandshalter über das Führungsrohr geschoben. Sie halten den Abstand zu den 8 umgebenden Brennstabsimulatoren. Die Brennstabsimulatoren hatten den üblichen Aufbau: 6 mm Wolframheizer, UO<sub>2</sub>-Ringpellets mit 6,1 mm inneren und 9,2 mm äußeren Durchmesser und dem Zircaloy-Hüllrohr (9,29 mm innerer und 10,75 mm äußerer Durchmesser).

Um den Einfluß der exothermen Wärme von umgebenden Stäben zu simulieren war das Bündel mit einem Zircaloykasten umgeben. Er diente gleichzeitig als Dampf führungsrohr. Der Zircaloykasten wiederum war mit 10 cm Keramikfaserisolation umhüllt. Aufgrund seiner hohen Porosität stellt das Keramikfasermaterial einen ausgezeichneten Isolator dar, der wegen seiner geringen Wärmekapazität dem Temperaturverlauf des Bündels gut folgt.

Am unteren Ende wird der Dampf durch ein Dampfverteilungssystem in das Bündel eingeblasen. Dieses System besteht aus 4 Rohren mit je 4 Löchern, so daß der Dampf gleichmäßig im Bündel verteilt wird.

Die Temperaturen wurden mit Thermoelemente und Quotientenpyrometer gemessen. Für die Pyrometermessungen waren Löcher in die Isolation und im Dampf führungskasten angebracht worden.

Für die Aerosolmessungen war neben dem Kopf des Bündels eine Absaugvorrichtung angebracht worden (Abb. 3). In die Anschlußleitung zur Pumpe ist ein Filter eingebaut worden. Dieses Filter ist links unten im linken Bild und rechts unten im rechten Bild der Abb. 3 zu erkennen.

### Versuchsdurchführung

Um Kondensation des Wasserdampfs zu vermeiden wurde die gesamte Anordnung vor dem Beginn der eigentlichen Temperaturtransiente für ca. 150 min aufgeheizt. Dabei wurde die Thermostatenflüssigkeit in der Kesselwandung auf 150 °C gebracht. Durch die Dampfzuführung strömte ca. 200 °C warmes Argon (288 l/h) durch das Bündel in den Kessel. Um die Isolation auch von innen vorzuwärmen wird auch das Bündel mit ca. 1,5 kW vorgeheizt.

Nach Einstellen des Temperaturgleichgewichts wurde bei 153 min die Temperaturtransiente begonnen. Der Spannungs- und Temperaturverlauf ist in Abb. 18 wiedergegeben. Die elektrische Leistung wurde während der Transiente von 1,6 auf 12,8 kW erhöht. 20 Sekunden nach dem Beginn der Leistungstransiente wurde ein Dampfstrom von ca. 17 g/min zugeschaltet. Der Temperaturanstieg in verschiedenen Höhen an den Brennstabsimulatoren ist in den Abbildungen 19-21 dargestellt.

Die Abb. 19 gibt die Messung am Nebenstab 2 in 250 mm über der Unterkante des Brennstabsimulator-Hüllrohres wieder. Diese Höhe entspricht der Mitte des oberen Abstandshalters. Über dem Abstandshalter wird bevorzugt Wärme in das Führungsrohr fließen. Die Messung erfolgt mit zwei verschiedenen Detektoren. Erstens mit einem NiCrNi-Meßdraht/Inconel-Mantelthermoelement, das auf der Innenseite des Brennstabsimulators in 250 mm angepunktet ist. Zweitens wird durch ein Loch in der Isolation und im Dampfkasten die Temperatur auf nur 180 °C versetzten Seite gemessen. Die beiden Messungen ergänzen sich. Das Thermoelement liefert Informationen bis ca. 1450 °C. Bei dieser Temperatur schmilzt der nicht oxidierte Inconel-Mantel.

Das Quotientenpyrometer liefert aus Intensitätsgründen erst Messungen ab 1300 °C. Es sei wiederholt, daß die beiden Meßstellen auf gegenüberliegenden Seiten des Stabes liegen.

Die Zusammenfassung der beiden Messungen zeigt, daß die Temperaturanzeige auf der Innenseite des Stabes durch das Thermoelement viel höher ist als die extrapolierte Messung vom Quotientenpyrometer.

Diese deutlich höhere Temperaturanzeige auf der Innenseite des Nebenstabes könnte teilweise durch den Einfluß der exothermen Wasserdampf Reaktion infolge der innen höheren Temperatur hervorgerufen werden. Auf der anderen Seite muß das Signal des Thermoelements in diesem Temperaturbereich mit Vorsicht betrachtet werden, da die Temperatur hier schon dem Schmelzpunkt des Inconels nahe kommt und überschreitet.

Sieht man von dieser Unsicherheit im Übergangsbereich ab, so zeigt die Abb. 19, daß die Temperatur an der Außenseite des Brennstabes bis knapp 2100 °C ansteigt.

Der Temperaturverlauf am unteren Ende des Bündels ist in Abb. 20 wiedergegeben. In 5 mm über Unterkante der Hüllrohre sind hier die Temperaturen auf der Innenseite des Eckstabes und Nebenstabes dargestellt. In dieser Höhe steigt die Temperatur nur bis ca. 1000 °C an. Die Thermoelemente überleben damit den Versuch. Der Temperaturverlauf liefert eine zusätzlich Information: Beim Übergang vom Meßwert bei 165,3 min zu 165,6 min nimmt die Temperatur sprunghaft zu. Für die Temperatur am Eckstab 3, die vorher in 17 sec um 17 °C zunahm, steigt die Temperatur um 220 °C an. Starke Anstiege im Temperaturverlauf zu diesem Zeitpunkt treten auch bei weiten in diesem Bericht nicht wiedergegebenen Meßkurven auf: z.B. bei am unteren Abstandshalter. Die Unstetigkeit im Temperaturverlauf wird durch das Versagen des Absorberhüllrohres erklärt. Der Druck im Hüllrohr ist zur Versagenszeit so angestiegen, daß das in seiner Festigkeit durch den Temperaturanstieg geschwächte Hüllrohr versagt. Die im mittleren Teil aufgeheizte Schmelze tritt aus und fließt in den unteren Bereich. Wie die in der Zwischenzeit durchgeführten Versuche, mit Abbruch der Heizung unmittelbar nach dem Versagen, gezeigt haben, dringt die austretende Schmelze zugleich auch durch das Zircaloy-Führungsrohr und kann damit in den Kanälen entlang der Brennstabensimulatoren sich ausbreiten.

Die austretende Schmelze scheint nicht nur nach unten abzulaufen sondern auch nach oben zu spritzen. Darauf deutet der Temperaturverlauf am Eckstab in 395 mm hin. Er ist in Abb. 21 wiedergegeben. Hier steigt die Temperatur plötzlich um 70 °C im Vergleich zu den vorher gleichmäßigen Anstiege von 10 °C.

Die Abbildung 21 zeigt die Temperatur am Führungsrohr des Absorberstabs in 250 mm über Unterkante. Auch in diesem Verlauf macht sich das Versagen des Abstandshalterhüllrohres in einer Temperaturunstetigkeit bemerkbar. Die Temperatur nimmt hier ab. Das Führungsrohr das dichter an den beheizten Simulatoren liegt hat eine höhere Temperatur als die Schmelze in diesem Höhenbereich. Die Temperatur am Führungsrohr in 250 mm Höhe zum Zeitpunkt des Versagens betrug ca. 1200 °C. Die am Führungsrohr gemessene Temperatur steigt bis ca. 1800 °C und wird dort sehr unregelmäßig. Das Zircaloy-Mantelthermoelement kann hier in seiner Anzeige versagt haben. Die Temperatur im Zentrum des Bündels hat aber 1800 °C sicher überschritten.

Die Beobachtungen des Bündels während des Versuches zeigt, daß während der Aufheizphase nach dem Versagen des Absorberstabes eine starke Aerosolentwicklung am oberen Ende des Bündels vorhanden war. Auf der anderen Seite konnte das Herauslaufen der Schmelze am unteren Ende beobachtet werden. Die herausgelaufenen Schmelztropfen erstarrten aber wieder sehr schnell (1-2 sec). Das Zerbröckeln der nicht geschmolzenen Anteile des Bündels und des Zircaloykastens erfolgt während des Abkühlens.

#### Aussehen des Bündels nach dem Versuch

Nach dem Auskühlen wurde die Isolation des Bündels auf der einen Seite vorsichtig entfernt. Es zeigte sich der in Abb. 4 wiedergegebene Anblick. Der Zircaloykasten war bis auf ca. 5 cm am oberen und unteren Ende zerstört. Damit konnte man direkt ins Innere des Bündels sehen. Der zentrale Absorberstab mit dem umgebenden Führungsrohr und dem Abstandshalter war in dem einblickbaren Bereich verschwunden. Von den Brennstabsimulatoren waren im wesentlichen die Wolfram-Stäbe stehen geblieben, an denen nur noch bruchstückhafte Reste der Brennstabsimulatoren hingen. Über den Boden des Bündels hatte sich ein Haufen zerbröselten Materials gebildet. In Abb. 5 ist der untere Bereich näher zu erkennen. Man sieht, daß der Bröselhaufen aus Bruchstücken sehr unterschiedlicher Größe besteht. Er enthält Stücke mit Abmessungen im cm-Bereich, aber auch sehr feines Puder. In Abb. 5 kann man erkennen, daß auch die anderen Seiten des Zircaloykastens innerhalb der Isolation nicht mehr vorhanden sind.

Der Bröselhaufen wurde schichtweise abgetragen und danach die Isolation vorsichtig entfernt. Die Abbildung 6 zeigt das übrig gebliebene Bündel von verschiedenen Seiten. Man kann vier Bereiche erkennen. Das obere Ende des Bündels, an dem über ca. 5 cm Reste der angeschmolzenen Brennstab-simulatoren und des Zircaloykastens vorhanden sind. Der mittlere ca. 25 cm lange mittlere Bereich enthält praktisch nur noch die W-Heizer. Nur wenige Bruchstücke kleben an den Heizstäben. Am unteren Ende können wir zwei deutlich unterschiedlich erstarrte Schmelzen erkennen: Der obere Schmelzklumpen zwischen den Stäben hat eine verhältnismäßig rauhe Struktur. Der untere Schmelzklumpen hat eine glatte Oberfläche und hat die enthaltenen Stäbe gut benetzt.

Details dieser Schmelzklumpen sind in den Abb. 7 und 8 besser zu erkennen. Die Schmelze im unteren Bereich muß im flüssigen Zustand eine hohe Viskosität besessen haben. Sie ist in großen Tropfen auf die untere Elektrode geflossen. Das untere Ende des Bündels ist mit dem Rest des Zircaloykastens zu einem zusammenhängenden Klumpen verschmolzen. Zu beachten ist auch die glatte Oberfläche der erstarrten Schmelze. Dies zeigt, daß der Bröselhaufen auf diesem Schmelzklumpen sich erst nach dem Erstarren der Schmelze gebildet haben kann.

Abb. 9 zeigt das untere Ende des Bündels nach dem Entfernen des Bündels aus der Elektrode. Man sieht, daß die Schmelze bis in das Dampfverteilungs-system hineingelaufen ist.

Vermutlich besteht der untere Schmelzklumpen im wesentlichen aus dem erstarrten Absorber- und Abstandhalter-Material. Der obere rauhe Klumpen wird wahrscheinlich bevorzugt Zircaloy und aufgelöstes  $UO_2$  enthalten. Die genaue Zusammensetzung wird in späteren Untersuchungen bestimmt werden. Das Bündel ist für die metallographische Präparation bereits in Epoxidharze eingegossen. Es werden Querschnitte angefertigt. Damit wird die Bestimmung der Zusammensetzung der Materialien in den verschiedenen Höhen möglich sein.



Das linke obere Bild der Abb. 9 zeigt den oberen Überrest des Absorberstabes. Von der ursprünglich doppelwandigen Struktur ist nur noch ein Schmelzklumpen übrig geblieben.

### Struktur und Siebanalyse der Bündelfragmente

Die Struktur des Materials im Bröselhaufen ist in den Abb. 10 bis 16 wiedergegeben. Abb. 10 zeigt eine Photographie der obersten Schicht. Man kann die langen Stücke oxidierten Zircaloys erkennen. Man sieht aber auch Reststücke von abgeplatzten Pellets und sehr feines Pulver. Bei dem Pulver handelt es sich vermutlich um Urandioxid.

Von dem in Abb. 10 gezeigtem Material wurde eine Siebanalyse durchgeführt. Die 4 Komponenten mit den größten Stücken sind in Abb. 11 wiedergegeben. Die Verteilung für alle Komponenten ist in Abb. 14 dargestellt. Gewichtungsmäßig überwiegen in der obersten Schicht die Bruchstücke mit Abmessungen von größer als 5 mm. Es sind aber auch Teilchen vorhanden, die kleiner als 20  $\mu$  sind.

Die zweite abgetragene Schicht des Bröselhaufens zeigt Abb. 12. Das Bild zeigt, daß die größeren Zirkonoxydstücke bevorzugt auf der Oberfläche des Bröselhaufens lagen. Es ist auch verständlich, daß die kleineren Stücke sich im unteren Bereich des Haufens ansammeln. In der in Abb. 12 und 13 gezeigten mittleren Schicht überwiegen also die kleineren Teilchen. Abb. 13 zeigt, daß die Bruchstücke mit Abmessungen von über 5 mm eine deutlich andere Struktur aufweisen. Die Bruchstücke haben bevorzugt abgerundete Kanten. Es handelt sich bei diesen Bruchstücken um Urandioxyd. Die Verteilung auf die Bruchstücke verschiedener Größe für diese mittlere Schicht ist in Abb. 15 dargestellt. Die Verschiebung zu kleineren Bruchstücken im Vergleich zur obersten Schicht ist deutlich zu erkennen. In Abb. 16 ist die Siebanalyse für das gesamte verbröselte Material dargestellt. Man sieht, daß ungefähr 25% der Bruchstücke Abmessungen unter 100  $\mu$  besitzen.

### Analyse der Siebkomponenten

Von den Komponenten der Siebanalyse wurden Proben genommen und spektrochemisch untersucht. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 wiedergegeben. In beiden Schichten enthalten alle untersuchten Komponenten bevorzugt U und Zr. Ferner sind Spuren ( $< 0,5\%$ ) von Fe, Ni, Cr und Su vorhanden. Ag, In und Cd liegen unter der Nachweisgrenze von  $0,1\%$ . Bei diesem zerbröselten Material handelt es sich also um die Reste der Brennstabsimulatoren, die beim Abkühlen zerfallen sind. Die Absorbermaterialien sind verdampft oder nach unten abgeflossen und in Schmelzklumpen erstarrt.

### Aerosolmessungen

Abbildung 17 zeigt eine Photographie des Filters aus der Absaugleitung. Man sieht, daß sich eine dicke Schicht abgelagert hat. Das Gewicht der Ablagerung betrug  $0,32\text{ g}$ . Die kreisförmige Markierung kennzeichnet den Ort der Probenahme für die spektrochemische Analyse. Tabelle 2 gibt die Ergebnisse dieser Analyse. Der Niederschlag besteht im wesentlichen aus Cadmium: über  $90\%$ . Silber und Indium sind nur mit  $3,4\%$  und  $0,5\%$  im Niederschlag enthalten. Das Ausgangsverhältnis von 5 zu 80 und 15 hat sich umgekehrt. Das Konzentrationsverhältnis vom Indium zum Silber hat sich nicht wesentlich geändert.

Das zu deutlich bevorzugte Abdampfen des Cadmiums ist verständlich, wenn man die merklich unter  $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$  liegende Siedetemperatur beachtet. Der Dampfdruck des Cadmiums bei der Temperatur des Versuches ist größer als 1 bar.

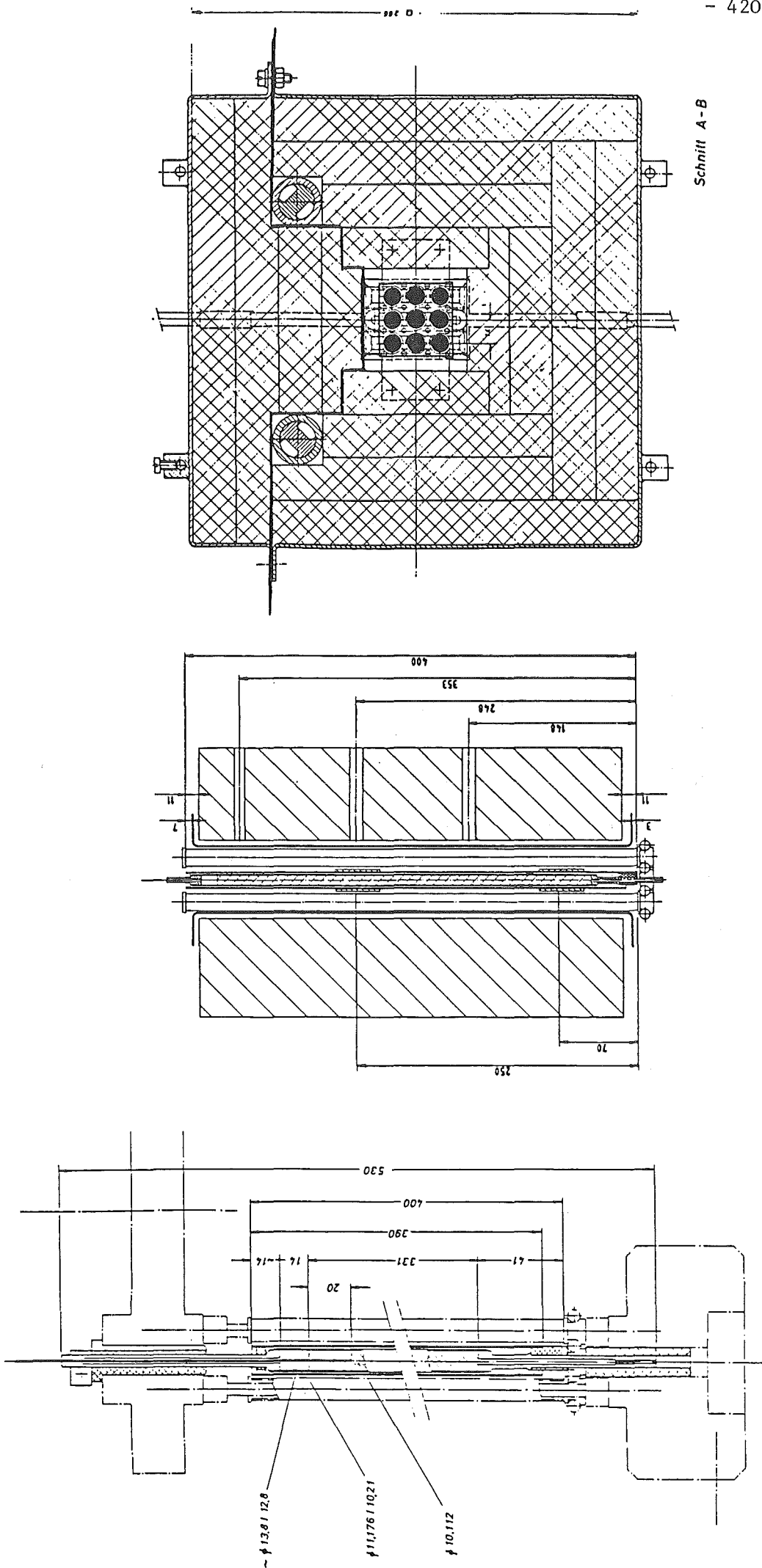
Im Niederschlag befinden sich noch ca.  $1\%$  Uran und  $0,1\%$  Zr. Die Elemente des Abstandshalters wurden wie folgt nachgewiesen: Fe:  $0,3\%$ ; Cr:  $0,1\%$  und Ni:  $< 0,01\%$ .

Körnung	Elemente in %								
	U	Zr	Ag	In	Cd	Fe	Ni	Cr	Sn
Oberste Schicht:									
0,02-0,056	68,8	0,39	<0,1	<0,1	<0,1	0,08	<0,05	0,14	<0,1
0,056-0,11	66,4	0,63	<0,1	<0,1	<0,1	0,11	<0,05	0,12	<0,1
0,11-0,2	59,0	1,31	<0,1	<0,1	<0,1	0,26	0,07	0,12	<0,1
0,2 - 0,5	52,2	1,82	<0,1	<0,1	<0,1	0,38	0,11	0,14	<0,1
0,6 - 1,0	48,4	2,18	<0,1	<0,1	<0,1	0,35	0,09	0,15	<0,1
Mittlere Schicht:									
<0,02	57,4	1,83	<0,1	<0,1	<0,1	0,21	0,05	0,07	0,26
0,02-0,056	95,5	1,78	<0,1	<0,1	<0,1	0,19	0,05	0,06	0,27
0,056-0,1	59,2	1,73	<0,1	<0,1	<0,1	0,22	0,06	0,08	0,27
0,1 - 0,2	49,2	2,36	<0,1	<0,1	<0,1	0,37	0,12	0,13	0,37
0,2 - 0,5	47,9	2,48	<0,1	<0,1	<0,1	0,38	0,12	0,13	0,34
0,5 - 1,0	44,7	2,82	<0,1	<0,1	<0,1	0,36	0,12	0,13	0,36

Tab.1: Analyse der Siebkomponenten der obersten und mittleren Schicht (ABS-1).

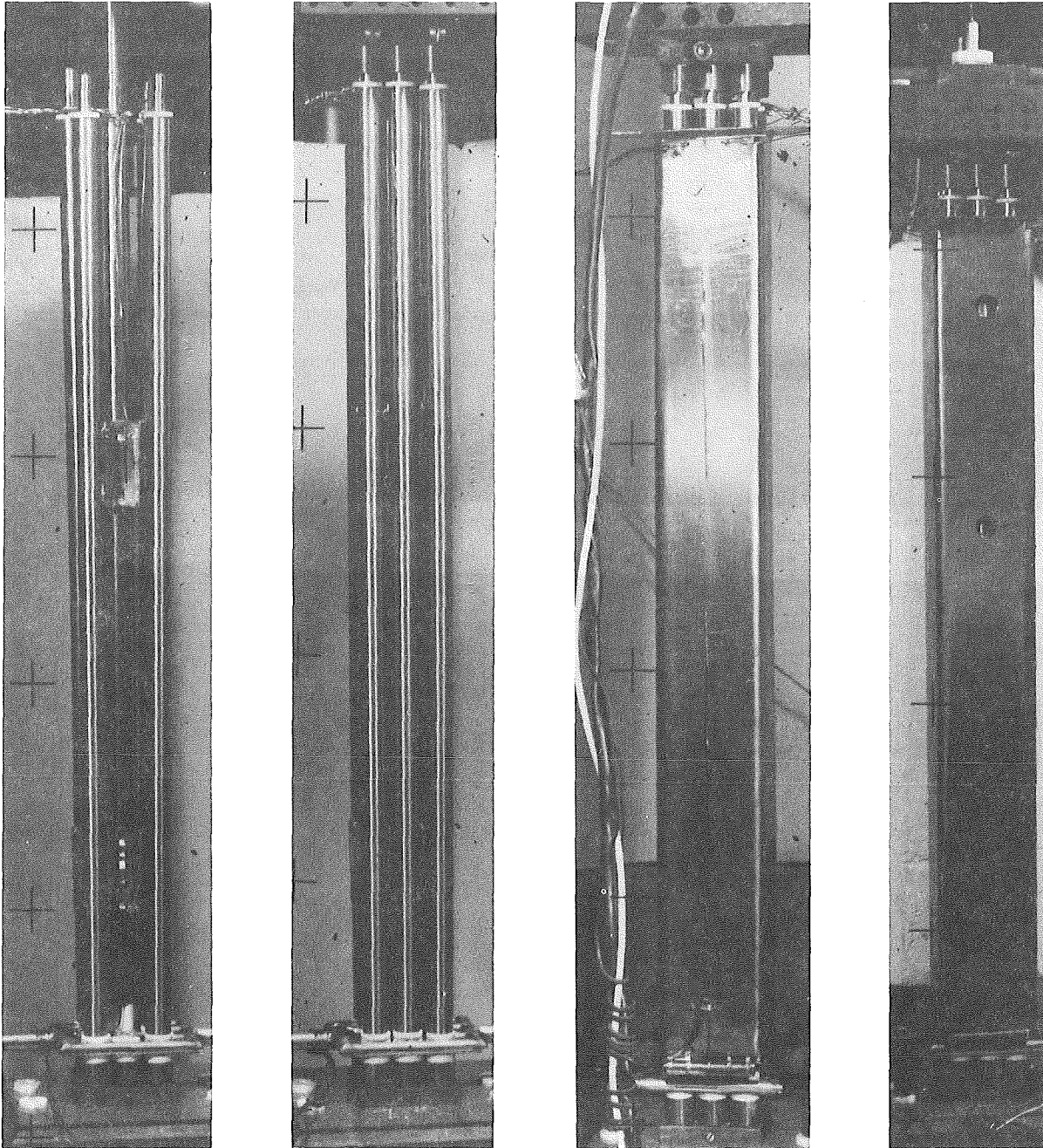
Cd	Ag	In	U	Zr	Fe	Cr	Ni	Summe
91,4%	3,36%	0,54%	0,57%	0,092%	0,32%	0,13%	<0,01%	96,42%

Tab. 2: Analyse des Filterniederschlags.



Schnitt A-B

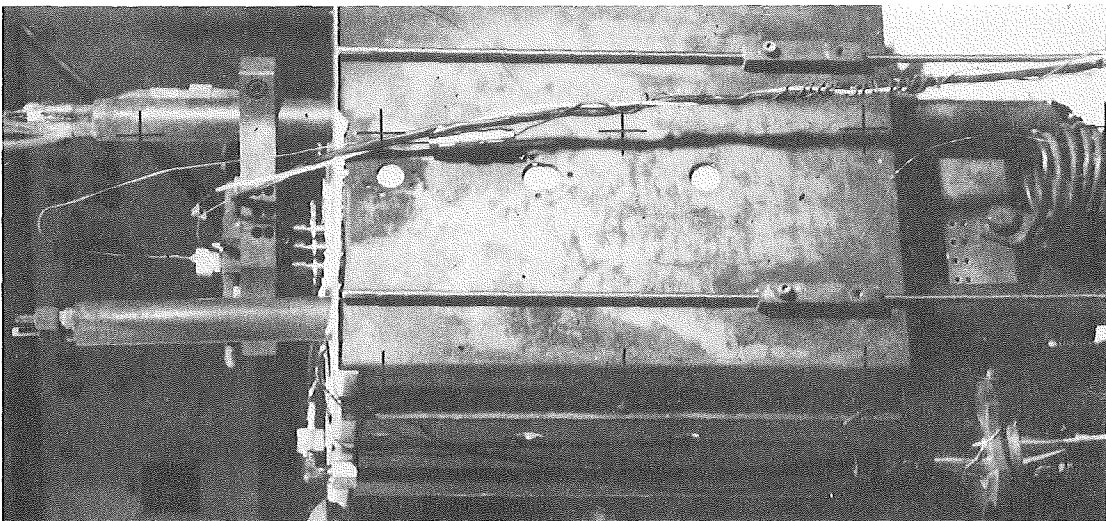
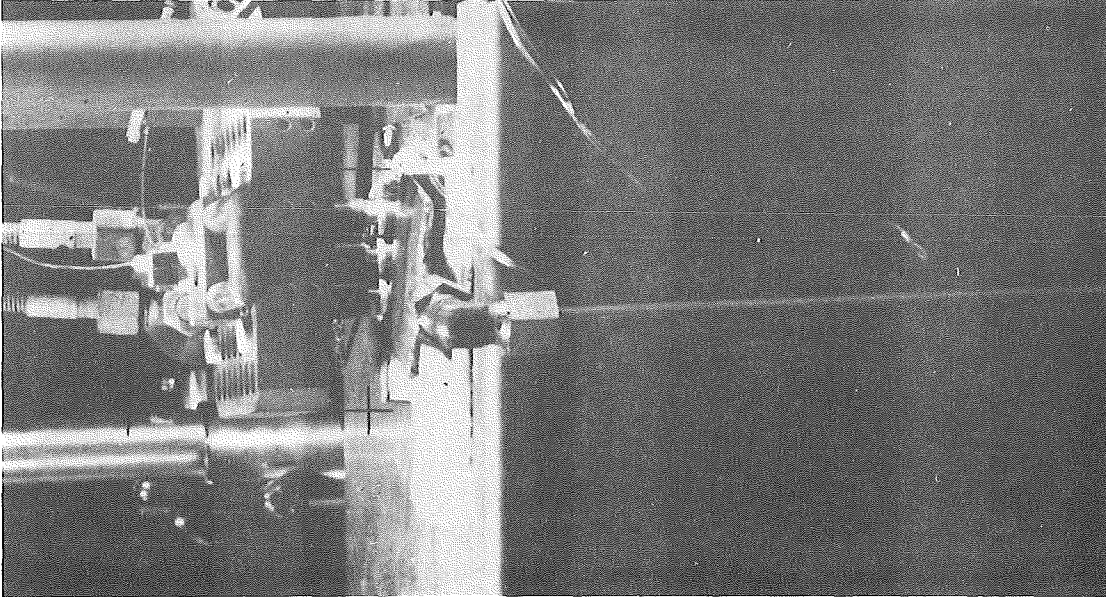
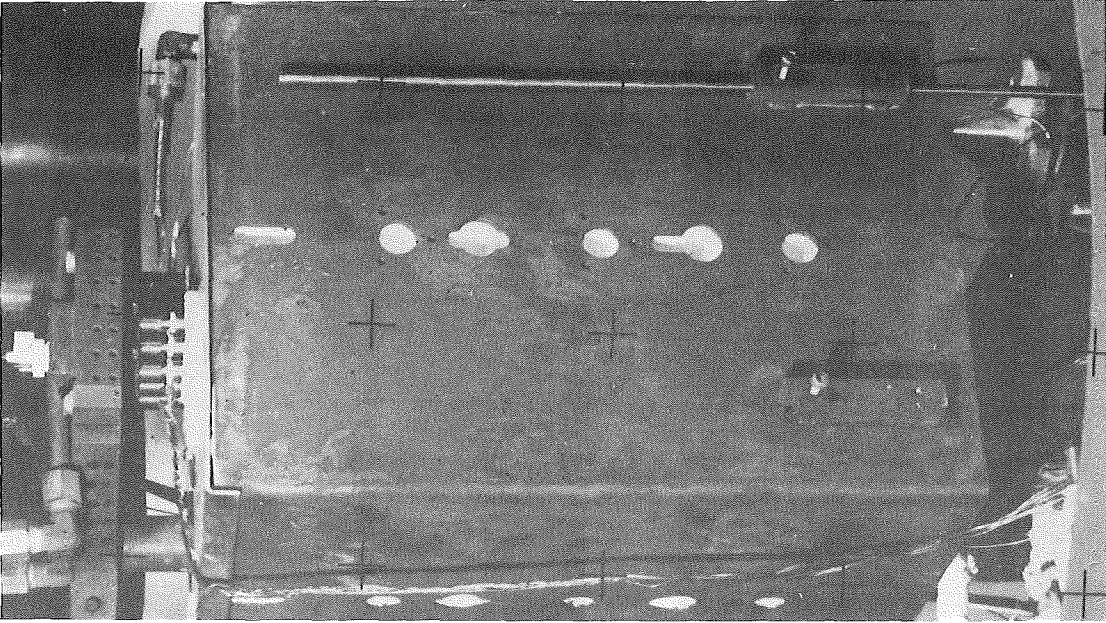
Abb. 06.01.16-1  
Anordnung des 3 x 3 Bündel mit zentralen AgInCd-Absorberstab, Zircaloy Führungsrohr und Inconel Abstandshalter  
( ABS-1 )



---

KIK

Abb. 06.01.16-2  
Photographien des Bündels mit Absorberstab in verschiedenen  
Aufbohrstufen.  
( ABS-1 )



KfK

Abb. 06.01.16-3  
Isolation des Bündels und Absaugvorrichtung für die Aerosolmessung. ( ABS-1 )



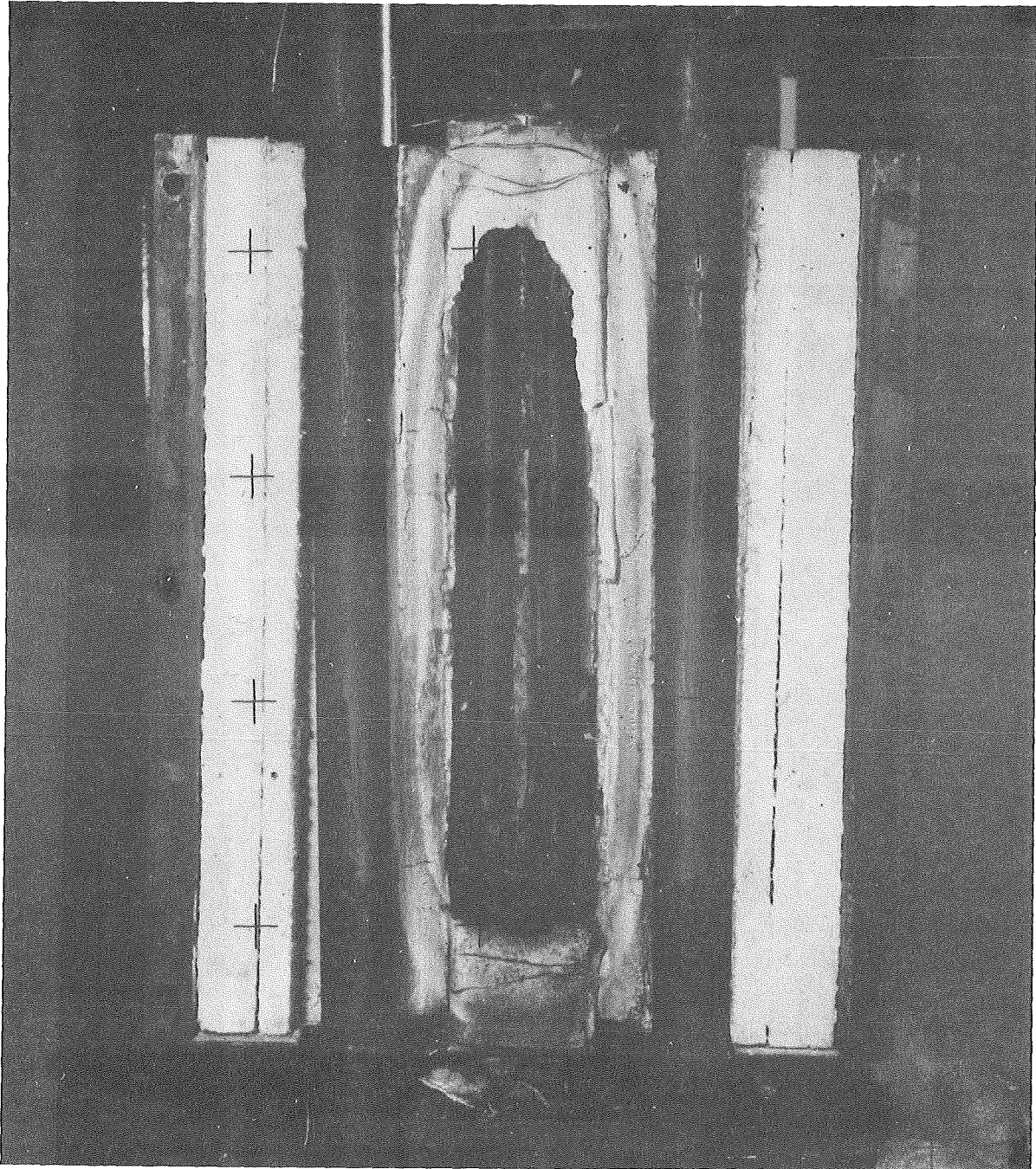


Abb. 06.01.16-4  
Seitenansicht des Bündels nach Entfernen der vorderen  
Isolation  
( ABS-1 )

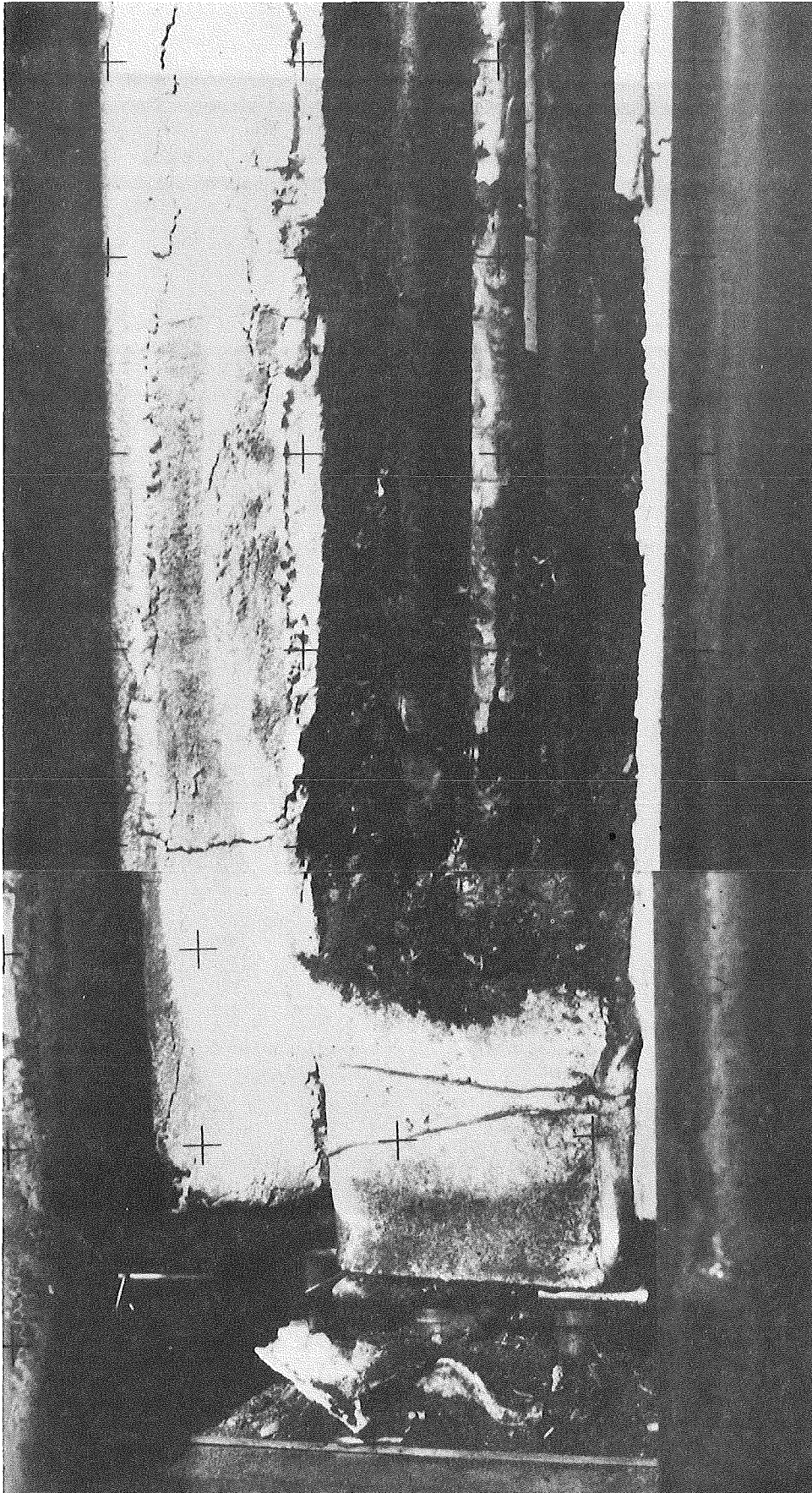
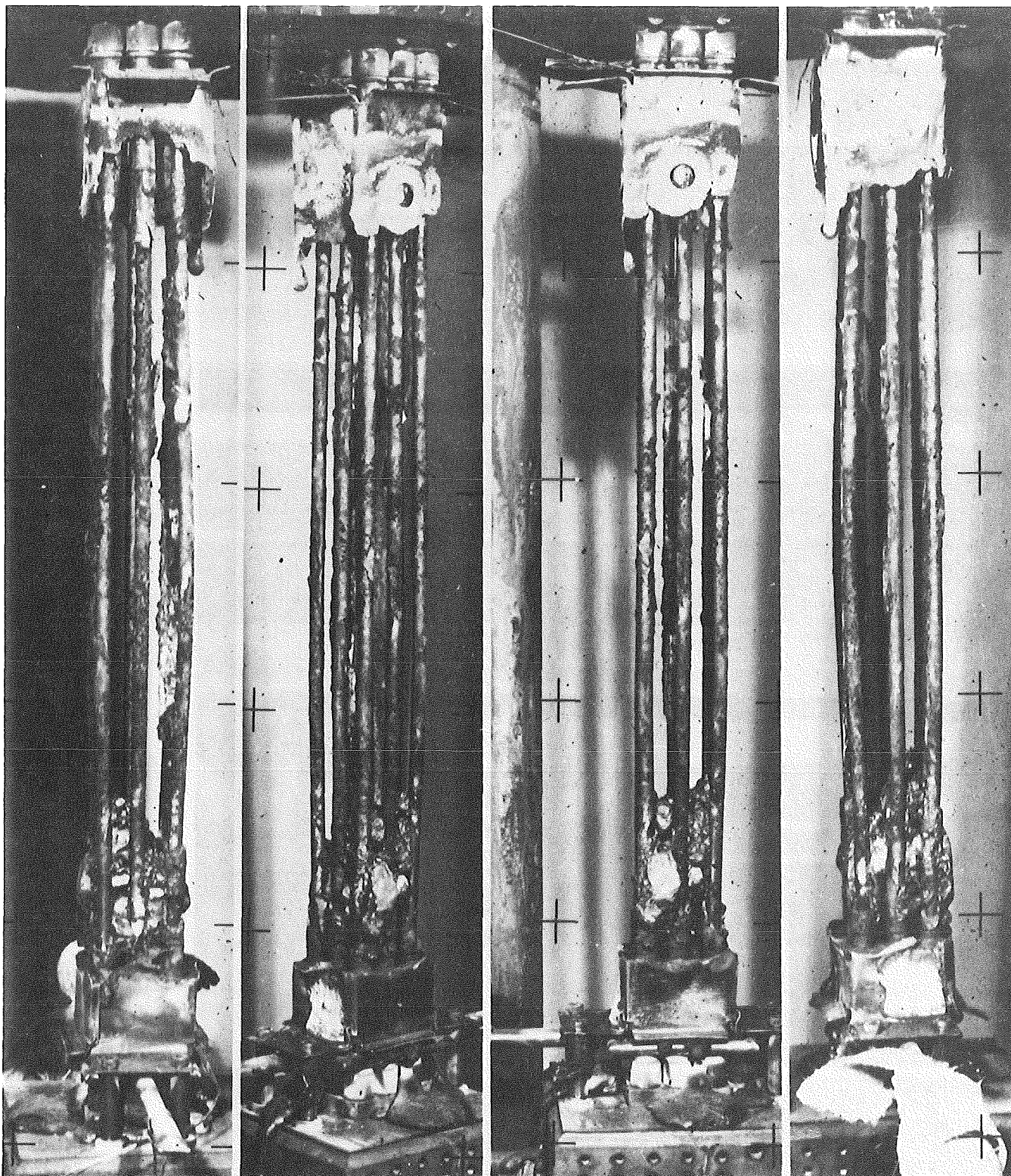


Abb. 06.01.16-5  
Aufnahme vom unteren Bereich des Bündels nach Entfernen der  
vorderen Isolation.  
( ABS-1 )





KfK

Abb. 06.01.16-6  
Aufnahme des Bündels von verschiedenen Seiten nach Entfernen  
der Isolation und Abtragen der lockeren Schicht zerbröselten  
Materials.  
( ABS-1 )

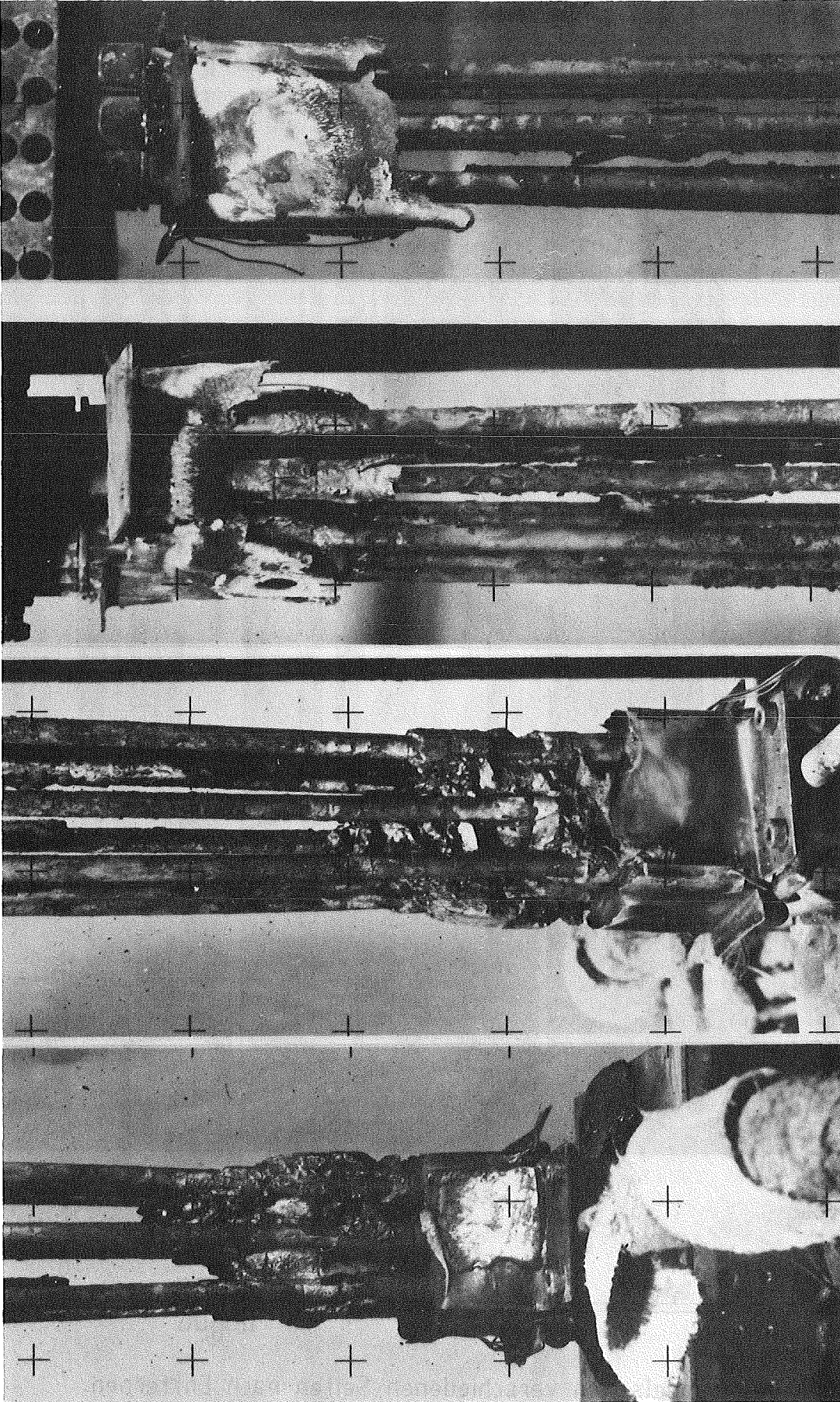


Abb. 06.01.16-7  
Aufnahme vom unteren und oberen Ende des Bündels.  
( ABS-1)





Abb. 06.01.16-8  
Aufnahmen vom unteren Ende des Bündels nach Entfernen der zerbröselten-Schicht.  
( ABS-1 )

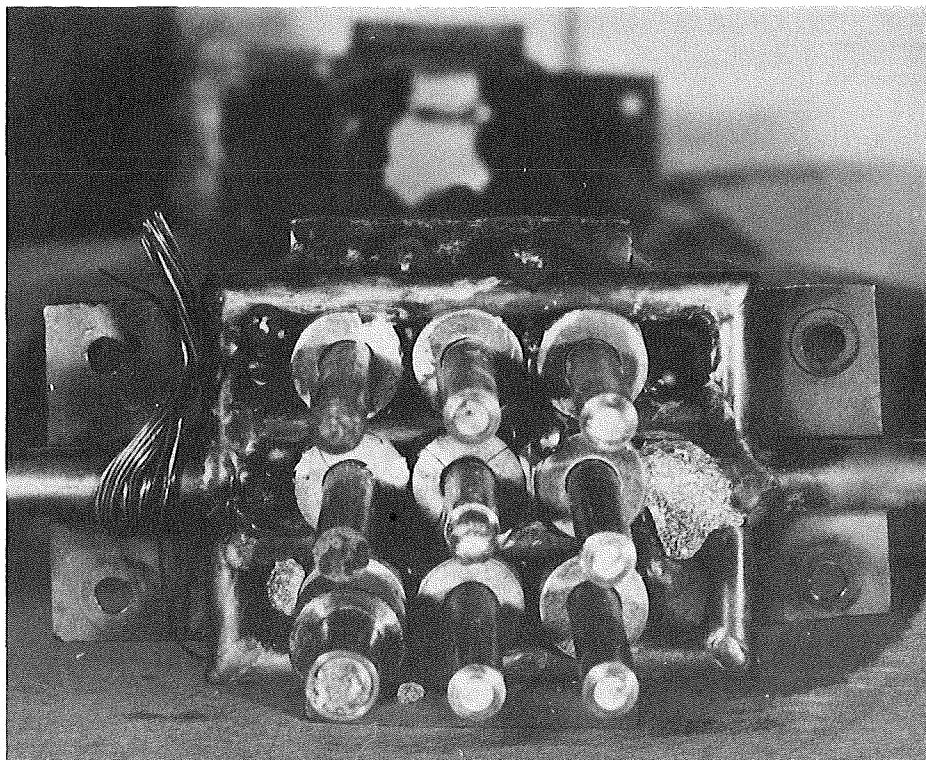
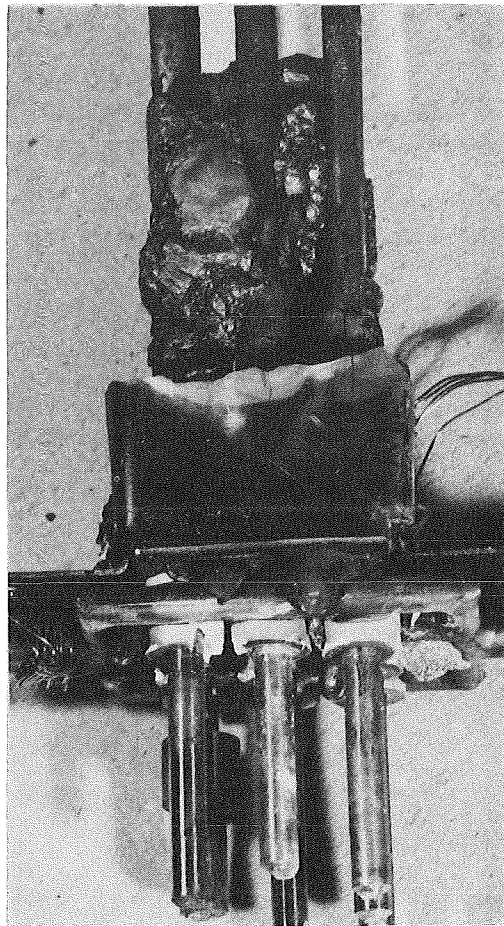
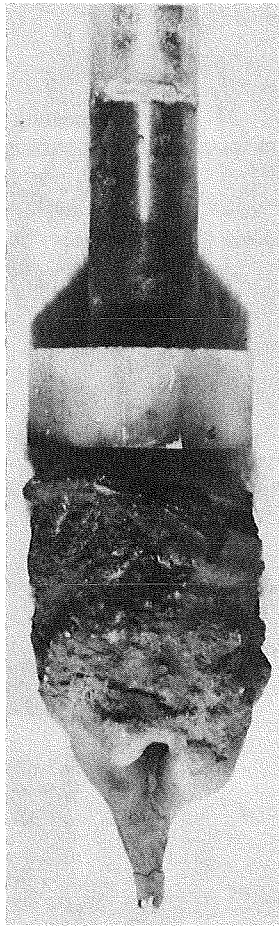


Abb. 06.01.16-9  
Das obere Ende des Absorberstabs und Bilder von der erstarrten  
Schmelze am Bündelfuß.  
( ABS-1 )





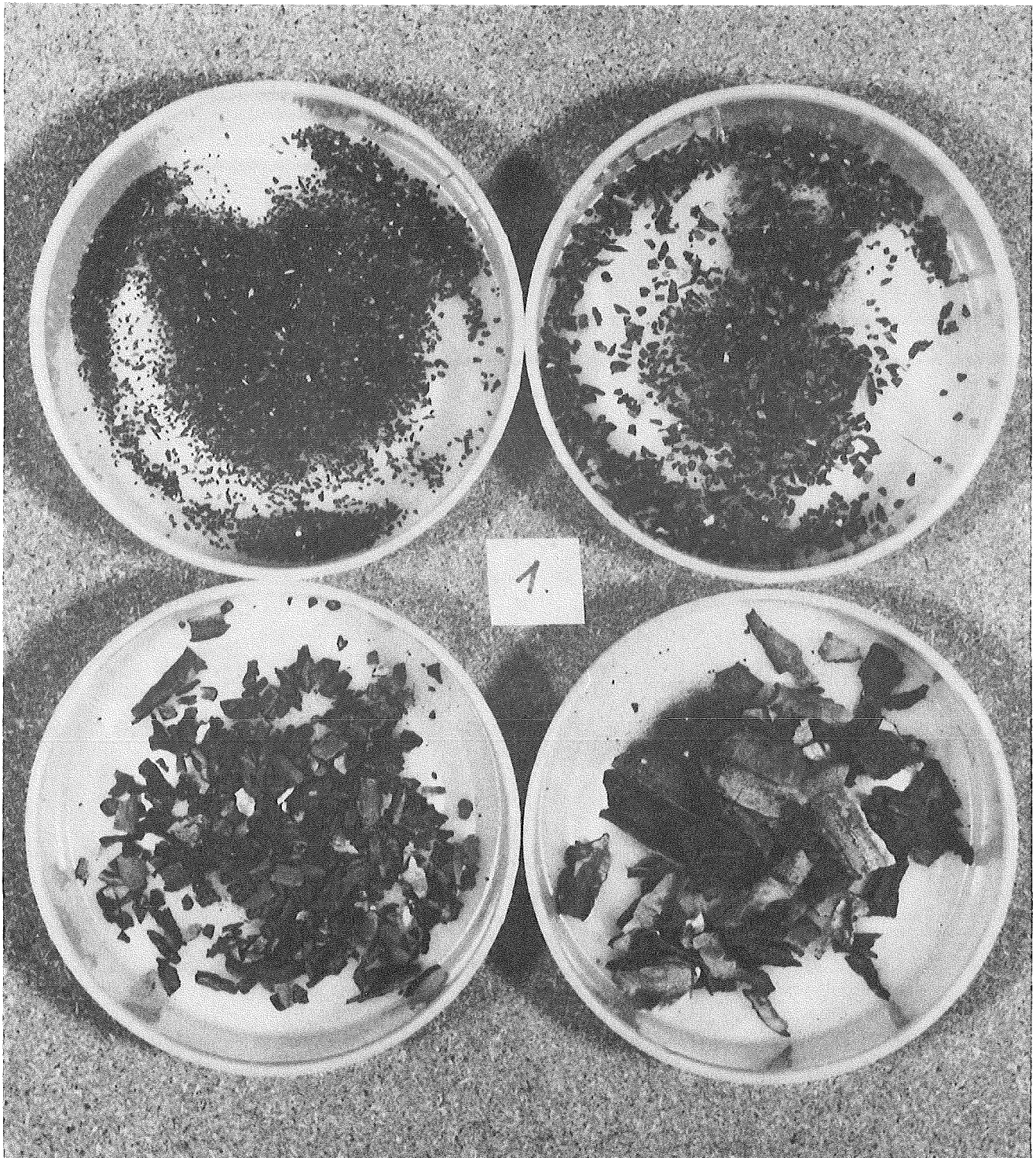
---

The logo for KfK (Karlsruhe Institute of Technology) is located at the bottom right of the page. It consists of the letters 'KfK' in a stylized, outlined font.

Abb. 06.01.16-10  
Photographie von der obersten Schicht des zerbröselten Materials.  
( ABS-1 )

0,5 mm

1,0 mm



2,0 mm

5,0 mm

---

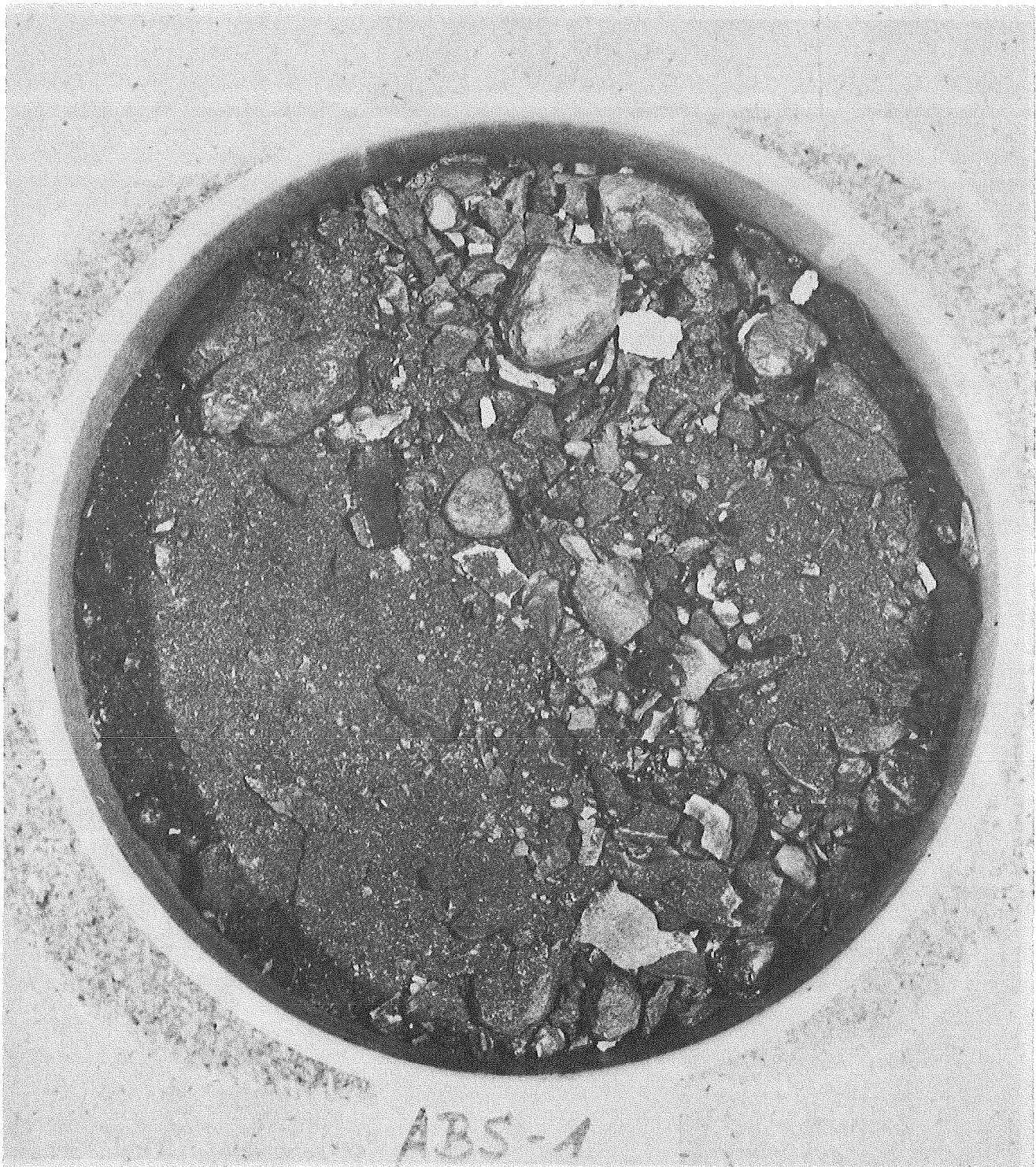
The logo for KfK (Karlsruhe Institute of Technology) is positioned on the right side of the page, below a horizontal line. It consists of the letters 'KfK' in a stylized, bold, sans-serif font.

Abb. 06.01.16-11

Photographien der Siebkomponenten von der obersten Schicht des zerbröselten Materials.

( ABS-1 )





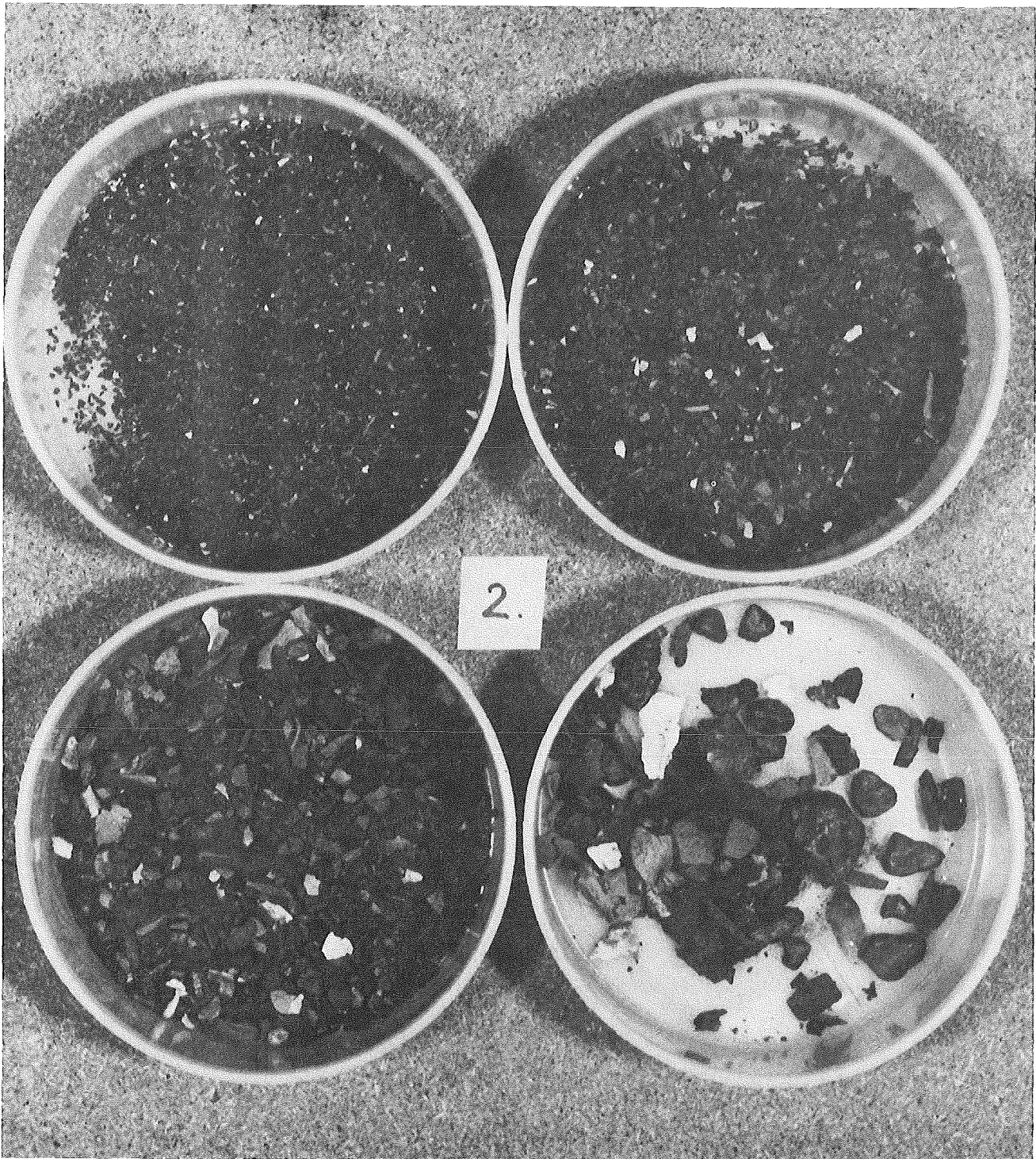
---

KfK

Abb. 06.01.16-12  
Photographie der mittleren Schicht des zerbröselten Materials.  
( ABS-1 )

0,5-1 mm

1-2 mm



2-5 mm

>5 mm

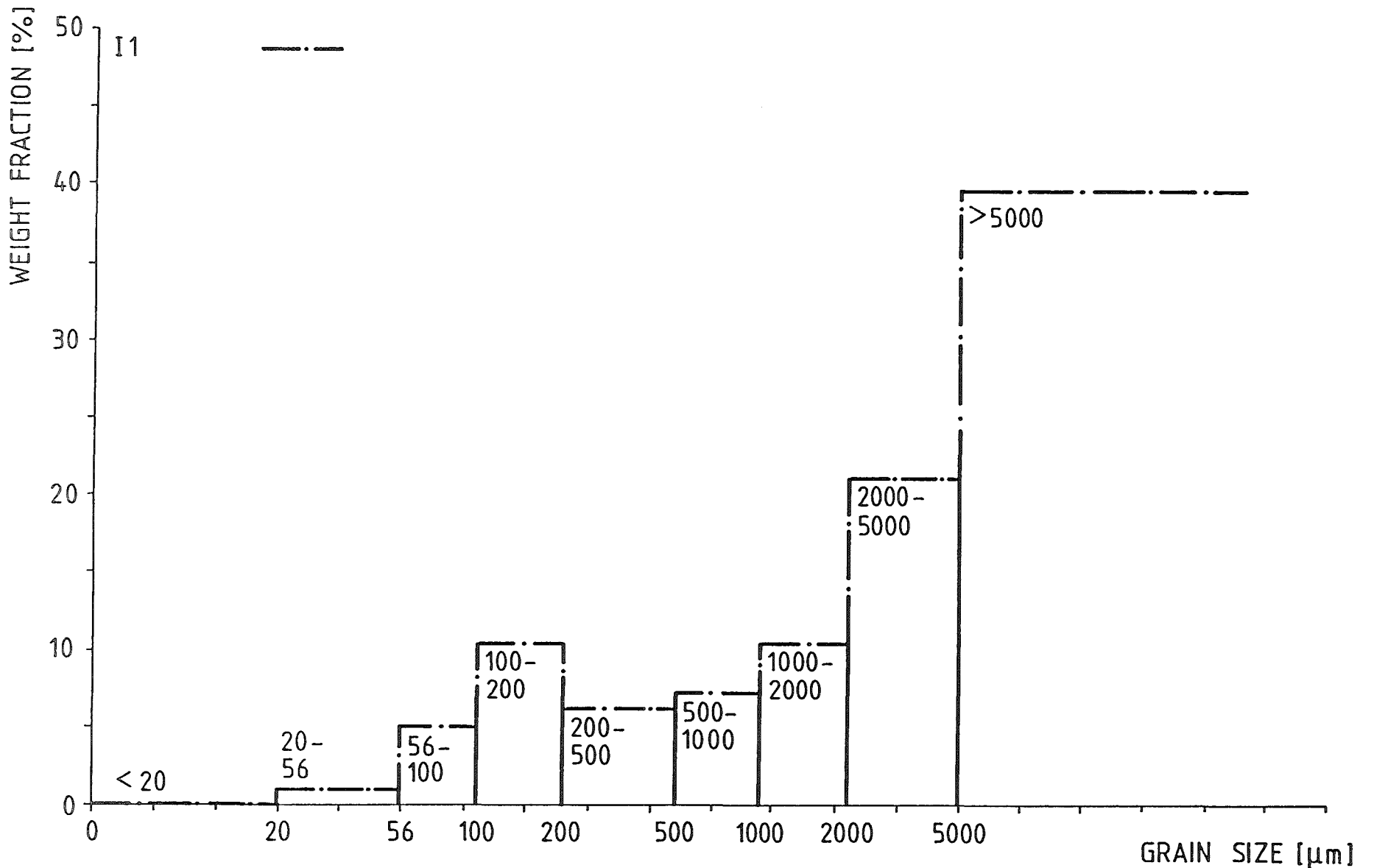
kfk

Abb. 06.01.16-13

Photographien der Siebkomponenten der mittleren Schicht des zerbröselten Materials.

( ABS-1 )

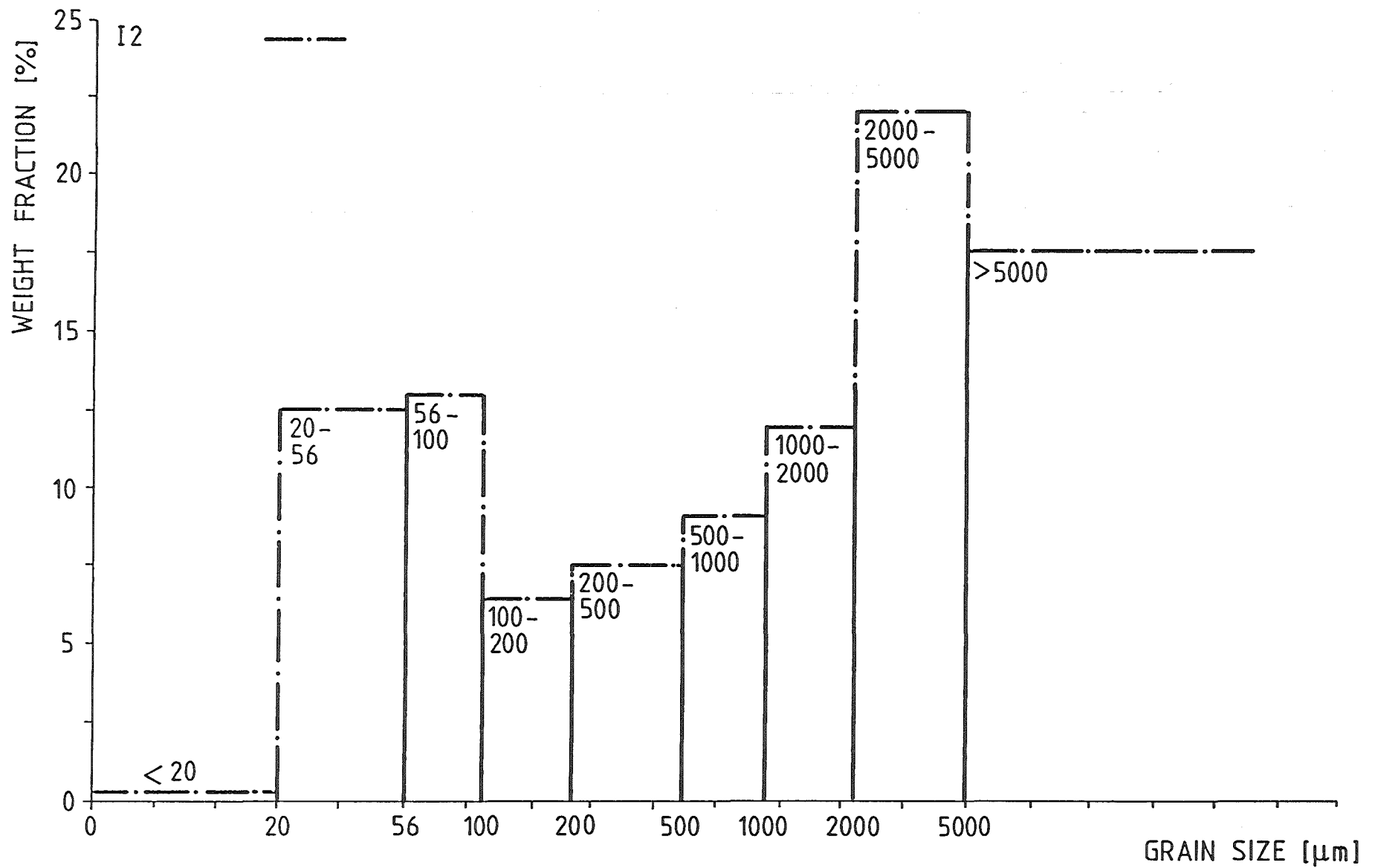




- 4200-121 -



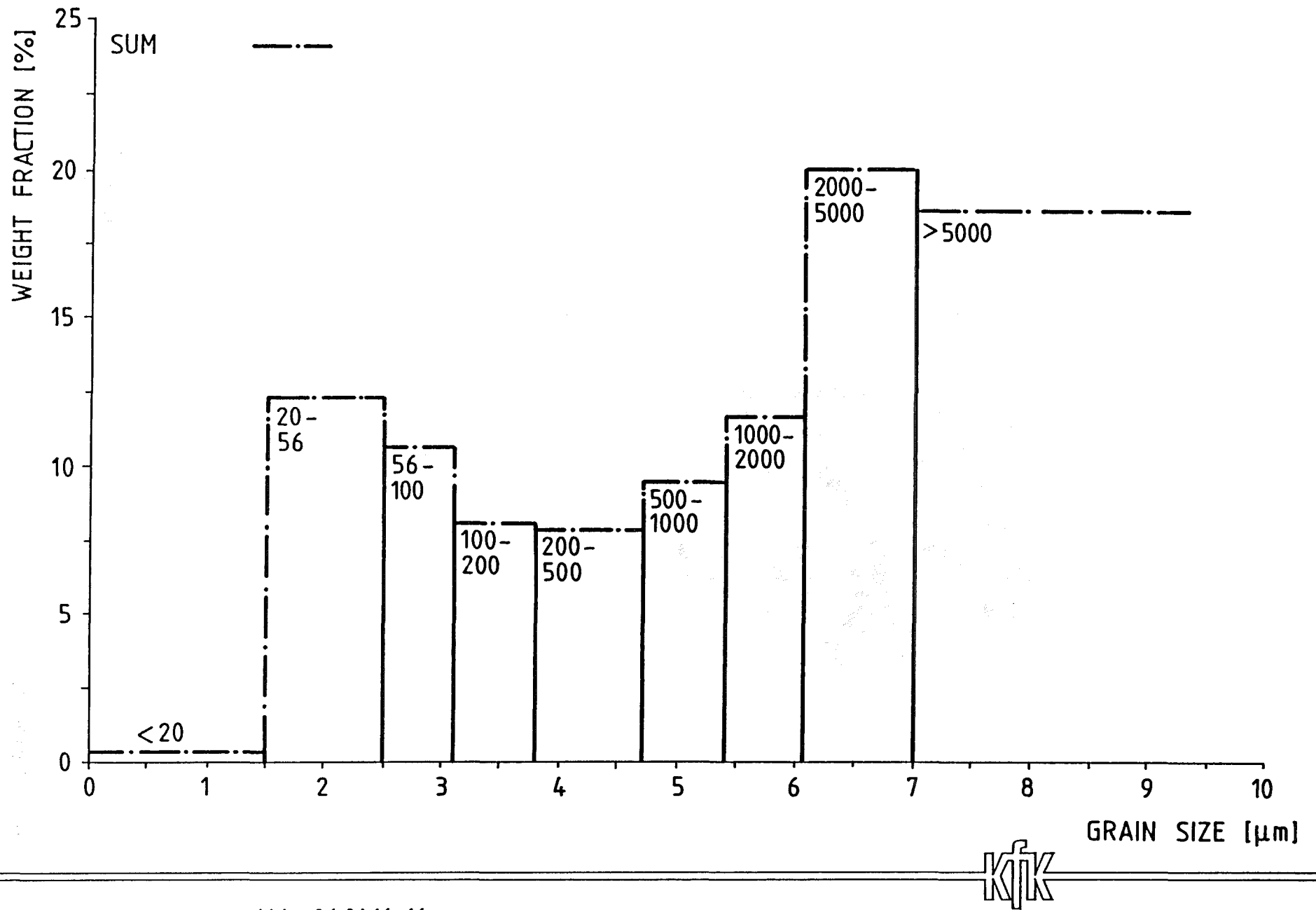
Abb. 06.01.16-14  
 Siebanalyse der obersten Schicht des zerbröselten Materials.  
 ( ABS-1 )



- 4200-122 -



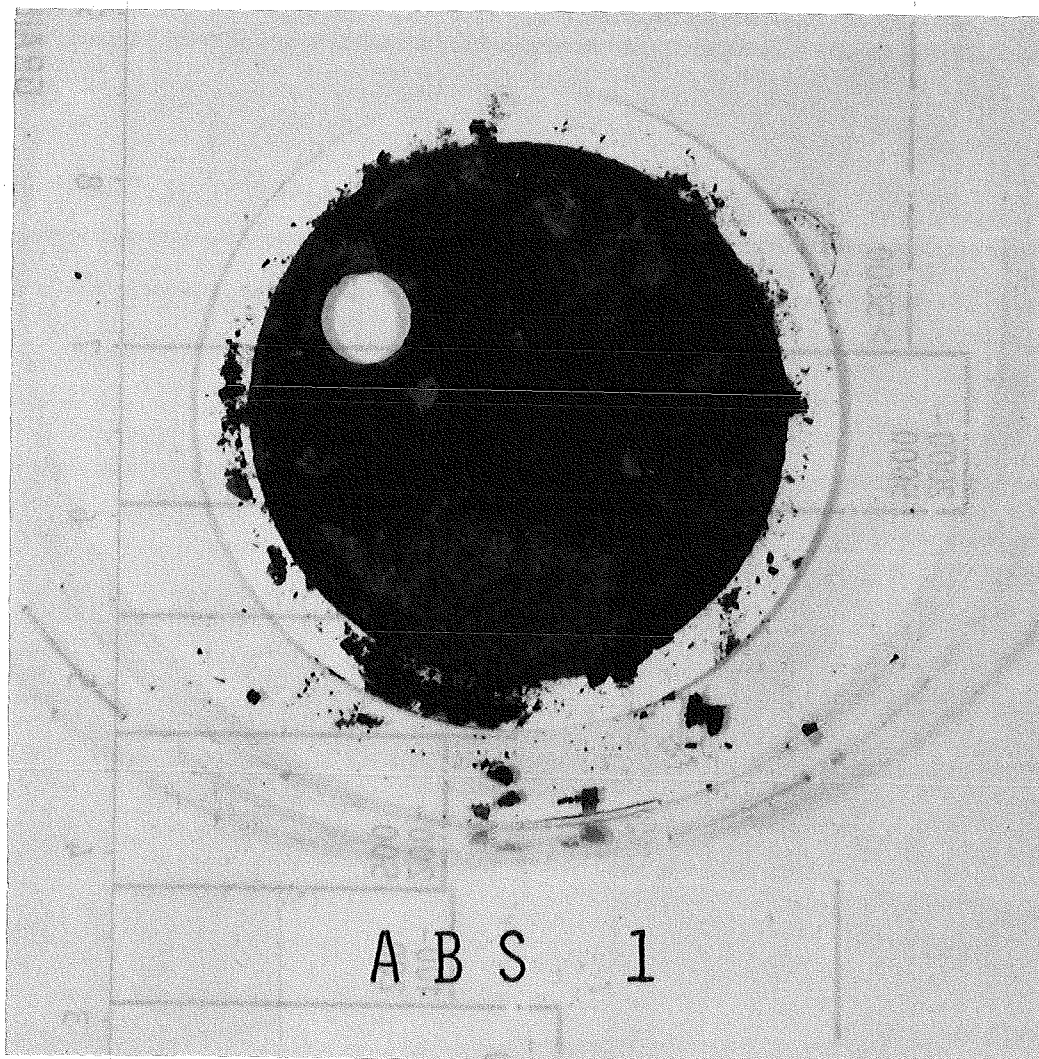
Abb. 06.01.16-15  
 Siebanalyse der mittleren Schicht des zerbröselten Materials  
 ( ABS-1 )



- 4200-123 -

Abb. 06.01.16-16  
 Siebanalyse des gesamten zerbröselten Materials.  
 ( ABS-1 )





A B S 1



Abb. 06.01.16-17  
Photographie des Filters in der Absaugleitung.  
( ABS-1 )

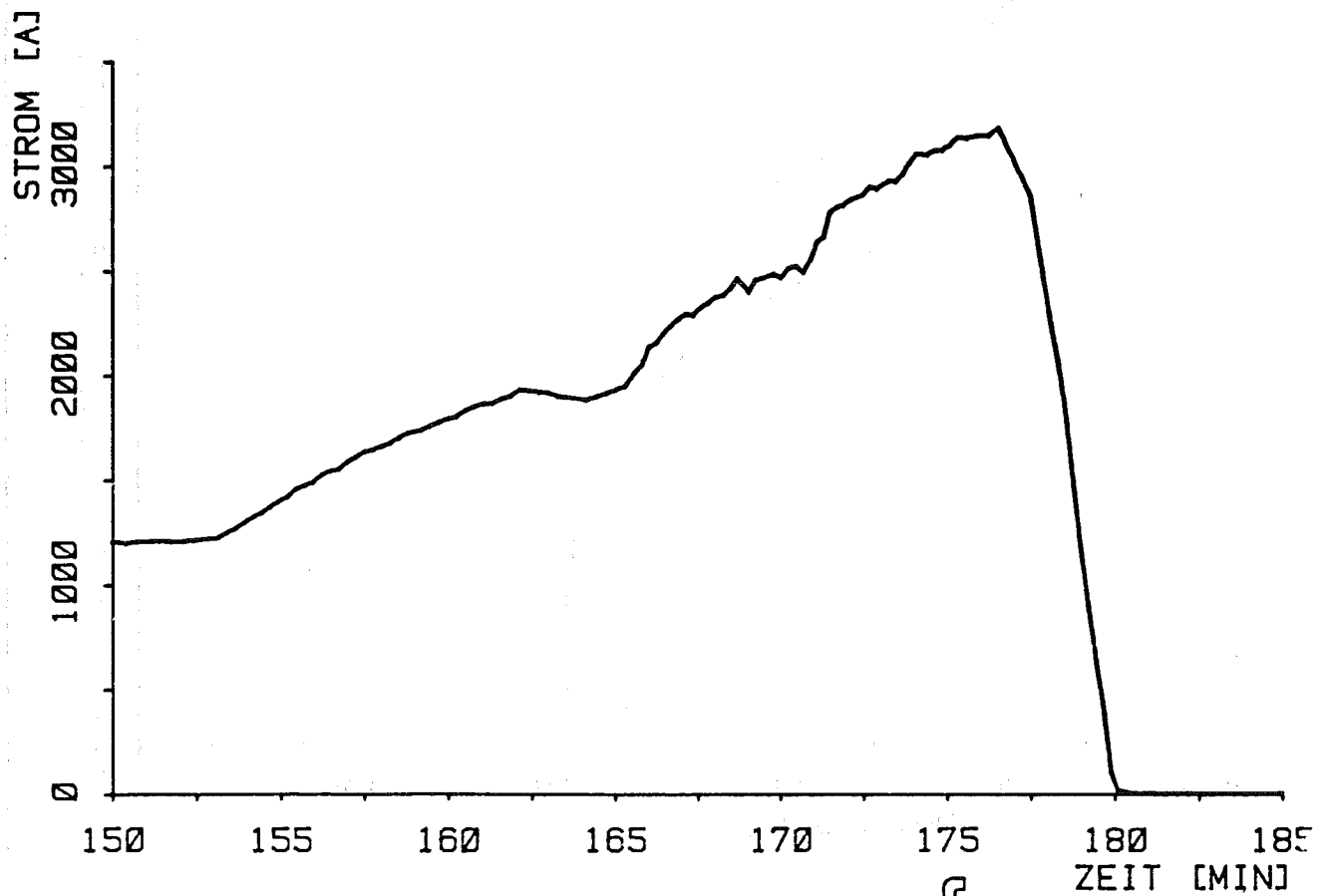
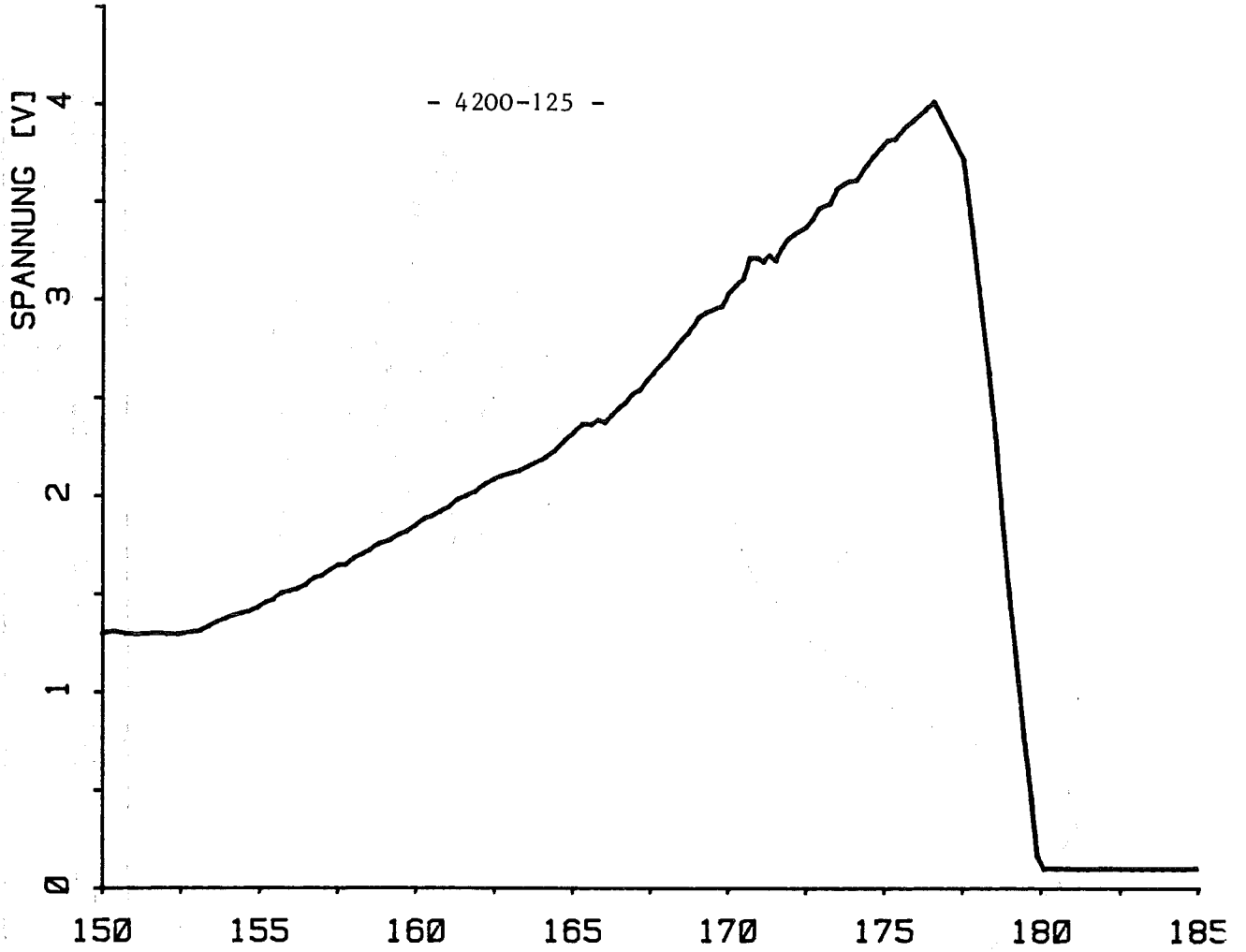
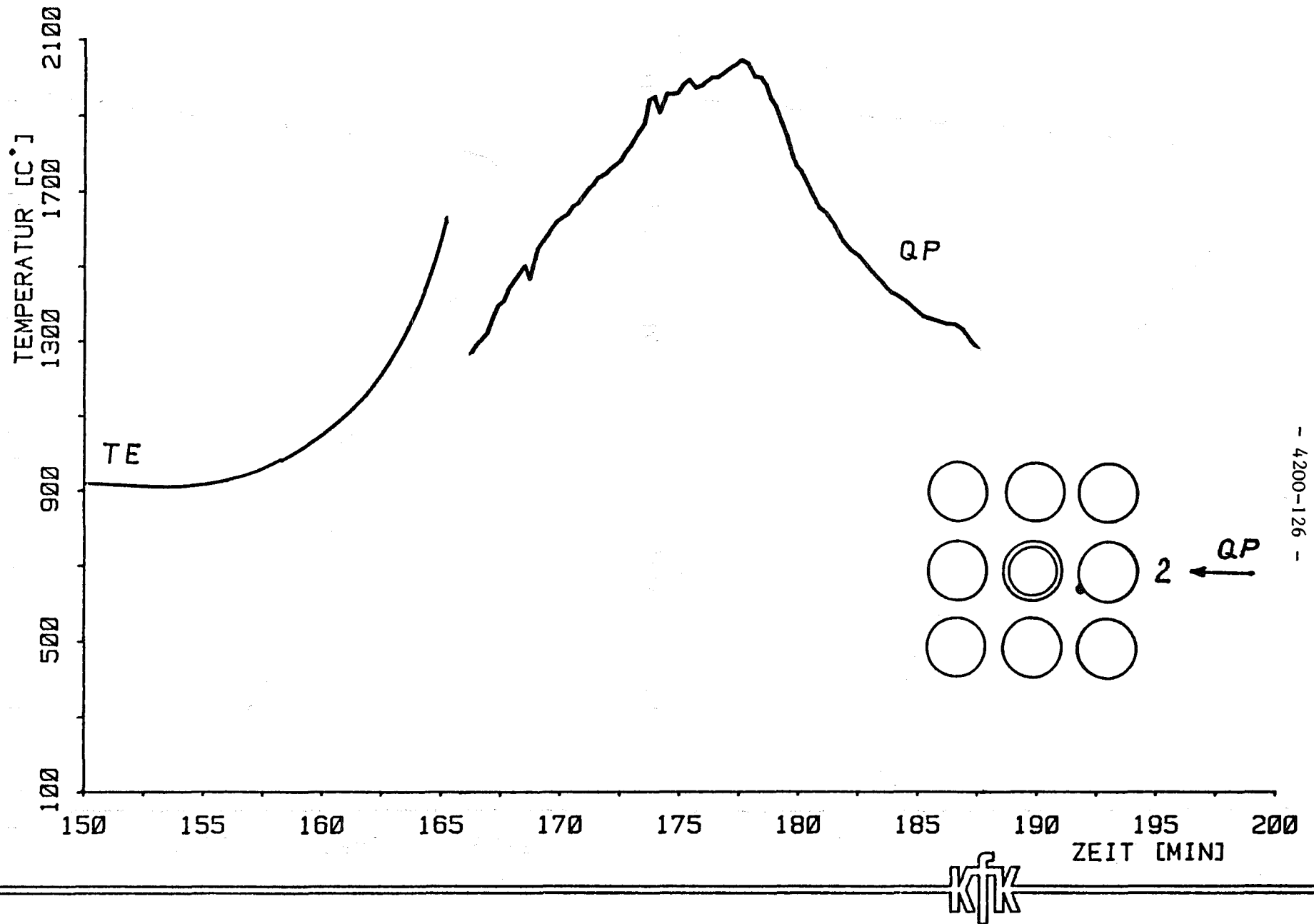


FIG. 18 : 06.01.16 Spannungs- und Stromverlauf beim Versuch ABS1



- 4200-126 -

FIG. 19 : 06.01.16 Temperaturverlauf des Nebenstabes 2 in 250mm Höhe gemessen mit Thermoelement (TE) und Pyrometer (QP); ABS1

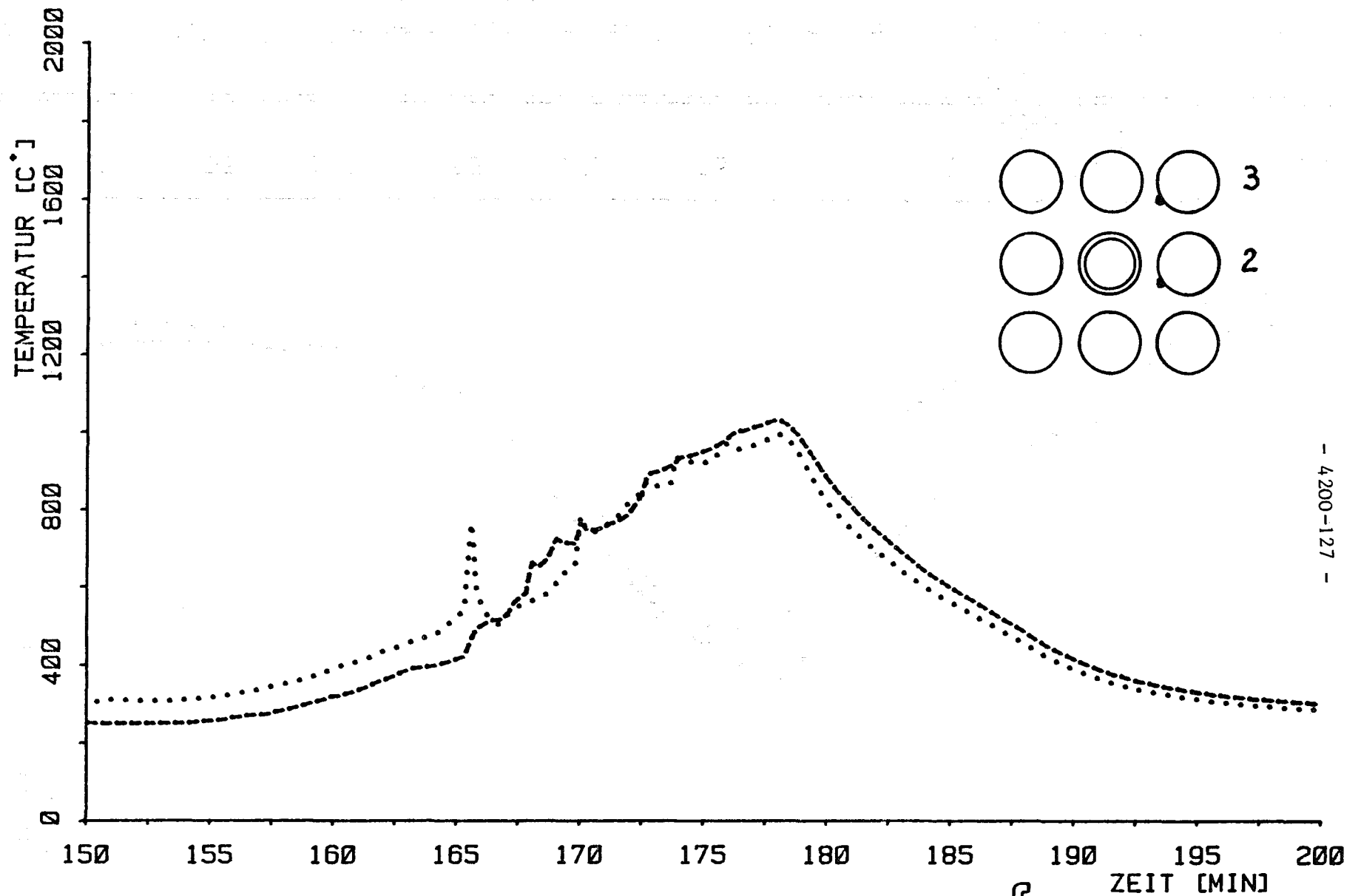
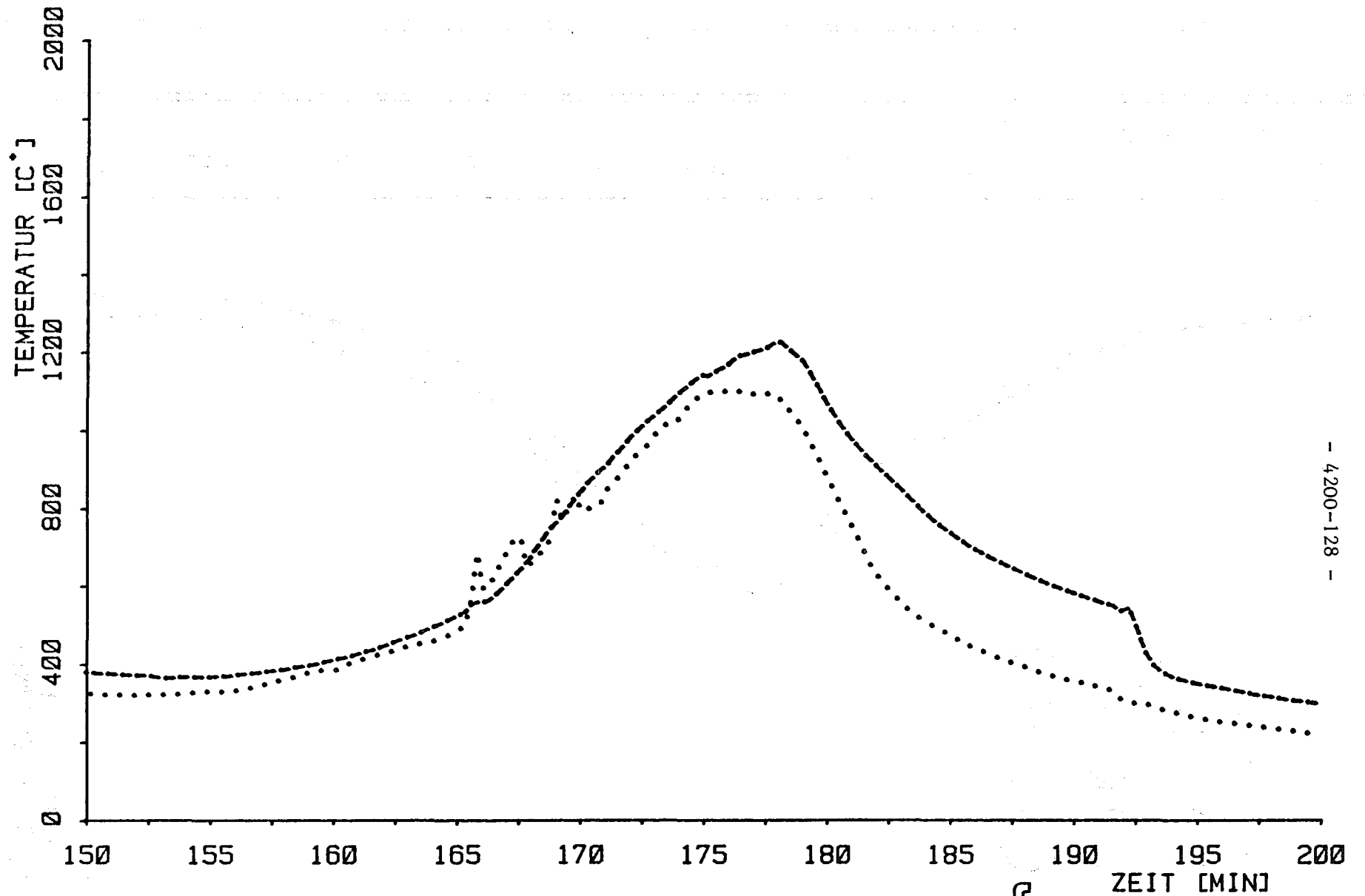


FIG. 20 : 06.01.16 Temperaturverlauf des Nebenstabes 2 (...) und Eckstabes 3 (--) in 5mm Höhe über Unterkante Hüllrohre; ABS1

KFK



- 4200-128 -



FIG. 21- : 06.01.16 Temperaturverlauf am Eckstab 3(..) in 395mm u. am Dampfkasten(-- ) in 387mm Höhe über Unterkante Bündel; ABS1



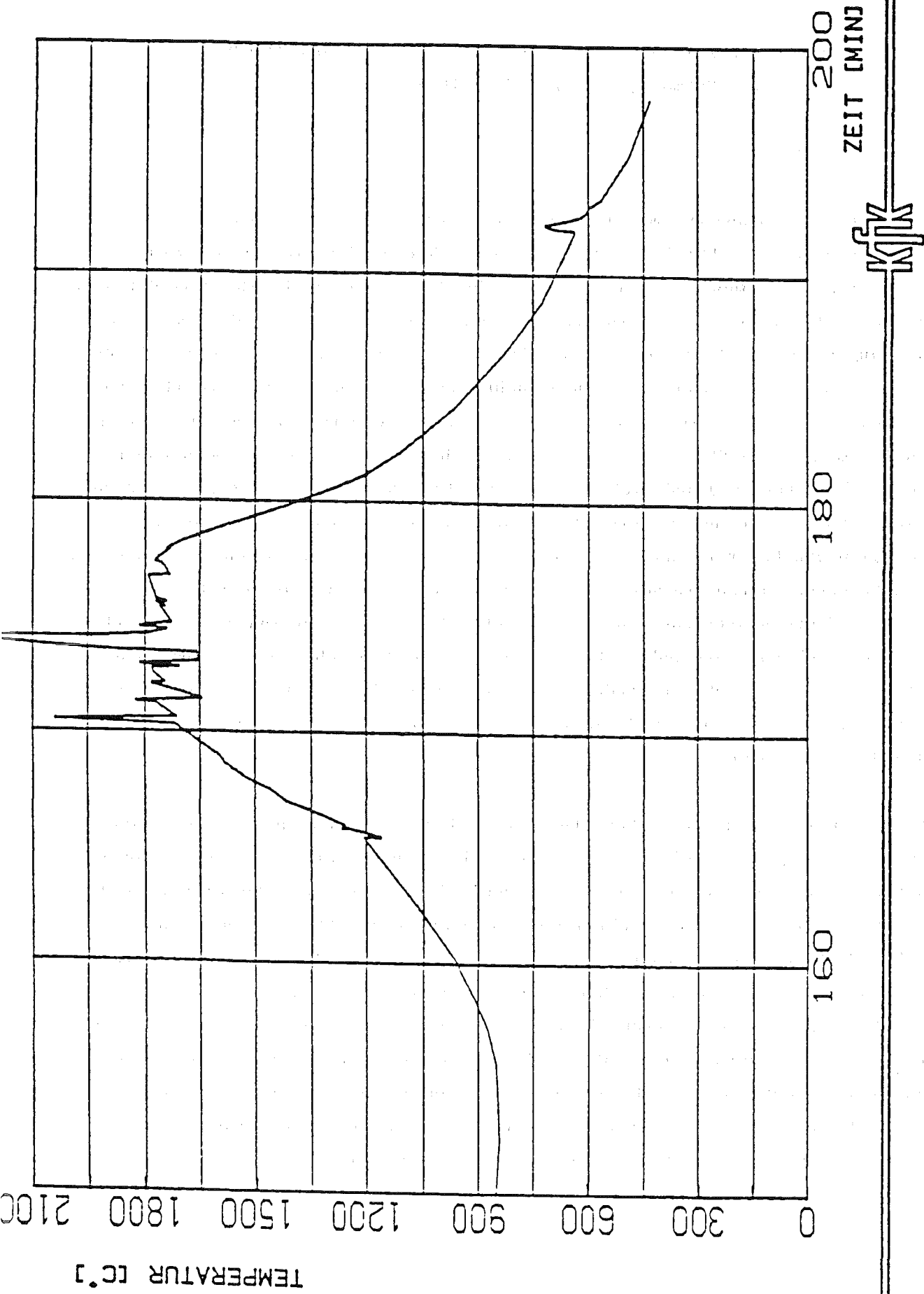


FIG. 22 : Ø6. Ø1.16 Temperaturverlauf am Führungsrohr  
in 250 mm Höhe; ABS1

06.01.16/19A Langzeitkühlung im stark beschädigten Core (COLD)  
PNS 4250 (G. Hofmann, H. Schneider, IRB)

## 1. Einleitung

Zum Verständnis und zur modellmäßigen Beschreibung der Vorgänge in einem stark beschädigten LWR-Kern während eines schweren Unfalles gehört als ein wesentliches Element eine ausreichende Kenntnis über die Kühlbarkeit der dort entstehenden Schüttung mit inneren Wärmequellen. Hier wird in diesem Zusammenhang nicht die Verfügbarkeit von Kühlmittel und Wärmesenke für den Transport der Nachwärme nach außen untersucht, sondern diese Verfügbarkeit wird unterstellt, und es wird gefragt, ob die in der Schüttung freigesetzte Wärme an das Kühlmittel übertragen werden kann, ohne daß Bereiche im Schüttbett austrocknen (Dryout) und sich in der Folge bis auf die Schmelztemperatur der Kernwerkstoffe aufheizen. Eine starke Erwärmung im Schüttbett könnte zum Versagen von Unterstützungsstrukturen oder zum Aufschmelzen von Bereichen des Schüttbettes führen; in beiden Fällen würde eine Veränderung der Geometrie der Anordnung stattfinden, deren Auftreten für die Beschreibung der Unfallvorgänge bekannt sein müßte. Es ist daher zu prüfen, ob eine Kühlung, die sich unter den gegebenen Randbedingungen langfristig ergibt, ausreicht, um die Temperaturen in Grenzen und damit den zerstörten Kern in einem stabilen Zustand zu erhalten.

Kühlungsuntersuchungen in Schüttbetten zielen vorwiegend auf eine Beantwortung der Frage, bei welcher spezifischen Leistung unter vorgegebenen Randbedingungen der Dryout auftritt. Die Dryoutleistung stellt einen Grenzwert dar, dessen Erreichen oder Überschreiten in den meisten Fällen zu unerwünscht hohen Partikeltemperaturen führt und deswegen ausgeschlossen werden soll. Um jedoch die Mechanismen, die den Dryout bestimmen, klar zu erkennen, ist es zweckmäßig, in Experimenten nicht nur die Dryoutleistung zu messen, sondern möglichst viel zusätzliche Informationen über den Vorgang zu gewinnen; nur damit können Modelle zur Berechnung der Dryoutleistung ausreichend zuverlässig und breit anwendbar gemacht werden. Solche Zusatzinformationen, die den Dryoutmechanismus erklären helfen, sind unter anderen:

- die Verfolgung der Transiente, die zum Auftreten der ersten trockenen Stelle nach einer Leistungserhöhung führt,
- die axiale Druckverteilung im Schüttbett und deren zeitliche Änderung
- die Sättigung im Schüttbett,
- die Zeitabhängigkeit und die Richtung der Ausdehnung der trockenen Zone.

Das Forschungsvorhaben zielt daher nicht nur auf die Messung von Dryoutleistungen, sondern auch auf das Verständnis der Dryoutmechanismen und deren Modellierung durch Gewinnung und Auswertung solcher Zusatzinformationen.

Im Rahmen des Vorhabens wurden von Januar 1984 bis Februar 1985 folgende Arbeiten durchgeführt:

- Aufbau einer vielseitig verwendbaren Teststrecke für Dryout-Versuche mit tiefen Partikel-Betten
- Experimente zur Abhängigkeit der Dryout-Wärmestromdichte von der Betthöhe
- Experimente mit einem Bett aus zwei Schichten unterschiedlicher Partikelgröße

## 2. Teststrecke

Um das zu untersuchende Schüttgut mit einer möglichst gleichmäßig verteilten inneren Wärmequelle zu versehen, werden Partikel aus austenitischem Stahl, nachdem sie an Luft oxidiert wurden, im Hochfrequenzfeld eines 160 kHz-Generators induktiv beheizt. Dazu befindet sich die Teststrecke in einer 1,3 m langen Arbeitsspule im Außenschwingkreis des Hochfrequenz-Generators, wie die Schemazeichnung in Abb. 1 zeigt. Die Teststrecke selbst besteht aus Glas und anderen elektrisch nicht leitenden Materialien. Das Schüttbett im Zentrum hat einen Durchmesser von 60 mm und kann bis zu 1000 mm lang sein. Der Bettbehälter besteht aus zylindrischem Quarzglas-Abschnitten verschiedener Länge, die durch Kupplungsstücke aus glimmerverstärktem Teflon zum Gesamtbehälter zusammengesteckt werden. Durch ein jeweils zweites etwas größeres konzentrisches Glasrohr entsteht in der Wand des Bettbehälters ein Luftspalt, der der radialen Wärmeisolierung dient.

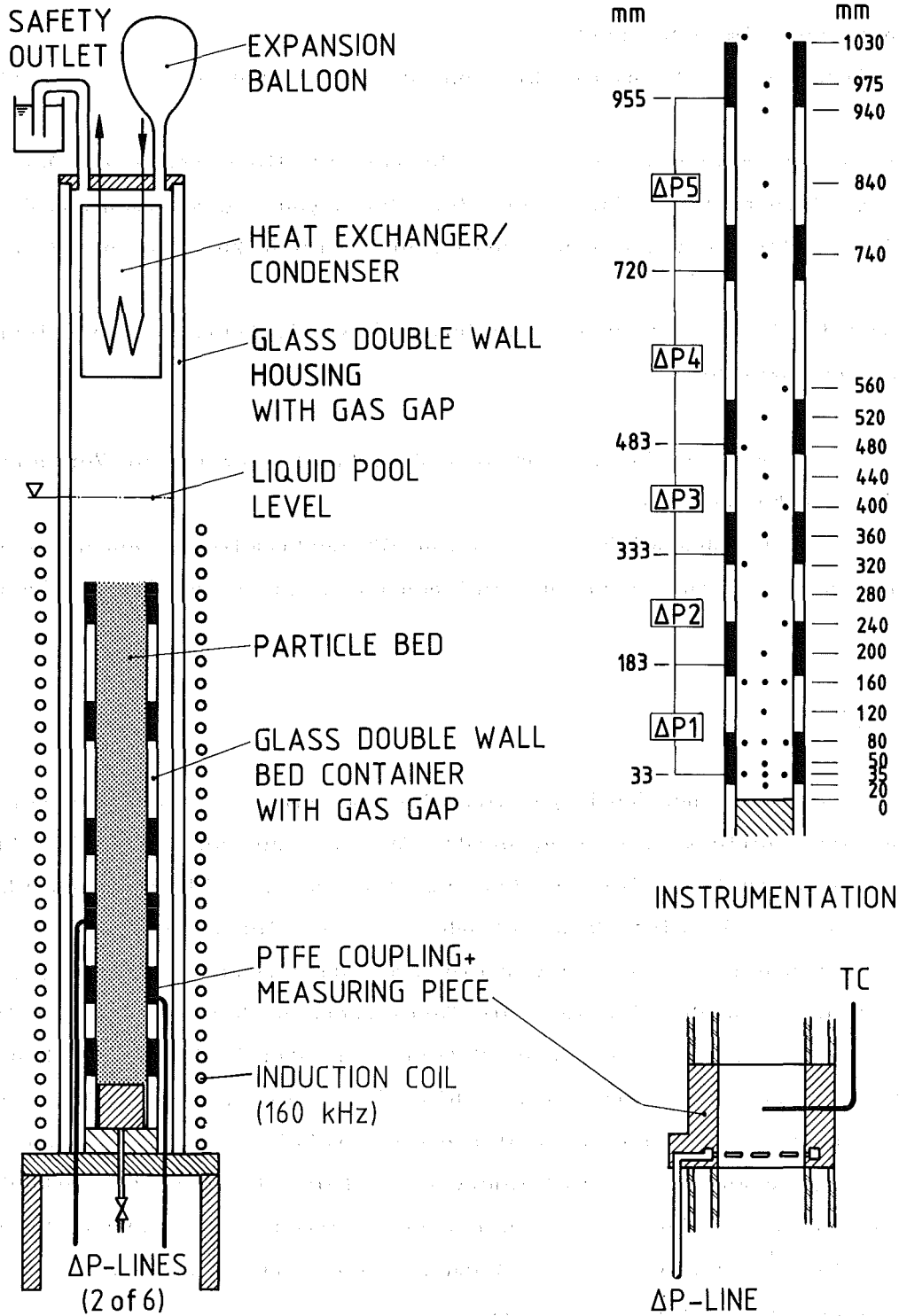


Abb. 1: Schema der COLD-Teststrecke und der Instrumentierung

In den Kupplungsstücken sind Ringkammern für eine Druckmessung und radiale Durchführungen für Thermoelemente untergebracht. Die Ringkammern stehen mit der Schüttung über 2 mm breite Schlitze in Verbindung, wie es unten rechts in Abb. 1 dargestellt ist; bei feinkörnigem Schüttgut werden diese Schlitze zusätzlich mit Stücken aus Drahtgewebe abgedeckt. Die Druckmeßleitungen werden als 3 mm Glasröhrchen von der Entnahmestelle nach unten durch den Boden der Teststrecke geführt und verlaufen von dort als dickwandige Kunststoffschläuche zu fünf Differenzdruckumformern; damit werden Druckunterschiede entlang der Schüttung in fünf aufeinanderfolgenden Abschnitten gemessen. Die Geometrie der Druckentnahme erlaubt die Annahme, daß der Druck der Dampfphase und nicht der der Flüssigphase des Zweiphasengemischs beim Sieden gemessen wird, soweit sich die beiden Drücke bei kleinen Sättigungen und kleinen Partikeln nennenswert unterscheiden.

Insgesamt 26 Mantelthermoelemente (NiCr-Ni, 0,5 mm) sind bei der ersten Versuchsanordnung im Bett verteilt angeordnet, die meisten davon in der unteren Hälfte, wo der Dryout zu erwarten ist; die Störung im Bett ist klein, weil die Thermoelemente nur wenige Zentimeter axial durch das Bett führen.

Der oben beschriebene Bettbehälter wird durch einen zweiten konzentrischen doppelwandigen Glasbehälter umgeben, der ebenfalls einen isolierenden Luftspalt enthält und mit dem Bettbehälter einen 12 mm breiten Spalt bildet. Dieser Spalt ist wassergefüllt, dient der Herausführung der Meßleitungen und soll in späteren Versuchen mit permeablem Boden für die Rückführung der flüssigen Phase zum Boden der Schüttung genutzt werden.

Die Teststrecke wird bis über die Bettoberkante mit vollentsalztem Wasser gefüllt; in den beschriebenen Versuchen befand sich der Wasserspiegel meist bei etwa 115 cm über dem Boden des Bettes. In einigen Versuchen wurde der Wasserspiegel variiert, um die Höhe des Flüssigkeits-Pools über dem Bett als Parameter zu untersuchen.

Während der Versuche ist dieser Flüssigkeitspool auf der zum Atmosphärendruck in der Teststrecke gehörigen Sättigungstemperatur. Die im Schüttbett erzeugte Wärme verläßt die Oberkante des Bettes als Dampf, perlt durch den Flüssigkeitspool und wird am Wärmetauscher im oberen Teil der Teststrecke kondensiert. Die im Bett freigesetzte Leistung wird im stationären Zustand aus dem sekundärseitigen Kühlwasserdurchsatz und der Temperaturdifferenz am Wärme-

täuscher berechnet und um die zuvor bestimmten radialen Wärmeverluste korrigiert.

Die Teststrecke erlaubt neben den Versuchen mit geschlossenem Boden und Kühlmittelversorgung des Schüttbetts von oben, wie sie in den nächsten Kapiteln berichtet werden, auch Versuche mit Kühlmittelversorgung von unten, wenn im unteren Teil der Teststrecke ein Einsatz ausgewechselt und das Schüttbett auf einen permeablen Boden gesetzt wird. Die Verwendung von Quarzglas für den Bettbehälter macht die Fortsetzung von Dryoutversuchen bis zu hohen Temperaturen in großen ausgetrockneten Zonen möglich und erlaubt danach die Wiederbenetzung mit großen Temperaturgradienten ohne dabei den Glasbehälter zu zerstören.

### 3. Abhängigkeit der Dryout-Wärmestromdichte von der Betthöhe

Im Bereich der Kühlbarkeit von Partikelbetten gab es noch keine experimentelle Antwort auf die Frage, wie sich die Dryout-Wärmestromdichte  $q''_d$  mit der Höhe bei mehr als 50 cm hohen Betten verändert. Der Dryout ist die Folge eines Flüssigkeitsmangels im Bett und der Flüssigkeitsnachschieb von oben in das Bett wird durch den Gegenstrom des abströmenden Dampfes begrenzt; daher wurde aus theoretischer Sicht vermutet, daß die Dampfmassenstromdichte und damit die das Bett verlassende Wärmestromdichte mit ihrem Maximum am oberen Rand des Bettes für den Dryout bestimmend sind und es in erster Näherung gleichgültig ist, wo im Bett Beiträge zu diesem Dampfstrom entstehen: das würde bedeuten, daß  $q''_d$  von der Betthöhe unabhängig sein müßte, wenn Kapillaritätseffekte, die nur bei Betten geringer Höhe Einfluß nehmen, abgeklungen sind. Für die Beurteilung der Kühlbarkeit nach schweren LWR-Unfällen war es jedoch geboten, diese Unabhängigkeit von der Betthöhe experimentell zu bestätigen und damit sicherzustellen, daß keine unerwarteten, zusätzlichen Mechanismen wirksam sind.

Es wurden Betten bis zu 1 m Höhe untersucht, die aus jeweils gleichförmigen Partikeln eines der folgenden drei Typen bestanden: 3 mm - Kugeln und zylindrische Drahtabschnitte (Durchmesser = Länge) von 3 mm und 1 mm. Die zugehörigen gemessenen Porositäten und der Bereich, in dem die Höhe des Bettes und des Flüssigkeits-Pools über dem Bett variiert wurden, sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.

Tabelle 1 Test Parameter

Partikel		gemessene Porosität $\epsilon$	Betthöhe (cm)	Flüssigkeits-Pool* (cm)
d (mm)	Form			
3	kug.	0.405	11-103	20-80
3	zyl.	0.385	103	20
1	zyl.	0.380	14.5-102.5	15-106

\* Höhe des siedenden Pools über dem Bett dicht vor dem Dryout

Zu Beginn einer Versuchsreihe wurde jeweils das höchste Bett untersucht; danach wurden die anderen Betthöhen erzeugt, indem Schüttgut vorsichtig von oben abgesaugt wurde.

Dryoutversuche begannen mit einem flüssigkeitsgesättigten Bett und die Leistung wurde in kleinen Stufen erhöht, um die Bettgeometrie nicht durch eine plötzliche Erhöhung des Dampfstroms zu stören; nach einer Wartezeit von jeweils etwa 15 Minuten hatte sich auch am Wärmetauscher ein stationärer Zustand eingestellt, der für eine gute Leistungsmessung gebraucht wurde. Etwas unterhalb der erwarteten Dryout-Leistung wurden die Leistungsschritte sehr klein gemacht, um die kritische Dryout-Wärmestromdichte, oberhalb deren der Dryout auftritt, so wenig wie möglich zu überschreiten. Die Messung der axialen Druckdifferenzen im Bett erwies sich als sehr hilfreich beim Aufspüren der Leistung, bei der die Vor-Dryout-Transiente beginnt, die bei konstantgehaltener Leistung schließlich zum Auftreten der ersten trockenen Stelle führt. Dieser Leistung entspricht die nachfolgend berichtete Dryout-Wärmestromdichte  $q''_d$ .

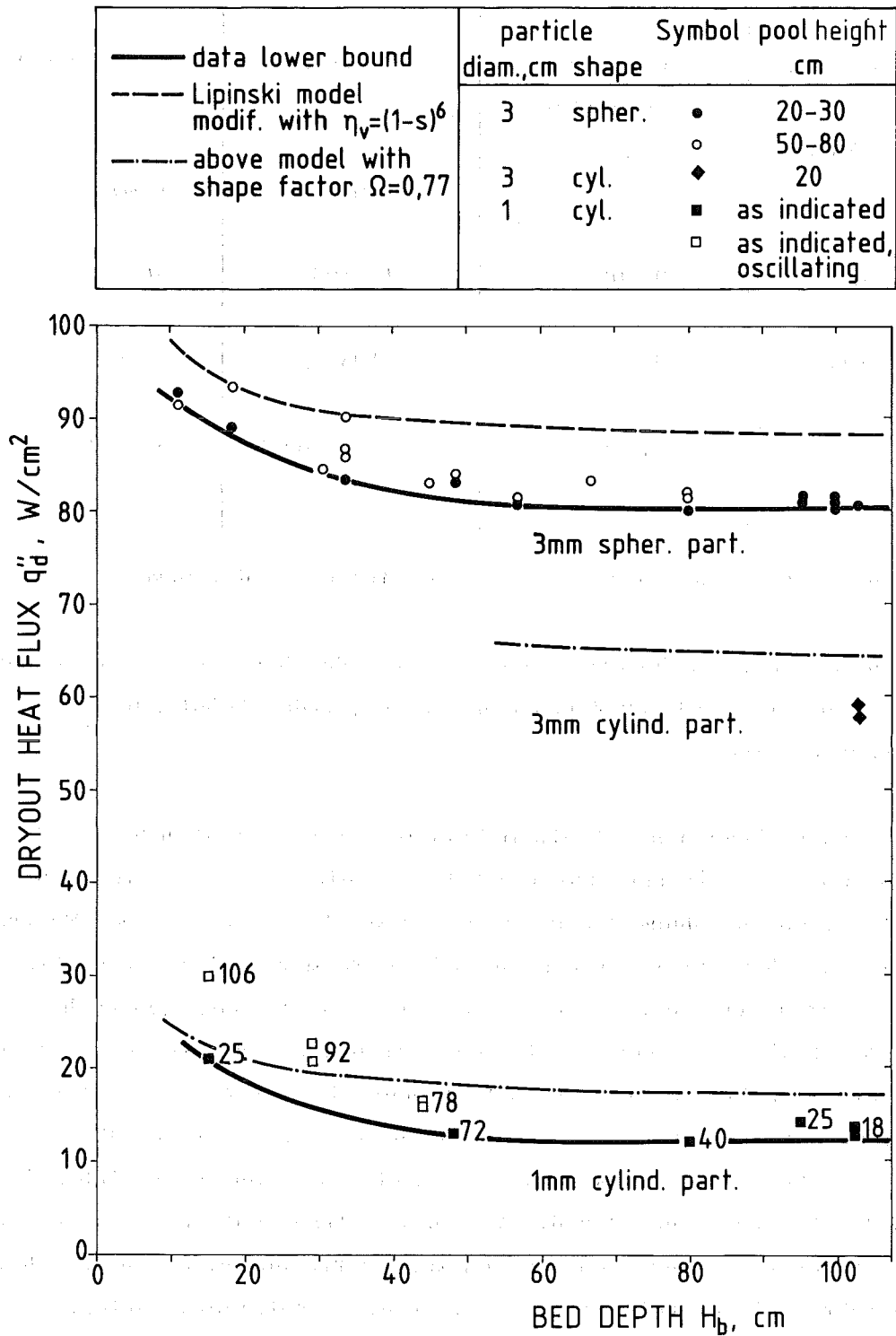


Abb. 2: Dryout-Wärmestromdichte in Abhängigkeit von der Betthöhe  
 - Ergebnisse der Experimente und der Modellrechnungen -



In Abb. 2 sind die neuen experimentellen Ergebnisse über den Einfluß der Betthöhe auf  $q''_d$  für 3 mm - und 1 mm - Partikel zusammengefaßt. Die Streuung der Meßdaten ist verhältnismäßig klein, insbesondere bei hohen Betten und obwohl statt der üblichen logarithmischen Auftragung hier eine lineare Skala gewählt wurde.

Die durchgezogenen Kurven laufen durch den unteren Rand des Streubandes. Die etwas höher liegenden Punkte können als das Ergebnis von Pool-Oszillationen (s. Kap. 4) und von unkontrollierten Veränderungen der Bettstruktur im oberen Bereich verstanden werden. Die Versuchsergebnisse bestätigen die theoretische Vorhersage, daß  $q''_d$  sich für hohe Betten asymptotisch einem konstanten Wert nähert. Dieser konstante Wert wird im Bereich der untersuchten Partikeldurchmesser praktisch bei Betthöhen von etwa 40-60 cm erreicht. Eines der wichtigsten Ergebnisse der Versuche ist, daß kein Hinweis auf das Vorhandensein zusätzlicher Phänomene gefunden wurde, die das theoretische Bild für hohe Betten stören könnten. Insgesamt ist die Abnahme von  $q''_d$  mit wachsender Betthöhe bei Partikelgrößen  $d \geq 1$  mm relativ klein und deshalb mehr von grundlegender als von praktischer Bedeutung, weil bei echten Schüttbetten im zerstörten Reaktorkern die Unsicherheit, die aus sehr schlecht bekannten Partikel-Abmessungen herrührt, viel größer ist.

Abb. 2 enthält Meßwerte für verschiedene Höhen des Flüssigkeits-Pools über dem Bett (s. Legende). Für  $d = 3$  mm zeichnet sich ein erhöhtes  $q''_d$  bei höheren Pools nur für die 18 cm und 33 cm hohen Betten ab und der Anstieg ist relativ klein. Für  $d = 1$  mm ist ein stärkerer Anstieg erkennbar, wenn die Betthöhe klein und die Poolhöhe groß ist; in diesen Fällen zeigte der Pool starke, ziemlich langsame Oszillationen, die das erhöhte  $q''_d$  erklären können (s. Kap. 4).

Es ist von Interesse, die experimentellen Ergebnisse mit theoretischen Modellvorhersagen zu vergleichen. Für einen Vergleich wurde das Modell von Lipinski /1/ gewählt, weil es für gute Ergebnisse in weiten Parameterbereichen bekannt ist und weil es ein 1-dimensionales (nicht nur 0-dimensionales) Modell ist, was eine Voraussetzung für eine betthöhenabhängige Berechnung von  $q''_d$  darstellt. Als Lipinski sein Modell erstmals veröffentlichte /1/, waren keine experimentellen Daten für die relativen Permeabilitäten  $\gamma_v$  und  $\gamma_l$  für die dampfförmige bzw. die flüssige Phase bekannt; er

nahm sie deshalb zunächst gleich groß wie die im laminaren Bereich an, d.h.  $\eta_v = (1-s)^n$  und  $\eta_e = s^n$  worin  $s$  die Sättigung ist und  $n = 3$  gesetzt wurde. Später /2/ änderte er auf der Basis einer theoretischen Arbeit von Reed /3/ den Exponenten in  $n = 5$ . Jetzt empfehlen Schulenberg et al. /4/ aufgrund neuer Experimente  $n = 6$  für die dampfförmige Phase zu wählen.

Das Lipinski-Modell mit  $n = 6$  in  $\eta_v$  ergibt die unterbrochene Kurve in Abb. 2 für die 3 mm - Kugeln. Es wird deutlich, daß das Modell die Bett Höhen-Abhängigkeit richtig beschreibt. Daß die Kurve insgesamt um nur etwa 10 % über den Meßdaten liegt, ist ein für derartige Rechnungen gutes Ergebnis. Aus einem Vergleich der Ergebnisse für 3 mm - Kugeln und 3 mm - Zylinder in hohen Betten ist zu erkennen, daß der relativ große Unterschied nicht nur aus der geringfügig unterschiedlichen Porosität herrühren kann. Da die Form der Partikel den einzigen weiteren Unterschied darstellt, wurde ein Formfaktor eingeführt. Ein Formfaktor  $\Omega$ , wie ihn Gorham-Bergeron /5/ von Muskat übernommen hat, wurde benutzt, um die Abmessung der zylindrischen Partikel in einen effektiven Durchmesser umzurechnen, der die Zylinder auf eine gemeinsame Basis mit den Kugeln bringt:

$$d_{\text{eff}} = \Omega \cdot d_{\text{Partikel}}.$$

Um das Modellergebnis etwa 10% über die Meßwerte zu bringen, so wie es sich bei den Kugeln ergeben hatte, mußte für die Zylinder ein Formfaktor  $\Omega = 0,77$  verwendet werden. Dieser Zahlenwert ist etwas kleiner als  $\Omega = 0,87$ , was sich nach /5/ aus dem Oberflächen-Volumen-Verhältnis ergeben würde.

Der gleiche Formfaktor  $\Omega = 0,77$  wurde bei der Rechnung für die zylindrischen 1 mm - Partikel verwendet, deren Ergebnis ebenfalls in Abb. 2 eingezeichnet ist und erfreulich dicht bei den experimentellen Punkten liegt.

Als wichtigstes Ergebnis dieses Vergleichs kann daher festgehalten werden, daß das 1-dimensionale Rechenmodell nach Lipinski es erlaubt, die Dryout-Wärmestromdichte auch bei sehr hohen Betten mit ausreichender Genauigkeit zu ermitteln.

#### 4. Oszillationen des Flüssigkeits-Pools

Bei den Dryout-Versuchen, besonders bei Betten aus 1 mm - Partikeln, wurden starke Oszillationen des Flüssigkeits-Pools über dem Bett beobachtet, wenn sich ein hoher Pool über einem Bett geringer Höhe befand. Diese Oszillationen waren von einem bemerkenswerten Anstieg von  $q''_d$  begleitet. Somerton et al. /6/ haben einen solchen Effekt bei großer Poolhöhe ebenfalls beobachtet und als ein brandungsähnliches Verhalten im Pool beschrieben; sie vermuteten, daß es von einer Folge von kurzzeitigen Partikelüberhitzungen und -enthitzungen und zugehörigen Dampfstromänderungen verursacht wird. Die in der vorliegenden Untersuchung beobachteten Oszillationen sind sehr ähnlich; in beiden Fällen wurde der stärkere Einfluß auf  $q''_d$  gefunden, wenn die Partikel klein waren, und in beiden Fällen lag die Frequenz der Oszillationen in der Größenordnung von 0,2 Hz.

Die hier berichteten experimentellen Ergebnisse geben darüber hinaus einen Hinweis darauf, daß die Oszillationen besonders bei niedrigen Betten auftreten. Einen zusätzlichen Einblick in den verantwortlichen Mechanismus gestattet die Beobachtung, daß mit keinem der 9 Thermoelemente in einem 14,5 cm hohen Bett Temperaturfluktuationen von mehr als 1°C in der Nähe der Sättigungstemperatur gemessen wurde, während heftige Oszillationen beobachtet wurden (der Spiegel des Pools bei 106 cm bewegte sich periodisch um 10 cm auf und ab) und der gemessene Druckverlust im Bett phasengleich mit den Oszillationen stark schwankte. Das macht eine maßgebende Beteiligung thermischer Speicher- und Entspeicher-Vorgänge am Wirkungsmechanismus unwahrscheinlich und legt den nachfolgend umrissenen Zusammenhang nahe:

Die große Masse im hohen Flüssigkeitspool und das überwiegend dampfgefüllte und zugleich dampferzeugende Partikelbett bilden ein Schwingungssystem, das dem einer Masse auf einem gasgefüllten Stoßdämpfer ähnlich ist; im Partikelbett bildet der obere Teil mit dem großen Sättigungsgradienten oberhalb des Sättigungsminimums das Dämpfungsglied des Schwingkreises. Bei jeder Schwingung wird das Sättigungsprofil im Bett verformt, und es wird dabei mehr Flüssigkeit durch den kritischen Querschnitt abwärts transportiert, als es mit ruhigem, stetigem Gegenstrom von Wasser und Dampf der Fall wäre. Dadurch wird die Versorgung des Bettes mit Flüssigkeit verbessert und der Dryout der das Ergebnis eines Flüssigkeitsmangels ist, zu höheren Leistungen verschoben. Die visuell beobachteten Pool-Oszillationen und die damit einhergehenden

periodischen Änderungen der Größe des Dampfstroms aus dem Bett müssen sich in entsprechenden Schwankungen des Drucks und des Druckverlustes im Bett widerspiegeln und wurden auch gemessen.

In Abb. 3 sind typische Druck-Oszillationen am Boden eines 14,5 cm hohen Bettes aus 1 mm - Partikel für zwei verschiedene Poolhöhen und zwei verschiedene Leistungsniveaus dargestellt; hier ist das glatte Drucksignal aus einem Test mit geringer Poolhöhe mit dem schwankenden Signal aus einem Test mit großer Poolhöhe vergleichbar. Die tatsächlichen Amplituden können wesentlich größer gewesen sein, da das Signal des Druckumformers gedämpft war. Der starke Einfluß der Poolhöhe wird deutlich.

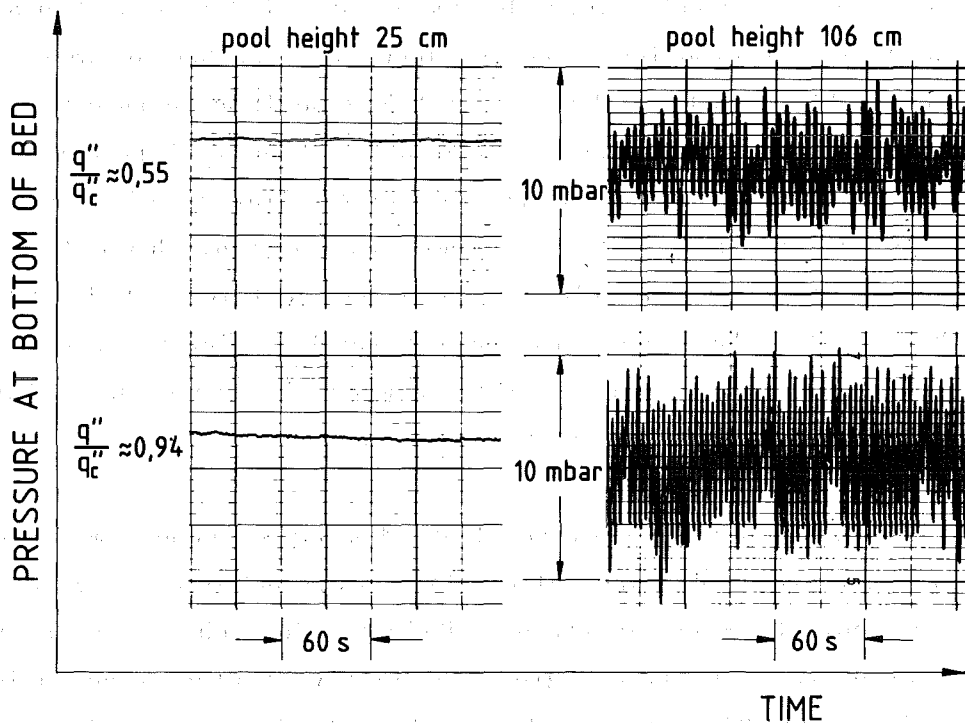


Abb. 3: Druckschwankungen am Boden eines 14,5 cm hohen Bettes aus 1 mm - Partikeln, links unter einem niedrigen und rechts unter einem hohen Flüssigkeits-Pool

Die Höhe des Leistungsniveaus hat dagegen kaum einen Einfluß auf Frequenz und Amplitude der Oszillation. Daß starke Oszillationen auch bei etwa halber Dryout-Leistung ( $q''/q''_c = 0,55$ ) aufgetreten sind, kann als zusätzliches Indiz dafür gewertet werden, daß Überhitzungen nicht für das Auftreten der Oszillationen verantwortlich sind.

Es liegt nahe, daß die Amplitude der Oszillation und ihr Effekt auf den Dryout mit wachsender Masse in einem hohen Flüssigkeits-Pool und mit abnehmender Dämpfung in niedrigen Betten größer wird. Ob überhaupt Oszillationen auftreten, wird jedoch kaum voraussagen sein, weil Schwingungen immer das Ergebnis aus dem Zusammenspiel aller Glieder des Schwingkreises sind; es ist daher anzunehmen, daß solche Oszillationen kaum vorhersagbar unter verschiedenen Bedingungen auftreten und möglicherweise die Ursache für anders nicht erklärbare Streuungen der Meßpunkte sind.

##### 5. Experimente mit einem geschichteten Bett

Die meisten in der Literatur berichteten Dryout-Experimente in Partikel-Schüttungen wurden in Betten aus gleichgroßen und kugelförmigen Teilchen durchgeführt. Da reale Partikel-Schüttungen in einem Reaktorunfall aus verschieden großen unrunder Partikeln bestehen werden, ist es wichtig die Einflüsse von Größenverteilung und Form auf die Dryout-Wärmestromdichte  $q''_d$  zu kennen. Zur Partikelform gibt es wegen der Schwierigkeiten einer homogenen Beheizung unrunder Teilchen nur wenige experimentelle Daten; in Kapitel 3 wurden Ergebnisse mit zylindrischen Partikeln berichtet. Zum Einfluß der Größenverteilung gibt es dagegen bereits mehr experimentelle Untersuchungen, überwiegend mit sehr kleinen Korngrößen unter 1 mm aus dem Bereich der Brutreaktorsicherheit. Man unterscheidet zwischen Betten aus Mischungen verschiedener Partikelgrößen (hier geht von der effektiven Permeabilität der maßgebende Einfluß auf  $q''_d$  aus) und Betten mit übereinanderliegenden Schichten aus Partikeln verschiedener Größen (hierbei wird von den Schichtgrenzen ein maßgebender Einfluß auf  $q''_d$  erwartet).

Bei geschichteten Betten mit von oben nach unten größer werdenden Teilchen wurde immer beobachtet, daß  $q''_d$  noch unter dem Wert für homogene Betten aus den kleinsten der beteiligten Partikel liegt, es ist aber noch unklar, inwieweit dies eine Folge örtlich verminderter Porosität an den Schichtgrenzen oder die Folge des Sättigungsprofils ist, das an den Schichtgrenzen besonderen

Einflüssen unterliegt. Im SANDIA Inpile-Experiment DCC-3, das für das Jahr 1985 geplant ist, soll die Kühlbarkeit eines geschichteten Bettes aus  $UO_2$ -Bruchstücken untersucht werden (Partikeldurchmesser oben: 1-1,5 mm, unten: 4-5 mm).

Begleitend zum Experiment DCC-3 wurde im hier berichteten COLD-Programm ein geschichtetes Bett untersucht, um im besser instrumentierbaren Out-of-pile Experiment Hinweise zu gewinnen, die für die Durchführung und Interpretation des Inpile-Experiments nützlich sein können. Auf ein 57 cm hohes Bett aus 3 mm-Kugeln wurde eine 5 cm hohe Schicht aus zylindrischen 1 mm-Partikeln gefüllt. Das Bett war unten geschlossen und es wurden Dryout-Versuche so durchgeführt, wie es in Kap. 3 beschrieben ist; die Wärmequelle befand sich fast ausschließlich in den 3 mm-Partikeln.

Gemäß Abb. 2 wären für gleichförmige Betten aus 1 mm-Zylindern Dryout-Wärmestromdichten  $q''_d$  von etwa  $15 \text{ W/cm}^2$  zu erwarten. Bei dem geschichteten Bett lag  $q''_d$  jedoch unter  $1 \text{ W/cm}^2$ . Es machte Schwierigkeiten, diesen kleinen Wert genau zu bestimmen, weil bei  $1 \text{ W/cm}^2$  weniger als 30 W das Bett als Dampf nach oben verlassen und die Teststrecke für die Messung so kleiner Leistungen nicht ausreichend gut isoliert war.

Diese Dryout-Wärmestromdichte ist überraschend niedrig und die erste trockene Stelle trat immer unmittelbar unter der Schichtgrenze in den 3 mm - Partikeln auf. Die Beobachtungen während der Versuche legten sogar die Möglichkeit nahe, daß die ersten bis zur Schichtgrenze aufsteigenden Dampfblasen dort ein Dampfpolster bilden, das unmittelbar für den Dryout ursächlich ist, denn vor der ersten Überhitzung im Dryout konnten nur geringfügige Mengen Dampf beobachtet werden, die als einzelne Blasenketten das Bett nach oben verließen. Es war in der gegebenen Versuchsanordnung nicht sicher zu unterscheiden, ob der Dryout bereits bei der geringsten Dampfentwicklung und damit bei einer Wärmestromdichte nahe Null oder erst bei einem immer noch sehr kleinen Wert bis zu  $1 \text{ W/cm}^2$  auftrat. Im ersten Fall müßte man annehmen, daß die Bildung des Dampfpolsters an der Schichtgrenze den Flüssigkeitsnachschieb von oben völlig unterbunden hat; das ist wegen der Kapillarwirkung der feinerkörnigen Schicht (vgl. nassen Schwamm auf einem Kiesbett) nicht völlig auszuschließen; zusätzliche Versuche mit Lufteinspeisungen von unten in das unbeheizte gesättigte Bett weisen in diese Richtung. Im zweiten Fall müßte man annehmen, daß im stationären Zustand ein (allerdings sehr kleiner) Rest-Wasserstrom die

Schichtgrenze nach unten passieren kann.

In beiden Fällen reicht die an der Schichtgrenze örtlich verminderte Porosität nicht aus, die beobachteten kleinen  $q''_d$  zu erklären. Die axiale Sättigungsverteilung im Bereich der Schichtgrenze, die überwiegend durch die Kapillarkräfte geformt wird, übt zweifellos den maßgebenden Einfluß aus; es ist aber möglich, daß noch Veränderungen im Benetzungsverhalten hinzutreten.

Die Möglichkeiten, diese Sättigungsverteilung an der Schichtgrenze zu berechnen und Rückschlüsse aus der Form des Verlaufs zu ziehen, sind zwar noch sehr unzulänglich, aber es besteht qualitativ kein Zweifel, daß ein örtlich steiler Sättigungsgradient die Dryout-Wärmestromdichte beeinflusst und daß Sprünge im Partikeldurchmesser, wie sie an einer Schichtgrenze vorliegen, solche steile Gradienten verursachen. Es wurde deswegen ein zweites Experiment mit einer 1 cm hohen Zwischenschicht aus 2 mm-Kugeln zwischen den 1 mm- und 3 mm Partikeln durchgeführt, um den geometrischen Sprung zu mildern. Ein deutlich über der Meßunsicherheit liegender Einfluß auf  $q''_d$  war aber nicht zu erkennen. In einem dritten Experiment wurde die Schichtgrenze zwischen den 1mm- und den 3 mm-Partikeln um  $15^\circ$  geneigt, um die Ausbildung von bevorzugten Dampf-Aufwärtspfaden und Wasser-Abwärtspfaden zu provozieren, der Bildung eines durchgehenden Dampfpolsters entgegenzuwirken und so sowohl kühlungsfreundlichere als auch realitätsnähere Bedingungen zu schaffen; auch dadurch wurde keine Erhöhung von  $q''_d$  verursacht.

Diese Experimente mit dem geschichteten Bett sind noch nicht abschließend ausgewertet und sollen auch noch durch Versuche mit einer oberen Schicht aus kugeligen 1 mm-Teilchen ergänzt werden, aber es ist bereits deutlich geworden, daß in einem geschichteten Bett der beschriebenen Art mit noch deutlich kleineren Dryout-Wärmestromdichten gerechnet werden muß, als sie von Stevens et al. /7/ für ein geschichtetes Bett mit 4 mm-Kugeln unten und 1,2 mm-Kugeln oben gemessen wurden.

## 6. Zusammenfassung

Dryoutversuche in einer neuen Teststrecke, die Betthöhen bis zu 1 m erlaubt und die Messung axialer Druckdifferenzen und deren zeitliche Änderung ermöglicht, haben die nachfolgend zusammengefaßten Ergebnisse geliefert:

- Die Dryout-Wärmestromdichte ist in hohen Betten unabhängig von der Betthöhe; es wurden keine unerwarteten Einflüsse gefunden; die Betthöhenabhängigkeit läßt sich modellmäßig gut beschreiben.
- Es wurden Pool-Oszillationen beobachtet, die unter manchen Bedingungen auftreten und dann die Dryout-Wärmestromdichte erhöhen. Es wird ein Mechanismus zum qualitativen Verständnis des Vorgangs angeboten aber empfohlen in Sicherheitsbetrachtungen keinen Kredit von der Kühlungsverbesserung zu nehmen.
- Die Messung der axialen Druckdifferenz hat sich als außerordentlich hilfreich bei der Suche nach der jeweiligen Dryout-Leistung und bei der Interpretation der Versuchsergebnisse erwiesen.
- In einem geschichteten Bett mit zylindrischen 1 mm - Partikeln als obere Schicht ergaben sich unerwartet kleine Dryout-Wärmestromdichten, die noch nicht ausreichend erklärt oder durch ein Modell beschrieben werden können.



Literatur

- /1/ R.J. Lipinski; A model for boiling and dryout in particle beds; NUREG/CR-2646 (June 1982)
- /2/ R.J. Lipinski; A coolability model for postaccident nuclear reactor debris; Nuclear Technology, Vol. 65 (Apr. 1984)
- /3/ A.W. Reed; The effect of channeling on the dryout of heated particulate beds immersed in a liquid pool; MIT Thesis (Febr. 1982)
- /4/ T. Schulenberg, U. Müller; Zweiphasenströmung in Kugelschüttungen; KfK 3682 (Febr. 1984) and Proc. Fifth Intern. Mtg. on Thermal Nuclear Reactor Safety, KfK 3880, Vol. 2, p. 1090 (Dec. 1984)
- /5/ E.D. Gorham-Bergeron; Remaining uncertainties in predicting the coolability limits of a degraded reactor core; Internat. Mtg. on LWR Severe Accident Evaluation, Cambridge, Mass., Vol. 2 (Aug. 1983)
- /6/ C. Somerton, I. Catton, L. Thompson; An experimental investigation into dryout in deep debris beds; ASME Paper 81-WA/HT-17 (Nov. 1981) and EPRI NP-3094 (May 1983)
- /7/ G.F. Stevens, R. Trenberth; Experimental studies of boiling heat transfer and dryout in heat generating particulate beds in water at 1 bar; AEEW-R1545 (Oct. 1982)

- 06.01.17            Untersuchungen zum Störfallverhalten fortgeschrittener  
                    Druckwasserreaktoren (FDWR)
- 06.01.17/16 A    Flut- und Deformationsverhalten eng gepackter, hexagonaler  
PNS 4240.            Stabbündel  
                    (F.J. Erbacher, W. Just, P. Schäffner, H. Schmidt, E. Vogel,  
                    K. Wiehr - IRB)

### 1. Einleitung und Zielsetzung

Eine Weiterentwicklung des Druckwasserreaktors heutiger Bauart eröffnet die Möglichkeit, eine Konversionsrate von etwa 0,9 und damit eine verbesserte Uranausnutzung zu erzielen. Dies erfordert eine wesentliche Herabsetzung des Wasseranteils im Brennstabgitter und führt zu einem Reaktorkern mit eng gepackten, hexagonal angeordneten Brennstäben und Stababständen von nur etwa 1 bis 2 mm.

Ein konzeptentscheidendes Problem derartiger Stabbündel ist der Nachweis einer ausreichenden Notkühlbarkeit bei Kühlmittelverluststörfällen. Beim FDWR mit einem p/d-Verhältnis von 1,2 würde bereits bei einer mittleren Hüllrohrdehnung von etwa 30 % im Bereich max. Kühlkanalversperrung eine fast vollständige Kühlkanalversperrung auftreten. Wird eine zulässige Kühlkanalversperrung von 70 % unterstellt, so würde dies bedeuten, daß die mittlere Hüllrohrdehnung im Bereich max. Kühlkanalversperrung auf etwa 10 bis 20 % begrenzt bleiben müßte. Inwieweit dies bei Verwendung von Zircaloyhüllrohren gewährleistet werden kann, bzw. inwieweit die Verwendung von Stahlhüllrohren hierbei Abhilfe schafft, bleibt zu untersuchen.

Daher werden experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Ermittlung des Flutverhaltens sowie zum Deformationsverhalten von Zircaloyhüllrohren und Stahlhüllrohren ohne und mit integralen Wendelrippen als Abstandshalter durchgeführt. In Einzelstab- und Bündelversuchen an elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren werden die Notkühlbedingungen der Wiederauffüll- und Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles simuliert. Ziel der Untersuchungen ist die Beurteilung des Schadensumfangs sowie der Notkühlbarkeit bei Kühlmittelverluststörfällen eines FDWR.

## 2. Durchgeführte Arbeiten

Im Jahre 1984 wurden folgende Arbeiten durchgeführt:

- Fertigung und Instrumentierung von Brennstabsimulatoren für 6ler Stabbündel
- Entwicklung von Brennstabsimulatoren für DNB-Untersuchungen in Frigen bei GKSS
- Einzelstab-Berstversuche an Stahlhüllrohren bis zu Bersttemperaturen von 1250 °C
- Umbau vorhandener Prüfstände
- Vorbereitungen zu Zusammenbau und Instrumentierung der ersten 6ler Stabbündel

## 3. Ergebnisse

Die Abb. 1 zeigt im Modell zwei Querschnitte der im Jahre 1985 zu untersuchenden 61-Stabbündel mit 2 m beheizter Länge. Das linke Photo zeigt ein Bündel mit einem Stabmittenabstand (p) zu Stabdurchmesser (d) - Verhältnis von 1,2 (Gitter für seed), das rechte Photo ist ein Querschnitt durch ein sehr enges Bündel mit  $p/d = 1,06$  (Gitter für blanket).

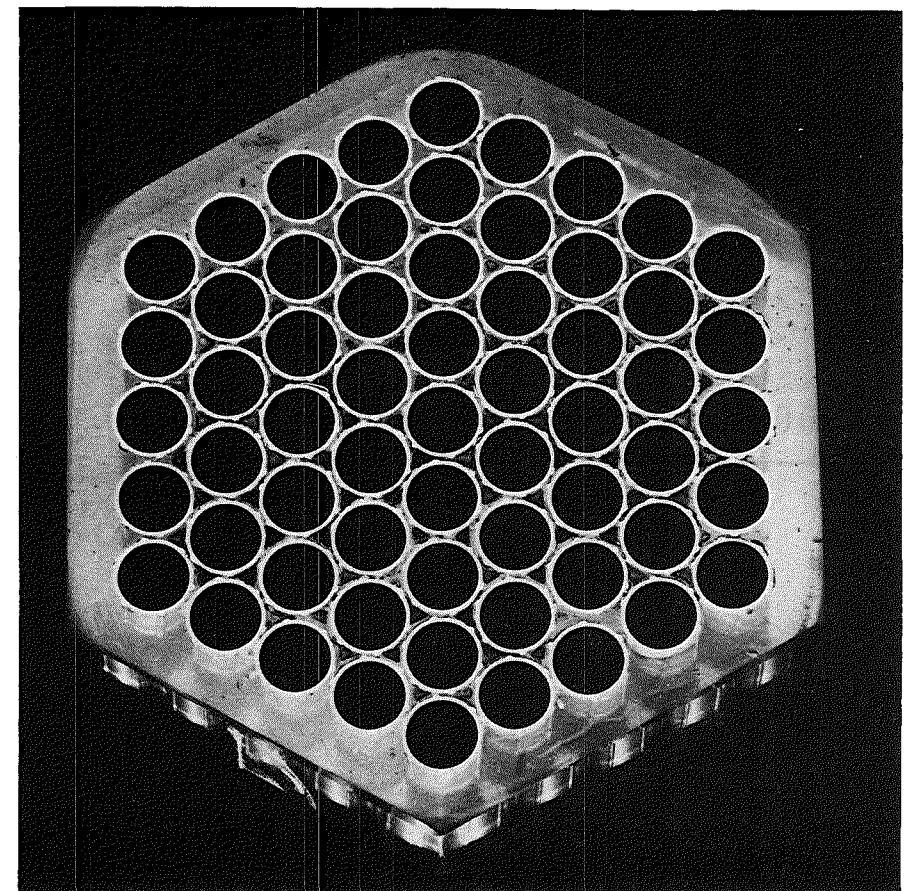
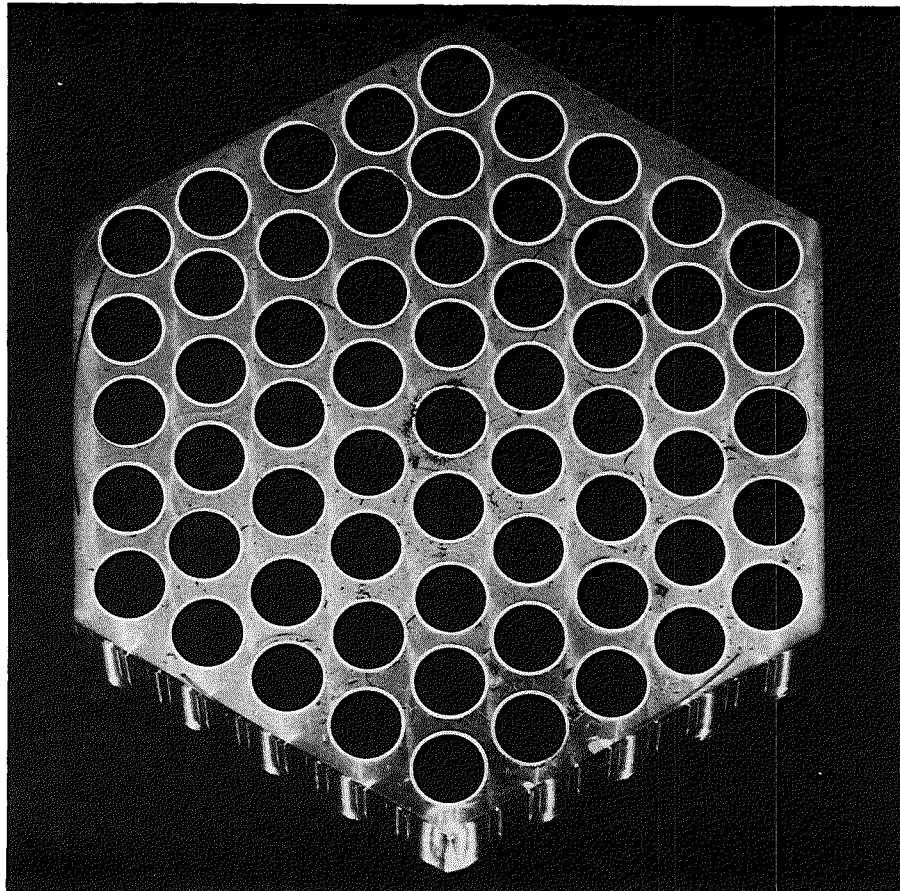
Die Berstversuche an Stahlhüllrohren wurden fortgesetzt und bis zu Bersttemperaturen von etwa 1250 °C erweitert. Die Abb. 2 zeigt die gemessenen Berstumfangsdehnungen im Vergleich zu Zircaloyhüllrohren.

Die bisherigen Ergebnisse einer ersten Versuchsreihe an Stahlhüllrohren in Dampfatosphäre bei einer Aufheizrate von etwa 5 K/s und gleichmäßiger Temperatur auf dem Hüllrohrumfang erlauben derzeit folgende Schlußfolgerungen hinsichtlich des Hochtemperatur-Verformungsverhaltens bei Störfällen:

- die Bersttemperaturen der untersuchten Stahlhüllrohre der Abmessung 10,1 x 0,4 mm liegen um etwa 200 °C höher als die von Zircaloyhüllrohren der Abmessung 10,75 x 0,725 mm,
- Stahlhüllrohre mit integralen Wendelrippen zeigen hinsichtlich der Bersttemperatur keinen Unterschied im Vergleich zu glatten Stahlhüllrohren,
- glatte Stahlhüllrohre erreichen bei hohen Temperaturen Berstumfangsdehnungen bis etwa 75 %,
- integrale Wendelrippen auf der Hüllrohroberfläche von Stahlhüllrohren reduzieren die Berstumfangsdehnungen erheblich und begrenzen sie auf Werte von etwa 20 %.

#### 4. Geplante Weiterarbeit

- Zusammenbau und Instrumentierung des 6ler Versuchsbündels voller Länge
- Bündelversuche mit Fluten
- Einzelstabberstversuche an Stahlhüllrohren
- Fertigung von Brennstabsimulatoren für DNB-Untersuchungen in Frigen der TU Braunschweig bei GKSS
- Beiträge zur Modellierung des Flutverhaltens eng gepackter hexagonaler Stabbündel in Zusammenarbeit mit dem IKE Stuttgart.



**Seed lattice**

outer clad diameter = 10.75 mm  
 pitch (grid spacer) = 12.90 mm  
 p/d ratio = 1.20

**Blanket lattice**

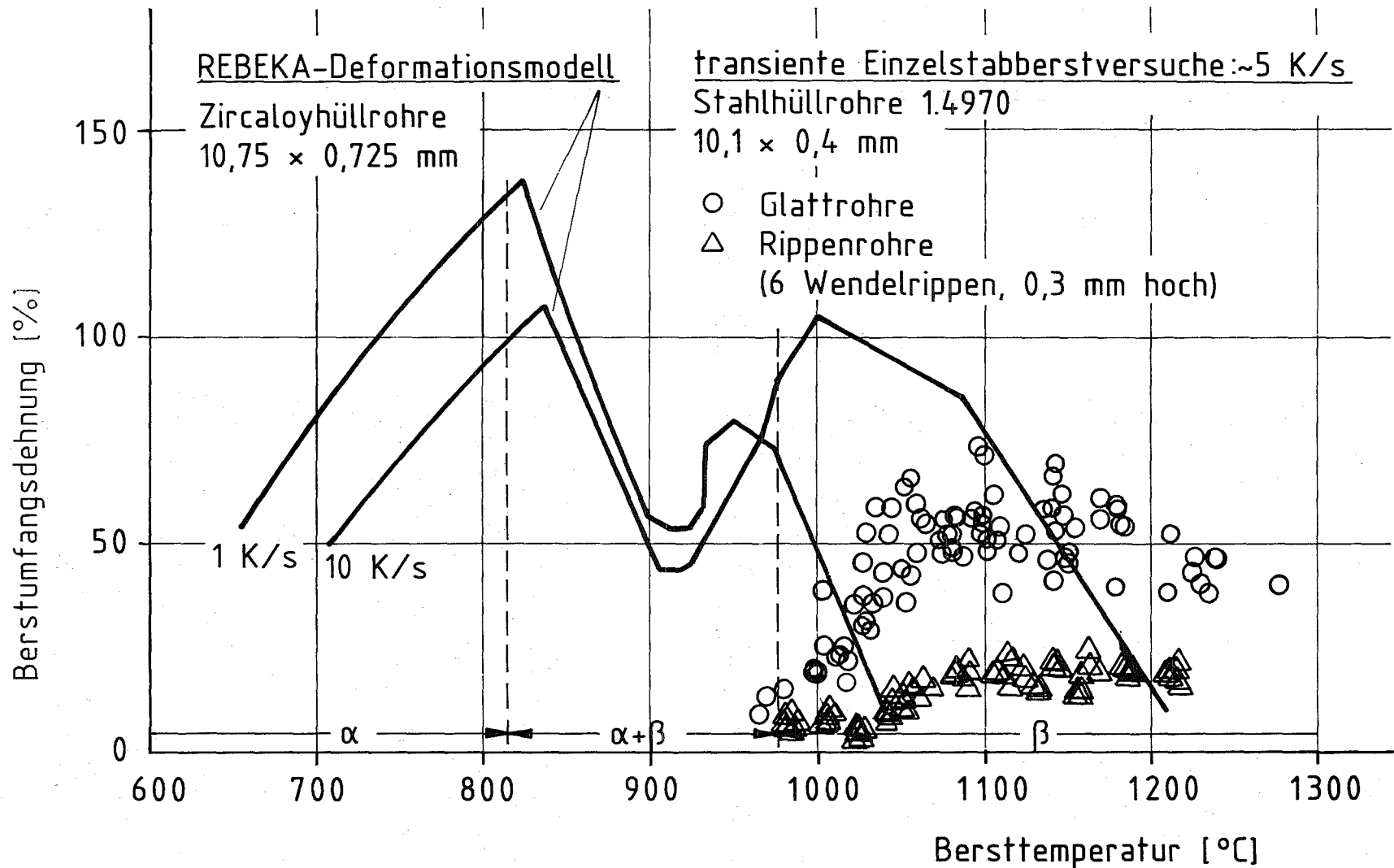
outer clad diameter = 10.10 mm  
 pitch (helical fins) = 10.70 mm  
 p/d ratio = 1.06



Ref.: F.J. Erbacher KfK/IRB

**Cross-section of 61 SS rod bundles**

**(APWR LOCA experiments)**



- 4200-150 -



Berstumfangsdehnung über Bersttemperatur von Zircaloy- und Stahlhüllrohren (gleichmäßige Temperatur auf Hüllrohrumfang)

Abb. 2

06.01.17/17A    Untersuchungen zum Einfluß des Oxidbrennstoffs und der Spalt-  
PNS 4242            produkte auf das mechanische Verhalten von Stahlhüllrohren  
                      (P. Hofmann, U. Liesenfeld, J. Burbach, Ch. Gosgnach,  
                      H. Metzger, H. Schamberger; IMF I)

1. Kurzzeit-Kriechberstexperimente mit 1.4970-Hüllrohren in Gegenwart von  
simulierten Spaltprodukten und Sauerstoff

Im Temperaturbereich 700 bis 1000°C wurden Kurzzeit-Kriechberstexperimente mit NiO und Spaltprodukte enthaltenden 1.4970-Rohrproben durchgeführt. Das NiO dient zur Einstellung eines definierten Sauerstoffpotentials. Ziel der Experimente ist, festzustellen, ob und in welchem Umfang die simulierten Spaltprodukte bei gegebenen Sauerstoffpotential einen Einfluß auf die Berstdehnung und die Standzeit der Hüllrohre besitzen. Von den zu untersuchenden Spaltproduktelementen (Cs, J, Se, Te) liegen bislang Ergebnisse über den Einfluß von Jod und Tellur vor. In Gegenwart von NiO und Jod versagen die Rohrproben bei 700°C und 1000°C um bis zu 60% verformungsärmer als nur Jod enthaltende- und spaltproduktfreie NiO- oder Helium-gefüllte Vergleichsproben. Dieser Einfluß kann bei 800 und 900°C nicht so deutlich bestätigt werden. Tellur, das nur über die Dampfphase den Stahl erreichen kann, beeinflußt das Berstverhalten der Rohrproben erst oberhalb 800°C, und erst ab 1000°C kommt es zu einem deutlich verformungsärmeren Versagen im Vergleich zu den spaltproduktfreien Referenzproben. Im direkten Kontakt mit flüssigem Tellur versagen die Rohrproben dagegen verformungsarm mit Berstdehnungen <5% unabhängig von der untersuchten Temperatur.

Abbildung 06.01.17/17A-1 zeigt das Berstverhalten der 1.4970-Rohrproben für die bisher untersuchten Temperaturen. Aufgetragen ist die Berstdehnung der He-Referenzproben, der NiO und NiO+Jod bzw. NiO+Tellur enthaltenden Rohrproben. Das Sauerstoffpotential des NiO bewirkt erst bei 1000°C eine deutlichere Reduktion der Berstdehnung infolge Oxidation des Hüllrohres. Die Zugabe von Jod hat eine weitere Reduktion der Berstdehnung bei 1000°C zur Folge. Bei 900 und 1000°C sind die Berstdehnungen der spaltproduktenthaltenden Proben aber immer noch größer als die der He- bzw. NiO-Referenzproben bei 700 und 800°C. Interessant ist darüberhinaus, daß bei 900 und 1000°C die Standzeit der Hüllrohre gegenüber den He-Referenzproben deutlich zurückgeht.

## 2. Untersuchungen zum Reaktionsverhalten des ferritisch-martensitischen Stahles 1.4914 gegenüber simuliertem, bestrahltem oxidischem Kernbrennstoff

In Leichtwasserreaktoren wird heute i.a. für Brennelement-Hüllrohre Zircaloy-4 verwendet. Für fortgeschrittene Druckwasserreaktoren ist beabsichtigt, auch Stahlhüllrohre einzusetzen. Neben austenitischen Stählen wie z.B. dem 1.4970 kommen auch ferritisch-martensitische Stähle wie der 1.4914 in Betracht. Im Gegensatz zu Zircaloy ist das bestrahlungsbedingte Schwellen von Stählen größer. Es wurden deshalb schwellresistente austenitische und ferritische Werkstoffe entwickelt und werden zur Zeit neu erprobt. Die mögliche Verwendung dieser Werkstoffe als Brennelement-Hüllrohre für FDWR und Brutreaktoren hängt u.a. von ihrem Verträglichkeitsverhalten gegenüber bestrahltem oxidischem Kernbrennstoff ab. Es wurde daher das Verträglichkeitsverhalten des ferritisch-martensitischen Stahles 1.4914 und des austenitischen Stahles 1.4970 gegenüber simuliertem, bestrahltem oxidischem Kernbrennstoff im Temperaturbereich von 550 bis 750°C und Glühzeiten bis 2000 h untersucht. Dieser Temperaturbereich entspricht z.T. den normalen Betriebstemperaturen von Brutreaktor-Brennelementen und z.T. Störfalltemperaturen von möglichen FDWR-Brennelementen.

Für die Verträglichkeitsversuche wurden von den beiden Stahlsorten Näpfcchen mit zylindrischer Bohrung angefertigt, in die die Brennstoff-Spaltproduktmischung eingepreßt wurde /06.01.17/17A-1/. Als Brennstoff wurde stark überstöchiometrisches  $UO_{2.08}$  verwendet, dem die simulierten Spaltprodukte Cs, J, Te und Se entsprechend eines Abbrandes von 10 At.% zugefügt wurden. Das hohe Sauerstoffpotential des Brennstoffes und der hohe simulierte Abbrand sollten eindeutige Reaktionseffekte mit den Hüllmaterialien garantieren. Die Herstellung der Brennstoff-Spaltprodukt-Mischung und die Präparation der Versuchsproben erfolgte in Handschuhboxen unter hochreinem Schutzgas.

Wie die Versuchsergebnisse zeigen /06.01.17/17A-1/, werden die chemischen Wechselwirkungen zwischen dem ferritisch-martensitischen Stahl 1.4914 bzw. dem austenitischen Stahl 1.4970 und dem simulierten Abbrandsystem durch das erhöhte Sauerstoffpotential des Oxidbrennstoffs hervorgerufen. Die Verträglichkeitsuntersuchungen mit spaltproduktfreiem und spaltproduktenthaltendem Oxidbrennstoff ergaben jedoch, daß nur in Anwesenheit der Spaltprodukte Cs, J, Te und Se stärkere Reaktionen stattfinden, und somit die Spaltprodukte zu einer beschleunigten Oxidation des Hüllmaterials führen.



Bei beiden Stählen ist das Reaktionsverhalten und der Reaktionsumfang stark von der Temperatur und der Glühzeit abhängig, wobei folgende Gemeinsamkeiten festzustellen sind:

Während bei 550°C nach fast allen Glühzeiten nur ein Matrixangriff im Hüllmaterial zu beobachten ist, findet ab 650°C auch ein Korngrenzenangriff statt, dessen Anteil mit zunehmender Temperatur und Glühzeit immer mehr ansteigt. Durch diese entlang den Korngrenzen des Hüllmaterials stattfindenden Reaktionen, an denen von den beigefügten Spaltprodukten fast nur Tellur beteiligt ist, vergrößert sich die Reaktions-tiefe im Werkstoffgefüge beträchtlich.

Der ferritisch-martensitische Stahl 1.4914 unterscheidet sich in Bezug auf Reaktionsverhalten und Reaktionsumfang deutlich vom austenitischen Referenzstahl 1.4970. Die mittlere Reaktionstiefe im 1.4914 ist nach Glühzeiten oberhalb 1000 h bei jeder Temperatur um die Hälfte geringer als beim 1.4970. Abb. 06.01.17/17A-2 zeigt den Reaktionsumfang der Stähle in Abhängigkeit von der Temperatur nach einer Glühzeit von 100 h. Der ferritisch-martensitische Stahl 1.4914 zeigt ein deutlich besseres Verträglichkeitsverhalten als der austenitische Stahl 1.4970, besonders bei 650 und 750°C. Der Korngrenzenangriff im 1.4914 hat bezüglich Vernetzung und Gleichmäßigkeit ganz andere Merkmale als der im 1.4970, wobei sich diese Merkmale im Gegensatz zum 1.4970 beim 1.4914 ab 650°C/500 h mit zunehmender Temperatur und Glühzeit deutlich ändern. Die Veränderungen sind beim 1.4914 durch eine Abnahme der Vernetzung des Korngrenzenangriffs und durch sich entlang des Probenumfangs ausbreitenden, "stäbchenförmigen" Ansammlungen von Reaktionsprodukten gekennzeichnet. Sowohl die unterschiedliche Reaktionstiefe als auch das unterschiedliche Reaktionsverhalten der beiden Stähle kann durch das wesentlich feinkörnigere, nadelförmige Martensitgefüge, welches in Bezug auf Temperatureinflüsse viel labiler ist als das austenitische Gefüge, erklärt werden.

Die kinetische Auswertung der Versuchsergebnisse bestätigte das im Hinblick auf Temperatur und Glühdauer wesentlich uneinheitlichere Reaktionsverhalten des ferritisch-martensitischen Stahles 1.4914 und dessen bessere Verträglichkeit gegenüber dem teilsimulierten oxidischen Abbrandsystem.

Aufgrund des guten Verträglichkeitsverhaltens ist es erfolgversprechend, weitere Untersuchungen über den möglichen Einsatz ferritisch-martensitischer Stähle als Brennelement-Hüllrohre durchzuführen. Insbesondere ist es wichtig,

in weiterführenden Experimenten das Verhalten des Stähles 1.4914 bei kombinierter chemischer mechanischer Beanspruchung in Kriechberstexperimenten zu untersuchen.

Literatur

/06.01.17/17A-1/ H. Schamberger, P. Hofmann, W. Dienst; unveröffentlichter Bericht, 1985

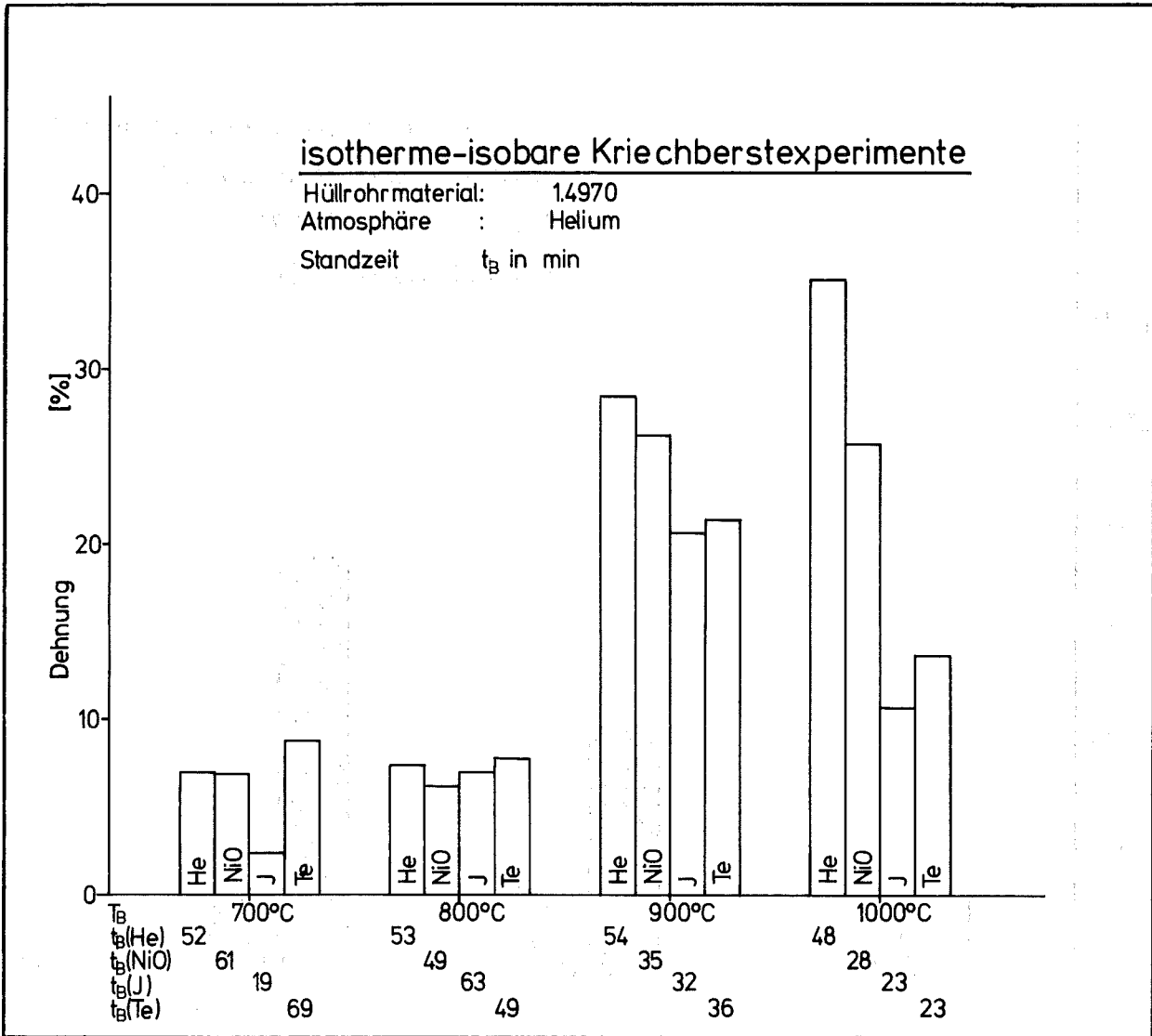


Abb. 06.01.17/17A-1: Berstdehnung und Standzeit von 1.4970-Rohrproben im Temperaturbereich 700 bis 1000°C in Gegenwart von NiO+Jod oder NiO+Tellur. Zum Vergleich sind die Werte für die spaltproduktfreien He- und NiO-Referenzproben angegeben. Die Konzentration der simulierten Spaltprodukte betrug in allen Fällen 1 mg/cm<sup>3</sup>.

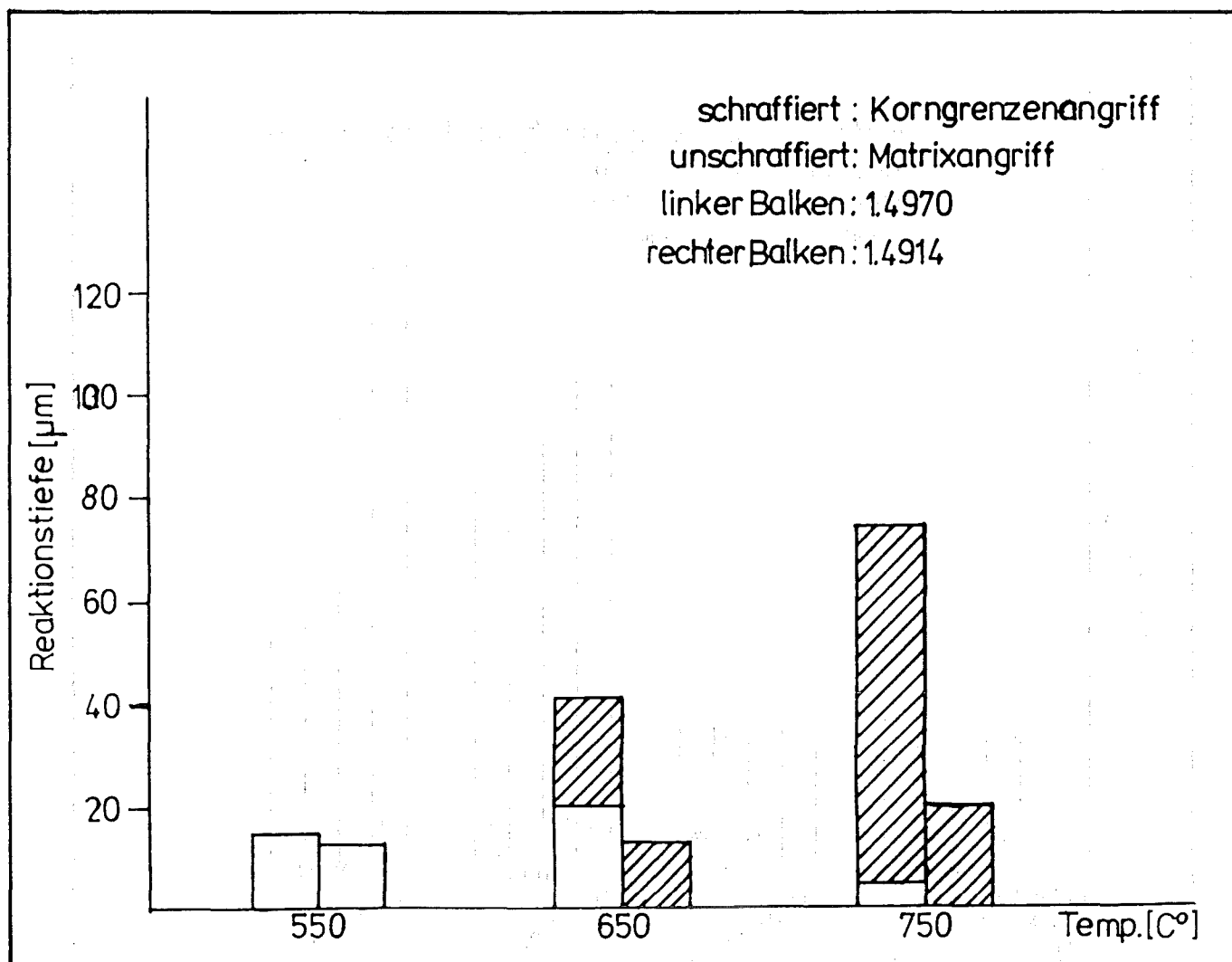


Abb. 06.01.17/17A-2: Reaktionsverhalten des austenitischen Stahles 1.4970 und des ferritisch-martensitischen Stahles 1.4914 gegenüber simuliertem bestrahltem Oxidbrennstoff in Abhängigkeit von der Temperatur nach einer Glühzeit von 100 Stunden.

06.01.17/19A    Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Hüllrohrwerk-  
PNS 4244            stoffen für FDWR

(C. Petersen, H. Schneider, W. Schweiger; IMF II)

## 1    Charakterisierung des Hüllmaterials für Versuchszwecke

Aufgrund der Literaturstudie /1/ zur Auswahl geeigneter Hüllmaterialien für den FDWR wurden zwei Stähle ausgewählt und durch thermische und thermomechanische Vorbehandlung auf optimale Kennwerte /2, 3/ eingestellt:

1.1 Der getemperte Martensit, Werkstoff-Nr. 1.4914 wurde der Charge 51482 entnommen und folgender thermischer Vorbehandlung unterzogen.

- Austenitisieren: 1075 °C/30 min, Vakuum, in Argon abkühlen
- Vergüten:            700 °C/2 h, Vakuum, in Argon abkühlen

Die chemische Zusammensetzung ist Tabelle 1 zu entnehmen.

1.2 Der Austenit, Werkstoff-Nr. 1.4970 wurde der Charge 54572 entnommen und folgender thermomechanischer Vorbehandlung unterzogen.

- Lösungsglühen: 1100 °C/30 min, Argon
- Kaltverformen: 17 %
- Auslagern: 800 °C/2 h, Argon

Die chemische Zusammensetzung ist Tabelle 1 zu entnehmen.

## 2    Das plastische Verhalten der Stähle 1.4914 und 1.4970 bei höheren Temperaturen in Luftatmosphäre

Zur Ermittlung von Kennwerten über das plastische Verhalten von Werkstoffen werden im allgemeinen folgende Untersuchungen durchgeführt:

- Untersuchung der Verformungskenngrößen und deren Abhängigkeit von der Verformungstemperatur bzw. der Verformungsgeschwindigkeit. Die Verformungskenngrößen sind z.B.: Die Streckgrenze  $R_{p0,2}$ , die Zugfestigkeit  $R_m$ , die Gleichmaßdehnung  $A_g$  und die Bruchdehnung  $A$ .
- Strukturuntersuchungen: z.B. Gefügebau und Ausscheidungsverhalten
- Bruchverhalten

Im Berichtszeitraum wurden nun folgende Untersuchungen an Rundproben mit den Abmessungen: Durchmesser  $d_0 = 3$  mm, Meßlänge  $l_0 = 35$  mm, der Stähle 1.4914 und 1.4970 mit einer Verformungsgeschwindigkeit von  $\dot{\epsilon}_0 = 3 \times 10^{-4} \text{ sec}^{-1}$  durchgeführt:

- Temperaturabhängigkeit von Streckgrenze und Zugfestigkeit
- Temperaturabhängigkeit von Gleichmaßdehnung und Bruchdehnung

Die Ergebnisse wurden mit Literaturwerten verglichen und solchen von Zircaloy-4 gegenübergestellt.

### 2.1 Temperaturabhängigkeit von Streckgrenze und Zugfestigkeit

In Abbildung 1 ist die Streckgrenze als Funktion der Prüftemperatur dargestellt. Mit steigender Prüftemperatur ergibt sich ein beschleunigter Abfall der Werte für beide untersuchten Werkstoffe. Dabei liegen die Streckgrenzenwerte des 1.4914 bis ca. 520 °C oberhalb derer des 1.4970 /1/. Die Ergebnisse der eigenen Messungen oberhalb 600 °C bis 1000 °C ergeben eine gute Übereinstimmung mit den Literaturwerten. Im Falle des 1.4914 lagen solche nur bis 800 °C vor /2/. Dem leichten Anstieg der Streckgrenze des 1.4914 oberhalb 825 °C im Übergangsbereich von der kubisch raumzentrierten (Krz)  $\alpha$ -Phase in die kubisch flächenzentrierte (Kfz)  $\gamma$ -Phase (Ende: 905 °C) folgen Spannungswerte, die denen des flächenzentrierten Austenits entsprechen. Der Abfall der Streckgrenzenwerte des Zircaloy-4 /1/ mit zunehmender Prüftemperatur ist oberhalb 200 °C wesentlich ausgeprägter als bei den Stählen und liegt unter 50 % von deren Werten.

Bezüglich der Temperaturabhängigkeit der Zugfestigkeit (Abbildung 2) ergeben sich für alle drei Werkstoffe ähnliche Ergebnisse, wie bei der Streckgrenze ermittelt, auf - durch die Verfestigung bewirktem - höheren Spannungsniveau.

### 2.2 Temperaturabhängigkeit von Gleichmaßdehnung und Bruchdehnung

In Abbildung 3 ist die Temperaturabhängigkeit der Gleichmaßdehnung dargestellt. Dabei bleibt der 1.4970 bis 700 °C auf einem Dehnungsniveau von 7-8 %, wohingegen der 1.4914 von RT bis 600 °C auf Dehnungswerte um 1 % abnimmt. Die Übereinstimmung mit Literaturwerten /1/ ist beim 1.4970 nicht so gut, wie bei den Spannungswerten, besonders bei 1000 °C werden wesentlich kleinere Gleichmaßdehnungswerte ( $\sim 7$  %) gefunden, gegenüber  $> 17$  % aus der Literatur. Ein Vergleich zum Zircaloy-4 kann wegen fehlender Werte nicht gezogen werden. Die Gleichmaßdehnungswerte des 1.4914 steigen oberhalb 800 °C auf ca. 5 % an. Im Zweiphasenbereich nimmt die Gleichmaßdehnung mit steigender Temperatur drastisch ab, erreicht dann aber bei ca. 1000 °C wieder die Werte des ebenfalls untersuch-

ten 1.4970.

Auch die in Abbildung 4 dargestellten Bruchdehnungswerte der 1.4970-Charge verbleiben bis 900 °C auf einem Niveau von 10-12 % und steigen erst oberhalb 950 °C auf ca. 50 % an. Literaturwerte /1/ des 1.4970 hingegen zeigen schon einen stetigen Anstieg der Bruchdehnungswerte oberhalb 650 °C die bei 1000 °C ca. 75 % erreichen. Die Deutung dieser Effekte läßt sich erst nach Vorliegen der jetzt beginnenden metallographischen Nachuntersuchungen vornehmen. Beim 1.4914 wird bei 800 °C ein Bruchdehnungsmaximum von ca. 80 % erreicht, das sich im Zweiphasenbereich auf ca. 50 % abschwächt und bei 1000 °C wieder auf die Bruchdehnungswerte des 1.4970 ansteigt. Die Bruchdehnungswerte des Zircaloy-4 liegen, wie Abbildung 4 zeigt, mit zunehmender Temperatur oberhalb der entsprechenden Werte für die Stähle. Für Sicherheitsbetrachtungen ergeben sich damit für die Stähle, insbesondere den 1.4970 bis zu höheren Temperaturen günstige kühlkanalerhaltende Bruchdehnungswerte.

### 3 Das Kriechverhalten bei höheren Temperaturen in Luft und Vakuum

In Sicherheitsuntersuchungen, wo Werkstoffe unter nahezu konstanten Lasten (d. h. auch Innendrücker) unterschiedlichen Temperaturen ausgesetzt sind, ist die Kenntnis des Zeitstandfestigkeits- und Kriechverhaltens auch bei den dort erreichten kurzen Zeiten von Bedeutung.

Dabei kommt es mit zunehmender Temperatur und Zeit zu Dimensionsänderungen (Hohlraumbildung) als auch zur Änderung des Ausscheidungsverhaltens, die das Kriechverhalten wesentlich beeinflussen.

#### 3.1 Kriechverhalten des Stahles Werkstoff-Nr. 1.4914

Der 1.4914 zeigt mit zunehmender Temperatur eine stetige Abnahme der Zeitstandfestigkeit (Abbildung 5). Die eigenen Kurzzeitkriechversuche bis 10.000 Sekunden im Temperaturbereich 600 bis 800 °C in Vakuum wurden mit Ergebnissen aus Langzeitkriechversuchen /3/ in Zusammenhang gebracht. Das stufenlose Überlappen der Meßergebnisse ergibt eine brauchbare Vergrößerung der Datenbasis für Modellrechnungen.

Die minimale Kriechgeschwindigkeit ist beim 1.4914 wegen des ausgeprägten stationären Kriechens dieses Werkstoffes für längere Zeit gleichbedeutend mit der Kriechgeschwindigkeit. Die aus den Kriechkurven ermittelten Werte für wahre minimale Kriechgeschwindigkeit sind in Abbildung 6 für die untersuchten Temperaturen gegen die Ausgangsspannung aufgetragen. Die eigenen Messungen im Temperaturbereich 600-800 °C in Vakuum ergeben gute Übereinstimmung mit Ergebnissen

aus Langzeitkriechversuchen. Verbindet man die experimentellen Werte durch Geraden, so ergeben deren Neigung den Spannungsexponenten  $n$ . Dieser  $n$ -Wert nimmt in der Regel mit zunehmender Temperatur ab und ist in bestimmten Spannungsbereichen gültig.

Die wahren Gesamtdehnungen der untersuchten Temperaturen sind in Abbildung 7 in Abhängigkeit von der Standzeit dargestellt. Eine systematische Zuordnung der Gesamtdehnung läßt sich nicht feststellen. Lediglich mit zunehmender Temperatur und Standzeit läßt sich eine obere Gesamtdehnungsgrenze feststellen.

### 3.2 Kriechverhalten des Stahles Werkstoff-Nr. 1.4970

Der 1.4970 wurde bis 50.000 Sekunden in Kurzzeitkriechversuchen im Temperaturbereich 600-900 °C im Vakuum untersucht und mit Ergebnissen aus Langzeitkriechversuchen /4/ verglichen (Abbildung 8). Auch hier wurde eine gute Überlappung der beiden Datensätze gefunden. Der Abfall an Zeitstandfestigkeit wird mit ansteigender Temperatur immer stärker. Auch bei der Temperaturabhängigkeit der wahren minimalen Kriechgeschwindigkeit für unterschiedliche Ausgangsspannungen lassen sich in Abbildung 9 mit steigender Temperatur abnehmende Spannungsexponenten  $n$  feststellen.

Die Standzeitabhängigkeit der wahren Gesamtdehnungen im untersuchten Temperaturbereich sind in Abbildung 10 dargestellt. Erst oberhalb ca. 1000 Sekunden steigen die Dehnwerte mit zunehmender Temperatur und Standzeit auf 70-80 % an.

## 4 Weiteres Vorgehen

- Fortführung der Zug- und Zugkriechversuche bis zu Temperaturen von 1200 °C
- Überprüfung des Ausscheidungsverhaltens in diesem Temperaturbereich
- Konstantenermittlung für Versagensmodelle aus der dann vorliegenden Datenbasis

## 5 Literatur

/1/ C. Petersen

Literaturübersicht mechanischer und physikalischer Eigenschaften von Hüllrohrwerkstoffen für Fortgeschrittene Druckwasserreaktoren (FDWR) bei hoher Temperatur

KfK-Bericht 3469, Oktober 1983



/2/ M. Schirra und W. Schweiger  
unveröffentlichter Bericht, 1983

/3/ M. Schirra  
Charakterisierende thermische und mechanische Untersuchungen an einem Nb-  
legierten martensitischen 12 % Cr-Stahl (Werkstoff-Nr. 1.4914) mit abge-  
senktem Stickstoffgehalt  
KfK-Bericht 3640, August 1984

/4/ L. Schäfer  
persönliche Mitteilung

Tabelle 1: Chemische Zusammensetzung in Gewichtsprozent

1.4914 IMF-Analyse

1.4970 Werksanalyse

Werkst.- Nr.	Art	DIN-Bezeichnung	Charge	C	Si	Mn	P	S	Cr	Ni	Mo	V	Nb	Al
1.4914	Martensit	X18CrMoVNb121	51482	0,17	0,34	0,54	0,008	0,008	10,6	0,82	0,49	0,24	0,19	0,05
1.4970	Austenit	X10NiCrMoTiB1515	54572	0,10	0,44	1,70	0,005	0,006	15,0	15,1	1,24	0,03	0,008	-

N	Cu	Ti	B
0,003	-	-	-
0,004	0,02	0,48	0,004

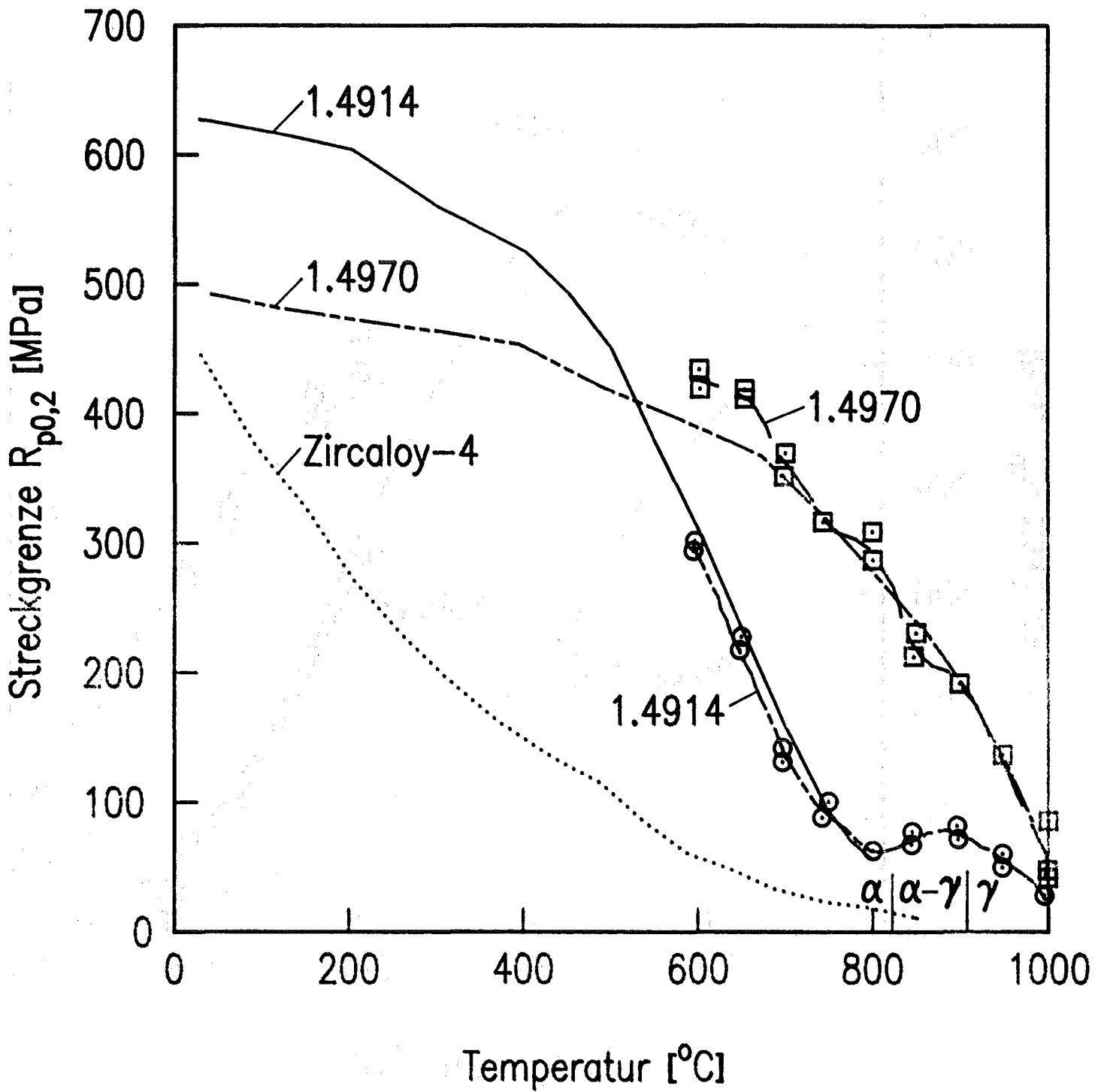


Abbildung 1 Temperaturabhängigkeit der Streckgrenze bei  $\dot{\epsilon}_0 = 3 \times 10^{-4} \text{ sec}^{-1}$

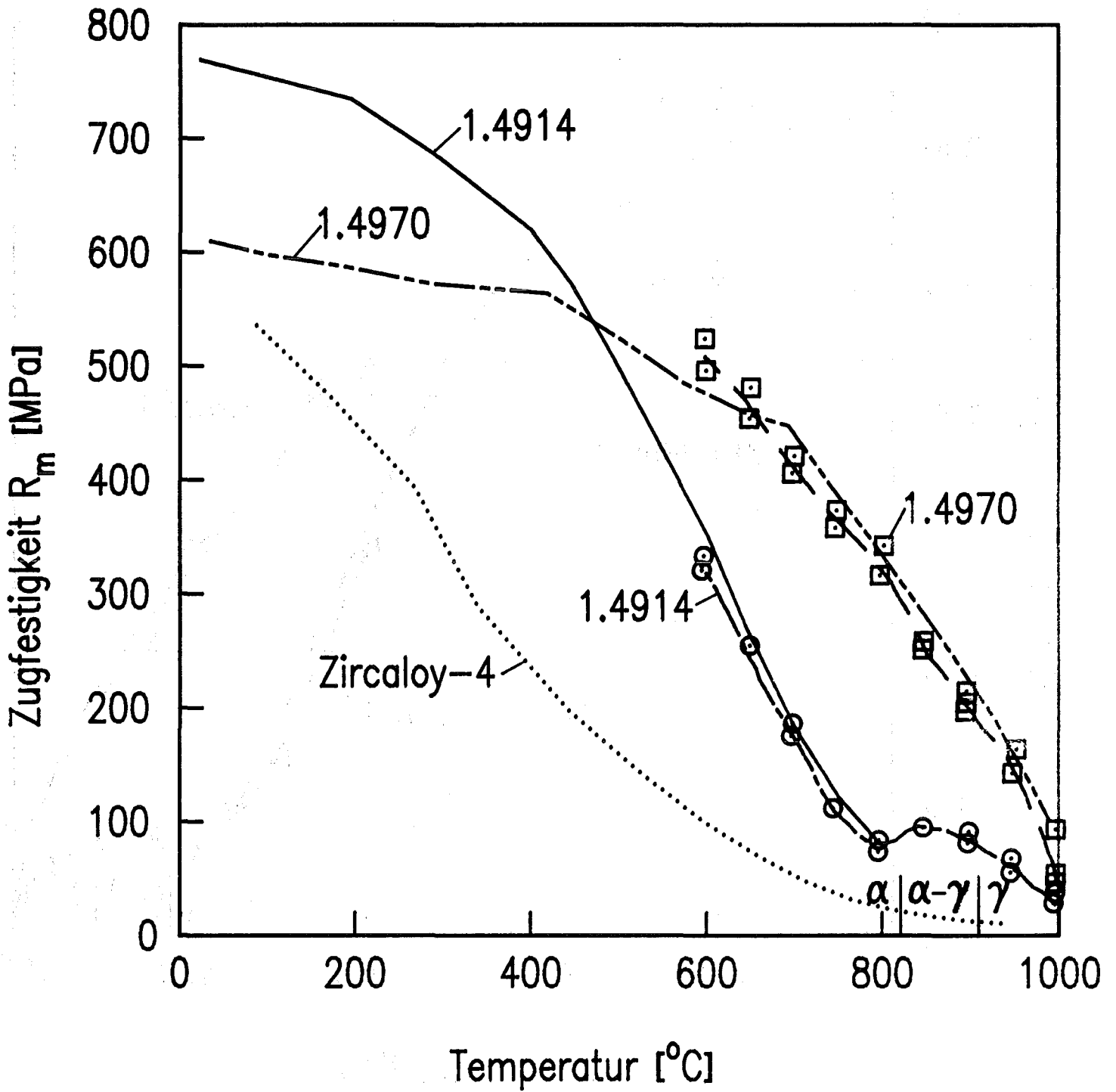


Abbildung 2 Temperaturabhängigkeit der Zugfestigkeit bei  $\dot{\epsilon}_0 = 3 \times 10^{-4} \text{ sec}^{-1}$

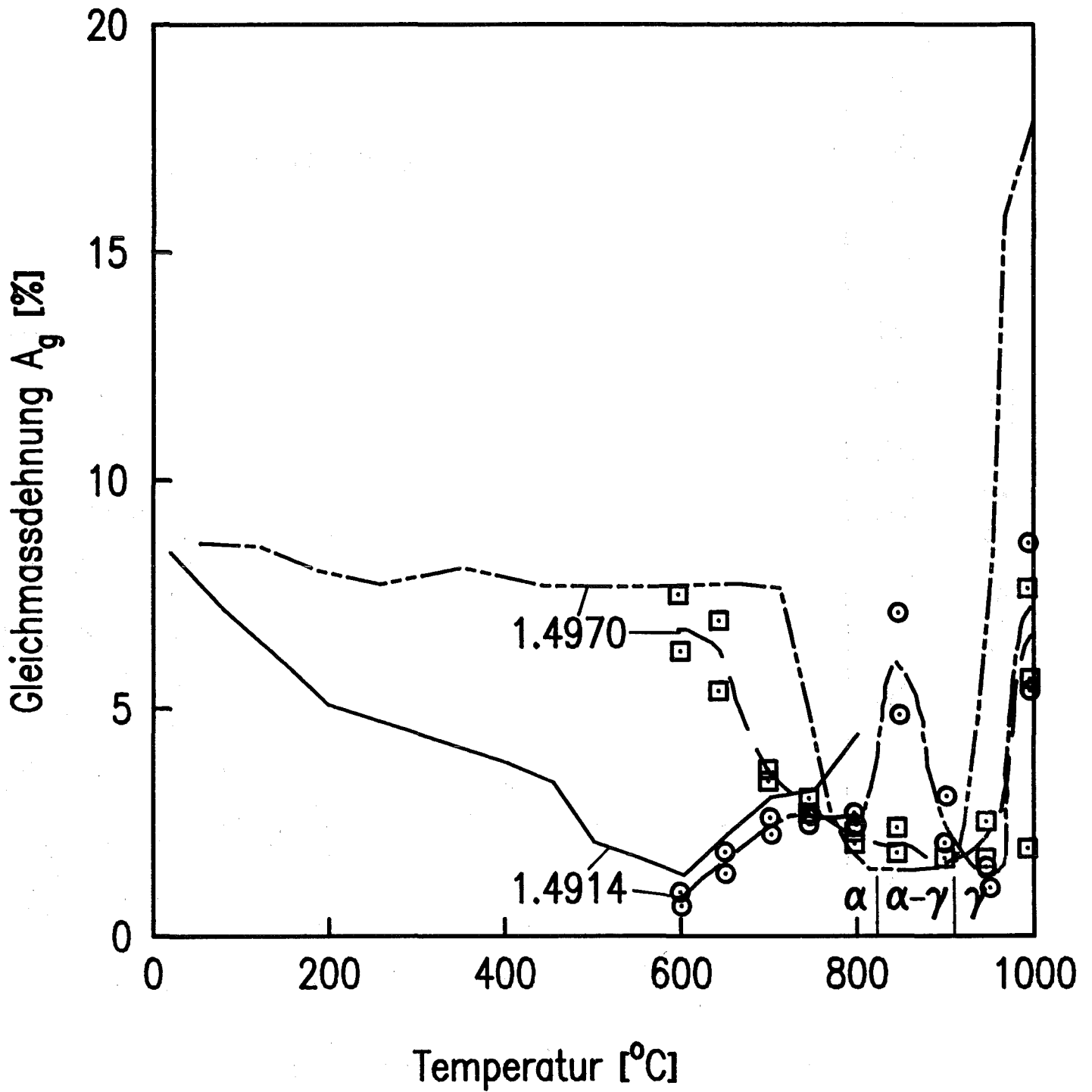


Abbildung 3 Temperaturabhängigkeit der Gleichmaßdehnung bei  $\dot{\epsilon}_0 = 3 \times 10^{-4} \text{ sec}^{-1}$

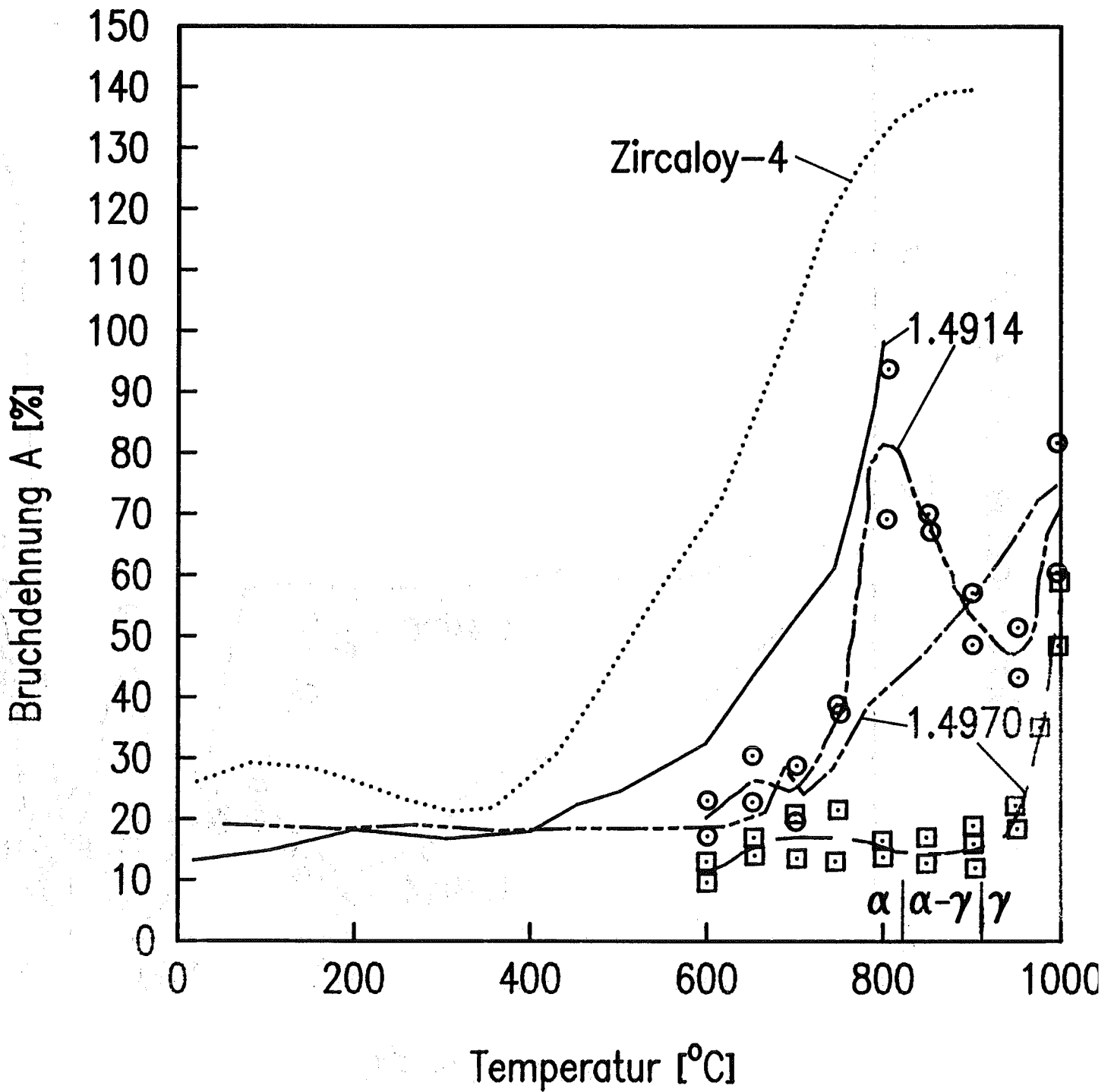
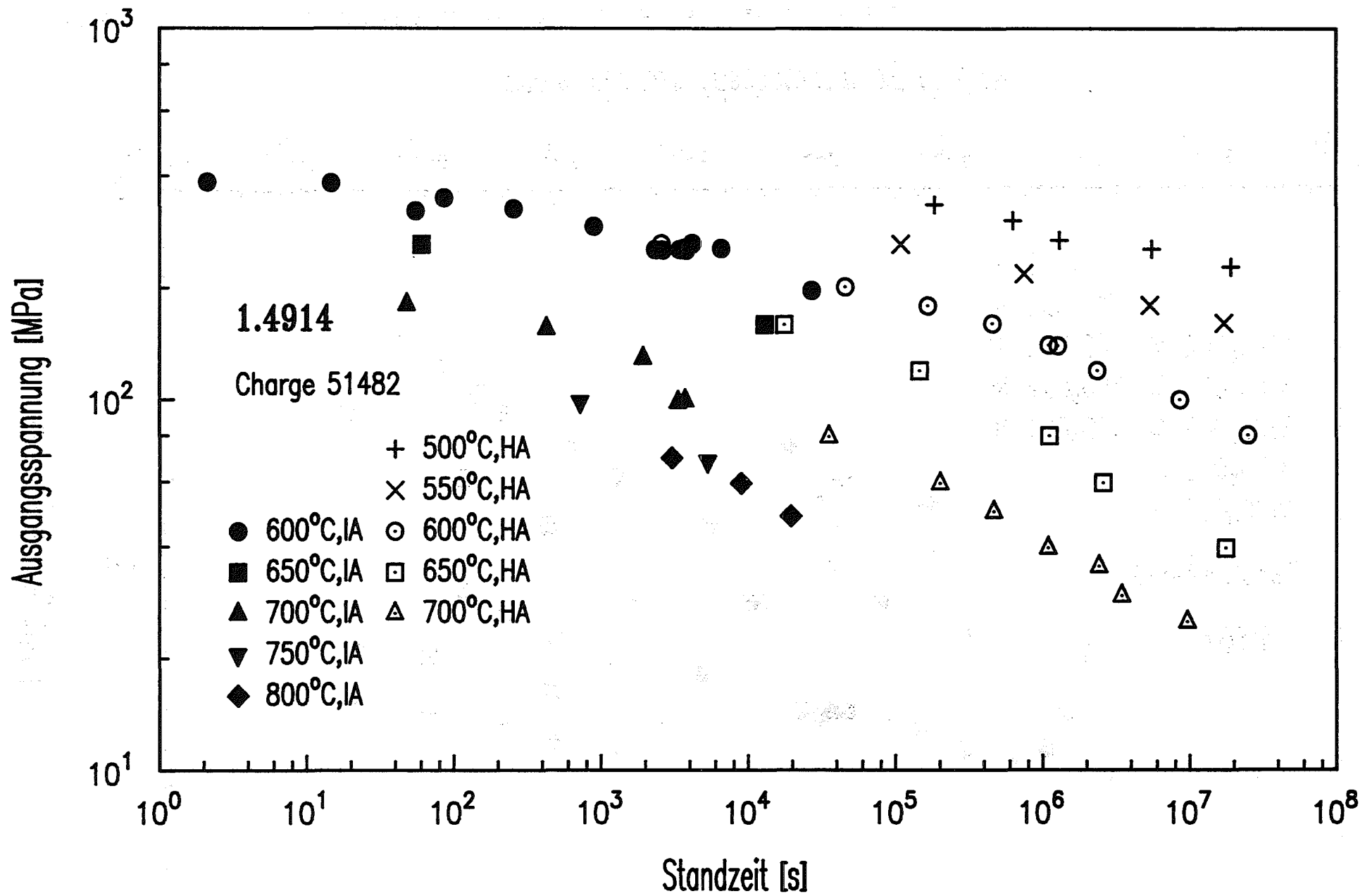


Abbildung 4 Temperaturabhängigkeit der Bruchdehnung bei  $\dot{\epsilon}_0 = 3 \times 10^{-4} \text{ sec}^{-1}$



- 4200-167 -

Abbildung 5 Zeitstandfestigkeit in Abhängigkeit von der Temperatur

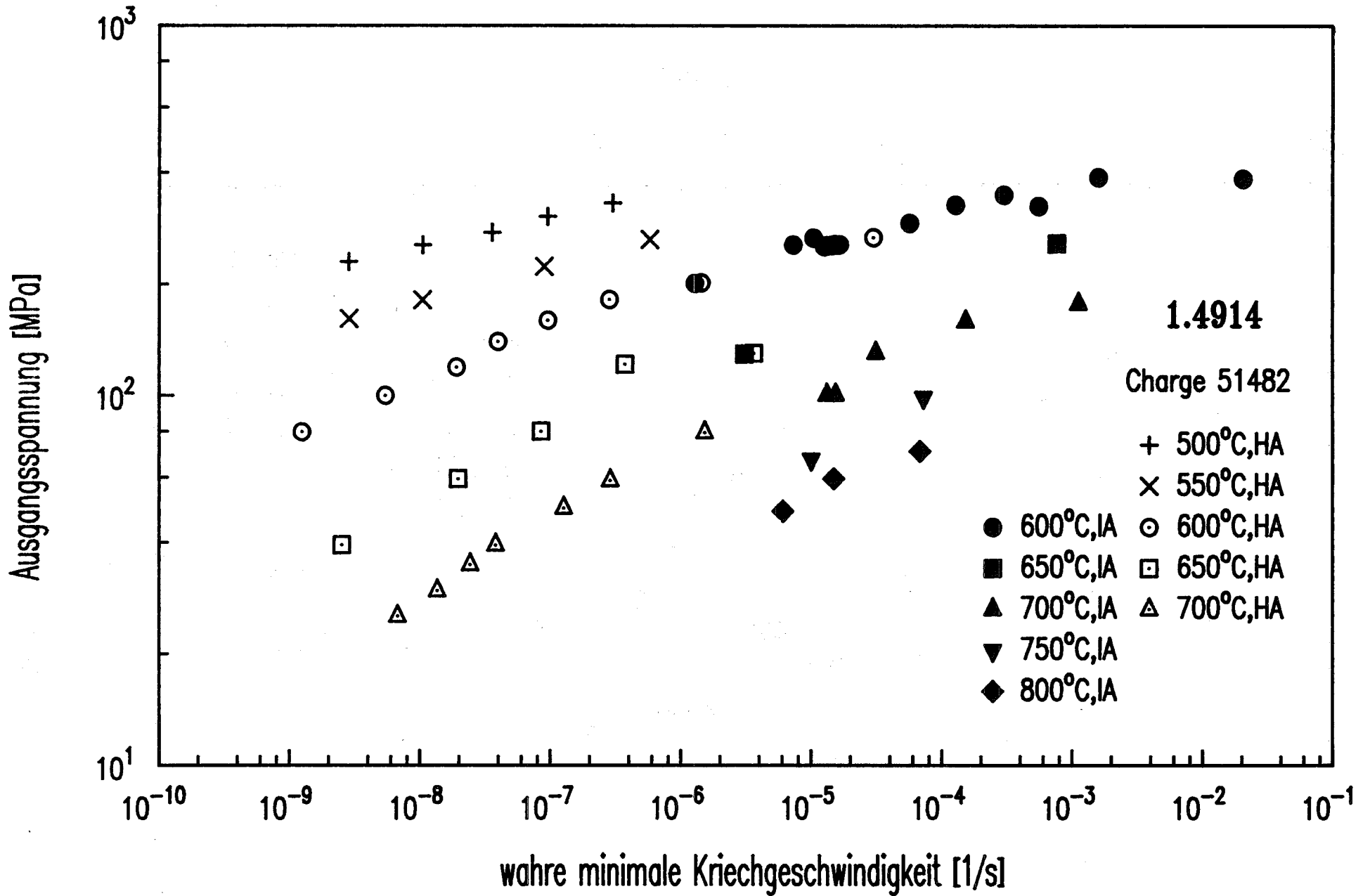


Abbildung 6 Spannungsabhängigkeit der wahren minimalen Kriechgeschwindigkeit für verschiedene Temperaturen



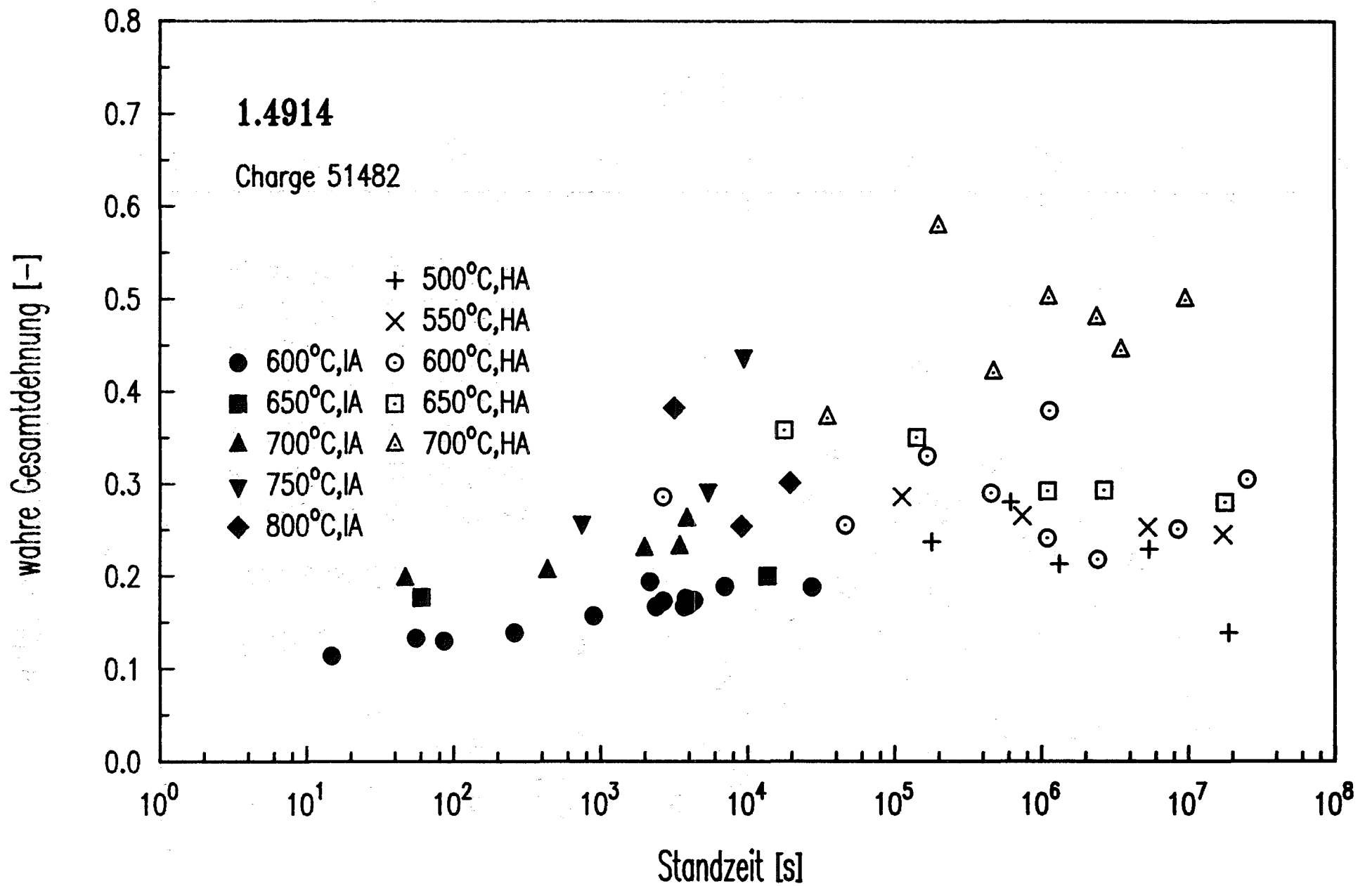
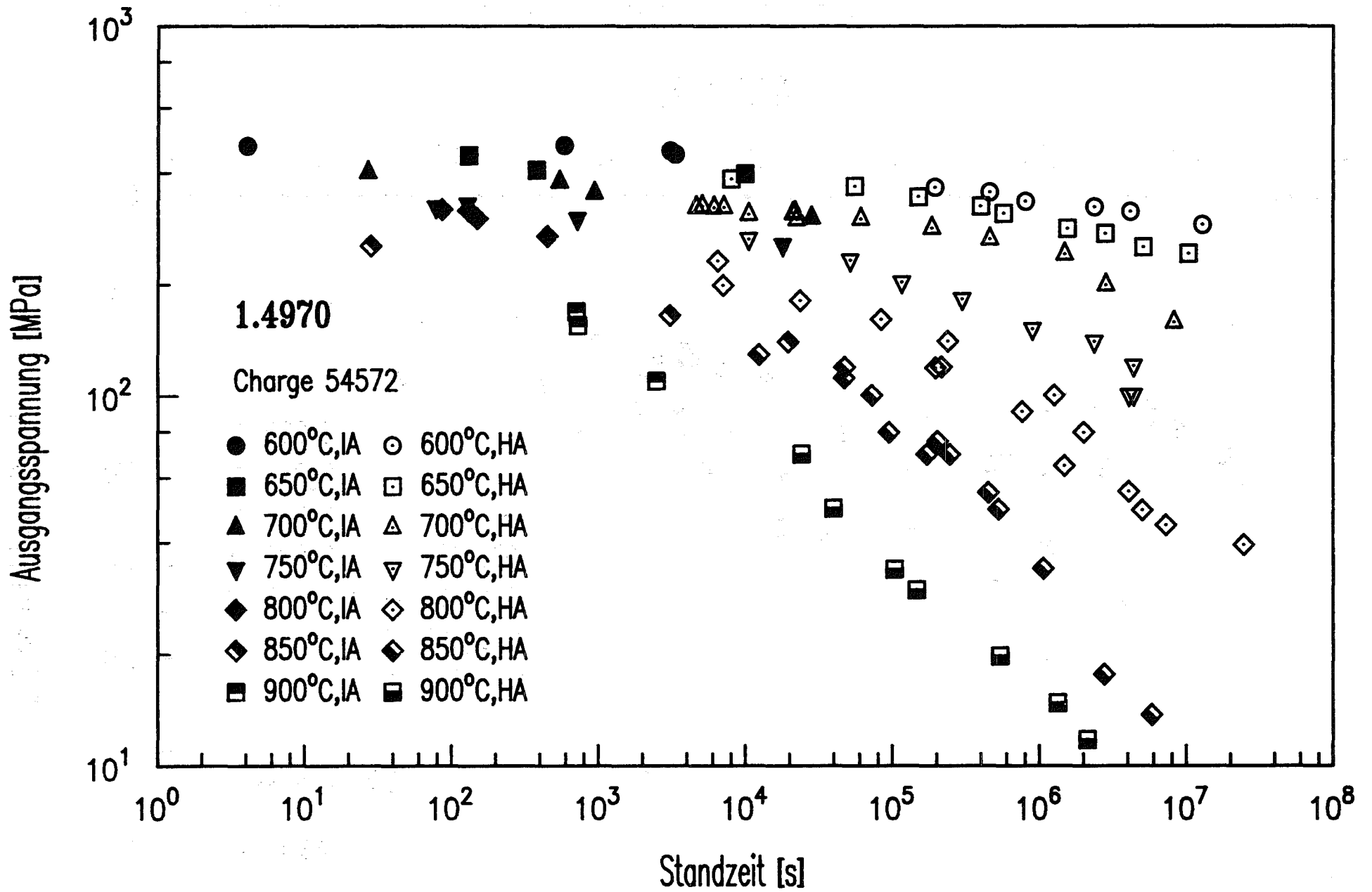


Abbildung 7

Standzeitabhängigkeit der wahren Gesamtdehnung für verschiedene Temperaturen



- 4200-170 -

Abbildung 8 Zeitstandfestigkeit in Abhängigkeit von der Temperatur

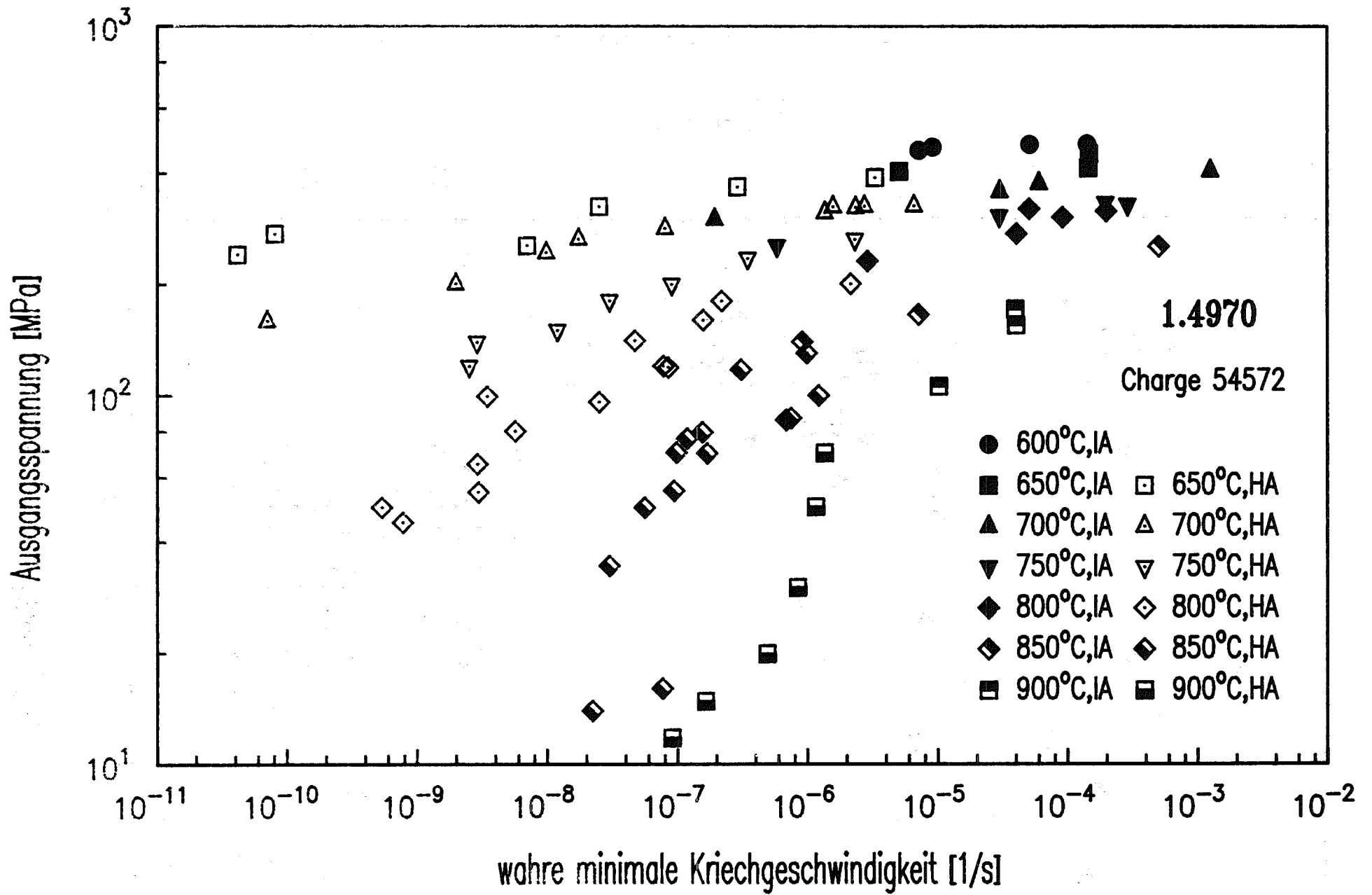


Abbildung 9 Spannungsabhängigkeit der wahren minimalen Kriechgeschwindigkeit für verschiedene Temperaturen

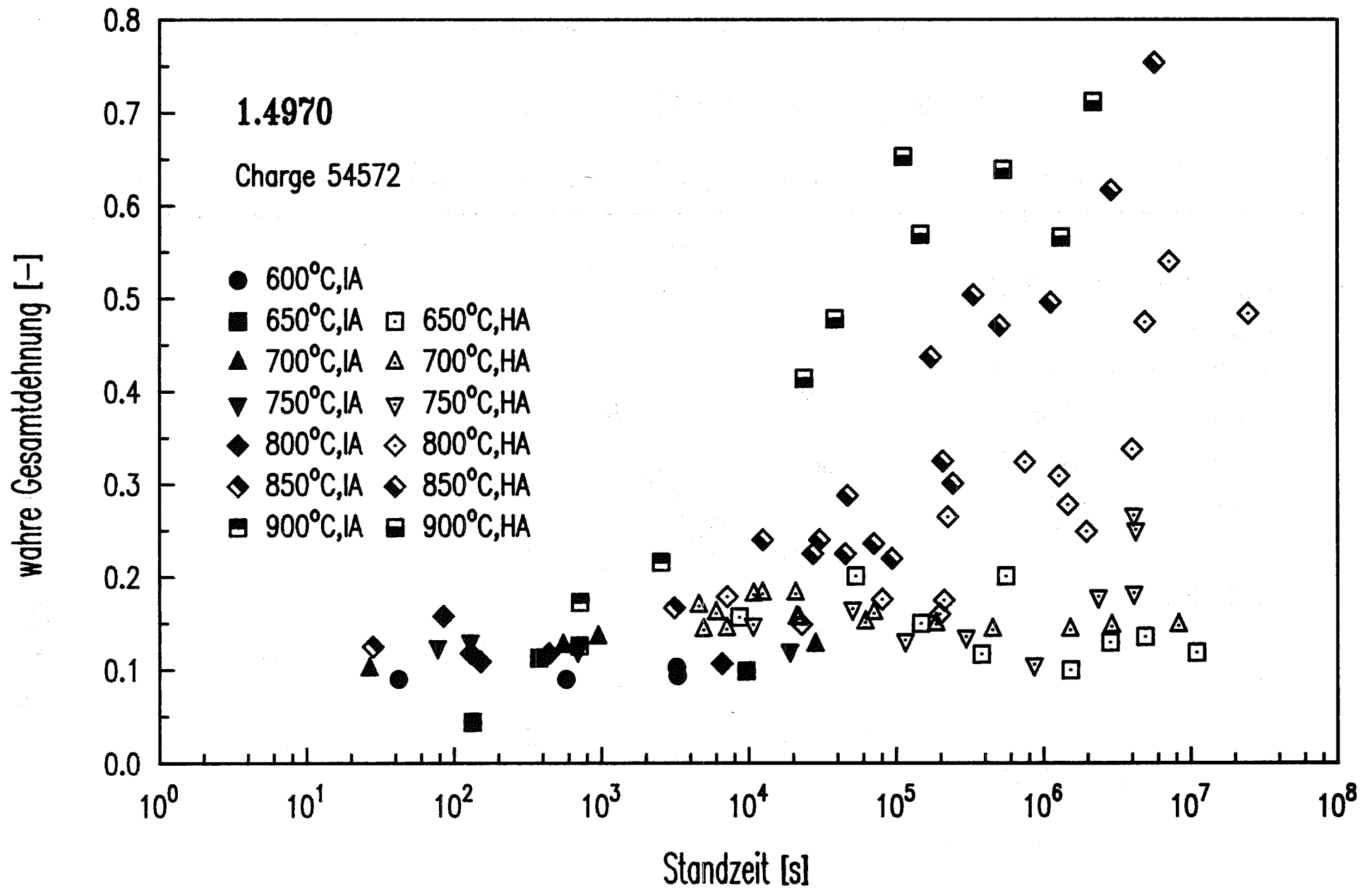


Abbildung 10    Standzeitabhängigkeit der wahren Gesamtdehnung für verschiedene Temperaturen

06.01 SICHERHEIT UND UMGEBUNGSSCHUTZ VON KKW

PNS-Teilprojekt 4300 - Ablauf und Beherrschung von LWR-  
Kernschmelzenunfällen

06.01.11	Reaktions-, Freisetzungs- und Aerosolverhalten beim Kernschmelzen	4300 - 1
06.01.12	Untersuchungen zur Wechselwirkung von Stahlschmelzen in Beton	4300 - 37



06.01.11                    Reaktions-, Freisetzungs- und Aerosolverhalten  
                              beim Kernschmelzen

06.01.11/29 A            Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und  
PNS 4311                   Aerosolen in LWR-Containments

(H. Bunz, M. Koyro, W. Schöck; LAF I)

Die Arbeiten im Berichtszeitraum werden hier unterteilt dargestellt zu den Themen DEMONA-Experimente, NAUA-Anwendung und Resuspension.

#### 1. DEMONA

Nachdem im Vorjahr im wesentlichen Einzelarbeiten in den Laboratorien der an DEMONA beteiligten Partner durchgeführt worden waren, wurde nach Installation der Aerosolgeneratoren am Modellcontainment der Versuchsbetrieb in Frankfurt aufgenommen. Eine Vielzahl von Anfangsschwierigkeiten mit den Aerosolgeneratoren führte dazu, daß im Laufe des Jahres 25 Einzelversuche zur Aerosolerzeugung durchgeführt wurden (V 6 bis V 31), von denen vier (V 20, V 23, V 30 und V 31) als Aerosolabbauexperiment weitergeführt wurden. Die beiden letzten Versuche V 30 und V 31 gelten als Trockenversuch B2 und als Basisversuch B3 im Sinne der DEMONA-Testmatrix. Im Zuge all dieser Einzelexperimente wurden auch notwendige Verbesserungen und Weiterentwicklungen an allen Komponenten der Meßtechnik und an der Versuchsführung durchgeführt. Die wesentlichen Ergebnisse werden im folgenden zusammengestellt.

#### Aerosolgenerator

Die Entwicklung der Aerosolgeneratoren wird von KWU durchgeführt, die wesentlichen Ergebnisse sind die folgenden.

Die Erzeugung von Eisenoxidaerosol aus Eisenpulver mit den ausgeführten Plasma-brennern erwies sich als problematisch. Bei den Temperaturen in der Brennkammer existiert keine stabile Dampfphase von Eisenoxid. Das führt dazu, daß der größere Teil des zugeführten Eisenpulvers im flüssigen Zustand oxidiert, und

daß das Aerosol eine überwiegende Fraktion grober Partikeln enthält. Die Fraktion der aus der Dampfphase kondensierten Aerosolpartikeln ist zu gering, um den Spezifikationen für das Abbauxperiment zu genügen (s. Versuch V 20).

Die einzige verbleibende Möglichkeit zur Erzeugung von Eisenoxidaerosol mit den existierenden Generatoren ist die Verwendung von Eisencarbonyl als Ausgangssubstanz. Eisencarbonyl ist eine Flüssigkeit, die beim Einspeisen in die Brennkammer verdampft. Damit wird das Auftreten einer flüssigen Phase in der Brennkammer vermieden. Vortests (V 21) waren erfolgreich. KWU baut zur Zeit ein Fördersystem für Eisencarbonyl auf.

Die Erzeugung von ausreichenden Mengen Aerosol mit den gewünschten Eigenschaften gelang mit Zinn als Ausgangsmaterial. Dabei ist zu betonen, daß die aerosolphysikalischen Eigenschaften des Zinnoxidaerosols durchaus den Anforderungen der wissenschaftlichen Zielsetzung von DEMONA genügen. Nur als Aerosol für ein Demonstrationsexperiment ist Zinnoxidaerosol allein nicht typisch genug für ein Kernschmelzaerosol. Es ist daher vorgesehen, Zinn nur als eine Komponente in einem anzustrebenden Misch-aerosol zu benutzen.

Die hohen Aerosolerzeugungsraten, die mit Zinn erreicht wurden, ermöglichten die Durchführung von Experimenten, die allen anderen Spezifikationen der Testmatrix entsprachen. Diese Versuche (V 23, V 30, V 31) sind vom aerosolphysikalischen Standpunkt als gelungen anzusehen.

### Meßtechnik

Die vom EIR entwickelte Meßtechnik wurde bei den Versuchen eingesetzt und verbessert. Bis auf das Tröpfchengrößenspektrometer sind alle Geräte erprobt und verfügbar.

Von LAF I wurden die Generatorfotometer, das Laserfotometer und die Tröpfchenkalorimeter betrieben. Bei allen Trockenversuchen wurden außerdem Filterproben des Aerosols gezogen.

Die Generatorfotometer zur Überwachung der Funktion der drei Aerosolgeneratoreinheiten erwiesen sich als nützlich in der Erprobungszeit. Sie geben eine on-line-Information zur individuellen Funktion der drei Brennkammern. Da sich



jedoch keine ausreichend quantitative Aussage über den Aerosolausstoß der Einheiten erzielen läßt, und da die Funktion der Brenner auch mit geringer Zeitverzögerung mit anderen Anzeigen kontrolliert werden kann, sollen die Generatorfotometer in Zukunft nicht mehr eingesetzt werden.

Das Laserfotometer mit seinen beiden optischen Weglängen von 2 und 20 m im Modellcontainment erwies sich als wertvoll zur on-line-Kontrolle der Aerosolkonzentration in späteren Phasen der Experimente, wenn die Infrarotfotometer des EIR mit maximal 0,3 m optischer Weglänge nicht mehr anzeigen.

Erstmals eingesetzt wurden beim Versuch V 31 die Kalorimeter zur Messung der Tröpfchenmassenkonzentration. Mit ihnen wird direkt und unabhängig von der Konzentration fester Aerosolpartikeln der Flüssigwassergehalt der Atmosphäre gemessen. Bis auf geringe Isolationsprobleme arbeiteten die Kalorimeter einwandfrei.

### Versuchsergebnisse

Bei vier Experimenten wurde der Aerosolabbau über längere Zeit gemessen. Das Ende der Meßphase war jeweils erreicht, wenn die Massenkonzentration soweit abgesunken war ( $10^{-3} \dots 10^{-4} \text{ g/m}^3$ ), daß sie nicht mehr meßbar war. Die vier Abbauxperimente waren

- V 20: Trockenversuch mit Eisenoxidaerosol
- V 23: Trockenversuch mit Zinnoxidaerosol
- V 30: Trockenversuch mit Zinnoxidaerosol, aber höhere Erzeugungsrate als bei V 23
- V 31: Naßversuch mit Zinnoxidaerosol

Die Versuche V 30 und V 31 entsprechen in allen Parametern den Versuchen A 2 und A 3 der DEMONA-Testmatrix, bis auf das Aerosolmaterial. Die Versuche erhalten daher die Bezeichnung V 30 = B 2 und V 31 = B 3, eine spätere Wiederholung mit einem Misch aerosol ist vorgesehen.

### Versuch V 20

Der Versuch V 20 wurde mit Eisenoxidaerosol durchgeführt. Insgesamt eingesetzt wurden 2,8 kg Eisenpulver. Die erreichte maximale Aerosolkonzentration im Containment war  $1,4 \text{ g/m}^3$ . Abb. 1 zeigt die berechneten und gemessenen Zeitverläufe der Massenkonzentration des Aerosols in  $\text{g/m}^3$  im Containment. Die durchgezogene Kurve ist die Vorausrechnung, die gepunktete Kurve die Nachrechnung. Man sieht, daß die Vorausrechnung den Aerosolabbau stark unterschätzt. Der Grund dafür liegt darin, daß die Vorausrechnung mit den spezifizierten Aerosolpartikelgrößen durchgeführt wurde, daß aber - wie bereits erwähnt - das Eisenoxidaerosol eine große Fraktion grober Partikeln enthält, die schneller abgeschieden werden. Nachdem die aktuelle Partikelgrößenverteilung gemessen war, lieferte die Nachrechnung mit diesen Werten eine völlige Übereinstimmung mit den Messungen. Die gemessene Partikelgrößenverteilung ist untypisch für Kernschmelzaerosole; der Versuch V 20 ist somit unbrauchbar im Sinne von DEMONA, kann aber als Beispiel für die Leistungsfähigkeit von NAUA angesehen werden.

### Versuch V 23

Der Versuch V 23 war der erste Aerosolabbauversuch mit Zinnoxidaerosol. Der Maximalwert der gemessenen Massenkonzentration war  $6,5 \text{ g/m}^3$ . In Abb. 2 sind die berechneten und gemessenen Massenkonzentrationen dargestellt. Die Aerosol-erzeugung erfolgte, bedingt durch Störungen an den Aerosolgeneratoren, in zwei Intervallen. Die größere Menge Aerosol wurde am Anfang erzeugt, eine zweite Einspeisephase nach drei Stunden brachte nochmal einen kurzzeitigen Anstieg der Massenkonzentration. Dieses diskontinuierliche Verhalten ist in der Vorausrechnung nicht berücksichtigt. Dennoch ist die Übereinstimmung zwischen Vorausrechnung und Messung sehr gut, die Abweichungen liegen innerhalb eines Faktors 2, der durch das schraffierte Band in Abb. 2 angegeben wird. Die Nachrechnung mit Verwendung der aktuellen Aerosolquellfunktion und der gemessenen Leckraten des Containments liegt innerhalb der Meßgenauigkeit, wie schon bei V 20.

Die Messungen mit den zehn im Containment verteilten Fotometern zeigen, daß die Atmosphäre zu allen Zeiten gemischt ist, und daß keine lokalen Konzentrationsunterschiede auftraten. Dies war bei V 20 nicht ganz der Fall, die Fraktion der groben Partikeln hatte sich bei V 20 in den unteren toten Zonen des Contain-

ments vorübergehend angereichert. Bei V 23, bei dem es keine grobe Fraktion gab, konnte ein solcher Entmischungsprozess auch nicht auftreten.

Noch ein Umstand ist hervorzuheben. Obwohl V 23 ein "Trockenversuch" ohne Dampf und bei Umgebungstemperatur war, trat vorübergehend Kondensation im Containment auf. Der Versuch fand im Juli statt bei relativ hoher Luftfeuchtigkeit. Die Aufladung des Containments auf 3 Bar mit Umgebungsluft führte zu Übersättigung im Containment und zu Kondensation an den Aerosolpartikeln. Die zeitweise Kondensation war ausreichend, die Partikeln zu kompaktieren, wie elektronenmikroskopische Aufnahmen zeigen. Die NAUA-Rechnungen konnten daher ohne Formfaktoren durchgeführt werden; ein Umstand, der zur guten Übereinstimmung mit den Messungen beiträgt.

#### Versuch V 30 (B2)

Der Versuch V 30 wurde als Trockenversuch der DEMONA-Testmatrix durchgeführt und erhält die Bezeichnung B 2. Es wurden insgesamt 16,5 kg Zinnpulver eingesetzt, die maximale gemessene Aerosolmassenkonzentration war  $12 \text{ g/m}^3$ . In Abb. 3 ist der Verlauf der gemessenen Massenkonzentration mit der Voraussrechnung verglichen. Die Übereinstimmung ist gut wenn auch nicht so genau wie bei V 23. Insbesondere am Anfang wurden höhere Abbauraten gemessen als vorausberechnet. Ein Teil der Diskrepanzen ist sicherlich dem Umstand zuzuschreiben, daß der Versuch - im Gegensatz zu V 23 - wirklich "trocken" war. Der Versuch V 30 fand im November statt bei sehr kalter und trockener Umgebungsluft. Kondensation im Containment trat nicht auf, die elektronenmikroskopischen Aufnahmen des Aerosols zeigen lockere weitverzweigte Aggregate. Die Formfaktoren dieser Aggregatpartikeln sind unbekannt, wodurch die Nachrechnung erschwert wird. Ein belastbarer Vergleich der Meßergebnisse ist daher nur mit der Voraussrechnung möglich, wie in Abb. 3 gezeigt.

#### Versuch V 31 (B 3)

Der Versuch V 31 wurde als Basisversuch der DEMONA-Testmatrix in wasserdampfgesättigter Atmosphäre bei  $115 \text{ }^\circ\text{C}$  durchgeführt und erhält die Bezeichnung B 3. Nach Aufheizung des Containments durch Dampfeinspeisung wurde das Aerosol er-

zeugt. Die eingesetzte Menge Zinnpulver war 8,8 kg, die maximale gemessene Massenkonzentration des Zinnoxidaerosols  $8,4 \text{ g/m}^3$ . Diese Werte liegen niedriger als bei V 30, weil die Zeit zur Aerosoleinspeisung kürzer war. Beim Naßversuch ist der Druck im Containment zu Beginn der Aerosoleinspeisung höher (1,7 Bar) als beim Trockenversuch (1 Bar), so daß der Enddruck (3 Bar) früher erreicht wird.

In Abb. 4 sind die gemessenen Massenkonzentrationen mit der Vorausrrechnung verglichen. Die Übereinstimmung ist erstaunlich gut, wenn man berücksichtigt, daß die aktuellen thermodynamischen Zustände von den vorausgerechneten signifikant abweichen. Der Vergleich des Aerosolabbaus von V 31 mit V 30 zeigt sehr deutlich den Einfluß der wasserdampfkorielierten Effekte Kondensation und Diffusiophorese. In kondensierender Atmosphäre ist der Aerosolabbau erheblich schneller als in trockener. Das Auftreten von Volumen Kondensation am Aerosol wird durch die Messungen mit den Fotometern und Kalorimetern eindeutig belegt. Der Einsatz der Kondensation am Aerosol war etwas früher als mit COCMEL vorausgerechnet, die Volumen Kondensation dauerte dann an bis zum Versuchsende. Im Kuppelraum R9 wurde ein Flüssigwassergehalt der Atmosphäre gemessen, der ziemlich konstant im Bereich von 3 bis  $4 \text{ g/m}^3$  lag.

Die elektronenmikroskopische Auswertung der Aerosolproben zeigt erwartungsgemäß kompaktierte Aggregatpartikeln, deren Durchmesser jedoch signifikant größer sind als die mit NAUA berechneten. Dies kann nur durch lokal erhöhte Konzentration bei gleichzeitiger Kondensation erklärt werden, ein Zustand, wie er an der Einspeisestelle für Aerosol und Dampf im Raum R 1-3 denkbar ist.

## 2. NAUA

Zusätzlich zu den die DEMONA-Versuche begleitenden Rechnungen wurden Rechnungen zu Störfällen der Kategorien FK 2 und FK 6 durchgeführt, die sich auf verbessertes thermodynamisches Datenmaterial stützten. Die Ergebnisse zeigten bei den Rechnungen zum Niederdruckpfad nur relativ kleine Abweichungen zu früheren Ergebnissen, da die Verbesserungen bei den thermodynamischen Eingangsdaten im wesentlichen eine realistischere Beschreibung des Containmentversagens beinhalteten, was für die Aerosolfreisetzung in die Kraftwerksumgebung nur kleine Auswirkungen hat. Neu hinzugekommen sind dagegen Rechnungen zum Hoch-

druckpfad. Bei diesem Störfallszenario ist im Gegensatz zum Niederdruckpfad die Rückhaltung der Partikeln im Primärsystem einschließlich Reaktordruckbehälter zu berücksichtigen. Da nun physikalisch vertrauenswürdige Modelle für die Partikelabscheidung im Primärsystem insbesondere unter den dort herrschenden Bedingungen (hoher Druck, hohe Temperatur) nicht vorliegen, wurde ein vereinfachter Ansatz verwendet, um eine Quellfunktion für die Freisetzung in den Sicherheitsbehälter zu erhalten, der als obere Abschätzung der zu erwartenden Freisetzung angesehen werden kann. Zur Berechnung der Quellrate wird die mittels thermodynamischer Rechnung ermittelte Ausströmrates aus der Druckhalterleitung mit der maximal experimentell beobachteten Massenkonzentration ( $200 \text{ g/m}^3$ ) multipliziert. Außerdem wird angenommen, daß beim RDB-Versagen das gesamte zu diesem Zeitpunkt dort luftgetragene Aerosol instantan in den Sicherheitsbehälter freigesetzt wird, was eine Reduzierung der Aerosolquelle gegenüber dem Niederdruckpfad um ca. einen Faktor 100 bedingt. Wegen der Nichtlinearität der Abscheidefunktion eines hochkonzentrierten Aerosolsystems vermindert sich dieser Faktor allerdings bei der insbesondere interessanten Freisetzungskategorie FK 2 auf etwa 10-20 bezüglich der Freisetzung in die Atmosphäre.

Die Mitarbeit im Rahmen der von der EG und der OECD durchgeführten Studien zum Vergleich der verschiedenen verfügbaren Aerosolcodes wurde mit dem Abschluß der Arbeiten in den LWR-Codes fortgesetzt. Erste Rechnungen basieren auf vereinfachten Szenarien zur AB- $\beta$ - und S<sub>2</sub>D-Sequenz im Surry-Reaktor (USA) sowie zum FK6-Störfall im Biblis B-Reaktor.

### 3. Resuspension

Zur Vorbereitung einer möglichen experimentellen Untersuchung wurde eine Literaturstudie zu Fragen der Resuspension bzw. des Reentrainment von bereits abgeschiedenen Aerosolpartikeln aus dem Containmentsumpf unternommen. Es zeigte sich, daß die Literaturdaten auf die LWR-typische Unfallsituation nur beschränkt anwendbar sind. Um die Auswirkungen der bestehenden Unsicherheit abschätzen zu können, wurde eine umfangreiche Parameterstudie mit dem NAUA-Code durchgeführt, wobei die Resuspensionsraten innerhalb der sich aus der Literatur ergebenden Grenzen variiert wurden.

Die Ergebnisse dieser Rechnungen zeigen, daß insbesondere bei Störfällen mit späten Überdruckversagen mit einer unter Umständen beträchtlichen Erhöhung der bisherigen Freisetzungswerte zu rechnen ist, da bisher der überwiegende Beitrag zur Freisetzung in die Atmosphäre durch die Auslegungsleckage verursacht wurde, während beim und nach dem Überdruckversagen die Freisetzung vernachlässigbar war. Bei Berücksichtigung der Resuspension beim Verdampfen des Containmentsumpfes nach der Druckentlastung kann davon nicht mehr ausgegangen werden.

Als Resumée dieser Untersuchungen kann festgestellt werden, daß Messungen zur Resuspension und zum Reentrainment unter LWR-typischen Bedingungen durchgeführt werden sollten, sowie ein physikalisches und mathematisches Modell basierend auf diesen Messungen entwickelt werden sollte, wenn die Auswirkungen dieser Effekte auf das Gesamtrisiko realistisch und nicht nur konservativ abgeschätzt werden sollen.

#### Veröffentlichungen

Bunz, H., Schöck, W.

Direct measurements of diffusio-phoretic deposition of particles at elevated temperatures

1st International Aerosol Conference  
Minneapolis MN, September 17-21, 1984

Bunz, H., Schöck, W., Taubenberger, R.

Spatial distribution of an aerosol in a large structured building

1st International Aerosol Conference  
Minneapolis MN, September 17-21, 1984

Haschke, D., Hosemann, J.P., Schöck, W., Ruhmann, H.

Review of DEMONA results

Topical Meeting on Fission Product Behavior and Source Term Research  
Snowbird UT, July 15-19, 1984

Bunz, H., Schöck, W.

Comparison of aerosol behavior measured during DEMONA experiments to NAUA code predictions

CSNI Specialists Meeting on Nuclear Aerosols in Reactor Safety

Karlsruhe, September 4-6, 1984, KfK 3800 (Februar 1985), S. 448

Friedrich, G., Fromentin, A., Mercier, O., Taubenberger, R., Schöck, W.

Aerosol measurement system for the DEMONA experiment

CSNI Specialists Meeting on Nuclear Aerosol in Reactor Safety

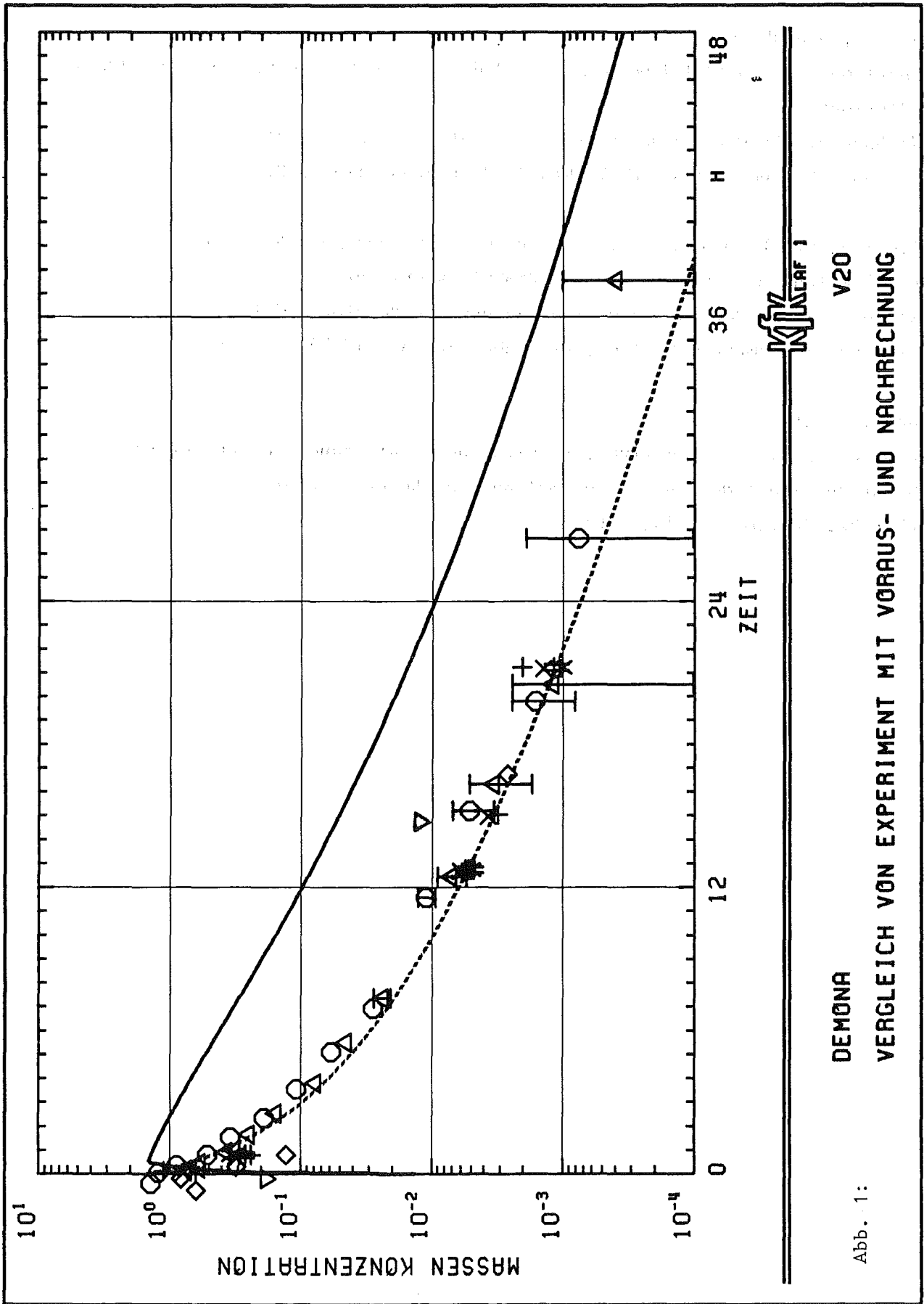
Karlsruhe, September 4-6, 1984, KfK 3800 (Februar 1985), S. 329

Schöck, W. et.al.

The DEMONA project. Objectives, results and significance to LWR safety

5th International Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety

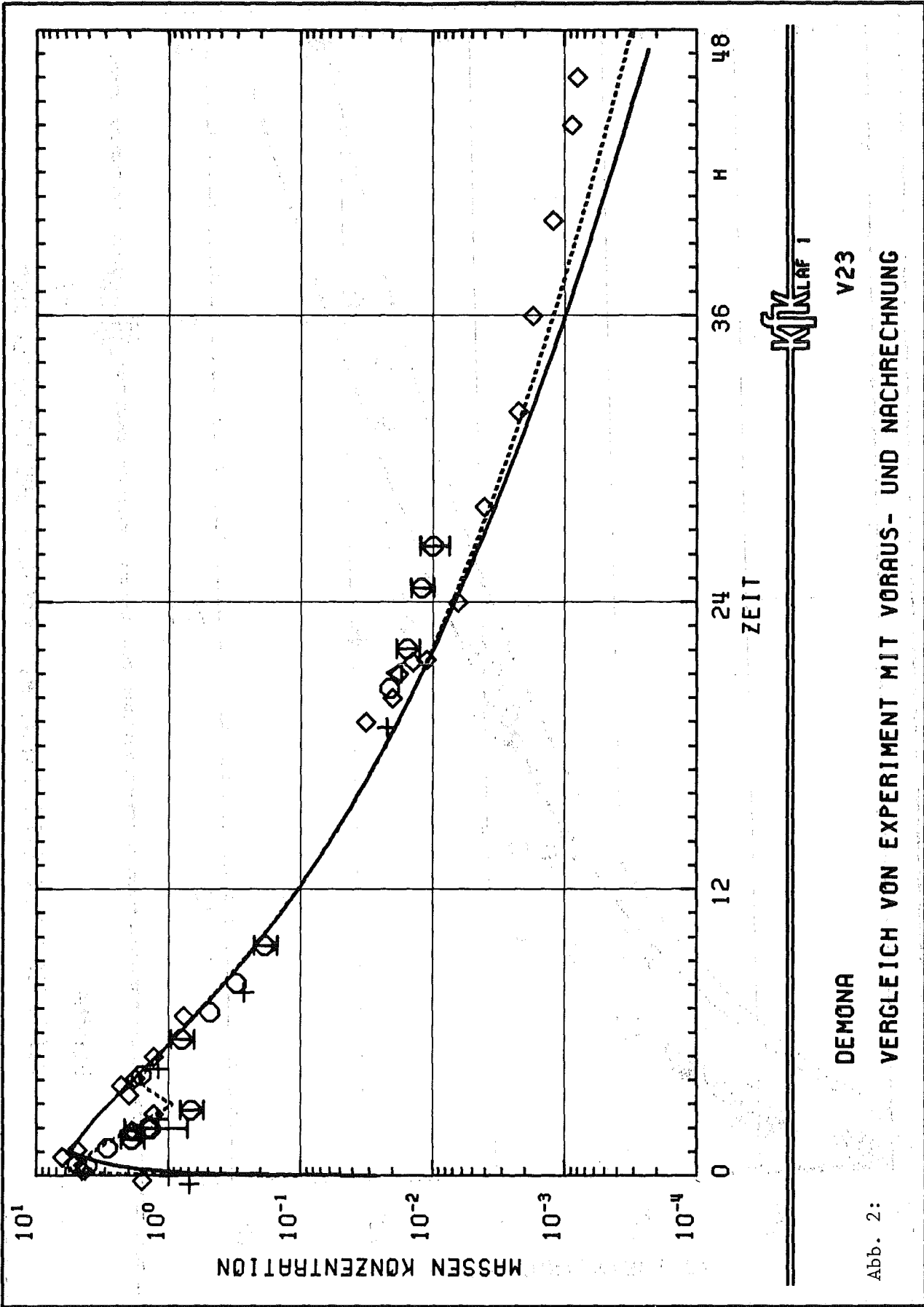
Karlsruhe, September 9-13, 1984



DEMONA V20  
VERGLEICH VON EXPERIMENT MIT VORAUS- UND NACHRECHNUNG

Abb. 1:





MK  
LAUF 1

DEMONA V23  
VERGLEICH VON EXPERIMENT MIT VORAUS- UND NACHRECHNUNG

Abb. 2:

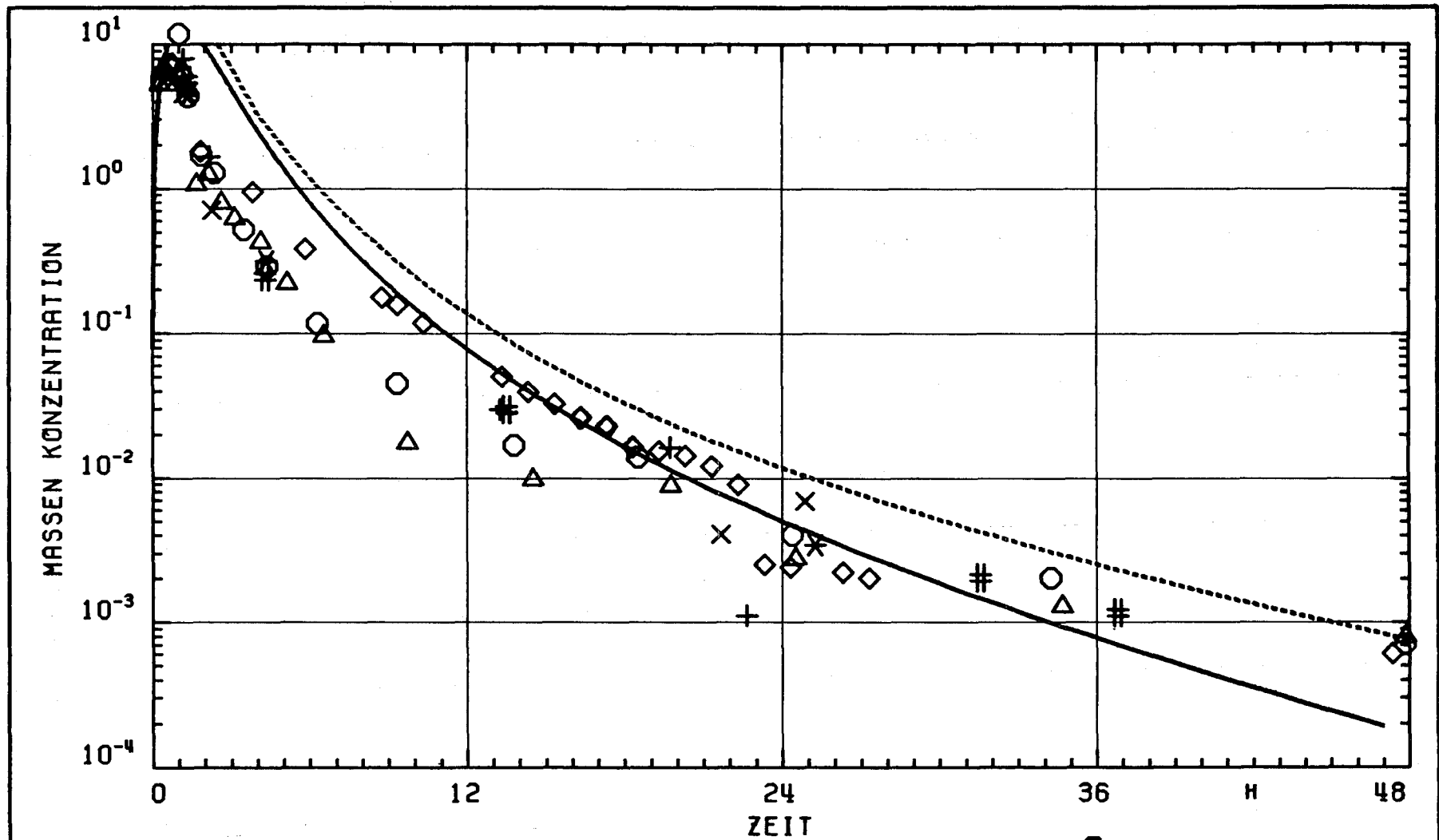
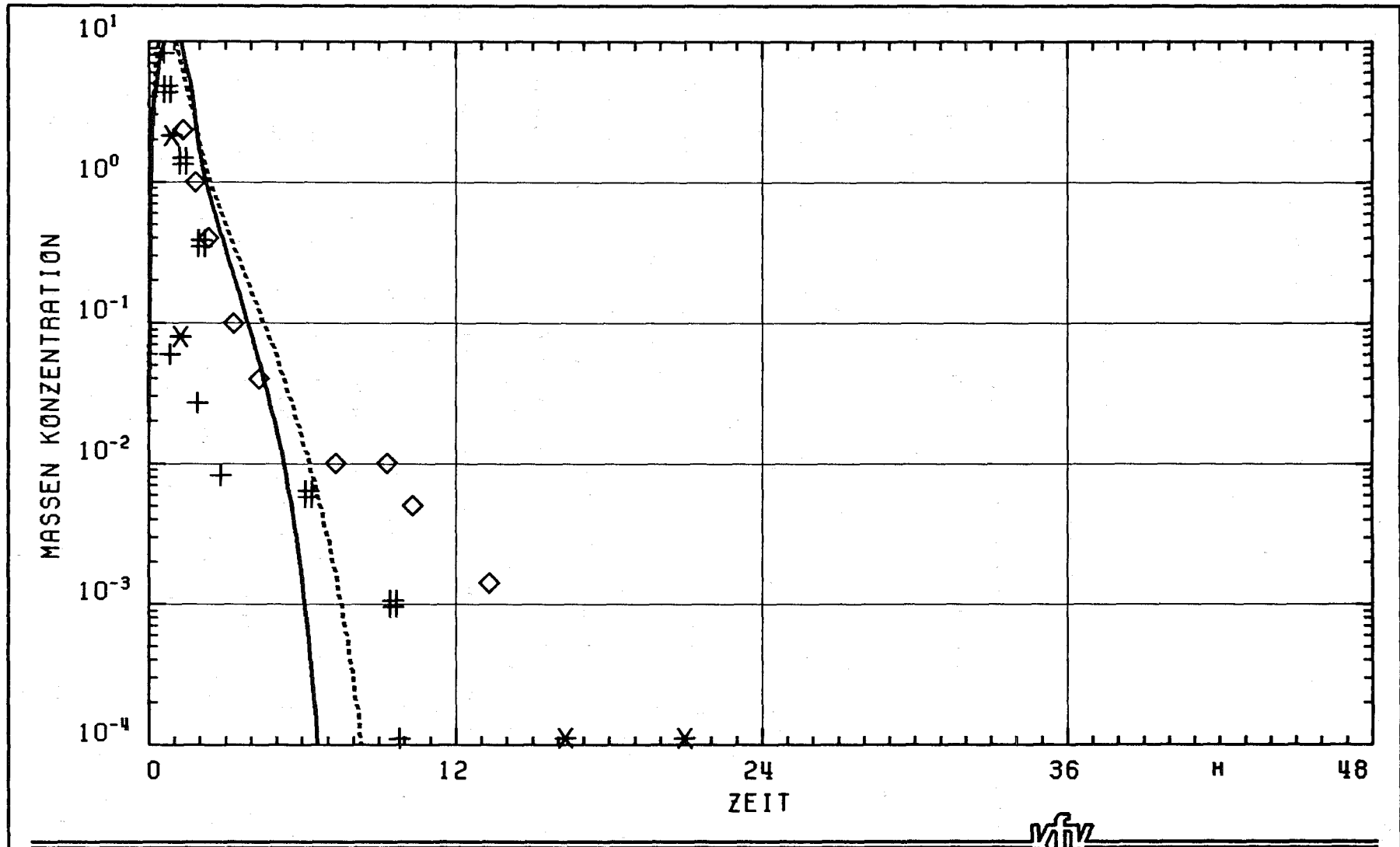


Abb. 3: DEMONA V30  
 VERGLEICH VON EXPERIMENT MIT VORAUS- UND NACHRECHNUNG





**Kfz**  
LAF 1

DEMONA

V31

Abb. 4:

VERGLEICH VON EXPERIMENT MIT VORAUS- UND NACHRECHNUNG

06.01.11/30A      Ermittlung von Daten zur Beschreibung des Reaktions- und Frei-  
PNS 4314            setzungsverhaltens bei hohen Temperaturen im RDB und beim Kern-  
                      schmelzen. Neuere Untersuchungen zum Hochtemperatur-Phasenver-  
                      halten im System U-Zr-O  
                      (A. Skokan, K. Biemüller, G. Reiser, G. Schlickeiser; IMF I)

Die ersten Untersuchungen zum Phasen- und Zustandsverhalten im ternären System U-Zr-O waren von Saller und Mitarbeitern /1/ durchgeführt worden, die drei vorläufige isotherme Schnitte bei Temperaturen bis zu maximal  $\sim 1100$  °C aufgestellt hatten. Später folgten weitergehende Untersuchungen von Politis /2/, mit dem Ziel, das Phasen- und insbesondere Schmelzverhalten bei höheren Temperaturen zu ermitteln. Dabei wurden die isothermen ternären Schnitte bei 1000, 1500 und 2000 °C sowie der Temperatur-Konzentrationschnitt zwischen  $UO_2$  und sauerstoffgesättigtem  $\alpha$ -Zr, welches als Zr(O) bezeichnet wurde, festgelegt. Aus beiden Veröffentlichungen ergibt sich übereinstimmend als Hauptmerkmal dieses ternären Systems bei Temperaturen bis 1500 °C die Existenz eines ausgedehnten zentralen Drei-Phasen-Feldes ( $UO_2 + \alpha$ -Zr(O) +  $\beta$ -Zr(U) bzw. Schmelze) und die quasibinäre Natur des Schnittes  $UO_2$ -Zr(O). Diese Ergebnisse erklären die experimentell beobachtete ternäre Korrosionsreaktion zwischen  $UO_2$  und Zr, bei welcher  $UO_2$  teilweise zu metallischem Uran reduziert wird, solange Zirkonium noch nicht mit Sauerstoff gesättigt ist. Die Tatsache, daß bei der  $UO_2$ /Zirkaloy-Wechselwirkung stets zwei sauerstoffgesättigte  $\alpha$ -Zr(O)-Schichten, getrennt durch eine praktisch sauerstoff-freie  $\beta$ -Zr(U)-Schicht (Sandwich-Konfiguration), in der Reaktionszone beobachtet wurden /3/, konnte allerdings nicht thermodynamisch erklärt werden, ohne komplizierte Diffusionspfade anzunehmen. Die Notwendigkeit zur Wiederaufnahme der Untersuchungen in diesem ternären System ergab sich aus dem laufenden Forschungsprogramm zur Untersuchung schwerer Kernschäden. So erschien es für die Interpretation der Ergebnisse aus den  $UO_2$ /Zirkaloy-Wechselwirkungstests erforderlich, die Phasengleichgewichte im Temperaturbereich zwischen 1500 und 2000 °C genauer zu ermitteln. Zum einen sollten dabei die Liquidusbereiche in isothermen Schnitten schrittweise verfolgt werden, zum anderen sollten Widersprüche zwischen den ternären Schnitten und dem quasibinären Schnitt  $UO_2$ -Zr(O), die in der jüngeren Arbeit /2/ auftraten, geklärt werden. Nach Möglichkeit sollte weiterhin untersucht werden, ob die oben erwähnte sogenannte Sandwich-Konfiguration bei der  $UO_2$ /Zirkaloy-Wechselwirkung nicht doch auf thermodynamische Ursachen zurückgeführt werden kann, etwa durch die Existenz einer vermuteten Mischungslücke im ternären Bereich des  $\alpha$ -Zr(O)-Einphasenfeldes /4/.

## Experimentelles

Die Proben wurden aus homogenen Pulvermischungen von  $UO_{2,0}$ ,  $ZrO_{2,0}$  und Zirkonium (crystal bar) hergestellt. Als Tiegelmaterial wurden Wolfram, Thoriumoxid und Zirkoniumoxid - je nach Temperaturbereich und Probenzusammensetzung - eingesetzt. Es wurden isotherme Glühungen, Hochtemperatur-DTA und direkte Schmelztemperaturbestimmungen durch Beobachtung der Proben mit einem Zweiphasen-Mikropyrometer durchgeführt. Alle Untersuchungen erfolgten in Argon-Atmosphäre nahe Normaldruck. Die Übereinstimmung der Ergebnisse aus DTA- und Pyrometermessungen lag innerhalb der Fehlergrenzen. Keramographische und metallographische Methoden sowie Röntgenbeugungsuntersuchungen dienten zur Identifikation und Charakterisierung der Phasen.

## Ergebnisse

### a) Der quasibinäre Schnitt $UO_2$ -Zr(O)

Sauerstoff-stabilisiertes  $\alpha$ -Zr besitzt im binären System Zr-O einen breiten Homogenitätsbereich mit temperaturabhängiger Sauerstoff-Sättigungskonzentration. Bei der Temperatur des Eutektikums ( $1900^\circ\text{C}$ ) weist diese ein Maximum auf und beträgt 34 At.-%, bei  $1500^\circ\text{C}$  31 At.-% /5,6/. Man muß daher für die Darstellung des Schnittes  $UO_2$ -Zr(O) eine geeignete Sauerstoff-Konzentration für die Zr-reiche Seite auswählen, um für den gesamten betrachteten Temperaturbereich einen quasibinären Schnitt zu erhalten. Für das in dieser Arbeit revidierte quasibinäre Temperatur-Konzentrations-Diagramm  $UO_2$ -Zr(O) (Abb. 1) wurde die Sauerstoffkonzentration für die Phase  $\alpha$ -Zr(O) bei 30 At.-% festgelegt (in /2/: 34 At.-%). In der früheren Arbeit /2/ gab es hinsichtlich der Liquidus-Kurve des Zweiphasenfeldes  $(U,Zr)O_{2-x} + L$  auf der Zr-reichen Seite einen Widerspruch zwischen dem Temperatur-Konzentrationschnitt dieses Teilsystems und den ternären isothermen Schnitten. Im ternären Schnitt bei  $2000^\circ\text{C}$  schneidet diese Liquiduskurve die Verbindungslinie zwischen  $UO_2$  und Zr(O) bei  $\sim 26$  At.-%  $U_{0,33}O_{0,67}$  (entspr.  $\sim 14$  Mol-%  $UO_2$ ), während sie im quasibinären Schnitt die  $2000^\circ\text{C}$ -Isotherme bei  $\sim 15$  At.-%  $U_{0,33}O_{0,67}$  (entspr.  $\sim 8$  Mol-%  $UO_2$ ) schneidet. Nach den experimentellen Ergebnissen der nun vorliegenden Arbeit liegt die Temperatur des Eutektikums bei  $\sim 1900^\circ\text{C}$ , um etwa  $60^\circ\text{C}$  höher als in der früheren Arbeit ( $1840^\circ\text{C}$  /2/) angegeben. Sie wurde an einer Probe mit 15 Mol-%  $UO_2$  übereinstimmend durch DTA (Abb. 2) wie auch durch Pyrometermessung ermittelt. Den gleichen Wert weist nach Domagala und McPherson /7/ und Gebhardt und Mitarbeitern /5/ auch die eutektische Temperatur des binären Randsystems Zirkonium-Sauerstoff im Bereich zwischen  $\alpha$ -Zr(O) und  $ZrO_2$  auf, während Ackermann /6/ für dieses binäre Eutektikum einen beträchtlich

höheren Wert angibt. Die eutektische Zusammensetzung des quasibinären Eutektikums  $\text{UO}_2\text{-Zr(O)}$  liegt nach den vorliegenden experimentellen Ergebnissen nicht bei 5 Mol-%  $\text{UO}_2$ , wie in /2/ angegeben, sondern bei 15 Mol-%  $\text{UO}_2$ . Dieser Wert ergibt sich aus Gefügeuntersuchungen von aufgeschmolzenen Proben mit 10, 15 und 20 Mol-%  $\text{UO}_2$  (vgl. Abb. 3). Die neue Lage des eutektischen Punktes bei höherer Temperatur und höherem  $\text{UO}_2$ -Gehalt bedingt ebenso eine Anhebung der Liquiduslinie des Zweiphasenfeldes  $(\text{U,Zr})\text{O}_{2-x} + \text{L}$  auf der Zr-reichen Seite hin zu höheren  $\text{UO}_2$ -Gehalten. Die maximale  $\text{UO}_2$ -Konzentration in der Schmelze ergibt sich daraus zu  $\sim 16$  Mol-% bei  $2000^\circ\text{C}$ , und dieser Wert stimmt mit der Lage der Liquiduslinie im isothermen ternären Schnitt bei  $2000^\circ\text{C}$  deutlich besser überein als der frühere von  $\sim 8$  Mol-%. Der Verlauf der Liquiduskurve selbst wurde nicht ermittelt. Es wurde angenommen, daß sie bei  $2400^\circ\text{C}$  wieder auf die früher angegebene Kurve stößt. Auch das Feld der Entmischung im Liquidusbereich und die monotektische Temperatur von  $2400^\circ\text{C}$  wurden nicht überprüft.

Auf der  $\text{UO}_2$ -Seite führten die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit zu einer Ausdehnung des Einphasenfeldes  $(\text{U,Zr})\text{O}_{2-x}$  zu niedrigeren  $\text{UO}_2$ -Gehalten, entsprechend einer höheren Löslichkeit von  $\text{Zr(O)}$  in  $\text{UO}_2$ .

Um einen direkten Vergleich mit den ternären isothermen Schnitten, die in At.-% angegeben werden, zu ermöglichen, ist das quasibinäre Diagramm in Abb. 4 ebenfalls in At.-% dargestellt. Die Endglieder müssen dabei als  $\text{Zr}_{0,7}\text{O}_{0,3}$  und  $\text{U}_{0,33}\text{O}_{0,67}$  bezeichnet werden, damit die Stöchiometrierechnungen stimmen.

#### b) Ternäre isotherme Schnitte

Die Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen in den ternären isothermen Schnitten bei  $1600$  und  $1800^\circ\text{C}$  sind in den Abb. 5 und 6 dargestellt. Im Vergleich zum früher aufgestellten Schnitt bei  $1500^\circ\text{C}$  /2/ ergeben sich keine wesentlichen neuen Gesichtspunkte. Das metallische U-Zr-Schmelzenfeld dehnt sich mit steigender Temperatur in Richtung Zr aus, und die Zusammensetzung der Schmelze im zentralen Dreiphasenfeld ändert sich in entsprechender Weise. Da oberhalb  $\sim 1525^\circ\text{C}$  kubisches  $\text{ZrO}_{2-x}$  mit  $\alpha\text{-Zr(O)}$  stabil ist /8/, wurde in den beiden Schnitten vollständige Mischbarkeit zwischen  $\text{UO}_{2-x}$  und  $\text{ZrO}_{2-x}$  angenommen und durch Experimente bestätigt. Damit ergibt sich ein ausgedehntes Zweiphasenfeld  $(\text{U,Zr})\text{O}_{2-x}$  und  $\alpha\text{-Zr(O)}$  anstelle eines Dreiphasenfeldes, wie es im  $1500^\circ\text{C}$ -Schnitt existiert. Die Suche nach einer vermuteten Entmischung im ternären Bereich in der Nähe des sauerstoffgesättigten  $\alpha\text{-Zr(O)}$  blieb ohne Erfolg.

Die Abb. 7 und 8 enthalten vorläufige Vorschläge für die isothermen Schnitte bei 1905 und 1950 °C, die aufgrund von Literaturdaten der binären Teilsysteme und einiger experimenteller Versuche aufgestellt wurden. Dabei wurde von der Annahme ausgegangen, daß das binäre Eutektikum zwischen  $\alpha$ -Zr(O) und  $ZrO_2$  bei 1900 °C liegt (entsprechend den Untersuchungen von /5/ und /7/, während von /6/ ein erheblich höherer Wert von 2065 °C berichtet wird), und daß dieses sich in den ternären Bereich hinein ausdehnt, in welchem das Eutektikum zwischen  $UO_2$  und Zr(O) in der vorliegenden Arbeit ebenfalls bei 1900 °C gemessen wurde. Würde man von dem hohen Wert der Eutektikalen bei 2065 °C ausgehen, so ließen sich die eigenen Ergebnisse nur durch die Annahme eines ternären Eutektikums auf der Linie  $UO_2$ -Zr(O) interpretieren. Dafür sind allerdings keine Anhaltspunkte zu finden. Die beiden isothermen Schnitte zwischen 1900 und 2000 °C sind charakterisiert durch zwei Schmelzenfelder, ein metallisches ( $L_1$ ) und eines mit beträchtlichen Gehalten an Sauerstoff ( $L_2$ ). Beide weiten sich mit steigender Temperatur auf der Zr-Seite gegeneinander aus und vereinigen sich oberhalb der Schmelztemperaturen der festen Phasen  $\alpha$ -Zr(O) und  $\beta$ -Zr, die dazwischen liegen. Auch für diese Schmelztemperaturen gibt es voneinander abweichende Angaben (/5,7/ und /6/). Für die Aufstellung der vorläufigen Schnitte im Rahmen dieser Arbeit wurde den niedrigeren Werten nach /5/ und /7/ der Vorzug gegeben, da sie mit den eigenen Ergebnissen besser übereinstimmen.

### c) Ternäre-Temperatur-Konzentrations-Diagramme

Will man die Phasenbeziehungen im ternären System U-Zr-O für die Interpretation und Voraussage der Wechselwirkung zwischen  $UO_2$  und Zr heranziehen, so ist es sicherlich von Nutzen, außer dem Diagramm des quasibinären Systems  $UO_2$ -Zr(O) noch weitere Schnitte zu betrachten, welche die Temperaturabhängigkeit der Phasenbeziehungen bei unterschiedlichen Sauerstoffpotentialen aufzeigt. Daher wurden aus den bisher erhaltenen Ergebnissen zusätzlich die Temperatur-Konzentrationschnitte zwischen  $UO_2$  einerseits und sauerstofffreiem Zr sowie  $Zr_{0,5}O_{0,5}$  andererseits aufgestellt. Die Lage dieser Schnitte im ternären System ist in Abb. 9 dargestellt, die Phasendiagramme werden in den Abb. 10 und 11 wiedergegeben. Auch in diesen Diagrammen sind für einen direkten Vergleich mit den isothermen ternären Schnitten die Konzentrationen in At.-% angegeben. Da die Phasengleichgewichte oberhalb der eutektischen Temperaturen nicht sicher genug bekannt und vermutlich auch äußerst komplex sind, liegen die oberen Temperaturgrenzen hier bei 1900 bzw. 2000 °C. Mit Hilfe dieser Diagramme soll die Betrachtung der Phasenbeziehungen bei der  $UO_2$ /Zr-Wechselwirkung mit zunehmenden Oxidationsgrad des Zr erleichtert werden.

### Zusammenfassung

Die inhärenten Widersprüche früherer Darstellungen des ternären Systems U-Zr-O im Bezug auf die Ausdehnung des flüssigen Einphasenfeldes bei 2000 °C wurden geklärt. Im Temperaturbereich zwischen 1500 und 2000 °C wurden neue Ergebnisse erhalten, die für die Untersuchung schwerer Kernschäden als Grundlage dienen können. Im Bezug auf die Sandwich-Anordnung der Wechselwirkungszone zwischen UO<sub>2</sub> und Zirkaloy wurden keine Hinweise für eine thermodynamische Erklärung auf der Grundlage des ternären Systems U-Zr-O gefunden.

### Literatur

- /1/ Saller, A. et al., BMI 1023 (1955)
- /2/ Politis, C., KFK 2167 (1975)
- /3/ Hofmann, P. und Politis, C., J.Nucl.Mater., 87 (1979) 375
- /4/ Picklesimer, M.L., persönl. Mitteilung
- /5/ Gebhardt, E. et. al., J.Nucl.Mater., 4 (1961) 255
- /6/ Ackermann, R.J. et al., J.Am.Ceram.Soc., 60 (1977) 341
- /7/ Domagala, R.F. und McPherson, D.J., Trans.AIME, 200 (1954) 238
- /8/ Ackermann, R.J. et al., J.Am.Ceram.Soc., 61 (1978) 275



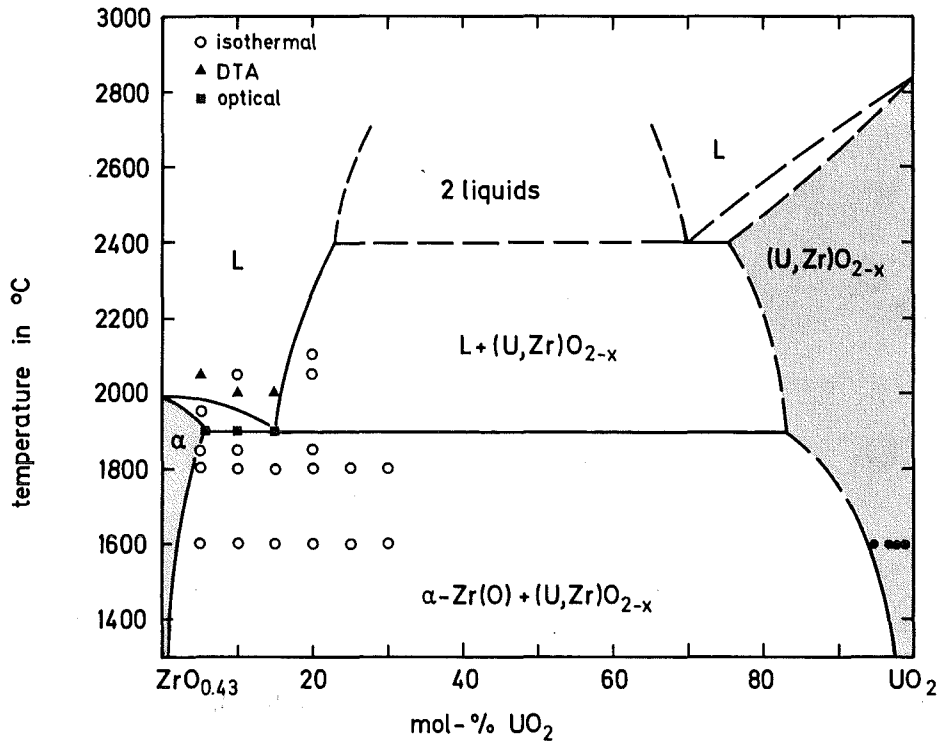


Abb. 1: Revidiertes Phasendiagramm des quasibinären Systems Zr(O)-UO<sub>2</sub> in Mol-%.

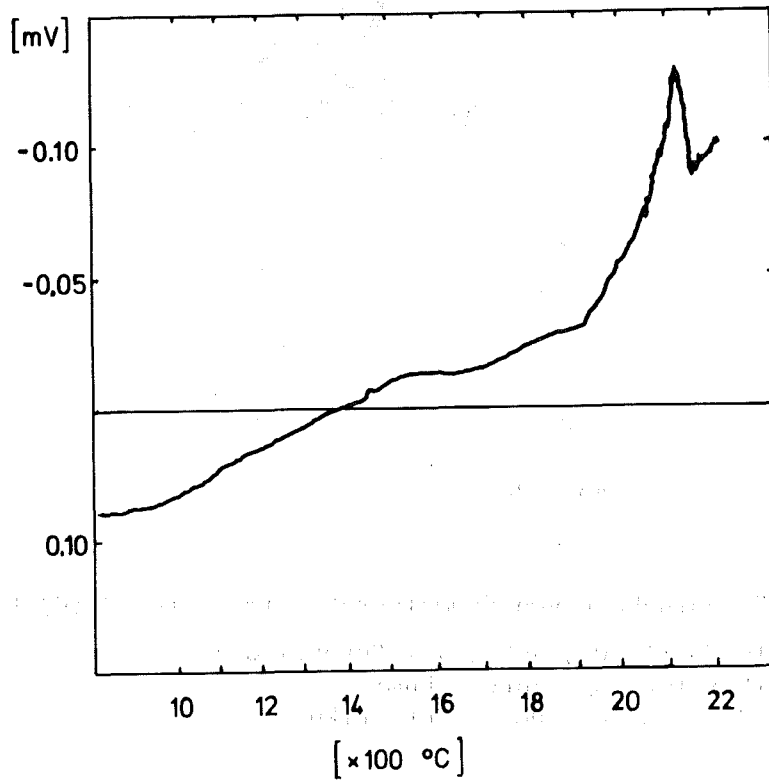


Abb. 2: DTA einer Probe im System Zr(O)-UO<sub>2</sub> mit 15 Mol-% UO<sub>2</sub>.

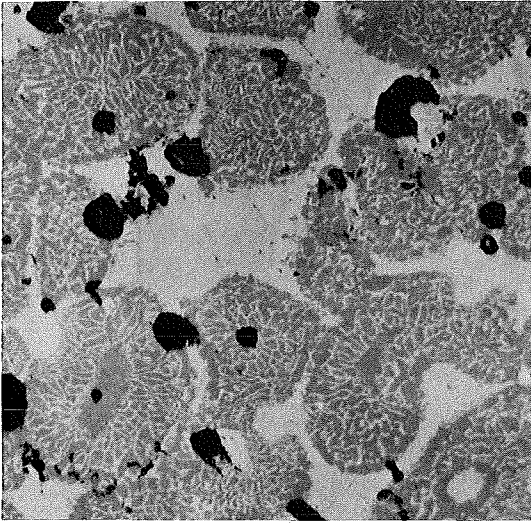


Abb. 3a

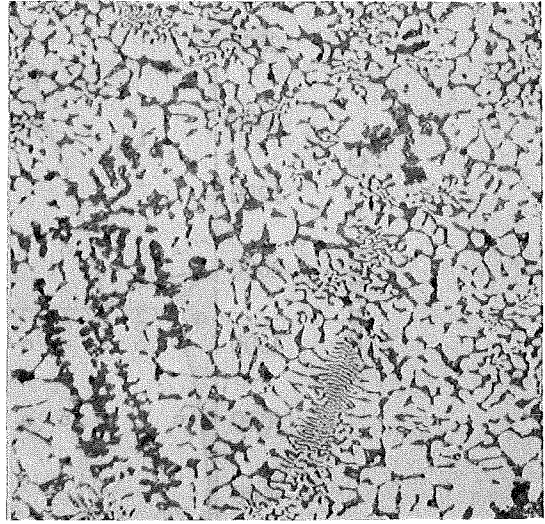


Abb. 3b

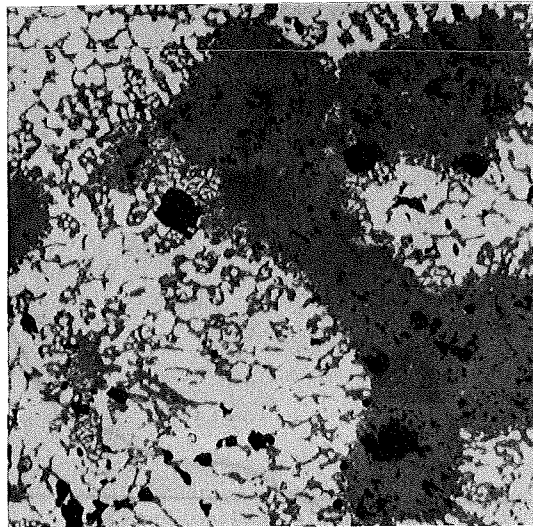


Abb. 3c

Abb. 3: Gefügebildungen von Schmelzproben im System  $Zr(O)-UO_2$ :

- a) 10 Mol-%  $UO_2$ ,  $\alpha$ -Zr(O) + Eutektikum;
- b) 15 Mol-%  $UO_2$ , Eutektikum;
- c) 20 Mol-%  $UO_2$ ,  $UO_2$  + Eutektikum.

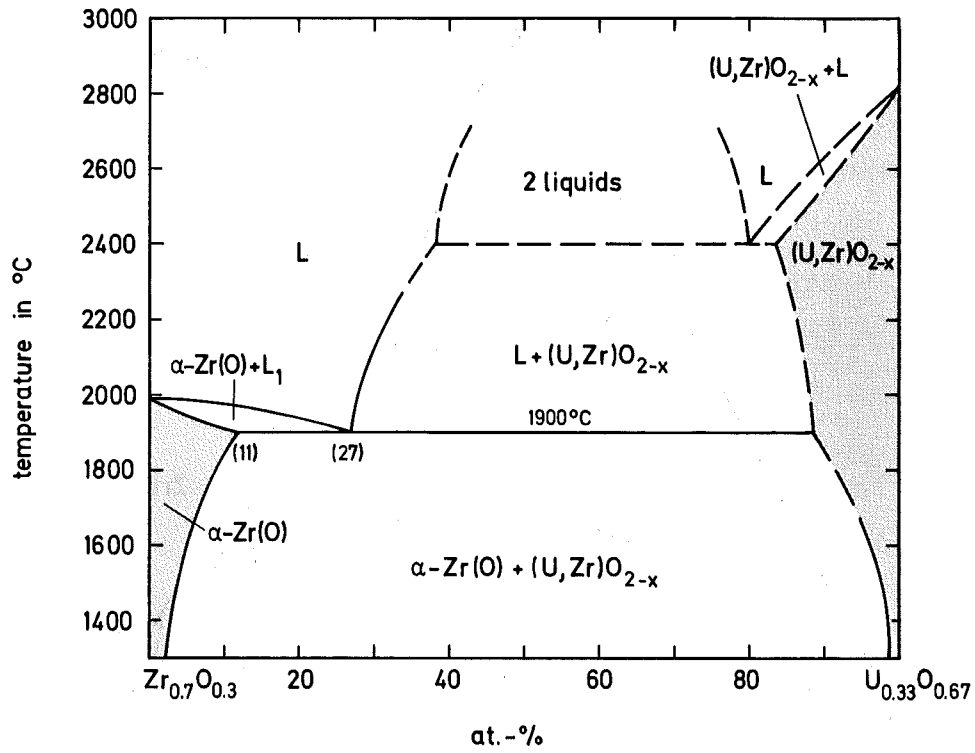


Abb. 4: Revidiertes Phasendiagramm des quasibinären Systems  $Zr(O)-UO_2$  in At.-%.

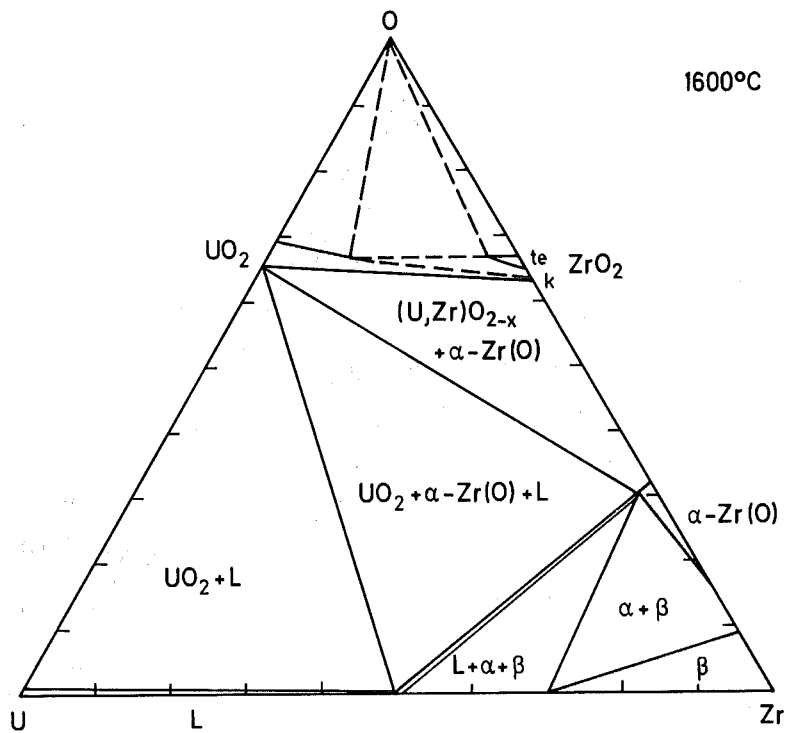


Abb. 5: Isothermer Schnitt des ternären Systems U-Zr-O bei 1600 °C.

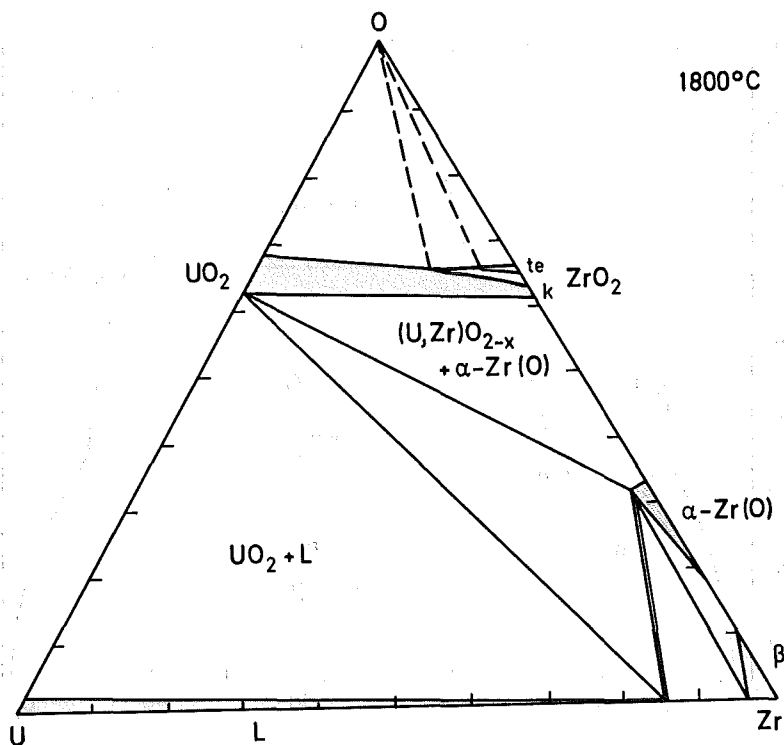


Abb. 6: Isothermer Schnitt des ternären Systems U-Zr-O bei 1800 °C.

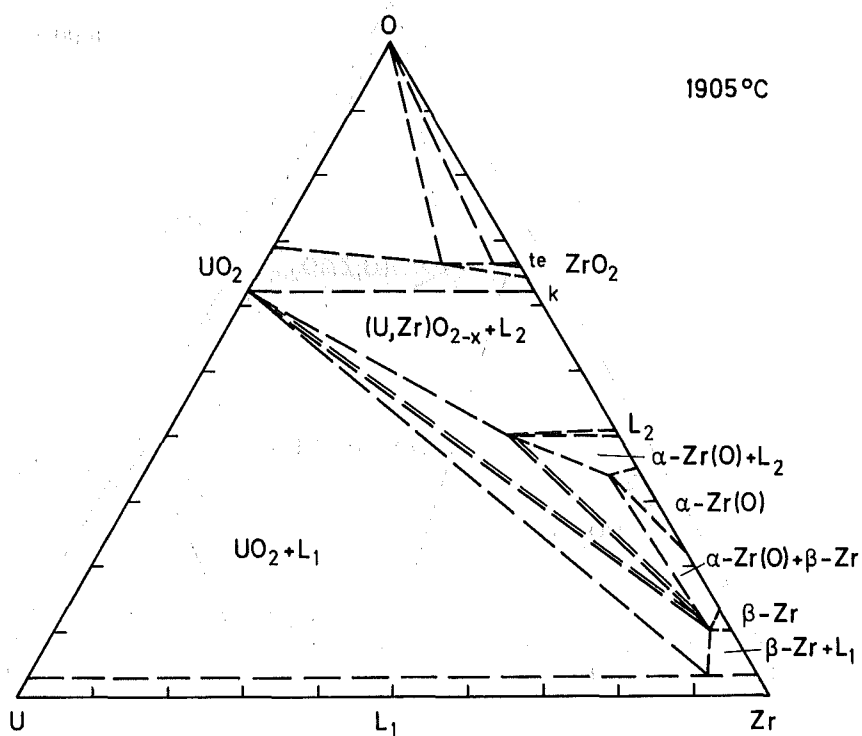


Abb. 7: Vorläufiger isothermer Schnitt des ternären Systems U-Zr-O bei 1905 °C.

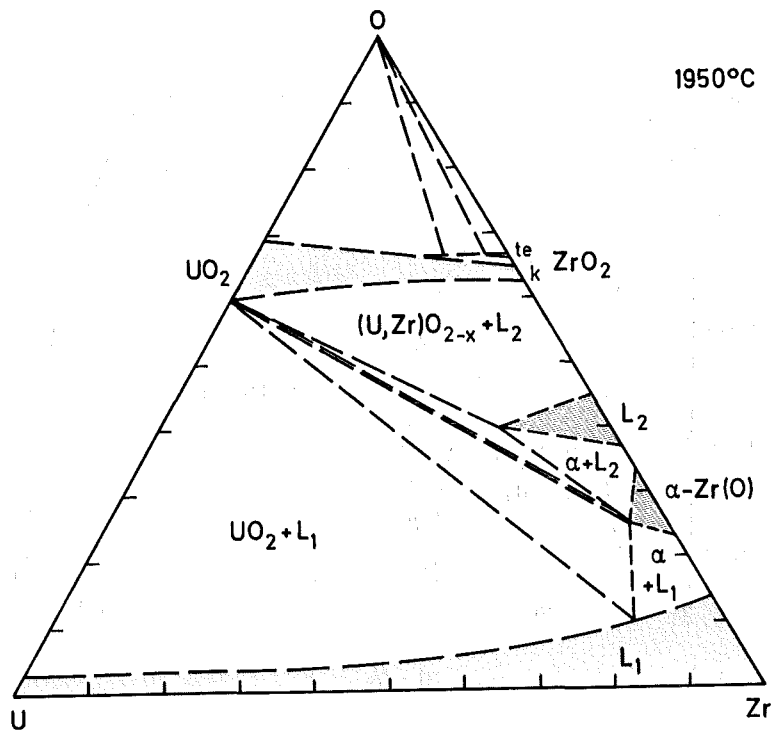


Abb. 8: Vorläufiger isothermer Schnitt des ternären Systems U-Zr-O bei 1950 °C.

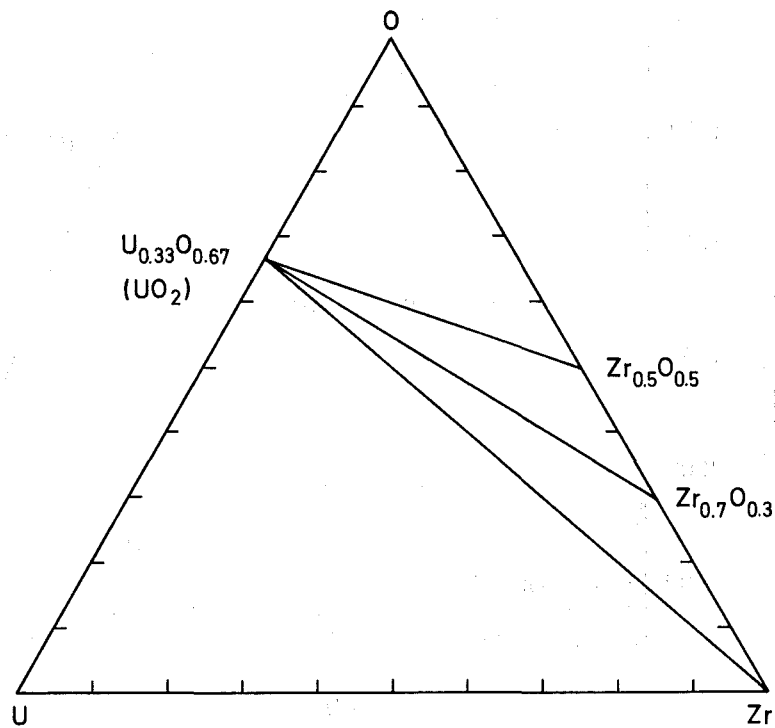


Abb. 9: Lage der untersuchten Temperatur-Konzentrationschnitte im ternären System U-Zr-O.

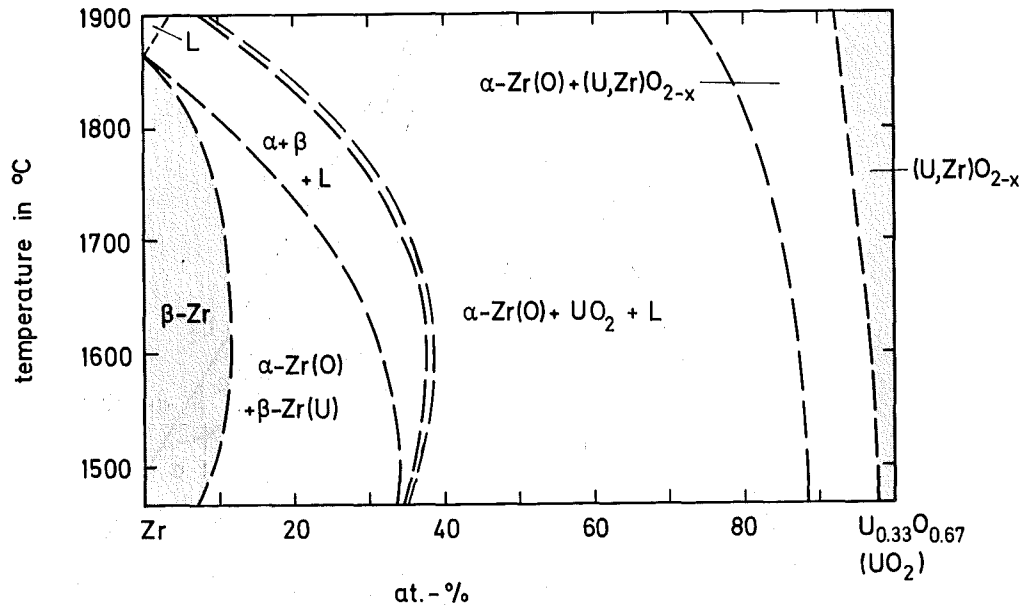


Abb. 10: Vorläufiges Temperatur-Konzentrationsdiagramm des Schnittes Zr-UO<sub>2</sub> in At.-%.

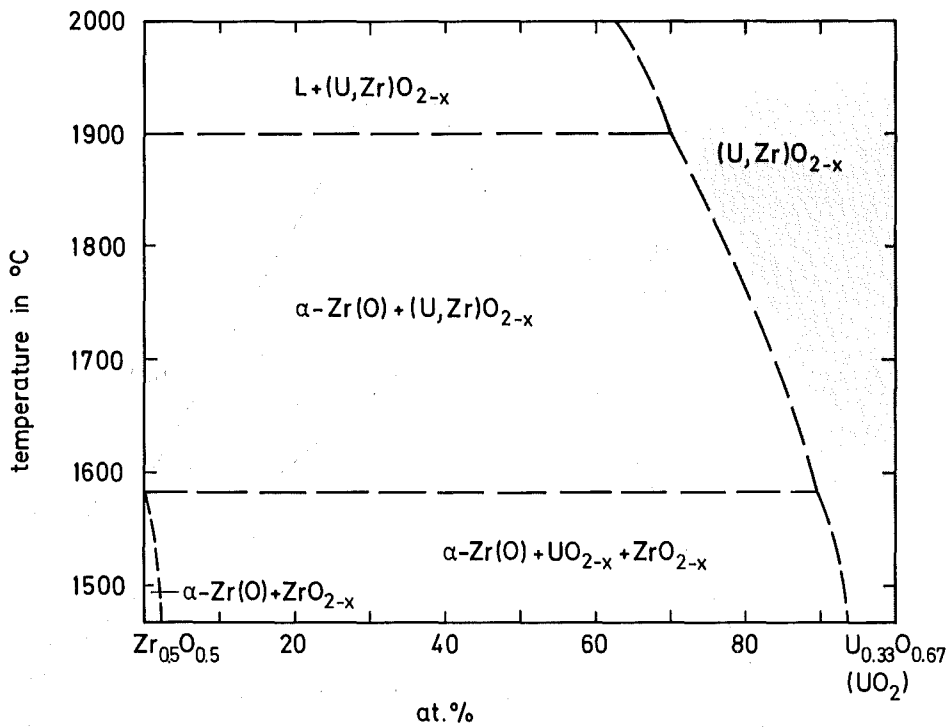


Abb. 11: Vorläufiges Temperatur-Konzentrationsdiagramm des Schnittes Zr<sub>0,5</sub>O<sub>0,5</sub>-UO<sub>2</sub> in At.-%.

Über die Wechselwirkung von Beton mit verschiedenem Zuschlag  
mit Stahlschmelze  
( V. Schauer; IMF I)

- Es wurden Vergleichsaufschmelzversuche von Stahl in Tiegeln aus normalen, silikatischen sowie hämatithaltigen Schwerbeton mittels induktiver Beheizung durchgeführt.
- Die chemischen Zusammensetzungen der verwendeten Betonsorten sind in der Tabelle I angegeben. Beim Schmelzgut hat es sich um einen Stahl mit der W.-Nr. 4301 gehandelt (Einwaage: 300 - 400 g). Die Tiegelgeometrie ist aus der Abb. 1 ersichtlich.
- Die während der Wechselwirkung Stahl/Beton entstehenden Gase wurden mittels eines Quadrupol-Massenspektrometers (Leybold-Hereaus, Q 100) kontinuierlich analysiert. Die Versuchsergebnisse sind in der Abb. 1 wiedergegeben.
- Aus der Abb. 1 ist zu ersehen, daß die Reaktionen der im Schwerbeton erhaltenen Eisenoxide mit der Stahlschmelze zur beträchtlichen Verringerung der  $H_2$ -Entwicklung im Vergleich zu normalem Beton führen, ohne diese jedoch völlig zu unterbinden. Während die Freisetzung von  $H_2O$  sehr früh einsetzt, macht sich die Freisetzung von  $CO_2$  erst zum Ende der Reaktion bemerkbar. Dies hängt offenbar mit der größeren chemischen Stabilität von Karbonaten zusammen. Die Konzentration von  $CH_4$  und höheren Kohlenwasserstoffen lag unterhalb der Nachweisgrenze des Massenspektrometers.
- Die verwendeten Betontiegel wurden nach Beenden der Wechselwirkung und Abkühlen zersägt. Ein Tiegelschnitt ist in der Abb. 2 dargestellt.

Tabelle I: Chem. Zusammensetzung von Hämatit- und Normalbeton (Gew.-%)

	$Fe_2O_3$	$SiO_2$	CaO	$Al_2O_3$	$H_2O$	$CO_2$	Rest
Hämatitbeton	84.4	4.5	2.5	1.6	1.9	0.3	4.8
Normalbeton	6.25	64.7	8.8	8.3	5.0	1.5	5.45

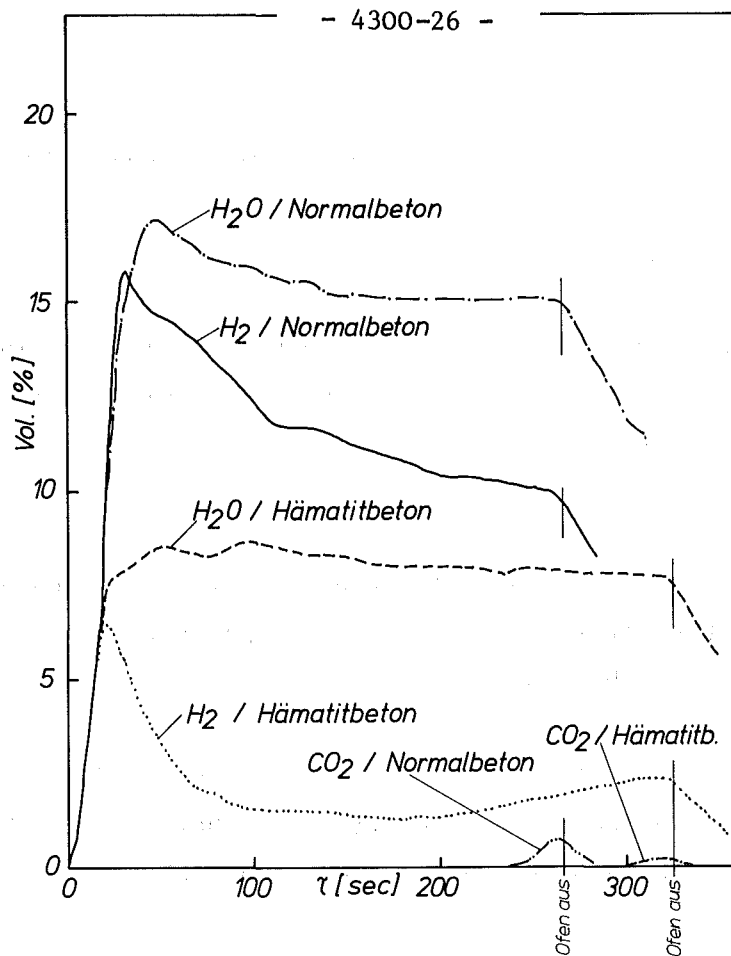


Abb. 1: Massenspektrometrische Analyse der gasförmigen Produkte der Wechselwirkung von Normal- und Hämatitbeton mit Stahlschmelze (Schmelzgut: 395 g Stahl (4301); induktive Beheizung (el. Energie 7,5 KV); dynamische N<sub>2</sub>-Atmosphäre (2 l/min)).

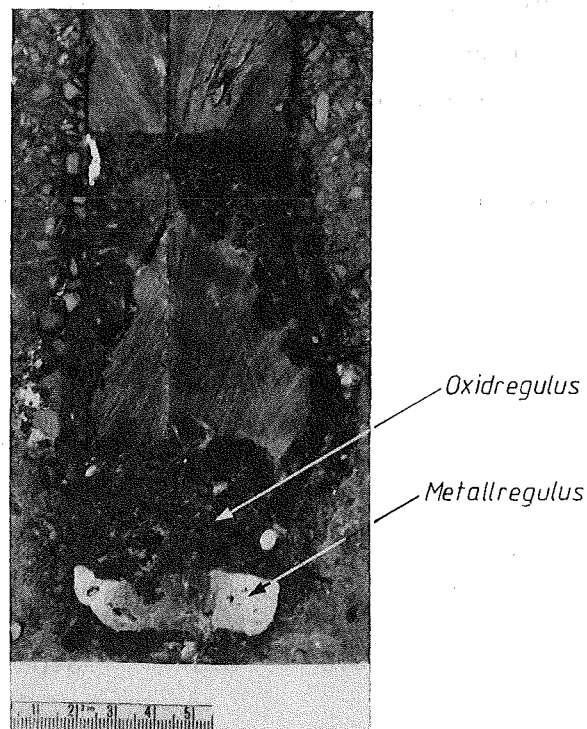


Abb. 2: Aufschmelzversuche von Stahl im Tiegel aus Hämatitbeton. Querschliff nach Versuchsende (Schmelzgut: 359 g Stahl (4301); induktive Beheizung (el. Energie: 7,5 KV); dynamische Atmosphäre (2 l/min); Versuchszeit: 312 sec.).



06.01.11/31A      Untersuchung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungs-  
PNS 4315            produkten beim Kernschmelzen

(H. Albrecht, K. Nolte, K. H. Simon, H. Wild, IRCH)

### Einleitung

Bereits im letzten PNS-Jahresbericht / 1 / wurde ein Versuch beschrieben, der die Klärung einer für das chemische Verhalten des Spaltprodukts Jod wichtigen Frage zum Ziel hatte: Kommt es während der Freisetzung von Jod und Cäsium aus dem Brennstoff durch eine gleichzeitig ablaufende Verdampfung von Silber aus den Absorberstäben zur Bildung von AgJ in der Gasphase? Aus radiologischer Sicht wäre eine in relevantem Umfang stattfindende AgJ-Bildung wünschenswert, denn AgJ ist wasserunlöslich, thermodynamisch stabil und es weist einen sehr niedrigen Dampfdruck auf. Nach dem Transport in den Sicherheitsbehälter würde es im kondensierten Zustand bleiben und dadurch in wesentlich geringerem Umfang zu den Unfallfolgen beitragen als alle anderen Jodspezies; deren potentielle Gefährlichkeit liegt nämlich darin, daß sie -wenn auch nur in geringem Umfang- in gasförmige Verbindungen übergehen und dann leichter aus dem Reaktorgebäude entweichen können als die Aerosolpartikeln.

Der oben erwähnte Versuch (S-279) hatte Folgendes gezeigt:

- a) Wegen der unterschiedlichen Flüchtigkeit von Jod und Silber besteht nur in einem begrenzten Temperaturbereich des Schmelzguts die Chance, daß sich beide Elemente gleichzeitig in der Gasphase befinden; dieser Bereich liegt etwa zwischen 1600 und 2000 °C.
- b) Eine Bildung von AgJ ist tatsächlich nachweisbar. Wie die Löslichkeitsuntersuchungen der Aerosolniederschläge zeigten, lagen im vorliegenden Fall  $25 \pm 3$  % des freigesetzten Jods als AgJ vor. Der Nachweis dieser chemischen Form wurde zusätzlich mit Hilfe der Photoelektronen-Spektroskopie (XPS) erbracht / 2 /.

Um entsprechende Aussagen nun auch für andere experimentelle Randbedingungen zu erhalten, wurde der Umfang der AgJ-Bildung in zwei weiteren Versuchen bestimmt. Diese Versuche werden nachfolgend beschrieben.

## 1. Experimentelle Randbedingungen

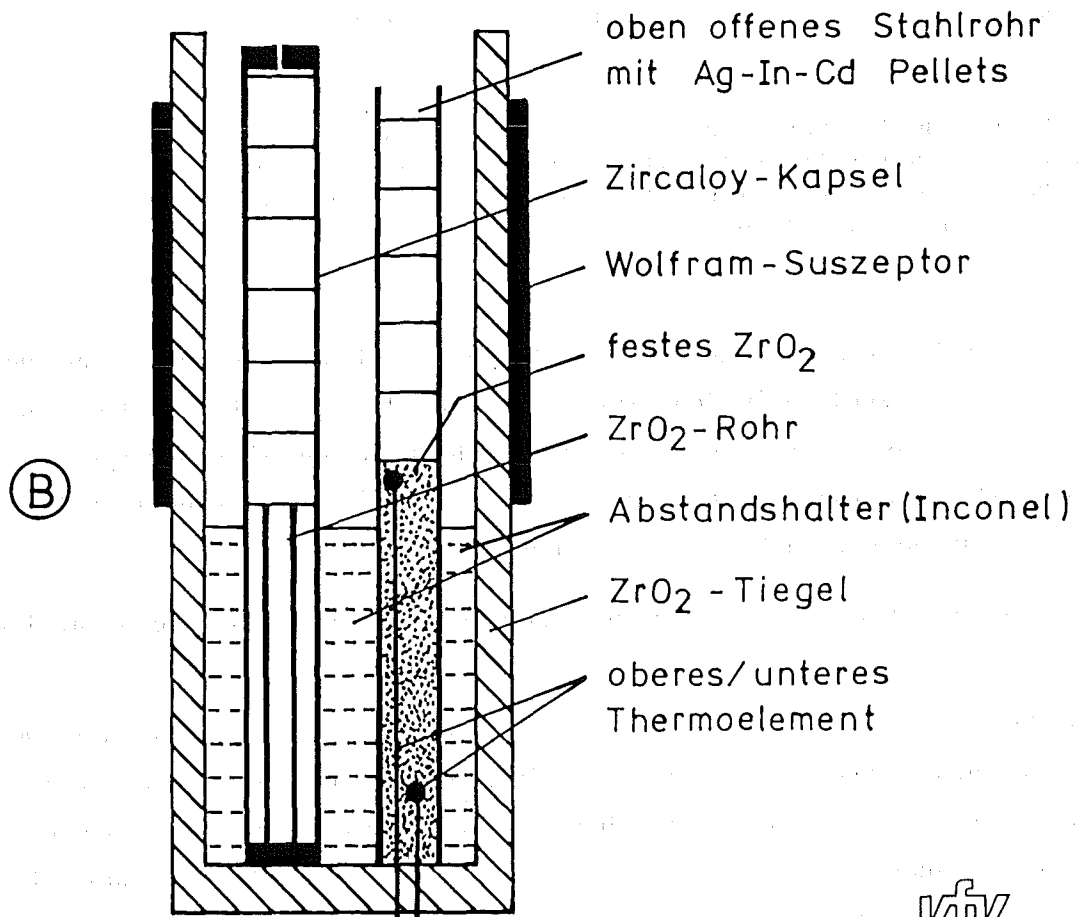
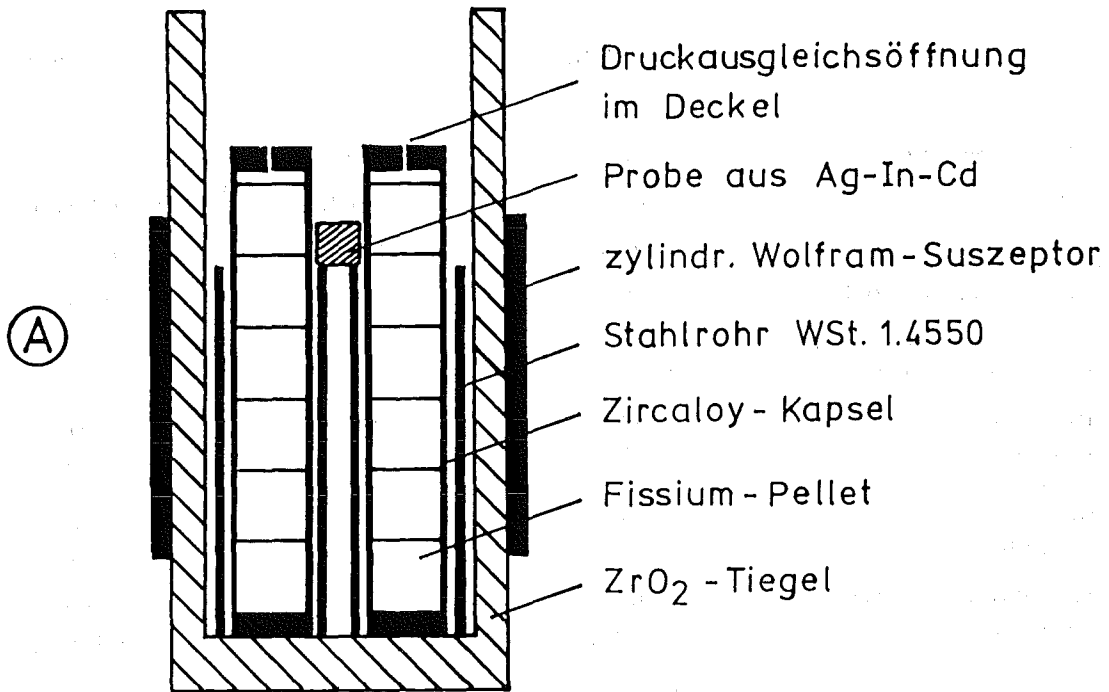
Bei einem der Versuche wurde wie bei S-279 die bisher übliche Tiegelanordnung (Abbildung 1, oben) verwendet, in dem anderen wurde ein höherer Tiegel eingesetzt, in dem das Schmelzgut im oberen Bereich angeordnet war (Abbildung 1, unten). Mit dieser veränderten Geometrie ließ sich ein realistischeres Verhalten des Absorbermaterials beim Abschmelzen erreichen: es wurde zunächst innerhalb eines Stahlrohres aufgeheizt und konnte nach dessen Durchschmelzen in den unteren weniger stark beheizten Teil des Tiegels ablaufen. Der Abstand zu den Brennstabprüflingen (jeweils 3 Stück) wurde durch ein Teilstück eines Inconel-718-Abstandshalters festgelegt. Zur Temperaturmessung dienten neben dem optischen Pyrometer, mit dem das Schmelzgut von oben anvisiert wurde, zwei Thermoelemente, welche in die  $ZrO_2$ -Masse unterhalb des Absorbermaterials eingebettet waren.

Im Falle der Versuchsanordnung A wurden außer den 3 Brennstabprüflingen von 72 mm Länge mit je 6 aktiven Fissium-Pellets noch 3 Stahlrohre und eine kleine Probe Absorbermaterial eingesetzt; letztere wurde zwischen den Brennstäben auf dem oberen Rand der Stahlrohre plaziert. Im Falle der Anordnung B hatten die Zircaloy-Rohre mit den Fissium-Pellets eine Länge von 120 mm. In ihrem unteren Teil enthielten sie jeweils ein 50 mm langes  $ZrO_2$ -Rohr zur Abstützung der Pellets. Das 4. Rohr war das schon erwähnte Stahlrohr mit einigen zylindrischen Teilstücken eines Ag-In-Cd-Absorberstabes. Das oberste dieser Teilstücke war inaktiv, während die nach unten folgenden eine integrale Aktivität von etwa 100  $\mu Ci$  aufwiesen, was zum gammaspektrometrischen Nachweis des gebildeten Silberaerosols gut ausreichte. Die entsprechenden Aktivitäten von J-126 und Cs-134 in den Fissium-Pellets lagen im Bereich von 20 bis 100  $\mu Ci$ . Weitere Angaben über die Versuchsbedingungen sind in der Tabelle 1 zusammengefaßt.

## 2. Auswertung und Ergebnisse des Versuchs S-276 zur AgJ-Bildung

Dieser Versuch diente als Vorversuch zur Erprobung des Nachweisverfahrens für AgJ auf den Aerosolfiltern und zur ersten Orientierung über den Umfang der auftretenden AgJ-Bildung. Es wurden 2 Filter ausgewählt, auf denen gut meßbare Niederschläge von J-126 und Ag-110m vorhanden waren. Die Schmelzguttemperatur während der Beaufschlagung hatte 1600 - 1750 °C betragen.

Zur Bestimmung des AgJ-Anteils wurde in 2 Waschgängen mit  $H_2O$  von 70 °C zunächst das wasserlösliche Jod (vorwiegend CsJ) von den Filtern entfernt. In 2 weiteren Waschgängen wurde das in Natriumthiosulfat ( $Na_2S_2O_3$ ) lösliche AgJ abgewaschen; anschließend wurde dieses im Filtrat bei  $pH > 3$  mit  $AgNO_3$  ausgefällt und gamma-



KfK

Abb. 1

Anordnung von Tiegel und Schmelzgut

Tabelle 1: Randbedingungen der Versuche zur AgJ-Bildung

	S - 276	S - 279	S - 303
Tiegelgeometrie	A	A	B
Atmosphäre	Wasserdampf <sup>a)</sup>	Wasserdampf <sup>a)</sup>	Wasserdampf + Ar <sup>b)</sup>
T <sub>max</sub> (°C)	1950	2050	1860
Aufheizrate (°C/min)	50	65	110
Masse der Schmelzgutkomponenten (g) :			
- Fissium <sup>c)</sup>	90	90	90
- Zircaloy	51	51	81
- Inconel-718	-	-	22
- Stahl	95	94	17
- Absorber <sup>d)</sup>	4,2	2,1	30
chem. Form von J/Cs im Fissium	HJO <sub>3</sub> Cs <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	CsJ	CsJ Cs <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>
m <sub>J</sub> : m <sub>Cs</sub>	1 : 6,8	~ 1 : 1	1 : 8,2
m <sub>J</sub> : m <sub>Ag</sub>	1 : 31	1 : 5	1 : 94

a) Durchsatz: 30 ltr Wasserdampf pro min bei 2 bar

b) Durchsatz: 28 ltr Argon + 2 ltr Wasserdampf pro min bei 2 bar

c) UO<sub>2</sub>-Pellets mit einem simulierten Abbrand von 44 GWd/t

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

spektrometrisch auf seine Anteile an J-126 und Ag-110m untersucht. Anhand der spezifischen Aktivitäten im Schmelzgut, die bei der Freisetzung erhalten blieben, ließen sich daraus die in den einzelnen Waschgängen abgelösten Massenanteile des Jods und des Silbers bestimmen. In Tabelle 2 sind die Ergebnisse für eines der beiden ausgewerteten Filter angegeben.

Die Analysen führten zu folgenden Aussagen und Hinweisen für die nachfolgenden Versuche:

a) Nach der Entfernung des wasserlöslichen Jodanteils erwiesen sich 1,190 mg des Jods und 1,006 mg des Silbers in Na<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>3</sub> als löslich. Diese Zahlenwerte stehen mit 1,183 nahezu im gleichen stöchiometrischen Verhältnis wie die beiden Bestandteile von AgJ (1,176). Daraus ist zu schließen, daß auf diesem Filter ca. 76 % des Jods in Form von AgJ vorlag. Der entsprechende Wert für das andere untersuchte Filter betrug 77 %.

Tabelle 2: Aktivität und Masse von Jod und Silber bei den einzelnen Schritten der AgJ-Bestimmung

Filtrat		Jod		Silber	
		( $\mu\text{Ci}$ )	(mg)	( $\mu\text{Ci}$ )	(mg)
H <sub>2</sub> O	(1)	0,045	0,263	0,0026	0,407
H <sub>2</sub> O	(2)	0,018	0,106	0,0019	0,297
Na <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	(1)	0,126	0,743	0,0041	0,634
Na <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	(2)	0,076	0,447	0,0024	0,372
Summe		0,265	1,559	0,0110	1,710
Filter zu Beginn		0,317	1,864	0,0823	12,844
Filter am Ende		0,052	0,305	0,0713	11,134

- b) Die gleichzeitig mit dem Jod auf dem Filter vorhandene Cäsiummasse war mit 27,92 mg etwa 15 mal höher, die gleichzeitig vorhandene Silbermasse (12,84 mg) aber nur 7 mal höher als die Jodmasse (1,864 mg). Trotz des höheren Angebotes an Cäsium war also die Bildungsrate für AgJ höher als die von CsJ.
- c) Bei der Analyse der Jod- und Silberniederschläge auf den anderen Filtern (insgesamt 22) ergab sich, daß ein Massenverhältnis  $m_{\text{Ag}} : m_{\text{J}} > 1$  erst erreicht wurde, als bereits 47 % des Jods freigesetzt war (vgl. auch Abb.10 in /1/, in der der Freisetzungsverlauf von J und Ag von Versuch S-279 dargestellt ist). Bis zu diesem Zeitpunkt wird die AgJ-Bildung natürlich gering sein, zumal wegen der parallel verlaufenden Freisetzung von J und Cs immer genügend Cs zur Bindung des Jods zur Verfügung steht.
- d) Die Auswertung der Löslichkeitsversuche hat ferner gezeigt, daß man zur vollständigeren Ablösung des wasserlöslichen Jodanteils von den Filtern einen 3. Waschgang mit H<sub>2</sub>O und zur genaueren Bilanzierung des AgJ auch einen 3. Waschgang mit Na<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>3</sub> durchführen sollte. Außerdem erwies sich die integrale Ag-110m Aktivität von 21,6  $\mu\text{Ci}$  im Absorbermaterial als etwas zu gering, denn dadurch ergaben sich in einzelnen Filtraten Aktivitäten von unter 3 nCi, was zu Gammameßzeiten von mehreren Stunden führte. Die Berücksichtigung dieser Hinweise führte in den nachfolgenden Versuchen zu einer Optimierung der Randbedingungen und zur Verbesserung der Genauigkeit vieler Einzelergebnisse.

### 3. Ablauf und Ergebnisse des Versuchs S - 303

Dieser Versuch wurde mit der Tiegelanordnung B durchgeführt, vgl. Abb.1. Über den Verlauf der Schmelzguttemperatur, die im oberen Tiegelbereich mit dem Pyrometer, im mittleren und unteren Bereich dagegen mit Thermoelementen gemessen wurde (vgl. Abbildung 2, unten), läßt sich Folgendes aussagen:

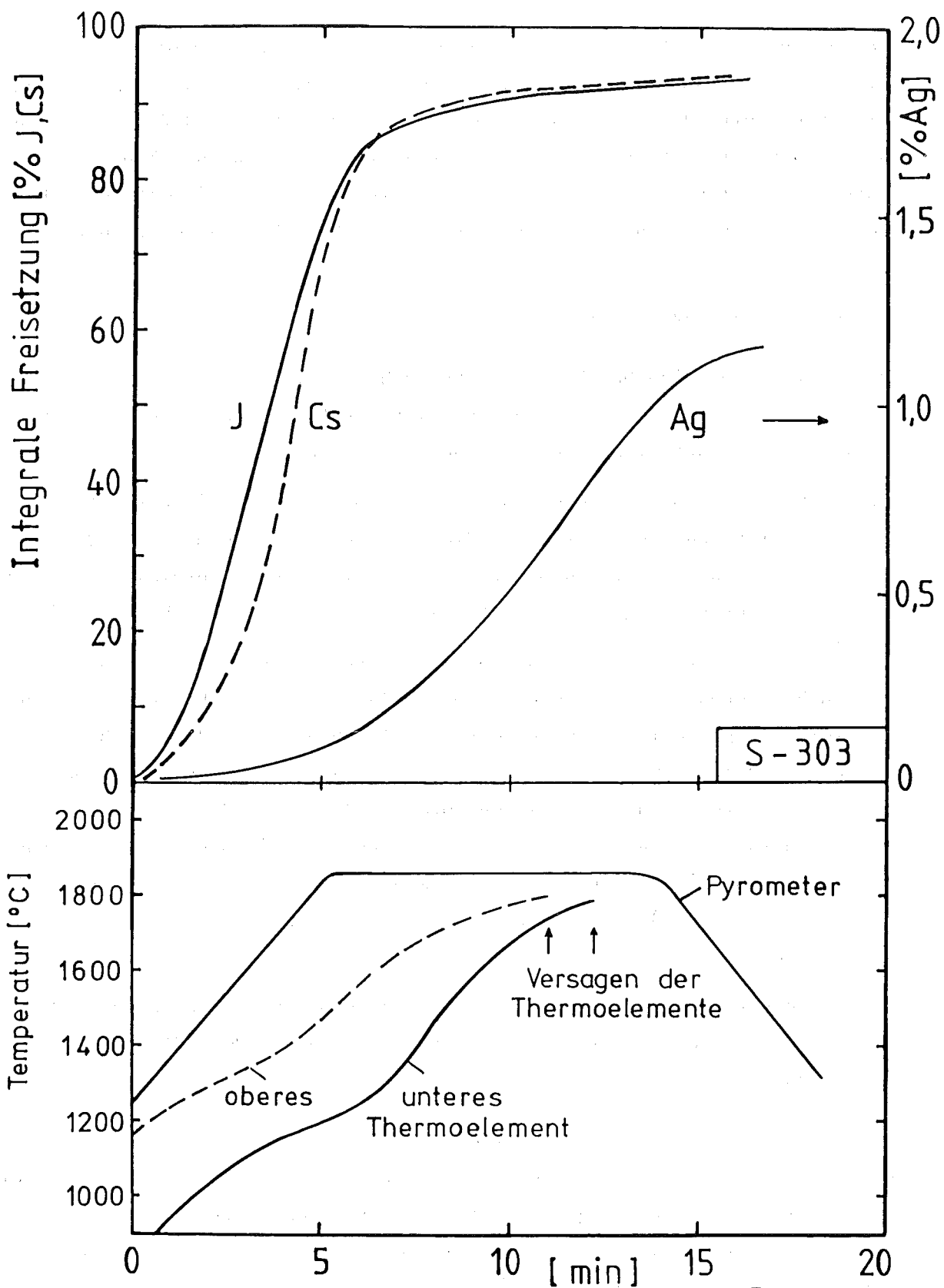
Bis 1200 °C bestand zwischen der Anzeige des Pyrometers und des oberen Thermoelements eine Differenz von etwa 80 °C. Diese Differenz stieg im Verlauf der weiteren Aufheizung zunächst auf über 300 °C an, nahm zum Zeitpunkt  $t = 11$  min aber wieder auf weniger als 100 °C ab. Im Zeitbereich  $t = 0 \dots 10$  min wurden die Brennstäbe offenbar stärker beheizt als das Stahlrohr mit dem Absorbiermaterial, weil zusätzlich zur Induktionsheizung auch die exotherme Zircaloy/Dampf-Reaktion zu einer Wärmeentbindung führte. Bei 1800 °C kam es zum Versagen der Thermoelemente (PtRh - Pt), so daß bis zum Versuchsende nur noch die Temperaturanzeige des Pyrometers zur Verfügung stand. Trotzdem wird aufgrund der Temperaturkurve des oberen Thermoelements verständlich, daß die Freisetzung des Silbers gegenüber derjenigen des Jods und des Cäsiums stark verzögert ablaufen mußte, vgl. Abbildung 2, oberer Teil.

Wegen des relativ hohen Anteils an Silber im Schmelzgut wurde jedoch ab etwa  $t = 6$  min neben dem Restanteil an Jod schon so viel Silber freigesetzt, daß eine Untersuchung der Aerosolniederschläge hinsichtlich einer AgJ-Bildung in Frage kam. Dazu wurden die beaufschlagten Filter wieder einer Löslichkeitsbestimmung mit  $H_2O$  und  $Na_2S_2O_3$  unterzogen. Die Befunde sind in Tabelle 3 zusammengestellt.

Tabelle 3: Ergebnisse der Löslichkeitsuntersuchungen einiger Filterniederschläge von Versuch S - 303

	Filter 1	Filter 2	Filter 3
Probenahme von ... bis (min)	6,2 - 7,9	7,9 - 9,6	9,6 - 11,3
J - Niederschlag <sup>a)</sup>	26,6	17,3	9,4
Ag - Niederschlag	225	260	283
in $H_2O$ gelöstes J	18,1	10,2	6,9
in $Na_2S_2O_3$ gelöstes J	7,1	5,6	2,7
in $H_2O$ gelöstes Ag	-	-	-
in $Na_2S_2O_3$ gelöstes Ag	6,2	5,6	3,5

a) alle Angaben für die Niederschläge und die gelösten Anteile in  $\mu\text{Mol}$



Freisetzung von J, Cs und Ag, Tiegelsystem B

Es zeigte sich, daß auf den untersuchten Filtern etwa  $25 \pm 10$  % des Jods in Form von AgJ vorlag. Die dabei angegebene Unsicherheit von  $\pm 10$  % ergibt sich einerseits durch die Mittelung der Aussagen für die 3 Filter und andererseits durch die Meßfehler bei der quantitativen Analyse der Einzelproben. Die integral gebildete Masse an AgJ lag schätzungsweise bei  $30 \pm 15$   $\mu\text{Mol}$ . Bezogen auf die Gesamtmasse des freigesetzten Jods (1912  $\mu\text{Mol}$ ) sind das nur knapp 2 %.

#### 4. Zusammenfassung und Diskussion

Die hier ausführlich beschriebenen Versuche S-276 und S-303 bestätigen im wesentlichen die schon früher dargestellten Befunde von Versuch S-279. Zusammenfassend läßt sich daher Folgendes aussagen:

- a) Am Auftreten von AgJ im Kernschmelzaerosol gibt es keinen Zweifel; dies wurde nicht nur indirekt durch die Löslichkeitsversuche mit  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$  nachgewiesen, sondern auch durch eine Analyse der Augerelektronen-Spektren, die man durch Röntgenanregung (XPS) der Aerosolproben erhielt / 2 /.
- b) Für den integralen Anteil des als AgJ auftretenden Jods lassen sich aus den Versuchen Werte im Bereich von 2 - 33 % ableiten. Die große Schwankungsbreite hängt damit zusammen, daß die gleichzeitig in der Gasphase vorhandenen Konzentrationen von Jod und Silber stark variieren können. Sie hängen z.B. von der vorgegebenen chemischen Form des Jods, vom Verhältnis der Ausgangskonzentrationen und von der Temperaturverteilung im Schmelzgut ab. Auch die Aufheizgeschwindigkeit und die Zusammensetzung der Atmosphäre (Zircaloy-Oxidation, Ag-Bindung an metallisches Zr / 1,3 /) können eine wichtige Rolle spielen.
- c) In den Versuchsphasen, in denen die Massenkonzentration an Ag in der Gasphase höher war als die Jodkonzentration (ab etwa 1800 °C), reagierten zwischen 15 und 80 % des Jods zu AgJ.

Eine quantitative Übertragung der ermittelten AgJ-Anteile auf Reaktorbedingungen ist jedoch schon deshalb nicht möglich, weil die im Reaktor zu erwartende Temperaturverteilung sowie die geometrie- und zeitabhängige Entstehung von Schmelz- und Erstarrungsphasen im Schmelztiegel der SASCHA-Anlage nicht nachgebildet werden können. Es gibt aber einige Aspekte, die bei einem Kernschmelzenunfall eine stärkere AgJ-Bildung erwarten lassen als bei den SASCHA-Versuchen:



- Innerhalb des Kernbereiches steht für die Freisetzungserzeugnisse ein wesentlich größeres Volumen zur Verfügung, in dem die Temperaturen für eine Gasphasenreaktion hoch genug sind.
- Die Temperaturdifferenzen innerhalb des RDB sind voraussichtlich größer als innerhalb des SASCHA-Tiegels; daher kann in stärkerem Umfang eine gleichzeitige Verdampfung von Jod aus den kühleren Randzonen und von Silber aus dem heißen Zentrum stattfinden.
- Die Verwendung des synthetischen Brennstoffs Fissium (ungesintert und mit geringerer Dichte als echter Brennstoff) bringt es mit sich, daß die Freisetzung von Jod und Cäsium bei etwas niedrigeren Temperaturen erfolgt als im Realfall, so daß auch insofern bei den SASCHA-Versuchen eine geringere Überlappung der Freisetzungskurven von Jod und Silber auftrat.
- Ein sicher nicht zu vernachlässigender Jodanteil gelangt dadurch ins Restwasser, daß nach dem Abschmelzen bzw. Abplatzen der oxidierten Brennstabhüllen Pellets oder Pelletbruchstücke ins Wasser fallen und dort ihren Restgehalt an Jod durch Auslaugung abgeben. (Als realistisches Beispiel für die Anfangsphase einer Kerndesintegration mit Schüttbett-Bildung ist hier der TMI-Störfall zu nennen.) Das Restwasser ist nun in der Lage, den Hauptanteil des darin befindlichen Jods bis zu seiner vollständigen Verdampfung zurückzuhalten; das so verzögert freigesetzte Jod trifft dann auf jeden Fall mit einem großen Überschuß an gleichzeitig verdampfendem Silber zusammen.
- Zu einer Verzögerung der Jodfreisetzung aus dem Primärkreis kommt es besonders beim Kernschmelzen unter hohem Primärkreis-Innendruck. Da hierbei nur eine geringe Dampfabströmung durch ein kleines Leck stattfindet, werden die freigesetzten Spaltprodukte und auch die verdampften Strukturmaterialien bis zum RDB-Versagen weitgehend im Primärkreis zurückgehalten / 4 /. Als Folge davon nimmt die Wahrscheinlichkeit für eine Gasphasenreaktion zwischen Jod und Silber natürlich wesentlich zu.

Aufgrund dieser Argumente ist es denkbar, daß 20 - 50 % des Jods in der Gasphase zu AgJ reagieren. Eine realistische Abschätzung ist jedoch nur möglich, wenn die Temperaturverteilung im Kern und die einzelnen Phasen der Kernzerstörung detailliert analysiert werden.

Bemerkung zur Beendigung des SASCHA-Programms

Im Juni 1984 wurden die Experimente an der SASCHA-Anlage beendet. Ein Überblick über die wichtigsten Ergebnisse wurde auf der Snowbird-Konferenz in Utah / 3 / vorgetragen. Inzwischen ist auch eine Darstellung über die durchgeführten Aerosoluntersuchungen erschienen / 5 /. Weitere zusammenfassende Berichte sind in Vorbereitung.

Literatur

- / 1 / H. Albrecht et al.: PNS-Jahresbericht 1983, KfK 3450 (1984) p4300-17 ff
- / 2 / H. Moers et al.: XPS Studies of Iodine Released in Core Melting Experiments, Surface and Interface Analysis, Vol.7, No.1(1985) p 22-28
- / 3 / H. Albrecht, H. Wild: Review of the Main Results of the SASCHA Program on Fission Product Release under Core Melting Conditions, Int. Meeting on Fission Product Behavior and Source Term Research, Snowbird, Utah, July 15 - 19, 1984
- / 4 / H. Hassmann: Abschlußbericht des Förderungsvorhabens BMI SR 300 (1984)
- / 5 / H. Albrecht, H. Wild: Untersuchung der in der Kernschmelzanlage SASCHA erzeugten Aerosole, KfK 3856 (Feb. 1985)

06.01.12            Untersuchungen zur Wechselwirkung von Stahlschmelzen in Beton

06.01.12/30A        Ausbreitung von Stahlschmelzen in Beton

PNS 4325            (S. Hagen, A. Grünhagen, H. Malauschek, K.P. Wallenfels; IT)

### Einleitung

International werden mehrere Codes für die Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Kernschmelze und Beton entwickelt: WECHSEL /1/ bei KfK, KAVERN /2/ bei KWU und CORCORN /3/ bei Sandia, USA. Für die Bereitstellung experimentell abgesicherter Ausgangsdaten und für die Überprüfung dieser Rechenprogramme werden Versuche zum Verhalten von Stahlschmelzen in Beton durchgeführt.

Mit der Anlage BETA werden Stahlschmelzen von ca. 300 kg durch induktive Heizung für längere Zeit auf Temperaturen von bis 2000 °C gehalten. Bei dieser Anlage befindet sich die Schmelze in einem Tiegel aus dem zu untersuchenden Beton. Im Tiegelboden und in der Tiegelwandung sind 110 Mantelthermoelemente (Inconel-Mantel, NiCrNi-Meßleitung) positioniert. Die Thermoelemente liefern die zeitliche Temperaturentwicklung an den Meßpositionen. Aus dem Versagen der TE bei Auftreffen der Schmelze kann auch die Schmelzfrontausbreitung bestimmt werden.

Nach dem Ausbau aus der BETA-Anlage wurden die Tiegel mit einem diamant-besetzten Sägeblatt in Längsrichtung geschnitten. Der Schnitt erfolgte in der Meßebene der Thermoelemente. Die Photographien dieser Tiegelschnitte sind wiedergegeben. Parallel dazu sind die Meßkonturen der erstarrten Schmelze dargestellt. Zum Vergleich ist die Form der ursprünglichen Kavernenwandung angegeben. Damit ist das Eindringen der Schmelze gut zu erkennen. Die angegebenen Meßzahlen stellen den Abstand der Oberfläche der Schmelze von der ursprünglichen Kavernenwand und damit die Eindringtiefe dar.

Bis jetzt wurden in der BETA-Anlage 9 Versuche durchgeführt: 3 dieser Experimente dienten zur Erprobung der Anlage. Sie sind im Folgenden mit V 0.1 bis V 0.3 bezeichnet. Die weiteren 6 Experimente: V 1.1 bis V 1.6 wurden im Rahmen der Versuchsmatrix durchgeführt.

Im folgenden sind für die 6 ersten Experimente je eine Photographie des Tiegelquerschnitts und die zugehörige Schmelzfrontkontur wiedergegeben. Aus den Versagenszeiten der Thermoelemente im Boden in 35 mm Abstand von der Achse wurde die axiale Eindringgeschwindigkeit bestimmt. Die Versagenszeiten in der Wandung in 46 mm über dem Kavernenboden geben Auskunft über die radiale Eindringgeschwindigkeit. Repräsentativ für die Temperaturmessungen sind für die Versuche V 1.1 bis V 1.3 die Zeiten angegeben, nach denen an der Meßposition eine Temperatur von 100 °C erreicht wird.

#### Versuch V 0.1

Beim Versuch V 0.1 sollte im ersten Versuch das allgemeine Verhalten der Anlage und insbesondere der Eingießvorrichtung der Meßsysteme geprüft werden. Eine induktive Heizung der Schmelze fand praktisch nicht statt. Es wurden nach der Zündung in den getrennten Abgußbehältern 300 kg Stahlschmelze in den Tiegel eingegossen. Man erkennt in Abbildung 3 eine in axialer und radialer Richtung nahezu gleiche Eindringtiefe von ca. 40 mm. Die Eindringgeschwindigkeit auf den ersten 20 mm beträgt ca. 0,3 mm/sec (Abb. 1).

#### Versuch V 0.2

Beim Versuch V 0.2 wurde die Einspeisung der induktiven Heizung erprobt. Eine Stahlschmelze von 300 kg wurde mit 400-200 kW für gut 30 min induktiv geheizt. Wir sehen jetzt hier ein deutlich bevorzugtes Eindringen der Schmelze in axialer Richtung. Während in radialer Richtung die Schmelze weniger als 100 mm eindringt, erfolgt in axialer Richtung ein Vorschreiten der Schmelze um mehr als 400 mm. Während in den ersten 300 sec die Schmelzfrontgeschwindigkeiten praktisch gleich sind, kommt danach das Eindringen in radialer praktisch zum Erliegen. In axialer Richtung beträgt die Eindringgeschwindigkeit ca. 0,2 mm/sec.

### Versuch V 0.3

Beim Versuch V 0.3 wurden 300 kg Stahl und 150 kg  $Al_2O_3$  in den Tiegel eingegossen. Die Sollheizleistung betrug 1700 kW. Die induktive Heizung wurde für ca. 750 sec angewandt. Nach ca. 200 sec begann die eingespeiste Leistung trotz konstanter Spannung deutlich abzunehmen. Die Abnahme wurde durch die Dispersion von metallischer Schmelze in die Oxidschmelze hervorgerufen. Die Photographie des Tiegelquerschnitts und die zugehörige Meßkontur ist in Abbildung 5 wiedergegeben. Auch bei diesem Versuch zeigt sich deutlich das bevorzugte Eindringen der Schmelze in axialer Richtung. Durch die starke Dispersion der metallischen Schmelze in Form feiner Tröpfchen hat bei einer Eindringtiefe von ca. 300 mm die metallische Schmelze so stark abgenommen, daß sie sich in 2 kleine Klumpen aufspaltet. Diese dringen noch bis zu einer Tiefe von 550 mm in den Beton ein. Dabei bleibt im Achsenbereich ein Betonkern stehen.

Der Querschnitt ist in Übereinstimmung mit dem Versagen der Thermoelemente. In Abbildung 14 sind die Versagenszeiten der Thermoelemente wiedergegeben. Die Thermoelemente versagen im Boden bis zu einem Abstand von 250 mm vom Boden der Kaverne. Die Thermoelemente sind in 35 mm Abstand von der Achse positioniert und befinden sich damit im nicht aufgeschmolzenen Betonkern.

### Versuch V 1.1

Der Versuch V 1.1 sollte einen möglichen Einfluß von Lorentzkräften untersuchen, da in den Versuchen V 0.2 und V 0.3 das bevorzugte Eindringen der Schmelze in radialer Richtung beobachtet worden war. Die Heizung erfolgte bei diesem Versuch gepulst. In einem Zeitraum von 3000 sec wurden 13 Leistungsimpulse von ca. 1 MW für die induktive Heizung aufgewandt. Durch einen Fehler in der Wägeautomatik wurden nur ca. 20 kg Stahl in den Tiegel eingegossen.

Die Photographie und die Meßkontur der erstarrten Schmelze ist in Abbildung 6 wiedergegeben. Durch die geringe Schmelzmenge hat sich die Stahlschmelze nach einem gleichmäßigen Eindringen von ca. 50 mm in 2 Klumpen aufgeteilt, die im Randbereich der ursprünglichen Kaverne getrennt in den Beton eindringen. In der Mitte blieb ein Betonkern stehen.

Die maximale Eindringtiefe betrug über 550 mm.

Die Abbildung 12 gibt die Versagenszeiten im Boden des Tiegels V 1.1 wieder. Die Positionen der Meßlinie im Tiegelboden liegt im Bereich des stehengebliebenen Kerns. Man erkennt, daß durch die eindringende Schmelze zunächst nur die Thermoelemente bis zu einer Tiefe von 50 mm zerstört werden. Danach werden die Thermoelemente in 100-400 mm Abstand alle nahezu gleichzeitig 1800-1900 sec nach Zündung der Schmelze zerstört. Vermutlich werden zu diesem Zeitpunkt die dicht beieinander liegenden Thermoelementkabel von der vordringenden Schmelze erreicht. Man sieht in Abbildung 6, daß der linke Schmelzkanal sich mit dem rechten wieder vereinigt. Die Thermoelemente für die Messung in 35 mm von der Achse, deren Ergebnisse in Abbildung 12 dargestellt sind, laufen parallel zur Achse nach unten. Sie können überleben so lange die Schmelze in den zwei Kanälen in den Boden eindringt. Die Achse liegt in der Abbildung 6 in 540 mm von der linken Tiegelkante. Die Thermoelemente liegen 35 mm links von der Achse (die Abb. 2 ist seitenvertauscht gegen die Tiegelphotographie und Meßkontur). Bis ca. 300 mm Eindringtiefe hat der linke Kanal nach Innen sich so erweitert, daß die Thermoelementleitungen von der Schmelze erreicht und damit abgeschmolzen werden.

In Abbildung 18 sind die Zeiten im nahen Bereich der Schmelze aufgetragen, nach denen eine Temperatur von  $100^{\circ}\text{C}$  erreicht wird. Man sieht, daß die Temperatur nach dem Stillstand der Schmelzfrontausbreitung sich nur noch sehr langsam fortpflanzt.

#### Versuch V 1.2

Der Versuch V 1.2 war eine Wiederholung von V 1.1. Er sollte einen möglichen Einfluß der Lorentzkräfte untersuchen. Die Heizung erfolgte bei diesem Versuch gepulst, um zwischen den beheizten Phasen feldfreie Zeiten zu haben. Es wurden 200 kg Stahl und 150 kg  $\text{Al}_2\text{O}_3$  in den Tiegel eingegossen.

In einem Zeitraum von 2100 sec wurden 10 Leistungsimpulse von ca. 1 MW für die induktive Heizung aufgewandt.

Die Photographie und die Meßkontur der erstarrten Schmelze ist in Abb. 7 wiedergegeben. Der Vergleich mit dem Versuch V 0.2 zeigt, daß ein Einfluß der Lorentzkräfte auf die Schmelzfrontausbreitung nicht festgestellt werden konnte. Bis 300 mm Eindringtiefe haben wir ein gleichmäßiges Eindringen der Schmelze. Danach sammelt sich die Schmelze auf der linken Seite. Dort ist die Schmelze gut 600 mm in den Boden eingedrungen.

Die Kontur zeigt auch bei diesem Versuch das deutlich bevorzugte Eindringen der Schmelze in den Boden des Tiegels im Vergleich zur Wandung. Die Eindringgeschwindigkeiten im Boden und in der Wandung sind in Abb. 13 wiedergegeben. Die gestrichelte Linie parallel zur Zeit-Achse gibt die Lage der Leistungspulse wieder. In Übereinstimmung zum Tiegelquerschnitt zeigen auch die versagenden Thermoelemente ein deutlich tieferes Eindringen der Schmelze in den Boden. In den ersten 100 mm sind die Thermoelemente dichter positioniert. In diesem Bereich kann man das schnellere Eindringen während der Heizphase erkennen. Über den gesamten Eindringbereich ergibt sich eine mittlere Eindringgeschwindigkeit von ca. 0,25 mm/sec.

Die Abb. 19 gibt die Zeiten wieder nach denen an der Meßposition eine Temperatur von 100 °C erreicht wird. Die Meßwerte zeigen den langsamen Temperatúrausgleich nach Stillstand der Schmelze. Am Rand und am Boden wird eine Temperatur von 100 °C erst nach ca. 10 Stunden erreicht.

### Versuch V 1.3

Der Versuch V 1.3 ist ein Experiment mit mittlerer Leistung bei dem der Einfluß von oxidischer Schmelze näher untersucht werden soll, die zusätzlich am Anfang mit der metallischen Schmelze eingefüllt wurde. Es wurden 300 kg Stahl und 150 kg  $Al_2O_3$  und  $SiO_2$  in den Tiegel eingeschüttet. Die Schmelze wurde mit anfänglich 1 MW beheizt. Die Induktionsspannung wurde konstant gehalten. Die metallische Schmelze befindet sich zu Beginn des Versuchs am Boden des Tiegels. Durch die starke Gaserzeugung wird die metallische Schmelze in die oxidische Schmelze dispergiert.

Da das Magnetfeld an den kleinen Tropfen praktisch nicht ankoppelt, sinkt die induktive Leistung ab. 5 bis 6 min nach Versuchsbeginn muß die metallische Schmelze nahezu vollkommen in oxidische Schmelze dispergiert sein, da zu dieser Zeit die induzierte Leistung auf ca. 30% abgesunken war.

Die Photographie und die Meßkontur der erstarrten Schmelze ist in Abb. 8 wiedergegeben. Bis gut 250 mm ist die Schmelze nahezu gleichmäßig eindringen. Danach sammelt sich der nur geringe Rest auf der linken Seite um dort noch tiefer einzudringen.

Das gleiche Verhalten ergibt sich aus den Versagenszeiten der Thermolemente. Dieses Versagen bis zu einem Abstand von 250 mm vom Kavernenboden. Die Thermolemente liegen bis 35 mm Abstand von der Achse und in der Darstellung der Abbildung 8 links von der Achse. Die axiale Eindringgeschwindigkeit beträgt ca. 0,75 mm/sec. Ab 150 mm Tiefe nimmt sie auf ca. 0,2 mm/sec ab. Die Abnahme der axialen Eindringgeschwindigkeit ist durch die Abnahme der eingespeisten Leistung bewirkt. Sie wird durch die oben erwähnte Dispersion der metallischen Partikel in der oxidischen Schmelze bedingt. Die radiale Eindringgeschwindigkeit beträgt 0,17 mm/sec. Die Schmelzfront kommt in radialer Richtung deutlich früher zum Stehen.

Die Abb. 20 gibt in querschnittsmäßiger Darstellung die Leistung wieder, nach denen eine Temperatur von 100 °C erreicht wird. Die Meßwerte zeigen wie üblich das langsame Vordringen der Temperaturfront, wenn die Schmelzfront zum Stehen gekommen ist. In der äußeren Tiegelwandung wird eine Temperatur von 100 °C erst nach 40 000 sec erreicht.

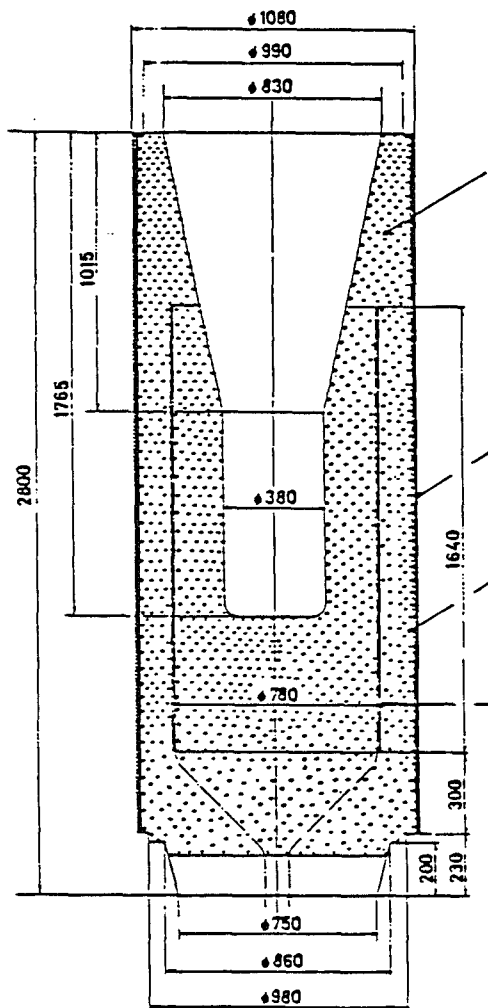
#### Zusammenfassung

Aus den Versagenszeiten der Thermolemente und den Tiegelschnittauswertungen ergab sich eine deutlich bevorzugte Schmelzfrontausbreitung in axialer Richtung. In radialer Richtung ist die Ausbreitung auf wenige Zentimeter begrenzt und erfolgt nur zu Beginn der Schmelzeinwirkung. In axialer Richtung ergibt sich bei konstanter Leistungszufuhr dagegen eine nahezu konstante Schmelzfrontgeschwindigkeit (0,18 mm/sec bei ca. 300 kW; 1 mm/sec bei 1700 kW). Versuche mit gepulster Heizung bestätigen, daß



die magnetischen Lorentzkräfte keinen Einfluß auf die Form der Schmelzfront haben.

Die Tiegelschnitte zeigten, daß bei hoher Leistungseinspeisung, durch die starke Gasfreisetzung, die metallische Phase in feinen Tropfen in die oxidische Phase dispergiert. Bei den Vorversuchen ohne zusätzliche Heizung, hatte sich eine deutliche Trennung zwischen metallischer und oxidischer Phase ergeben.



**Glasgittergeweberohr:**  
 Maschenweite 20 x 20 mm  
 3 Lagen eingebettet (Träger für  
 30 Lichtleiterschleifen der  
 Tegelbruchüberwachung)

Abb. 06.01.12-1  
 Positionierung der Lichtleiter im Betontiegel

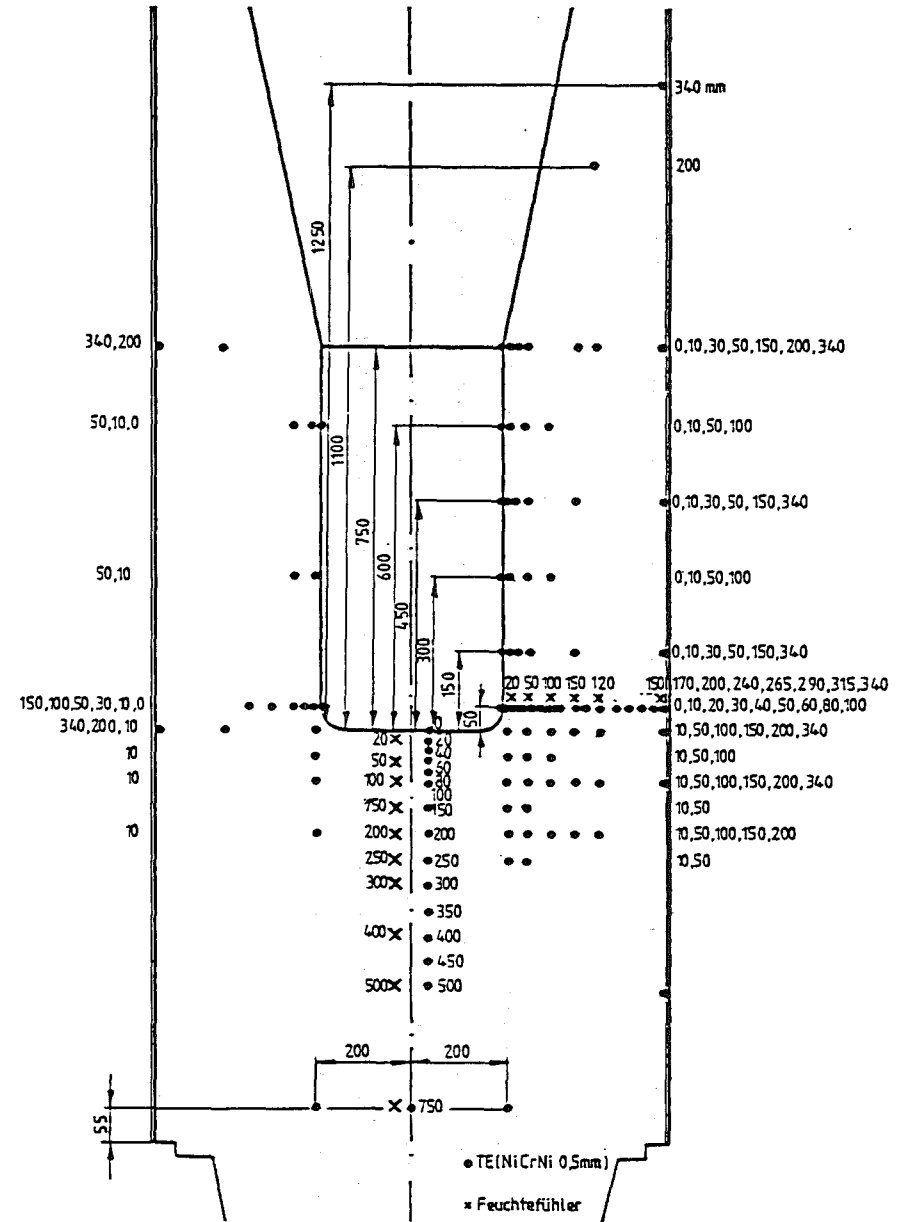
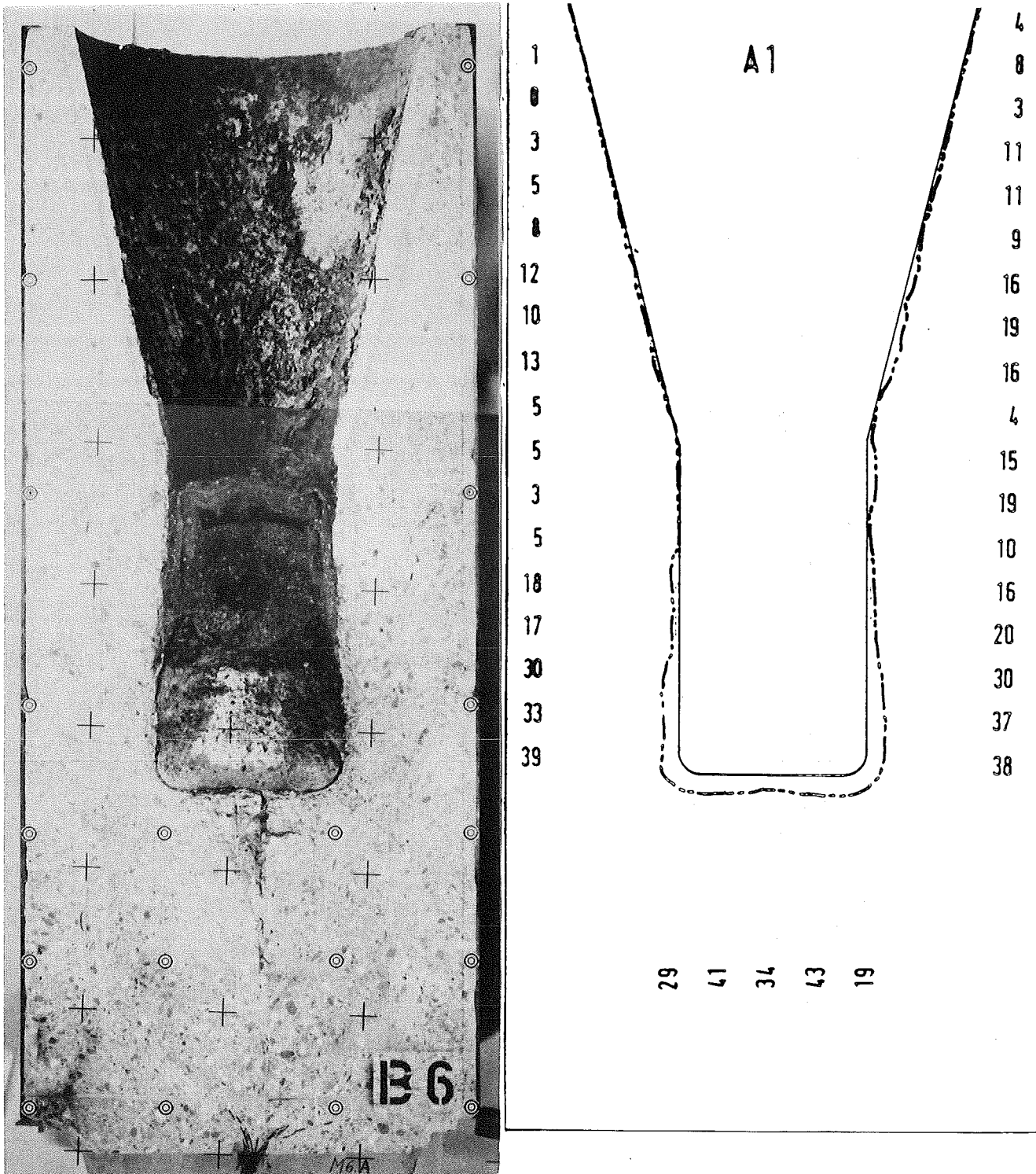


Abb. 06.01.12-2  
 Millimeterangaben für die Thermo-  
 element- und Feuchtfühlerposition



KfK

Abb. 06.01.12-3  
Photographie und Meßkontour der Schmelz-  
front beim Versuch V0.1.

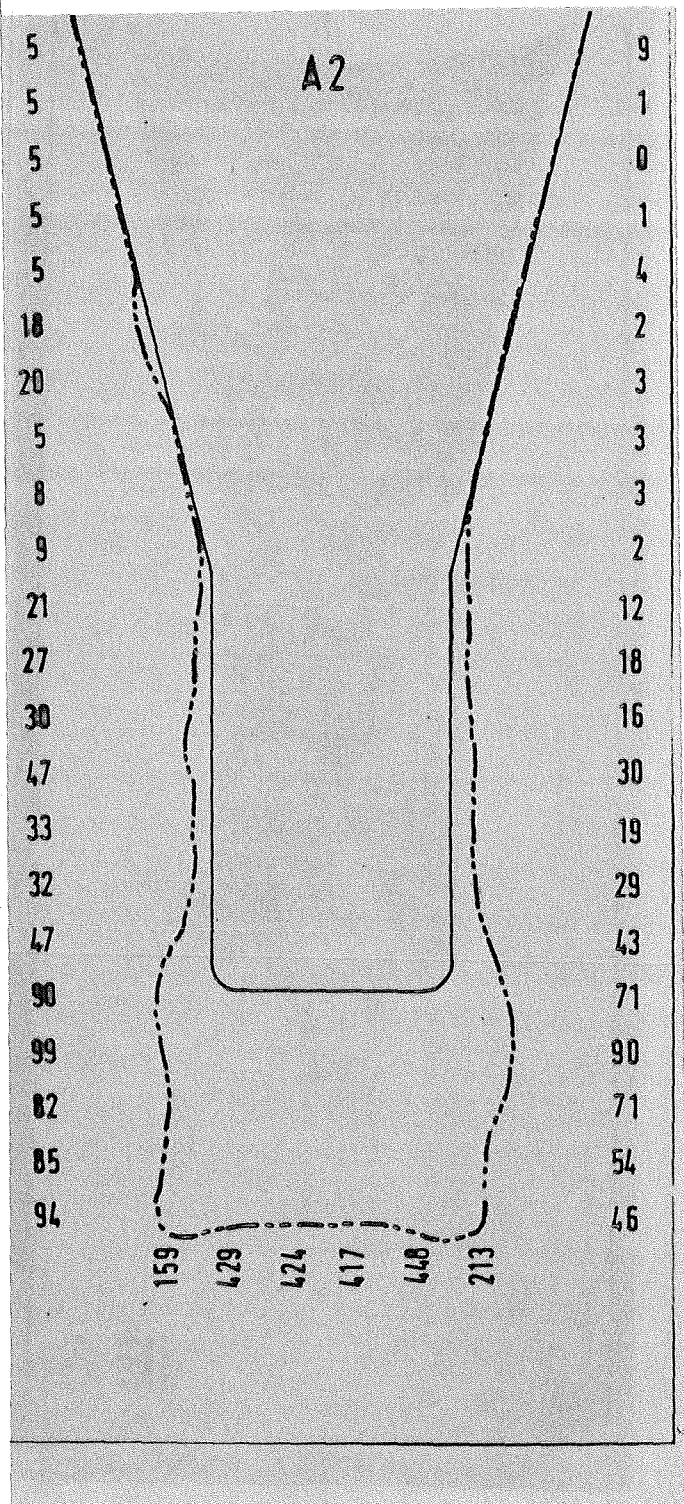
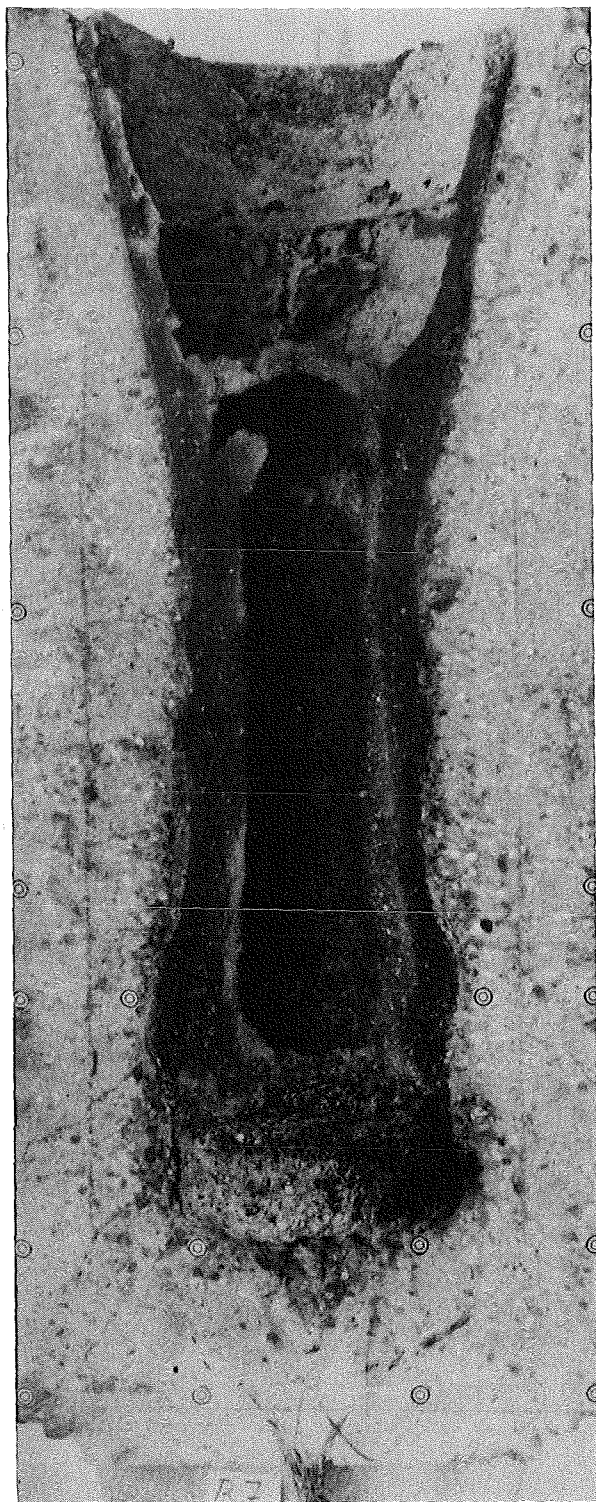


Abb. 06.01.12-4  
Photographie und Meßkontour der Schmelz-  
front beim Versuch V0.2



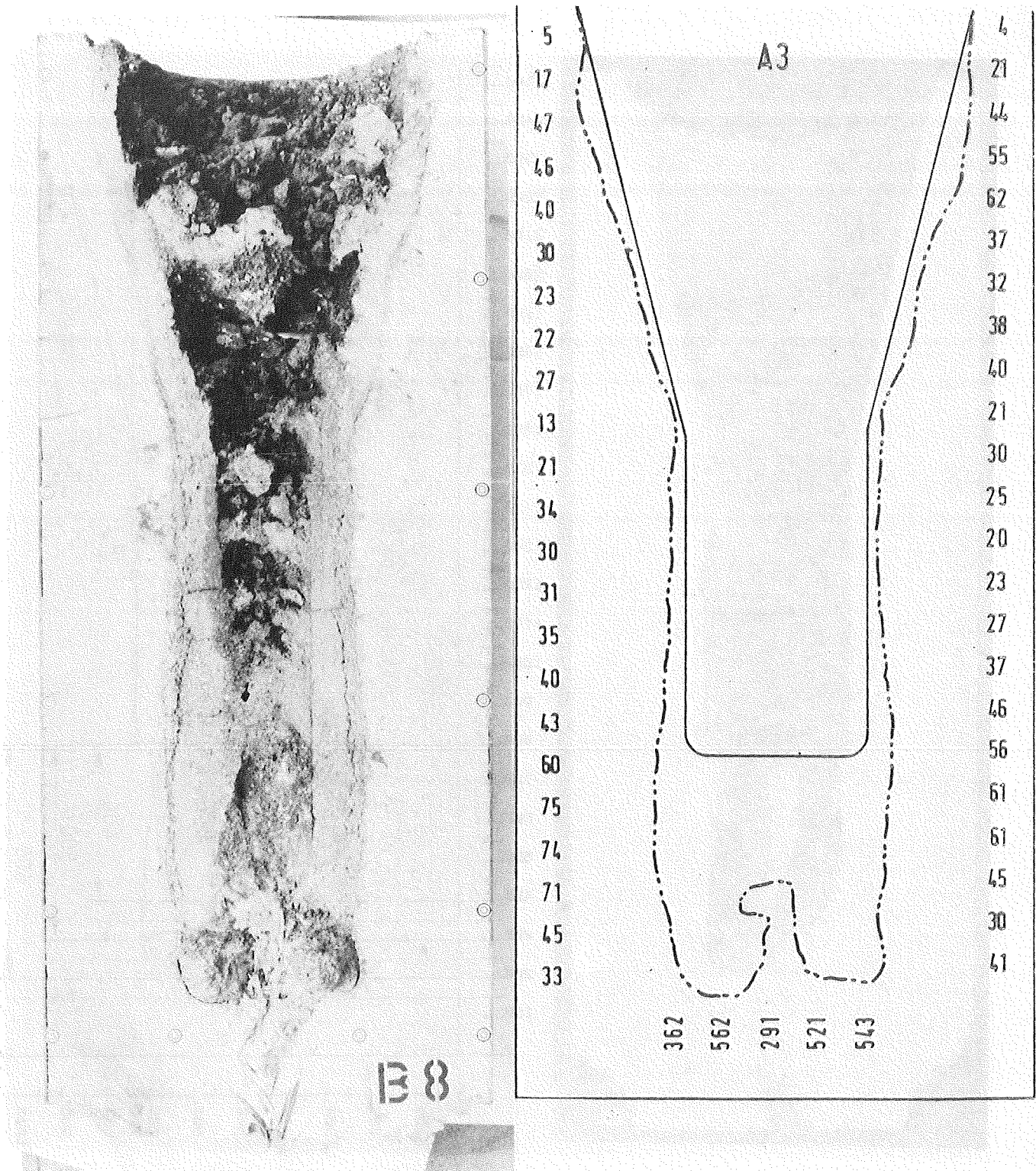


Abb. 06.01.12-5  
Photographie und Meßkontour der Schmelz-  
front beim Versuch V0.3.

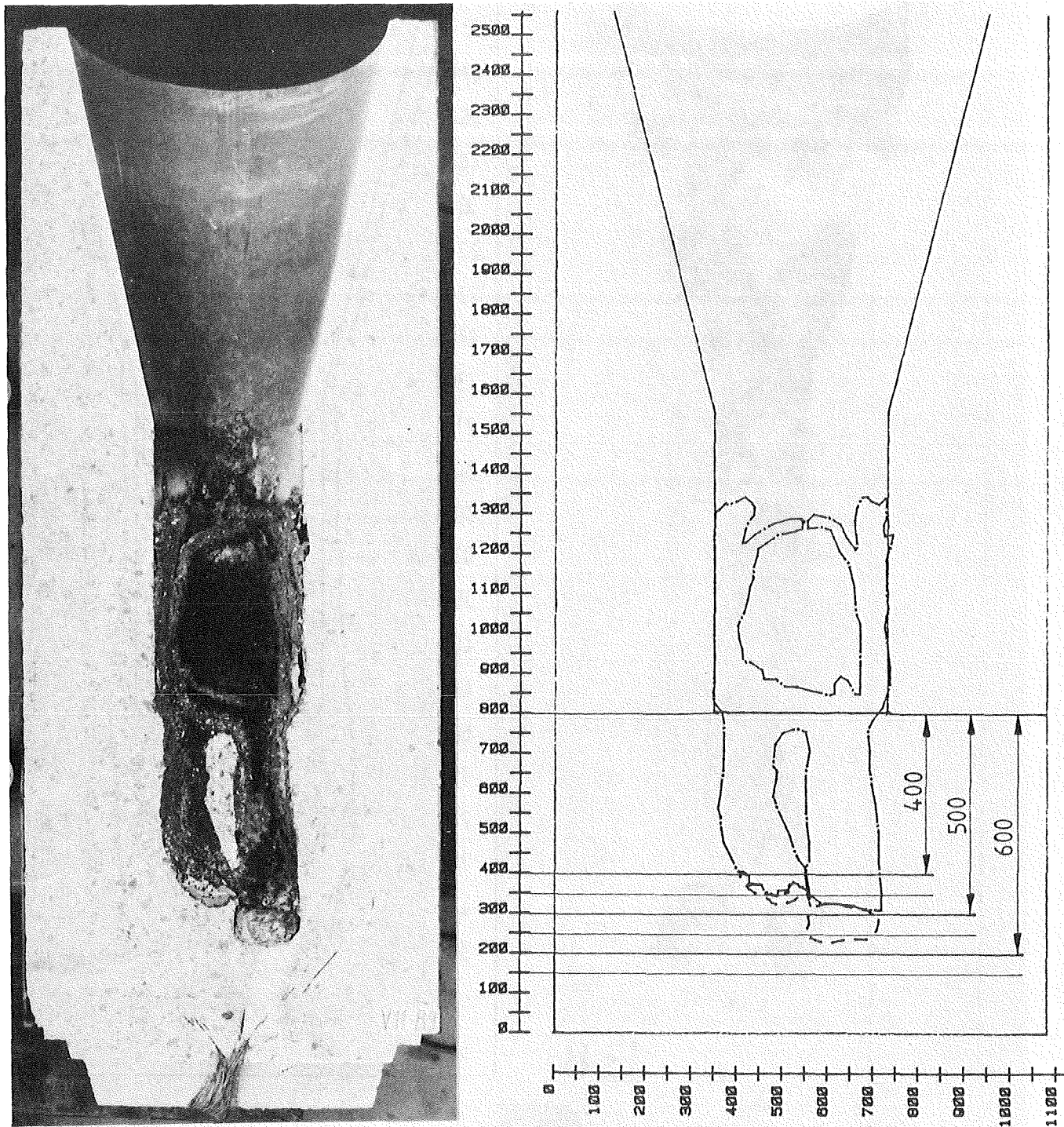
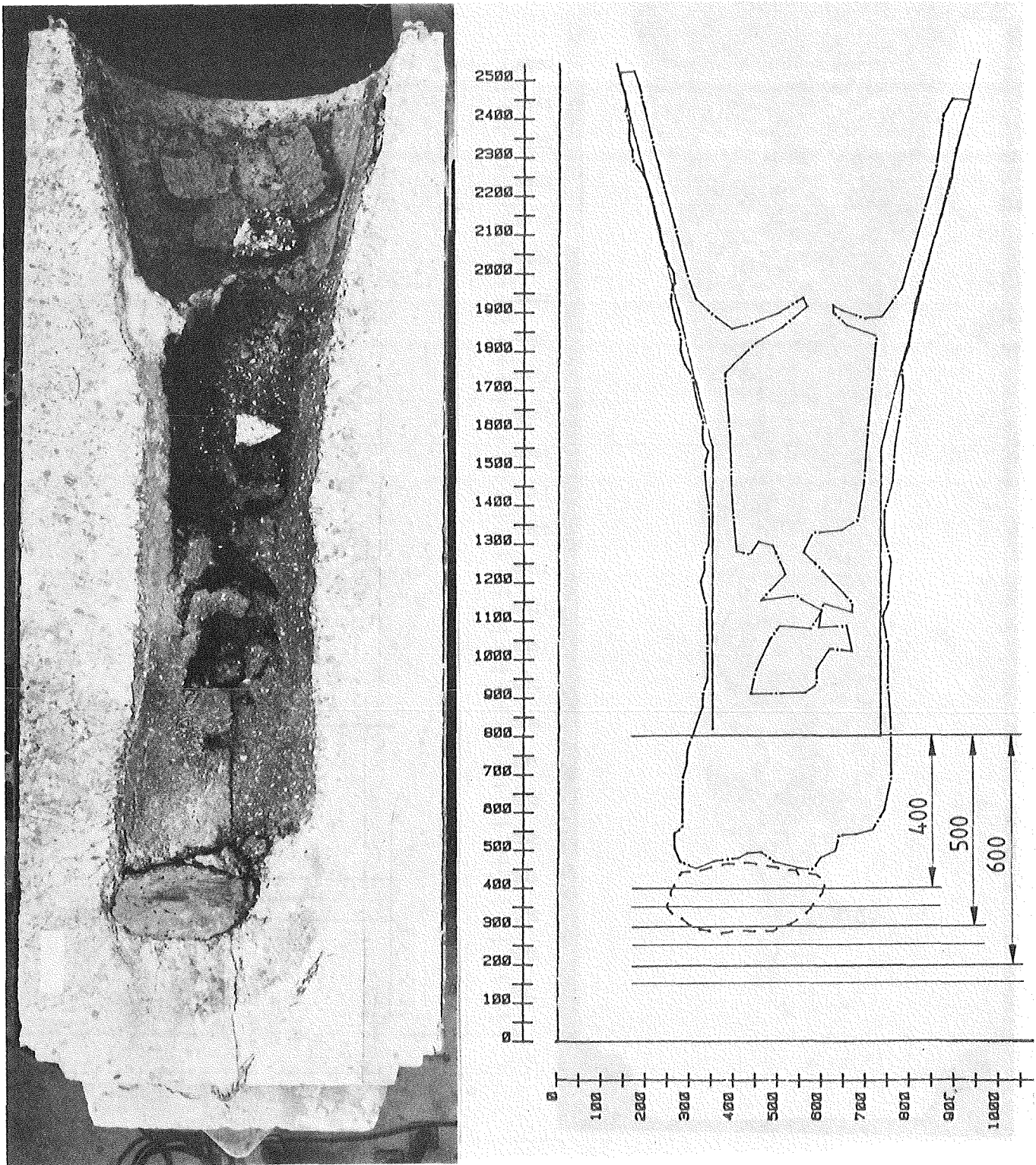


Abb. 06.01.12-6  
Photographie und Meßkontour der erstarrten  
metallischen und oxidischen Schmelze beim Versuch V1.1.



ktk

Abb. 06.01.12-7  
Photographie und Meßkontour der erstarrten  
metallischen und oxidischen Schmelze beim Versuch V1.2.



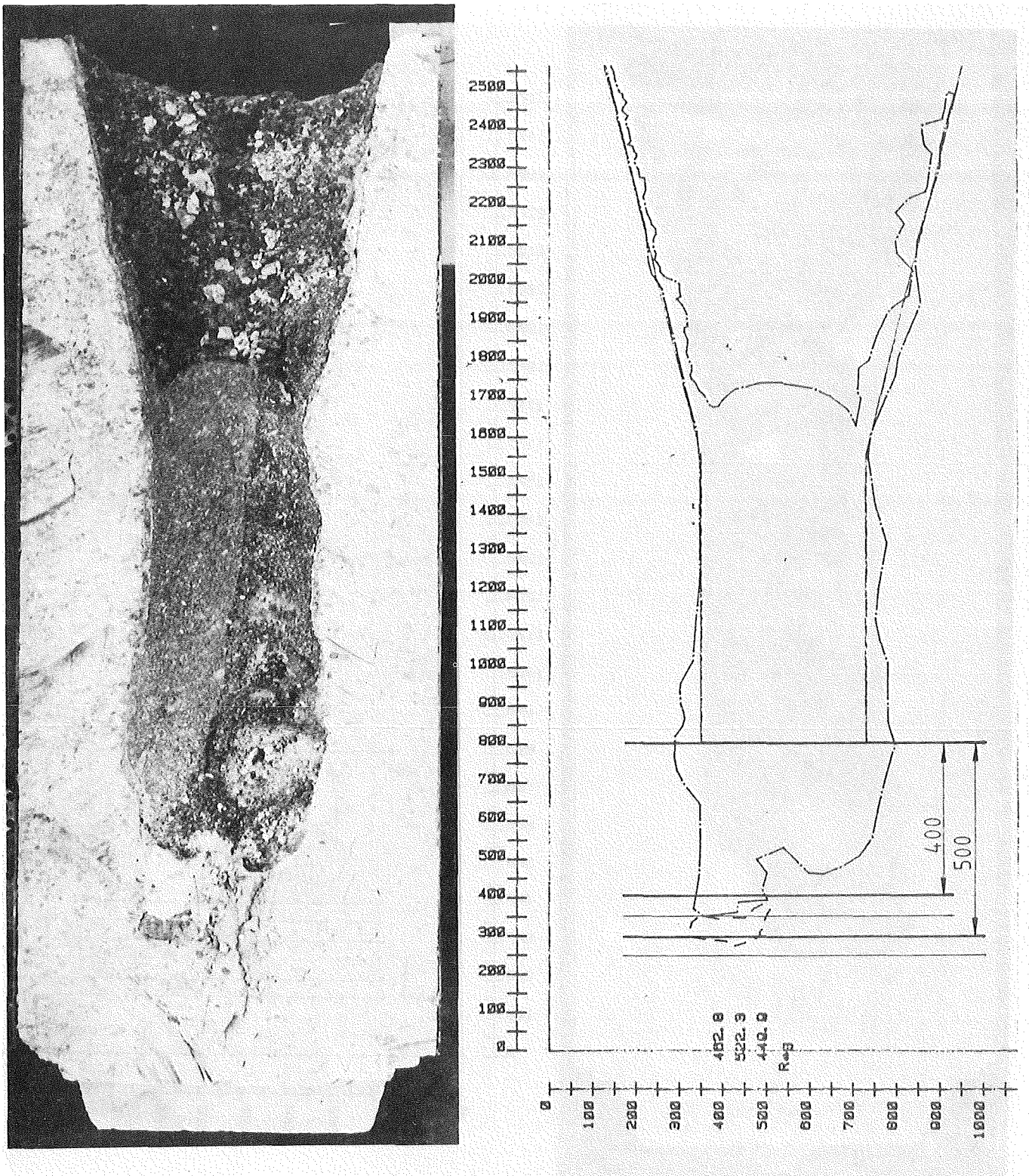


Abb. 06.01.12-8  
Photographie und Meßkontour der erstarrten  
metallischen und oxidischen Schmelze beim Versuch V1.3.



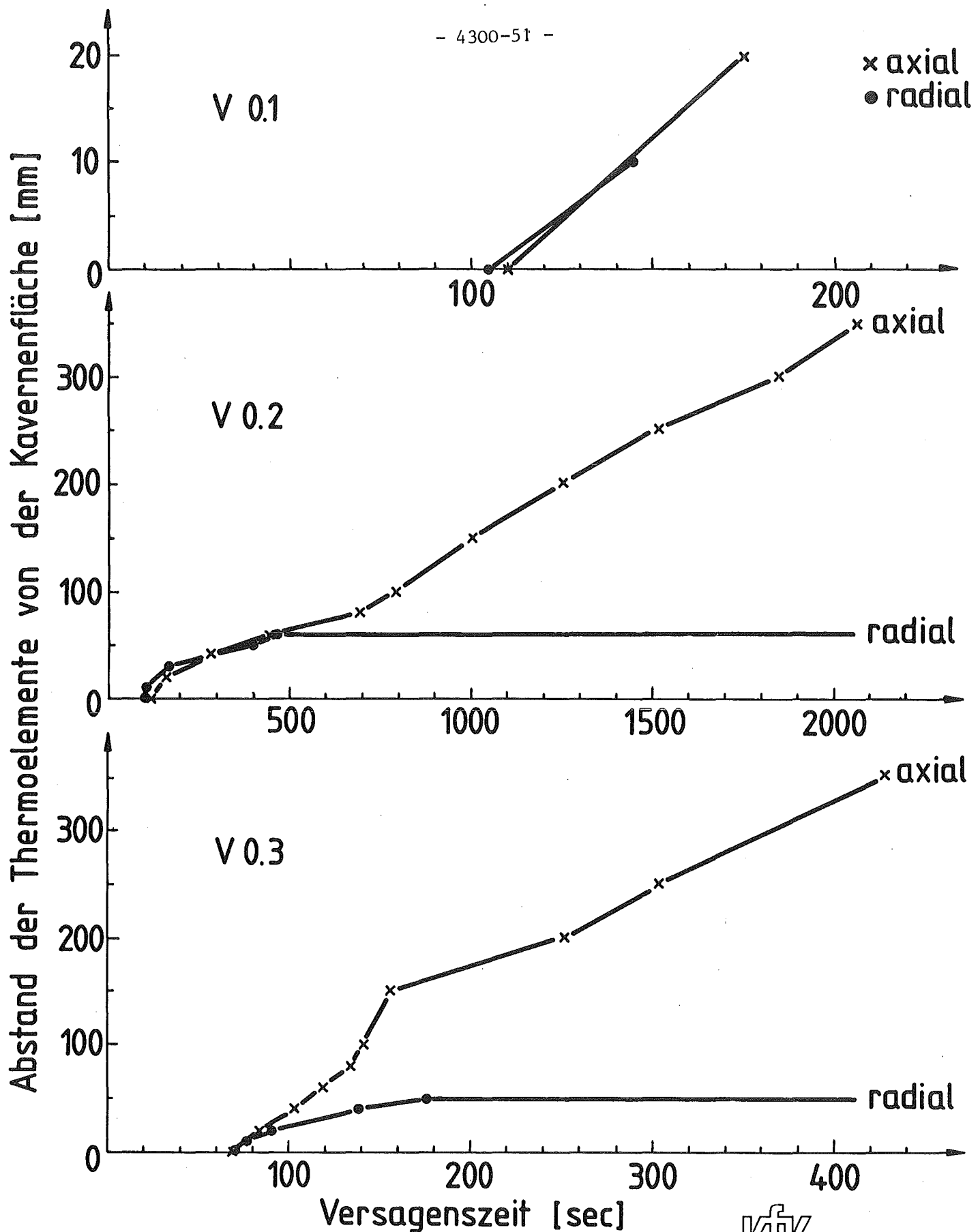


Abb.06.01.12-11 Versagenszeiten der Thermoelemente im Boden und in der Wand des Tiegels

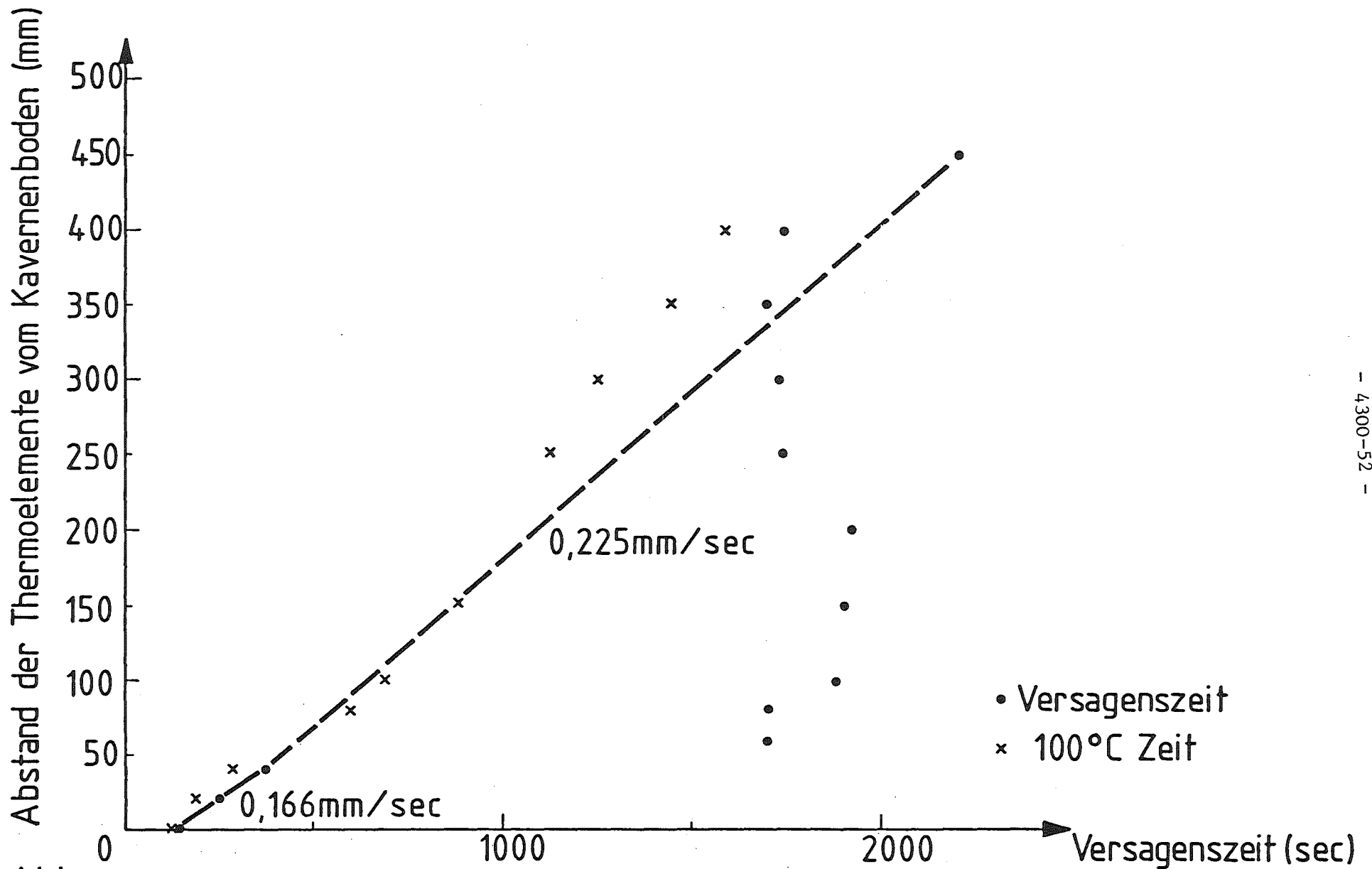
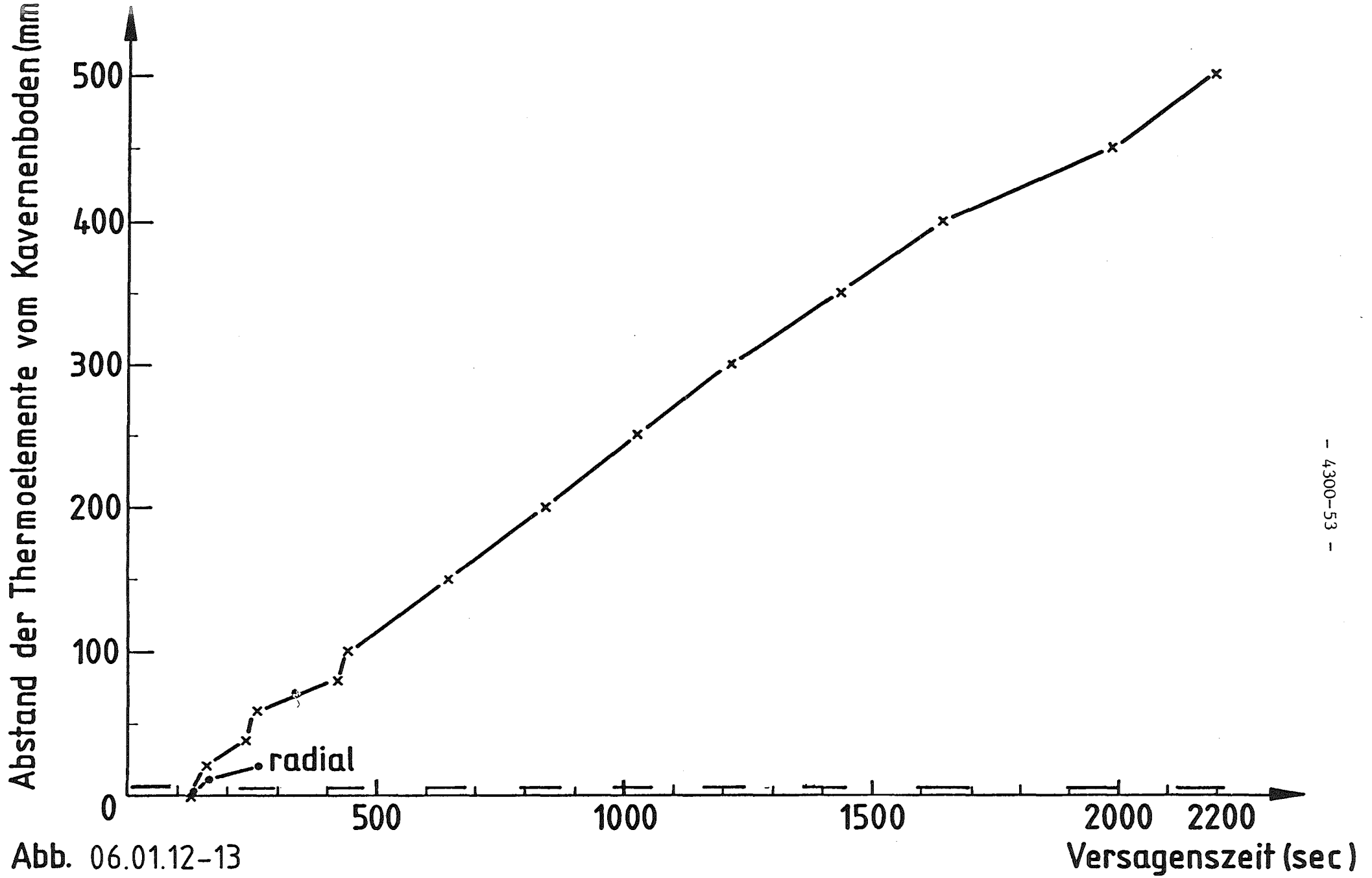


Abb. 06.01.12-12

Versagenszeiten der Thermoelemente im Boden des Tiegels (V 1.1)



- 4300-53 -

Abb. 06.01.12-13

Versagenszeiten der Thermolemente im Boden des Tiegels (V 1.2)

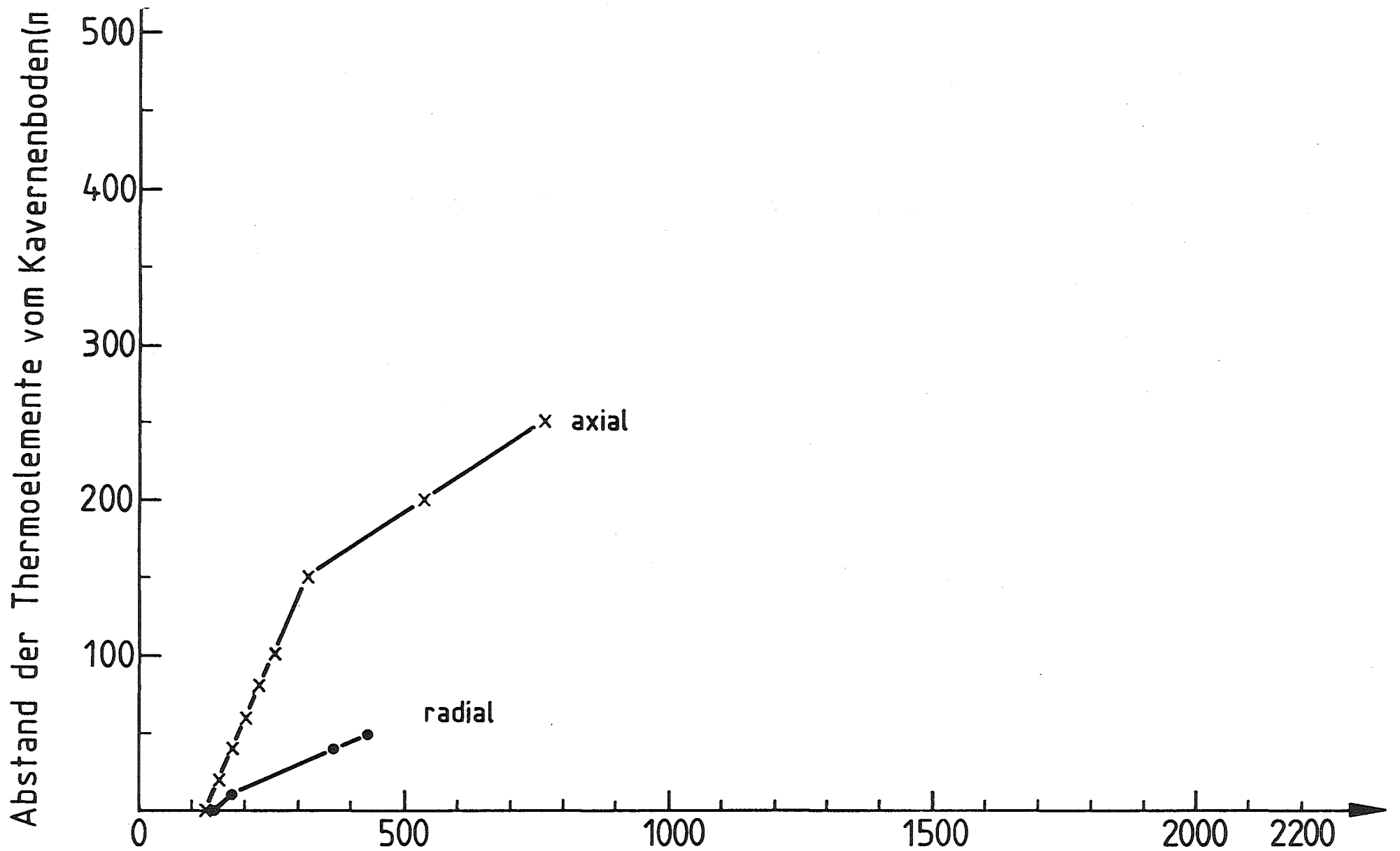


Abb. 06.01.12-14

Versagenszeit (sec)

Versagenszeiten der Thermoelemente im Boden und in der Wand des Tiegels (V1.3)

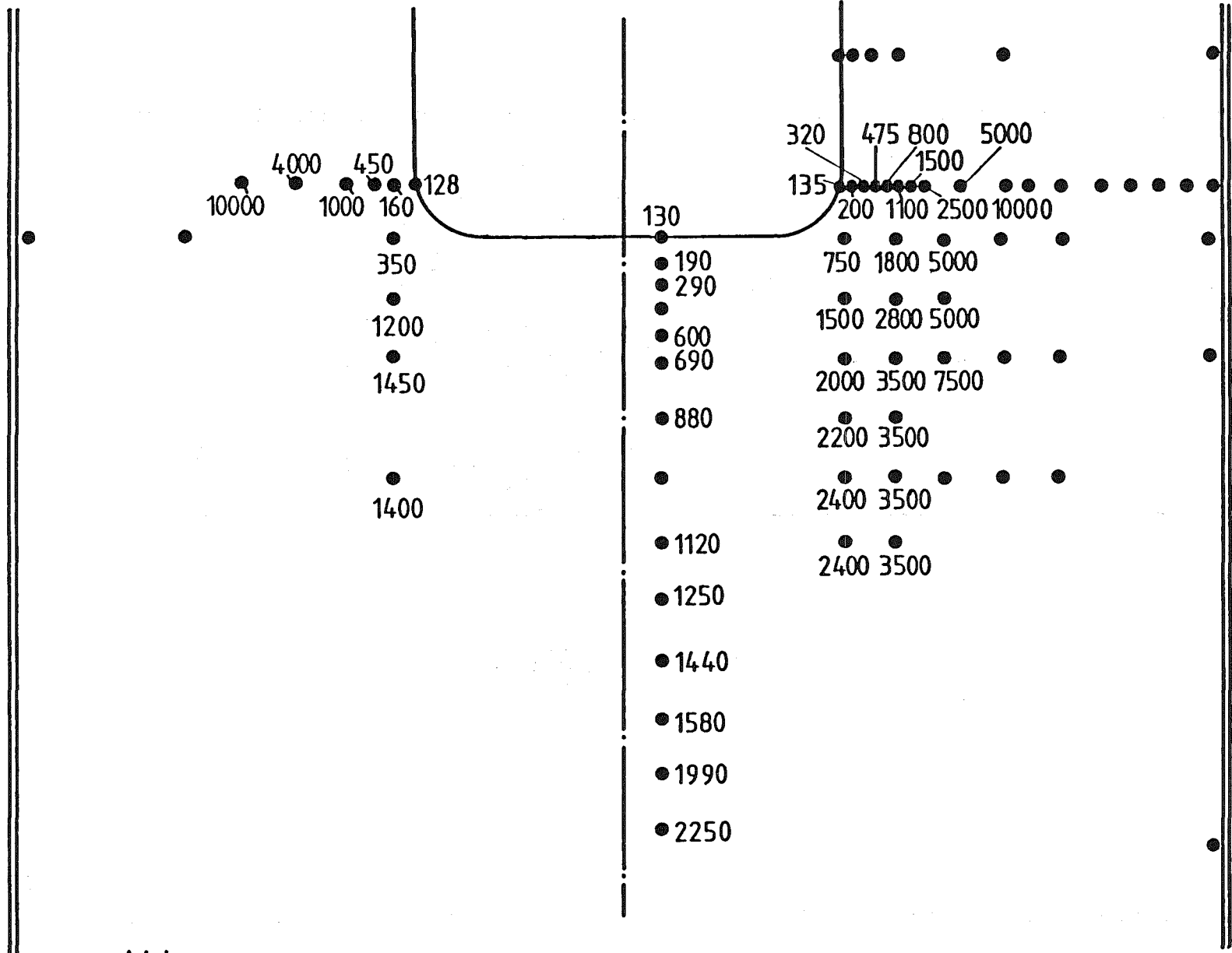


Abb. 06.01.12-18  
 Zeiten (sec), nach denen an der betreffenden Tiegel-  
 Position eine Temperatur von 100°C erreicht wird (V1.1)

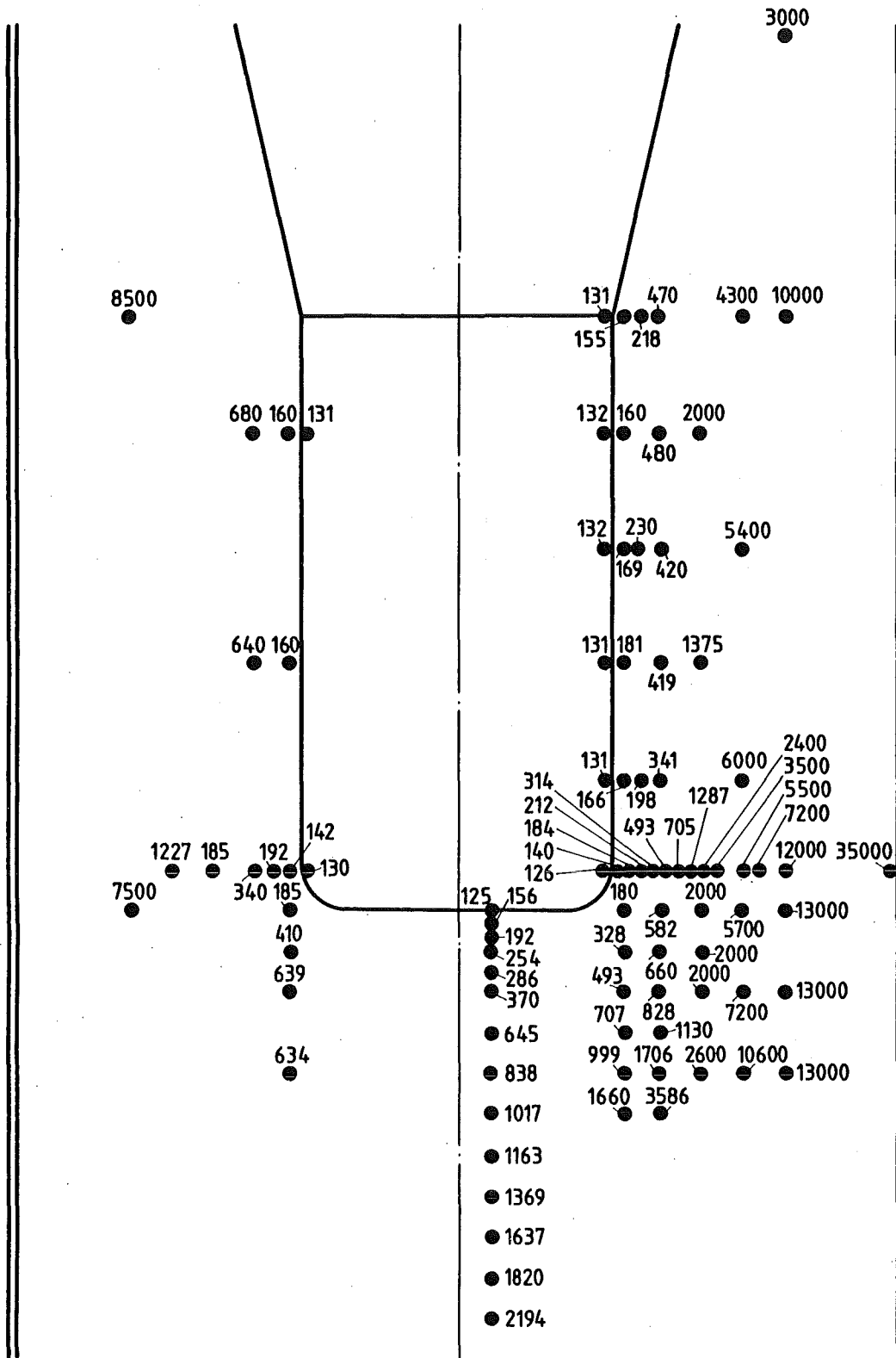


Abb. 06.01.12-19

Zeiten [sec] nach denen an der betreffenden Position eine Temperatur von 100°C erreicht wird (V1.2)

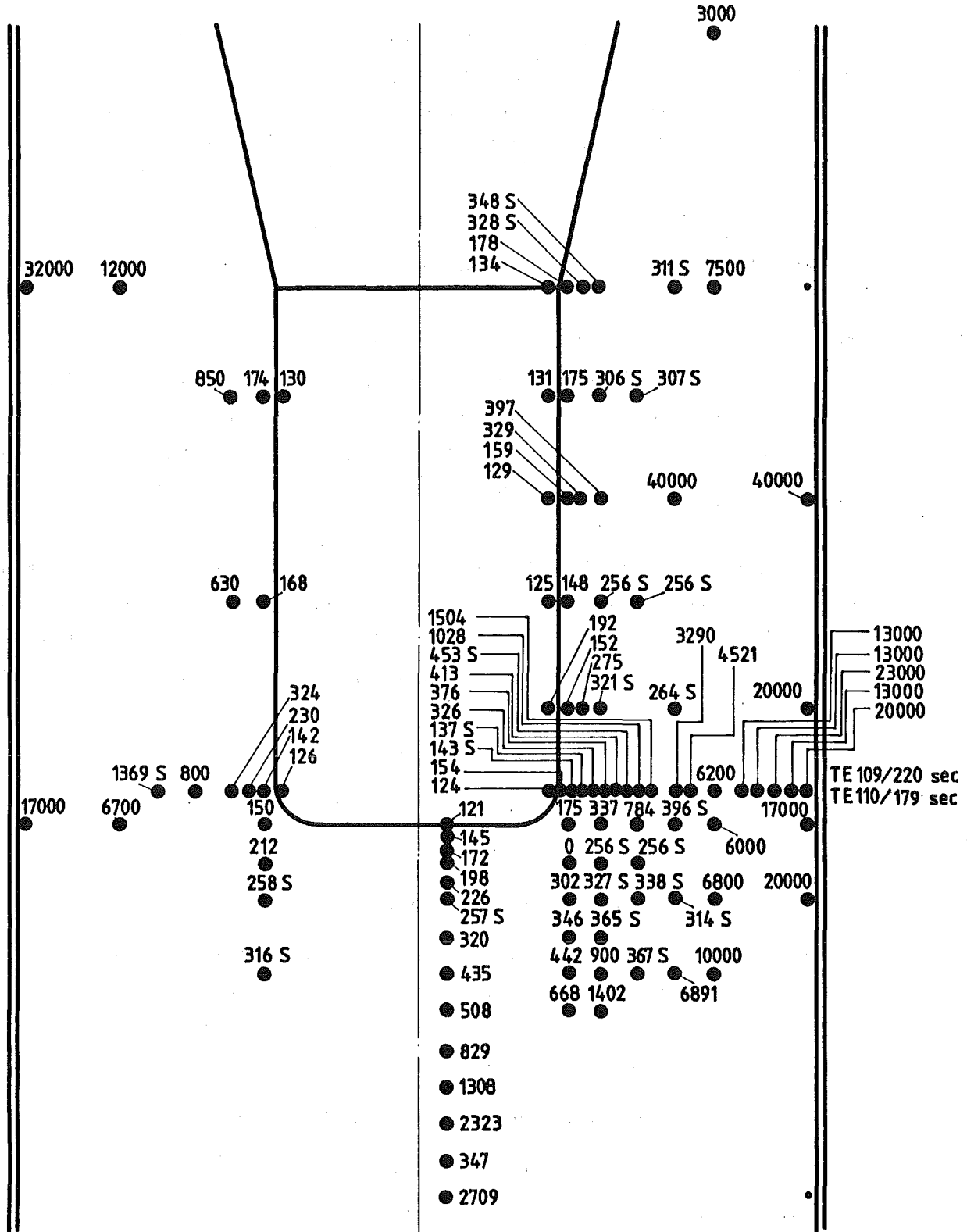


Abb. 06.01.12-20

Zeiten (sec) nach denen an der betreffenden Position eine Temperatur von 100°C erreicht wird (V1.3)

06.01.12/31A      Experimente zur Wechselwirkung von Stahlschmelzen mit Beton  
PNS 4323            Endabnahme-Schmelzversuche A1, A2 und A3  
  
(D. Perinic, R.Döbele, M.Hespeler, W.Höhn, B.Kammerer,  
U.Kirchhof, W.D.Klotz, H.Lukitsch, A.Mack, N.Paroth,  
G.Prokott, R.Töpfer, K.Trautwein, D.Zimmerlin; IT)

### 1. Aufgabenstellung und Vorgaben für die Versuche

Für die Schmelzanlage BETA (Abb.1) wurden von verschiedenen Firmen Anlagenteile geliefert, die nach den kalten Erprobungen die Funktionsfähigkeit unter Versuchsbedingungen nachzuweisen hatten. Dafür wurden drei BETA-Abnahmeversuche durchgeführt. Das Versuchsziel der einzelnen Abnahmeversuche war im Detail unterschiedlich.

Das spezifische Ziel des Abnahmeversuches A1 war der Nachweis der Funktionsfähigkeit der Anlage für den Betrieb mit thermitisch erzeugter Schmelze und kurzzeitige Einschaltung der Induktionsleistung. Die Funktionsfähigkeit aller angeschlossenen Komponenten sollte untersucht werden.

Die Vorgaben für diesen Versuch waren:

- Betontiegel : Nr. B6
- Thermitmischung : R70/SSH 600 kg
- Abgießen in den Betontiegel : 300 kg Metall
- Induktionsleistung: Vor Zündung bis 60 s nach Trichterklappe ZU wird die kleinstmögliche Umrichterleistung (300 - 500 kW) eingeschaltet. Danach wird die Leistung in 10 s auf die max. mögliche Leistung (6500 kW) angehoben, 5 s gehalten und in 10 s heruntergefahren.
- Tauchsonden : 4 Temperaturmeßlanzen, 1 Probenahmelanze
- Argongas: kontinuierliche Einspeisung mit  $\sim 250 \text{ m}^3/\text{h}$
- Voraussichtliche Haltezeit der Schmelze im Betontiegel bis zum Erstarren: 10 min.

Das spezifische Ziel des Abnahmeversuches A2 war der Nachweis der Funktionsfähigkeit der Anlage für den Betrieb mit niedriger induzierter Leistung über längere Zeit. Die Funktionsfähigkeit aller angeschlossenen Komponenten sollte untersucht werden.



Die Vorgaben für diesen Versuch waren:

- Betontiegel : Nr. B7
- Thermitmischung : R70/SSH 600 kg
- Abgießen in den Betontiegel : 300 kg Metall
- Induktorleistung: 45 Minuten vor Zündung werden die Umrichter für 500kW Schmelzbadleistung eingeschaltet. Die Leistung bleibt nach Abgießen der Schmelze so lange eingeschaltet, bis die Lichtleiter Tiegel/Tiegelauf-  
lage ansprechen bzw. der Überdruck Argongaslager 94 bar erreicht hat.  
Die Leistung wird in 10 s auf die max. mögliche Induktionsleistung  
(6500 kW) angehoben, 5 s gehalten und in 10 s auf 500 kW herunterge-  
fahren.
- Voraussichtliche Haltezeit der Leistung nach Schließen der Trichter-  
klappe: 30 min
- Tauchsonden: 21 Temperaturmeßblanzen, 4 Probenahmelanzen
- Argongas: Kontinuierliche Einspeisung mit  $\sim 250 \text{ m}^3/\text{h}$ .

Das spezifische Ziel des Abnahmeversuchs A3 war der Nachweis der Funktionsfähigkeit der Anlage für den Betrieb mit maximal induzierter Leistung. Insbesondere sollte der Nachweis der Einspeisbarkeit von  $\geq 1700 \text{ kW}$  in das Schmelzbad erbracht werden. Die Funktionsfähigkeit aller angeschlossenen Komponenten sollte untersucht werden.

Die Vorgaben für diesen Versuch waren:

- Betontiegel : Nr. B8
- Thermitmischung : R70/SSH 700 kg
- Abgießen in den Betontiegel: 300 kg Metall, 150 kg Oxid
- Induktorleistung: 45 Minuten vor Zündung werden die Umrichter für 1700kW Schmelzbadleistung eingeschaltet. Die Leistung bleibt nach Abgießen der Schmelze so lange eingeschaltet, bis die Lichtleiter Tiegel/Tiegelauf-  
lage ansprechen bzw. der Überdruck Argongaslager 94 bar erreicht hat.

- Voraussichtliche Haltezeit der Leistung nach Schließen der Trichterklappe:  $\sim 10$  min
- Tauchsonden: 13 Temperaturmeßlanzen, 2 Probenahmelanzen
- Argongas: Kontinuierliche Einspeisung mit  $\sim 250$  m<sup>3</sup>/h

## 2. Versuchsergebnisse

### 2.1 Versuchsablauf

Bei Induktorbetrieb mit unterschiedlicher Spannung je Versuch wurde die Thermit-Gießanlage in Betrieb genommen: 600 kg Thermitpulver wurden im Thermit-Reaktionstiegel fernbetätigt mit elektrischem Zünder und Zündpulver gezündet. Zu diesem Zeitpunkt Null starteten auch die Film- und Fernsehkamera mit Timer und Videoaufzeichnung. Nachstehende Zeiten und Angaben beziehen sich auf diesen Zündzeitpunkt und haben folgende Auswertungen als Grundlage: Monitore der Schaltwarte, Schreiberstreifen, Videoband und Farbfilm.

Die Induktionsanlage erreichte bei den Versuchen A2 und A3 nach ca. 34 Minuten Leerlaufbetrieb thermische Stabilität. Bei Versuch A1 war das wegen der nur kurzzeitig vorgegebenen Einschaltdauer nicht gegeben.

Nach ca. 1-2 Minuten je nach Versuch wurde der Abstich am Reaktionstiegel fernbetätigt eingeleitet und damit auch der Wägezyklus gestartet. Sobald die aus dem Reaktionstiegel abgegossene Metallschmelze 300 kg bei den Versuchen A1 und A2, bei Versuch A3 zusätzliche 150 kg Oxidschmelze, nach der digitalen Anzeige in der Schaltwarte erreichte, fuhr die Gießrinne automatisch in die Abschlackposition und der Gießstrahl wurde entsprechend abgelenkt.

Nach 2-3 Minuten lieferte die Fernsehkamera erste Aufnahmen aus dem Versuchstiegel. Bei Versuch A1 erfolgte die Strömung der Schmelze vorwiegend aus scheinbaren Quellen am Tiegelumfang zur Tiegelmittle, bei Versuch A2 wurden Schmelzfladen hochgeschleudert und die Schmelze lief am Kavernenumfang herab. Bei Versuch A3 waren ein Schmelzbad oder eine definierte Schmelzbadoberfläche nicht zu sehen. Die Aufnahmen aus dem Versuchstiegel machten den Eindruck als beobachte man einen glühenden Gasraum.

In letzterem fanden Turbulenzen vieler hellrotglühender Schmelzpartikel statt; eine bevorzugte Flugrichtung konnte während des Vorbeiströmens an der Sichtöffnung des Periskops nicht festgestellt werden.

Nach dem Schließen der Trichterklappe wurde das Fahrprogramm der Tauchsondenanlage (TSA) durchgeführt. Nach ca. 3-4 Minuten erfolgte das Einfahren der ersten Doppel-Thermoelementsonde. Das weitere Einfahren der Lanzen wird in Pos. 2.7.3.1 "Messung der Badtemperatur und Probenahme" näher beschrieben.

Versuch A1 wurde nach 11 Minuten durch Störung "Induktorleck", Versuch A2 nach 43 Minuten wegen des zu Ende gegangenen Argonvorrates und Versuch A3 nach 14 Minuten wegen Abschaltung der Induktionsleistung durch die Tiegelbruchüberwachung beendet.

## 2.2 Abdeckhaube, Thermit-Gießanlage

Die Abdeckhaube und die Thermit-Gießanlage wurden bei Versuch A1 während Teillast getestet und bewährten sich. Der 2 Minuten nach Abstich des Reaktionstiegels unter dem Induktor beobachtete Funkenregen waren Schmelzespritzer, die über den Eingießtrichter und die Haube geflossen waren. Hierbei wurde ein Haubenkühlrohr beschädigt und es erfolgte geringer Wasseraustritt. Ursache war eine fehlerhafte Ausführung der Gießrinne, die noch vor dem Versuch A2 korrigiert wurde. Eine geringfügige Änderung erfolgte auch nach Versuch A2; bei Versuch A3 keine Beanstandung.

Versuche A2 und A3: Nach dem Ausbau des Versuchstiegels wurde die Abdeckhaube inspiziert. Die Haubenauskleidung war mit einer dicken Oxidschicht überzogen. Es ist anzunehmen, daß letztere aus der Reaktion Schmelze/Tiegelbeton stammt, da kein Oxid abgegossen wurde. Zusätzlich wurde ein Riß in der Nähe der Auskleidung des Haubenflansches festgestellt, die Magnesit- auskleidung sackte um diese Rißbreite ab und bildete über ca. 1/3 des Haubenumfangs einen Flanschüberstand. Die Reparatur gelang ohne Ausbau der Haube durch Auffüllen mit Magnesitmasse, Trocknen und Abschleifen.

### 2.3 Versuchstiegel

Tiegel gleicher Bauart waren in Vorversuchen bei Zündung des Thermits im Tiegel und ohne Induktionsheizung getestet worden. Alle drei Abnahmetiegel zeigten ein ähnlich positives Verhalten wie die Vorversuchstiegel, d.h. die anders geartete Belastung der Tiegel durch Induktionsheizung und Abgießen der Schmelze blieb bis auf die Schmelzfrontausbreitung ohne erkennbare Konsequenzen. Wie die Vorversuchstiegel wiesen nach dem Tiegelschnitt alle drei Abnahmetiegel im Betonteil feine Risse auf. Die Erosion des Tiegels B6 beim Versuch A1 durch den Gießstrahl betrug im Bereich des Aufpunktes max. 20 mm.

#### 2.3.1 Rohrtiegelmaße, Tiegelschnittvermessung

Die Rohrtiegelmaße wurden vor dem Versuch für jeden Tiegel gemessen und protokolliert; sie sind die Bezugsmaße für die Messung der Schmelzfrontausbreitung nach dem Versuch. Die Vermessung der Rohrtiegel und der Tiegelschnitte erfolgte mit der Mora-Meßmaschine. Nach diesen Meßergebnissen wurden die maximalen Schmelzeindringtiefen im Kavernenbereich radial mit 39 mm und axial mit ca. 45 mm bei Versuch A1 (Tiegel B6), 103 mm bzw. 454 mm bei Versuch A2 (Tiegel B7), 75 mm bzw. 562 mm bei Versuch A3 (Tiegel B8) gemessen (Abb.: 2-4). Die Abbildungen 5-7 zeigen die Tiegel im Schnitt.

#### 2.3.2 Betonalterung, Betonfestigkeit, Betonrohddichten

Tiegel B6 wurde am 5.5.1983, Tiegel B7 am 26.5.1983, Tiegel B8 am 23.6.1983 vom Institut für Massivbau und Baustofftechnologie der Universität Karlsruhe, Abteilung Massivbau hergestellt und vier Wochen in der Klimakammer gelagert. Tiegel B6 wurde bis zum Versuchstag am 3.2.1984 (274 Tage), Tiegel B7 bis 17.3.1984 (296 Tage), Tiegel B8 bis 7.4.1984 (289 Tage) gealtert.

Betondruckfestigkeiten

	nach		
	28 Tagen in MN/m <sup>2</sup>	56 Tagen in MN/m <sup>2</sup>	84 Tagen in MN/m <sup>2</sup>
Versuch A1 (Tiegel B6)	34,2	40,3	43,8
Versuch A2 (Tiegel B7)	28,6	38,8	40,8
Versuch A3 (Tiegel B8)	30,5	38,1	41,1

Beton-Rohdichten

Versuch A1 (Tiegel B6)	Versuch A2 (Tiegel B7)	Versuch A3 (Tiegel B8)
Betonwürfel 200 mm bei 105 °C nach		
28 Tagen: 2194 kg/m <sup>3</sup>	60 Tagen: 2232 kg/m <sup>3</sup>	56 Tagen: 2221 kg/m <sup>3</sup>
Betonprobe 70x100x200 mm bei 105 °C nach		
273 Tagen: 2208 kg/m <sup>3</sup>	274 Tagen: 2213 kg/m <sup>3</sup>	298 Tagen: 2281 kg/m <sup>3</sup>
Betonprobe 70x100x200 mm bei 600 °C nach		
274 Tagen: 2151 kg/m <sup>3</sup>	279 Tagen: 2129 kg/m <sup>3</sup>	299 Tagen: 2145 kg/m <sup>3</sup>

Diese Rohdichten sind Mittelwerte aus jeweils drei Proben, die bis zur Gewichtskonstanz getrocknet wurden.

2.4 Abgassystem

Das Abgassystem wurde während des Abnahmeversuchs A1 kaum beaufschlagt, da durch die kurzzeitige Induktionsleistung von dem Abguß von 300 kg Metallschmelze in den Tiegel weniger Reaktionsgase aus dem Tiegelbeton auströmen als bei einem Vorversuch der Reihe B. Der Schmelzeabscheider, unmittelbar an der Haube angeflanscht, war leer.

Abgassystem und Schmelzeabscheider waren nach Versuch A2 frei von Schmelze. Im Verbindungsrohr von der Haube zum Schmelzeabscheider klebte Schmelze an der Auskleidung.

Bei Versuch A3 wurden Schlackenablagerungen bis zu  $1/3$  des Durchmessers von 400 mm vor dem Schmelzeabscheider festgestellt. Diese wurden nach dem Versuch entfernt.

## 2.5 Sonstige maschinentechnische Einrichtungen

Die Funktion folgender Einrichtungen blieb während der Abnahmeversuche ohne Beanstandungen:

- Tiegelauflage
- Tiegelschutzrohr
- Transportwagen
- Hubeinrichtung
- Dichtung Tiegel/Haube
- Dichtung Schutzrohr/Haube
- Dichtung Schutzrohr/Tiegelauflage
- Rauchgasabsauganlage

## 2.6 MSR- und Überwachungstechnik

### 2.6.1 Bruchüberwachung

Bei Versuch A1 erfolgte während des Abkühlens der Schmelze eine Anzeige am Schaltpult, die einen Lichtleiterbruch signalisierte. Nach dem Schneiden des Tiegels bestätigte sich der Verdacht, daß in dem betreffenden Bereich ein Betonriß entstanden war.

Bei Versuch A2 zeigten während der Abkühlphase der Schmelze im Versuchstiegel zwei Lichtleiter die Unterbrechung der ständig fließenden Stromimpulse an. Nach dem Trennen des Tiegels sah man in diesem Bereich Betonrisse, die wahrscheinlich die Ursache für den Bruch der Lichtleiter waren.

Abnahmeversuch A3 war der erste Versuch in der BETA-Anlage, der durch Schmelzekontakt eines Lichtleiters der Bruchüberwachung automatisch abgeschaltet wurde. Es war der Lichtleiterkanal 13 der in 1 von 30-Schaltung die Induktionsleistung außer Betrieb nahm. Bei der Nachuntersuchung

stellte sich heraus, daß der Lichtleiter wegen der hohen achsialen Eindringtiefe im Bereich zwischen der zylindrischen Anordnung und der zentralen Zusammenführung des Lichtleiterbündels von der Schmelze erreicht wurde. Am Schaltpult wurde der erfolgte Schmelzekontakt dieses Lichtleiters richtig signalisiert. Die Sicherheitseinrichtung Bruchüberwachung hatte sich damit über die "Fehlermeldung" hinaus aktiv bewährt.

### 2.6.2 Schmelzfrontausbreitung

Die Schmelzfrontausbreitung konnte aufgrund der einbetonierten Thermoelemente während des Versuchs verfolgt werden. Aufgrund der Thermoelementanzeigen war während des Versuchs A2 abzusehen, daß die Schmelze axial weiter in den Beton eindringen wird als radial.

Der axiale Fortschritt der Schmelzfront erreichte während Versuch A3 nach

ca. 5 Minuten	ca. 250 mm
ca. 6 Minuten	ca. 300 mm
ca. 10 Minuten	ca. 400 mm
ca. 12 Minuten	zwischen 400 und 450 mm.

Die radiale Eindringtiefe der Schmelze war wesentlich langsamer; nach 3 Minuten waren ca. 50 mm und nach 14 Minuten zwischen 50 und 100 mm erreicht. Der Endstand der Schmelzfront der drei Abnahmeversuche ist aus den Abb. 2 bis 4 ersichtlich.

### 2.6.3 Schmelzbad-Instrumentierung

#### 2.6.3.1 Messung der Badtemperatur und Probenahme

##### Versuch A1

Beim Versuch A1 waren 5 Positionen des Sondenmagazines bestückt. Die Positionen 1, 3, 4 und 5 waren mit je einer TE-Doppelsonde belegt. Die Entfernungen des untenliegenden Thermoelementes zum Kavernenboden war auf 191 mm eingestellt. Das zweite TE war 100 mm weiter vom Kavernenboden entfernt positioniert. Auf Position 2 war eine Probenahmesonde installiert.

Die Notausfahrzeiten waren für die Sonden 1 bis 5 auf 5, 10, 15, 20, 20 s festgelegt. Der Differentialquotient zur automatischen Auslösung des Ausfahrbefehls war auf 4 K/s eingestellt.

Wegen der Einstreuung von Fehlerströmen durch das Induktionsfeld traten Störungen in der Steuerelektronik auf. Deshalb wurde der Versuch A1 manuell gefahren. Die Tauchsonde 1 wurde planmäßig ins Schmelzbad eingefahren. Durch zu frühes Ansprechen des zu grob eingestellten Differentialquotienten wurde der automatische Ausfahrbefehl zu früh ausgelöst. Dadurch wurde die Asymptote der Endtemperatur nicht erreicht. Die Probenahmesonde wurde planmäßig eingetaucht. Das Glasrohr war mit einem ca. 5 mm langen Schlackenpropfen gefüllt. Die Sonden 3, 4 und 5 hatten keinen Kontakt mit der Schmelze.

#### Versuch A2

Beim Versuch A2 waren 24 Positionen des Sondenmagazines bestückt. Die Probenahmesonden waren auf den Positionen 2, 6, 14 und 20 angeordnet.

Die Eintauchtiefe der unteren TE's war auf einen konstanten Abstand von 13 mm zum ursprünglichen Kavernenboden eingestellt. Die Notausfahrzeiten wurden für alle Tauchsonden auf 15 s festgelegt. Der Differentialquotient für den Ausfahrbefehl wurde auf 2 K/s eingestellt. Das Sondenprogramm wurde manuell gefahren.

Die TE-Sonden bis Position 9 zeigen eine Temperatur von ca. 1400 °C. Die pyrometrische Temperaturmessung der Badoberfläche zeigt ca. 50 K tiefere Temperaturen. Ab der 16. Position geht die Temperaturanzeige des höher angeordneten Thermoelementes merklich zurück, obwohl die Pyrometeratemperatur konstant bleibt. Ab der 17. Position gehen beide Thermoelementanzeigen der Doppelsonden zurück bis auf 780 °C bei konstanter Pyrometeranzeige von ca. 1350 °C.

Bei der nachträglichen Tiegelschnittvermessung wurde festgestellt, daß der Schmelzkuchen unerwartet schnell in den Beton eingedrungen ist, so daß die später eingefahrenen Thermoelemente nicht mehr das Schmelzbad erreichten und nur die Strahlungs- bzw. Gastemperatur anzeigten.

Die Probenahmesonden auf Position 2 und 8 waren teilweise gefüllt. Die Probenahmesonden auf Pos. 14 und 20 enthielten kein Material.



### Versuch A3

Beim Versuch A3 waren 15 Positionen des Sondenmagazines bestückt. Die Probenahmesonden waren auf den Positionen 2 und 8 angeordnet. Auf Position 3 und 7 war eine Stahllanze ohne Pappisolation eingebaut. Damit sollte getestet werden, ob die Standzeit der Stahllanze für einen einmaligen Meßvorgang ausreicht. Ziel war die für die Abgasmessung störenden Rauchscheiden zu vermeiden, die bei der Verkohlung der Papphülse freigesetzt werden.

Die erste Sonde war auf einen Abstand von 13 mm zum Kavernenboden eingestellt. Die zweite Sonde mit Probenahme war auf einen Abstand von 197 mm eingestellt, um die Probe aus der Oxidphase ziehen zu können. Alle weiteren Sonden wurden in Abhängigkeit vom Versagenszeitpunkt der TE im Betontiegel tiefer eingetaucht.

Der Differentialquotient blieb wie bei A2 auf 2 K/s eingestellt. Die Notausfahrt wurde gemäß dem Kurvenverlauf des TE-Signals nach Erreichen der Asymptote gestartet mit maximaler Eintauchzeitbegrenzung auf 20 s. Das Eintauchprogramm wurde manuell gefahren.

Die Doppelsonden auf Pos. 1 zeigen 1700 °C (bzw. 1690 °C), der zugehörige Pyrometerwert liegt bei 1600 °C. Die Doppelsonden auf Pos. 3 zeigen 1540°C (bzw. 1510 °C), der zugehörige Pyrometerwert liegt bei 1400 °C. Sonde 4 konnte wegen Störung an der Verriegelung nicht eingefahren werden:

Die Sonden 6, 7, 8, 9, 10 konnten planmäßig eingefahren werden. Die nackte Stahllanze auf Pos. 7 versagte vorzeitig. Das untere TE der Sonde 9 lieferte keine Anzeige. Die übrigen Temperaturanzeiger fielen kontinuierlich auf 1100 °C ab. Ein Vergleich mit den Pyrometerwerten ist nicht möglich, weil die Pyrometeröffnung nach dem Eintauchen der 3. Sonde durch Schmelzspritzer verdeckt war. Die übrigen Sonden konnten nicht eingetaucht werden.

Die Probenahmesonde auf Pos. 2 war auf eine Länge von 5-10 mm mit Schmelzgut gefüllt. Das Quarzrohr auf Pos. 8 war leer. Der Probenahmekopf war mit einer dicken Oxidschicht überkrustet.

Nach dem Öffnen des Sondenbehälters war zu erkennen, daß die nackten Stahllanzen mit einer dicken Schmelzeschicht überdeckt waren. Beim Zurückziehen der Lanzen wurde dieses Schmelzgut im Stutzenbereich und im Bereich der Ab-

deckklappe abgestreift. Dadurch wurde die Abdeckklappe verschweißt was dazu führte, daß die Sonden ab Pos. 11 nicht mehr eingetaucht werden konnten.

Die Sonde in Pos. 9 war ausgeknickt. Nach dem Schneiden des Versuchstie- gels zeigte sich, daß die Schmelze nur ringförmig in den Beton eingedrungen war und in der Mitte eine massive Betonkuppe stehen blieb. Auf diese Betonkuppe ist die TE Lanze, Pos. 9 aufgefahren und ausgeknickt.

Die TE die das Fortschreiten der Schmelzfront signalisierten und nach denen die Tauchtiefe eingestellt wurden, waren außerhalb dieser zentralen Betonkuppe angeordnet.

Die Abnahme der Tauchsondenanlage konnte nach Versuch A3 nicht ausgesprochen werden, weil die Störungen durch das Induktionsfeld nicht beseitigt werden konnten, so daß kein Automatikbetrieb möglich war. Die Lieferfirma wurde verpflichtet diese Störungen bis zum nächsten Versuch an der Anlage zu beheben und den störungsfreien Betrieb nachzuweisen.

#### 2.6.3.2 Optische Überwachung

Während der Versuche lieferten beide Kameras eindrucksvolle Bilder aus den Tiegelkavernen. Wie in Pos. 2.1 beschrieben, konnten mit dieser Einrichtung das Ein- und Ausfahren der Tauchsonden und die Badbewegungen beobachtet und auf Videoband und Farbfilm dokumentiert werden. Periskop mit Kühler und Kameras bewährten sich ebenfalls.

#### 2.6.3.3 Messung der Oberflächentemperatur

##### Versuch A1:

Das Infrarot-Pyrometer stand für Versuch A1 nicht zur Verfügung. Während des BETA-Vorversuchs B5 arbeitete es nicht zufriedenstellend und wurde dem Hersteller zur Inspektion zugesandt, die zur Zeit des Versuchs noch andauerte.

Das 2 Farben-Quotientenpyrometer lieferte interpretierbare Temperatursignale. Diese wurden mit Schreiber und DV aufgezeichnet. Die mit der DV aufgezeichneten Schmelzbad-Oberflächentemperaturen vermittelten einen Gesamtüberblick während der Versuchsdauer mit Schmelzbad-Oberflächentemperaturen  $> 1000$  °C.

Die Schmelzbad-Oberflächentemperaturen vom Abstich bis zum Einfahren der 1. Sonde wurden mit dem Schreiber registriert. In diesen Zeitraum fällt auch die max. Temperatur von 1780 °C, gemessen 2 Minuten 37 Sekunden nach Zündung.

Nach 3 Minuten 13 Sekunden wurde die erste Sondenverdunklung (Verkohlung der Papphülse) registriert. Die Schmelzbad-Oberflächentemperatur betrug kurz davor im Mittel ca. 1460 °C. Nach ca. 5 Minuten zeigte das Q-Pyrometer  $< 900$  °C an. Die Übertragungsoptik mit Schutz aus Quarzglas war unversehrt, wie nach dem Ausbau festgestellt wurde.

Versuch A2: Infrarot-Pyrometer wie bei Versuch A1. Das Quotientenpyrometer lieferte beinahe während der gesamten Versuchsdauer Temperatursignale. Diese wurden mit Schreiber und Datenverarbeitung registriert. Die mit der DV aufgezeichneten Schmelzbad-Oberflächentemperaturen geben eine Gesamtübersicht während der Versuchsdauer.

Die Schmelzbad-Oberflächentemperaturen vom Abstich bis zum Einfahren der 1. Sonde wurden auf Schreiberpapier registriert. In diesen Zeitraum fällt auch die max. Temperatur von 1720 °C, gemessen 2 Minuten 40 Sekunden nach Zündung. Höhe und Verlauf der Temperatur entsprechen den Werten von Versuch A1.

Versuch A3: Die Aufzeichnungen des Infrarotpyrometers konnten nicht interpretiert werden. Die Signale des Quotientenpyrometers wurden bis ca. 6 Minuten nach Zündung vom Schreiber aufgezeichnet. Die max. Schmelzbad-Oberflächentemperatur von 2530 °C wurde vom Q-Pyrometer 83 Sekunden nach Zündung gemessen. Die kurz vor dem Eintauchen der 1. Tauchsonde gemessene Schmelzbad-Oberflächentemperatur von ca. 1720 °C stimmt mit der Temperaturmessung des Schmelzbades durch die Thermoelemente der 1. Tauchsonde annähernd überein.

Vergleicht man die mit den Schreibern aufgezeichneten Schmelzbad-Oberflächentemperaturen der Versuche A1, A2 und A3, liegen diese im Zeitraum von 120 bis 160 Sekunden nach Zündung trotz unterschiedlicher Leistungseinspeisung in einem engen Temperaturbereich von 1720 bis 1780 °C.

#### 2.6.3.4 Induzierte Schmelzleistung

##### a) Berechnung

Eine direkte Messung der im Schmelzbad induzierten Leistung ist nicht möglich. Ausgehend von der Energiebilanz wurde folgende Beziehung für die Berechnung der induzierten Leistung abgeleitet:

$$P_H = P_{51} - \left[ I_{51}^2 \cdot R_{cul} \cdot \sqrt{\frac{F_{51}}{F_{50}}} + \left( P_{50} - I_{50}^2 \cdot R_{cul} \right) \cdot \left( \frac{I_{Ind1}}{I_{Ind2}} \right)^2 \cdot \sqrt{\frac{F_{51}}{F_{50}}} \right]$$

mit  $P_{50}$  = Summenleistung der Umrichter im Leerlauf

$P_{51}$  = Summenleistung der Umrichter bei Last

$F_{50}$  = Schwingkreisfrequenz im Leerlauf

$F_{51}$  = Schwingkreisfrequenz bei Last

$I_{50}$  = Summenstrom der Umrichter im Leerlauf

$I_{51}$  = Summenstrom der Umrichter bei Last

$I_{Ind0}$  = Summenstrom der Kondensatorenteilströme im Leerlauf

$I_{Ind1}$  = Summen der Kondensatorenteilströme bei Last

$R_{cul}$  = Ohm'scher Widerstand der Zuleitungsschiene zur Kondensatorenbatterie

$P_{50}$ ,  $F_{50}$ ,  $I_{50}$ ,  $I_{Ind0}$  und  $R_{cul}$  sind Festwerte, die bei Leerlaufbetrieb ermittelt werden. Für die Berechnung der aktuellen induzierten Schmelzbadleistung werden die Meßgrößen  $P_{51}$ ,  $F_{51}$ ,  $I_{51}$  und  $I_{Ind1}$  erfaßt und aufgezeichnet. Mit diesen Werten wird der zeitl. Verlauf der im Schmelzbad induzierten Leistung berechnet.

b) Leistungsverlauf bei A1, A2 und A3

Mit der unter a) angegebenen Berechnungsmethode wurden die bei den Abnahmeversuchen A1, A2 und A3 ins Schmelzbad induzierten Leistungen ermittelt. Beim Versuch A1 wurden nur kurzfristige Leistungseinschaltungen durchgeführt um das Anschwingverhalten des Schwingkreises zu testen.

Die Leistungsdiagramme für die Versuche A2 und A3 sind in den Abb. 8 und 9 angegeben.

Die Abnahmebedingung 1700 kW in ein Fe-Schmelzbad von 300 kg Masse über einen Zeitraum vom 10 s einzuspeisen wurde mit Versuch A3 erfüllt.

#### 2.6.4 Abgas-Instrumentierung

##### 2.6.4.1 Temperatur

Bei Versuch A1 konnten keine Thermoelemente in das Abgassystem wegen Terminverzögerungen der Lieferfirmen eingebaut werden.

Die Thermoelemente haben sich - mit Ausnahme der Abgas-Temperaturmessung T11: am Rohrende unten (defekt) - bei Versuch A2 bewährt. Die Abgastemperatur an der Meßstelle T6 im Haubenraum wurde niedriger gemessen als an der Meßstelle T9 hinter dem Abscheider. Eine mögliche Erklärung ist der Einfluß der gekühlten Haubenwand auf das Keramikschutzrohr des Thermoelements.

Während des Abnahmeversuchs A2 blieben die Abgastemperaturen  $< 1300$  °C. Für den Abnahmeversuch A3 wurden deshalb ausschließlich Ni-Cr/Ni Thermoelemente eingebaut. Im Haubenraum begann die Gastemperatur ca. 9 Minuten nach Zündung mit einem Temperaturgradienten von im Mittel 4 K/Sekunde auf max. 1170 °C zu steigen. Diese Temperatur wurde zum Versuchsende 14 Minuten nach Zündung erreicht. Der anschließende Temperaturabfall verlief mit einem wesentlich geringeren Temperaturgradienten. Beide Temperaturverläufe lassen den Schluß einer Beeinflussung durch die Haubenauskleidung zu.

Verstärkt wird diese Interpretation durch den schnellen Temperaturanstieg des Meßfühlers hinter dem Abscheider. Hier begann die Gastemperatur schon 68 Sekunden nach Zündung mit einem Temperaturgradienten von im Mittel 4,4 K/Sekunde auf max. 785 °C zu steigen. Zum Versuchsende wurde eine Temperatur von 390 °C registriert. Diese Angaben basieren auf der Auswertung des Schreiberpapiers.

#### 2.6.4.2 Druck in den Abdeckhaube

Bei Versuch A1 wurden 5 Minuten 37 Sekunden nach der Zündungen max. 50mbar gemessen und mit dem Schreiber aufgezeichnet.

Bei den Versuchen A2 und A3 konnten eine nennenswerte Druckspitze weder auf der DV-Auswertung noch am Schreiber festgestellt werden.

#### 2.6.4.3 Durchsatz, Zusammensetzung

Darüber wird die Firma KWU einen eigenen Bericht erstellen.

#### 2.6.4.4 Aerosolmessung

Bei Versuch A2 wurde von LAF I ein Laser-Extinktionsfotometer eingesetzt. Über die Ergebnisse wird LAF I einen eigenen Bericht erstellen.

#### 2.6.4.5 Abgaszündeinrichtung

Diese Einrichtung hat sich bewährt und bleibt für die weiteren Versuche im Einsatz.

#### 2.6.5 Periphere Meßsysteme

##### 2.6.5.1 Thermit-Eingießmasse

Das Wägesystem des Thermit-Reaktionstiegels funktionierte einwandfrei, so daß nach dem Abgießen von 300 kg Thermitschmelze - bei den Versuchen A1 und A2 - die Gießrinne automatisch in die Abschlackposition fuhr.

Für Versuch A3 wurden 300 kg Metall- und 150 kg Oxidschmelze abgegossen. Das Wägesystem und die Gießrinnensteuerung funktionierten einwandfrei.

#### 2.6.5.2 Thermit-Gießstrahltemperatur

Die Temperatur des Schmelzestrahls wurde während des Abgießen der Schmelze gemessen und mit dem Schreiber registriert. Die Abgießzeit lag zwischen 13 und 14 Sekunden für die Metallschmelze bei allen Versuchen. Die Abgießzeit für 150 kg Oxidschmelze wurde mit 7,6 Sekunden festgestellt.

#### 2.6.5.3 Argonmessung

Keine Beanstandung bei allen Versuchen.

#### 2.6.5.4 Kondensatmessung

An Kondensat aus dem Betontiegel wurden bei Versuch A1: 27,5 kg gemessen, eine größere Menge als bei den Vorversuchen mit Thermitzündung im Tiegel. Bei Versuch A2 wurden 69 kg, bei Versuch A3: 56,5 kg Kondensat gemessen.

### 3 Zusammenfassung der Abnahmeergebnisse

#### 3.1 Induktions- und Schmelzanlage einschließlich Nebenanlagen

Die Anlage BETA gilt zum Stichtag 7. April 1984 als endabgenommen. Nach den vertraglichen Vereinbarungen ist die Gewährleistungszeit am 30. April 1984 abgelaufen. Grundlage der Abnahme waren die Abnahmeversuche A2 und A3, während derer die Leerlaufdaten sowie Strom und Spannung gemessen wurden. Der Leistungsnachweis wurde rechnerisch geführt.

Die Endabnahme stand unter dem Vorbehalt der Erledigung folgender Restpunkte:

- Das Betriebshandbuch und die komplette Dokumentation werden bis spätestens 30. Juni 1984 vorgelegt.
- Die Pumpensteuerung wird überprüft. Sollte dabei festgestellt werden, daß ein Auslegungsfehler vorliegt, wird die Steuerung (Schütze) der Leistung angepaßt.
- Die Bewegungssteuerung des Schlackenwagens wird überprüft.

### 3.2 Tauchsondenanlage

Aufgrund der Störungen an der elektronischen Auswerteeinheit und der damit verbundenen Nichtfreigabe von Verriegelungen konnte die Abnahme nach Versuch A3 nicht ausgesprochen werden.

Es wurde vereinbart, daß die Lieferfirma die Entstörung bis 5. Mai 1984 durchführen muß und die störungsfreie Funktion der Anlage bei Betrieb mit und ohne Schmelze nachzuweisen hat. Vom Experimentator wurde gefordert ein aktives 3-poliges Butterworth-Filter, 10 Hz, für die Entstörung zu verwenden.

Aufgrund der vorliegenden Betriebserfahrungen wurden vom Experimentator nachträglich folgende Änderungen gewünscht:

- Ausbau der Verschußklappe am Boden des Tauchsondenbehälters
- Handsteuerung der einzelnen Bewegungsphasen vom Pult aus.
- Installation einer Leuchtdioden-Anzeige im Pult, die durch Eingabe des Operateurs der Datenerfassungsanlage die aufgeschmolzenen Thermo-elemente im Tiegel und damit die Eindringtiefe der Schmelzfront anzeigt.
- Einbau einer Positionsanzeige für die Stellung des Sondenmagazins.
- Temperatur-Anzeige auf Zwei-Kanal-Analog-Schreiber am Pult.

Aufgrund der Funktionsprüfungen an der TSA während eines nachträglichen Versuches am 19.5.1984 konnte die Anlage unter dem Vorbehalt der Erledigung einiger unwesentlichen Punkte, als endabgenommen gelten:

Die vereinbarte Gewährleistungszeit von 6 Monaten beginnt damit am 20.5.1984.



### 3.3 Abgassystem

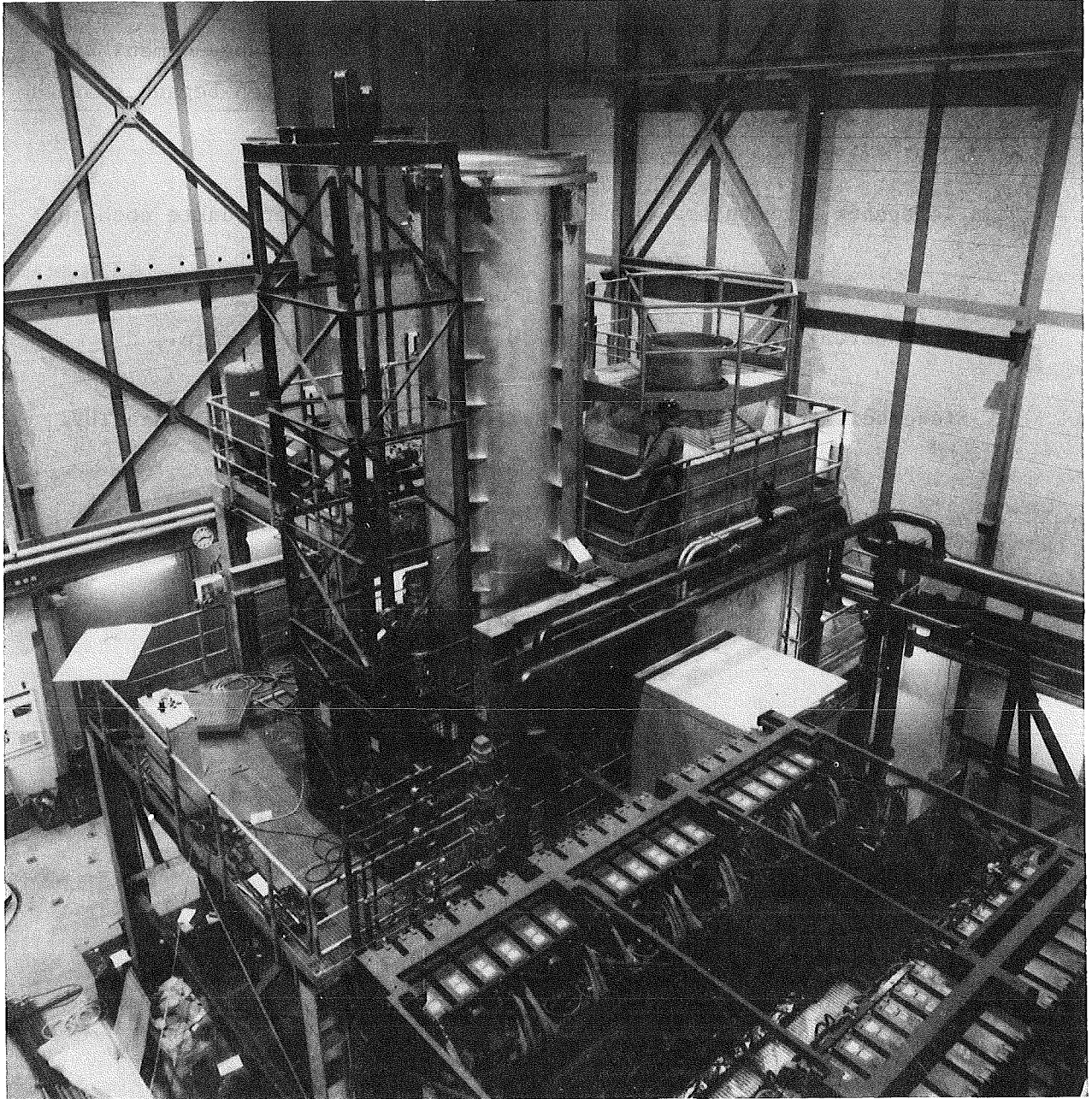
Das Abgassystem gilt zum Stichtag 7. April 1984 als endabgenommen. Die vertraglich festgelegte Gewährleistungszeit von 12 Monaten begann somit am 8.4.1984.

Zum Zeitpunkt der Abnahme stand die Erfüllung folgender Punkte noch aus:

- Übergabe der gesamten Dokumentationsunterlagen gemäß getroffener Vereinbarung, spätestens jedoch 30 Tage nach Abnahmetermin.
- Sicherheitstechnische Abnahme des 1000 kg-Hebezeuges durch den TÜV.

### 3.4 Rauchgasabsauganlage

Die Anlage gilt zum Stichtag 7. April 1984 als endabgenommen.



---

KIK

IT - 1983  
06.01.12

Anlage BETA  
Teilansicht

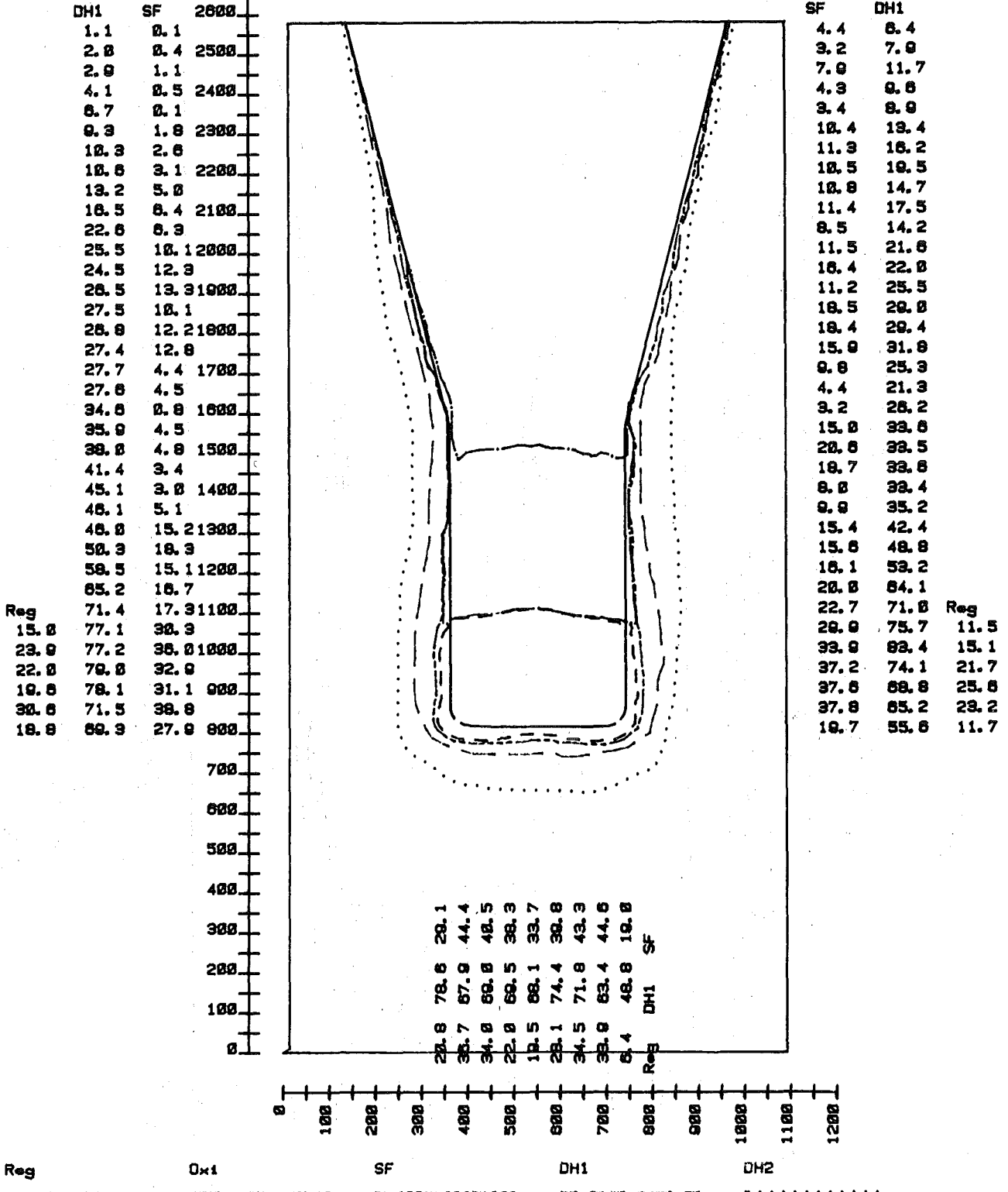
Abb. 1

Versuch-Nr.: A 1

Versuch-Dat.: 03.02.84

Tiegel-Nr.: B 6 untere Haelfte

Messen-Dat.: 16.02.84

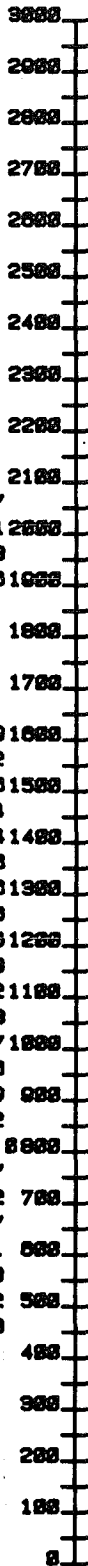


BETA - Abnahmeversuch A1:  
Tiegelschnittvermessung B6



IT-1984  
06.01.12

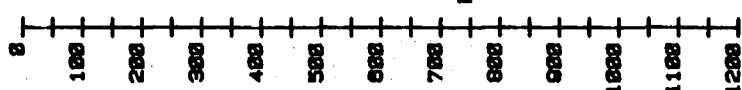
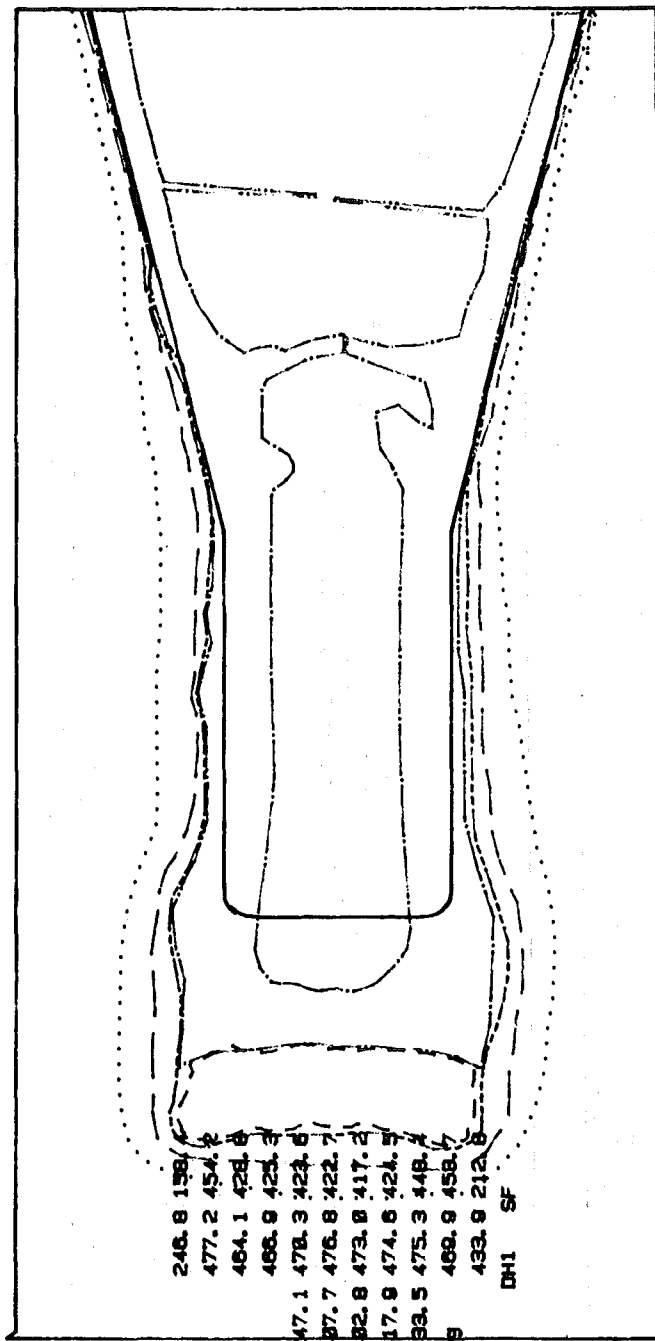
Abb. 2



Versuch-Nr.: A 2  
 Versuch-Dat.: 17. 03. 84  
 Tiegel-Nr.: B 7 obere Haelfte  
 Messen-Dat.: 29. 03. 84

DH1	SF
9.1	5.3
11.0	5.9
12.0	5.9
14.7	5.4
13.3	5.4
11.0	5.4
10.1	5.4
9.0	5.2
12.7	5.0
15.4	4.7
20.0	17.7
20.4	25.1
24.4	20.9
10.0	13.0
14.3	4.6
23.0	6.4
27.7	6.4
25.0	6.0
27.1	6.2
34.2	13.0
40.1	21.2
42.4	24.0
44.0	27.4
48.2	33.4
51.0	30.0
54.0	30.0
50.4	40.0
57.4	35.0
57.0	32.0
50.2	32.2
53.1	32.3
61.5	35.7
73.0	47.0
100.0	65.0
111.1	00.2
122.1	103.0
113.0	90.7
105.0	00.2
107.0	01.7
110.0	01.1
Reg 30.2	125.1
64.0	132.0
62.0	125.4

SF	DH1
0.6	11.4
10.0	17.4
1.0	13.0
0.3	11.1
0.2	7.7
0.3	5.2
0.0	4.5
0.0	4.2
3.5	4.5
3.4	5.4
2.1	7.0
1.1	0.7
2.5	10.4
3.3	12.1
3.3	12.4
3.1	11.0
2.0	11.4
1.0	15.3
1.5	22.0
7.0	20.0
11.0	34.5
11.0	34.2
17.7	34.7
10.0	35.0
10.4	37.2
25.0	30.0
30.4	42.3
24.0	44.0
10.3	47.7
23.0	50.4
20.0	53.4
35.0	62.3
43.0	71.3
54.0	01.3
71.0	05.4
03.5	110.4
00.0	110.2
04.0	100.7
71.1	05.0
57.5	05.5
54.1	04.0
50.4	04.5
40.2	03.4
02.0	02.0



Reg                      Dx1                      SF                      DH1                      DH2

BETA - Abnahmeversuch A2  
 Tiegelschnittvermessung B7

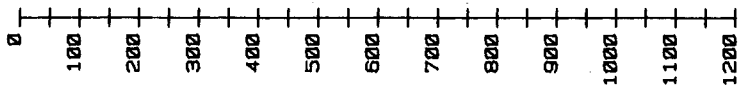
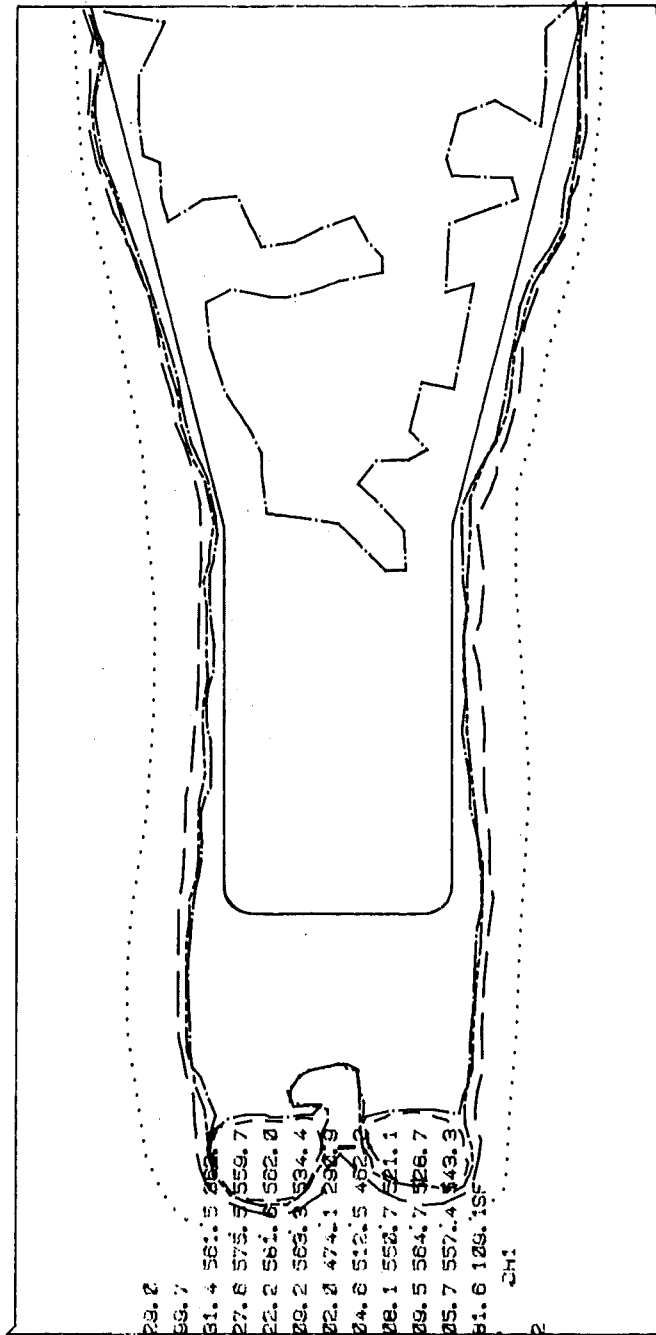
**KfK** IT - 1984  
 06.01.12  
 Abb. 3

Versuch-Nr. : A 3  
 Versuch-Dat. : 07.04.84  
 Tiegel-Nr. : B 8 untere Haelfte  
 Messen-Dat. : 11.05.84



DH2	DH1	SF
35.1	12.2	4.7
43.0	16.9	4.9
52.3	30.2	16.7
60.0	42.3	35.7
69.5	54.0	46.6
79.1	56.0	49.8
84.6	54.6	45.5
85.2	51.2	38.9
85.8	43.0	30.7
86.4	36.4	26.0
87.5	31.1	29.7
90.0	26.4	25.6
92.0	27.6	23.4
95.1	32.2	23.2
97.5	32.3	22.0
99.9	32.9	23.7
102.3	34.0	26.8
106.6	29.0	22.6
114.7	28.9	12.6
122.7	33.0	14.0
126.8	39.0	21.1
122.8	38.6	25.3
118.8	41.1	33.5
115.1	42.8	29.6
115.9	43.5	29.5
116.7	43.7	28.8
117.5	44.8	31.2
118.3	47.8	36.0
121.3	52.0	34.8
124.4	55.2	32.6
127.6	63.8	39.5
131.3	65.3	42.9
138.2	66.9	43.4
145.0	68.9	45.9
154.8	76.9	59.5
169.0	69.2	71.6
172.1	89.0	75.1
173.7	88.6	74.7
173.1	88.1	74.2
172.6	87.6	73.8
166.4	80.4	71.4
159.2	70.9	58.9
151.9	58.7	45.3
144.7	55.3	38.0
137.4	51.7	32.6
118.2	53.7	15.8
85.3		

SF	DH1	DH2
4.4	11.3	39.3
10.4	20.0	48.7
20.7	31.1	58.0
30.7	43.1	67.3
43.5	54.1	74.9
51.2	58.4	81.8
54.9	63.2	88.8
57.6	59.7	93.2
61.8	67.4	96.7
50.6	54.6	96.1
36.6	45.1	91.7
31.3	39.5	89.5
31.8	37.6	88.0
31.6	45.5	87.6
38.3	53.2	90.8
43.2	55.3	93.5
39.5	54.5	96.2
27.7	47.6	94.9
21.2	50.7	93.7
24.0	41.9	102.5
30.3	45.3	108.5
27.8	51.5	108.7
25.2	53.3	108.3
26.2	49.2	111.7
19.7	37.2	115.0
19.7	44.9	118.0
23.1	48.9	121.1
25.2	53.3	124.1
27.0	54.6	127.1
31.9	54.1	130.1
36.5	54.4	131.3
40.9	61.0	128.6
46.2	64.2	126.0
51.6	64.4	123.1
55.7	74.1	124.7
64.1	78.1	131.6
61.3	73.1	128.1
55.4	68.0	125.7
50.9	64.6	123.4
47.3	61.6	121.1
45.4	61.2	117.1
40.1	58.5	112.4
30.2	49.2	107.6
32.1	50.2	104.4
41.4	53.3	101.3
41.6	43.0	98.2
		78.9



Reg                      0x1                      SF                      DH1                      DH2

BETA - Abnahmeversuch A3  
 Tiegelschnittvermessung B8

**KIK** IT-1984  
 06.01.12

Abb. 4



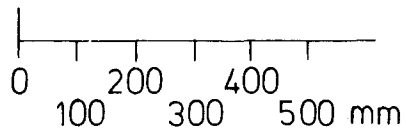
0 100 200 300 400 500 mm

KfK

IT - 1984  
06.01.12

BETA - Abnahmeversuch A1  
Tiegelschnitt B6

Abb. 5



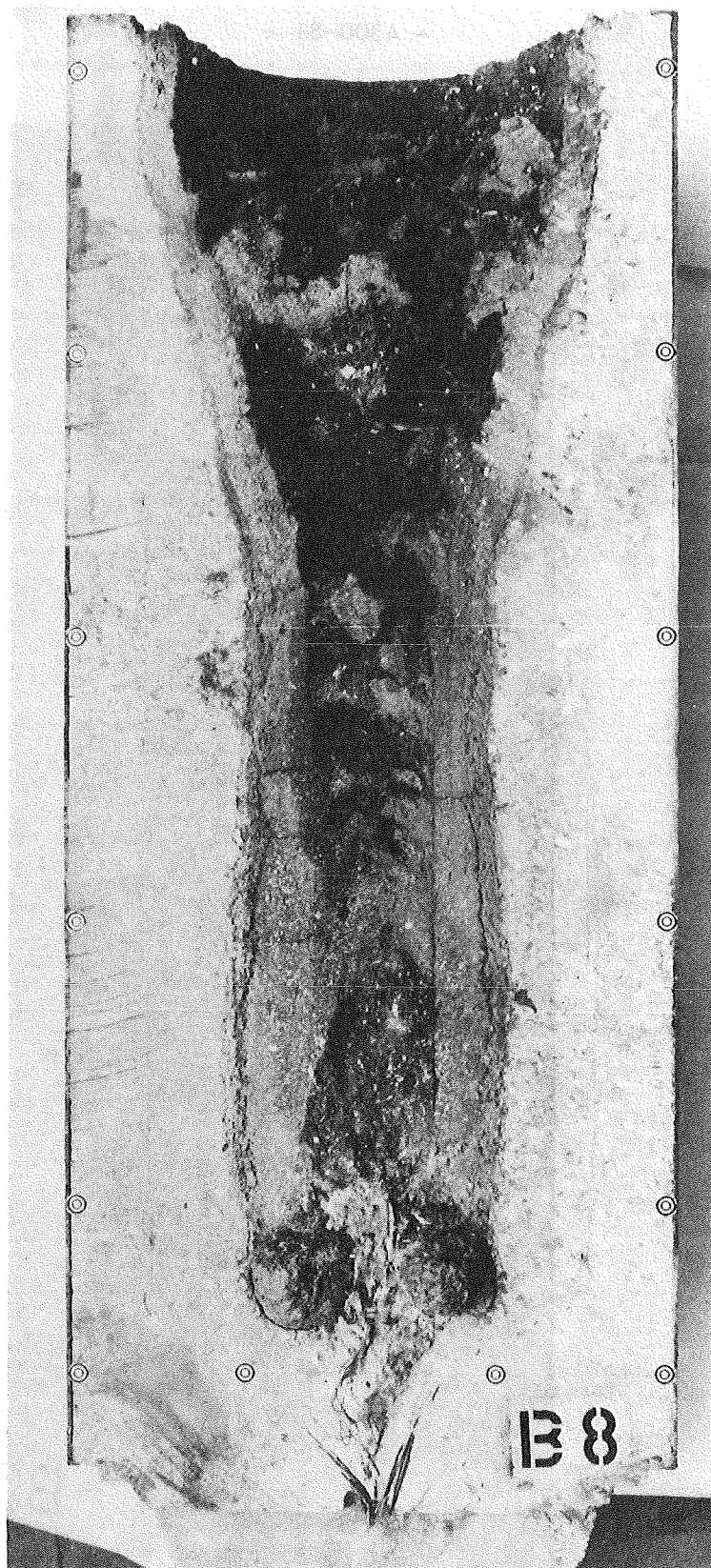
BETA - Abnahmeversuch A2  
Tiegelschnitt B7

kfk

IT-1984  
06.01.12

Abb. 6





0 100 200 300 400 500 mm

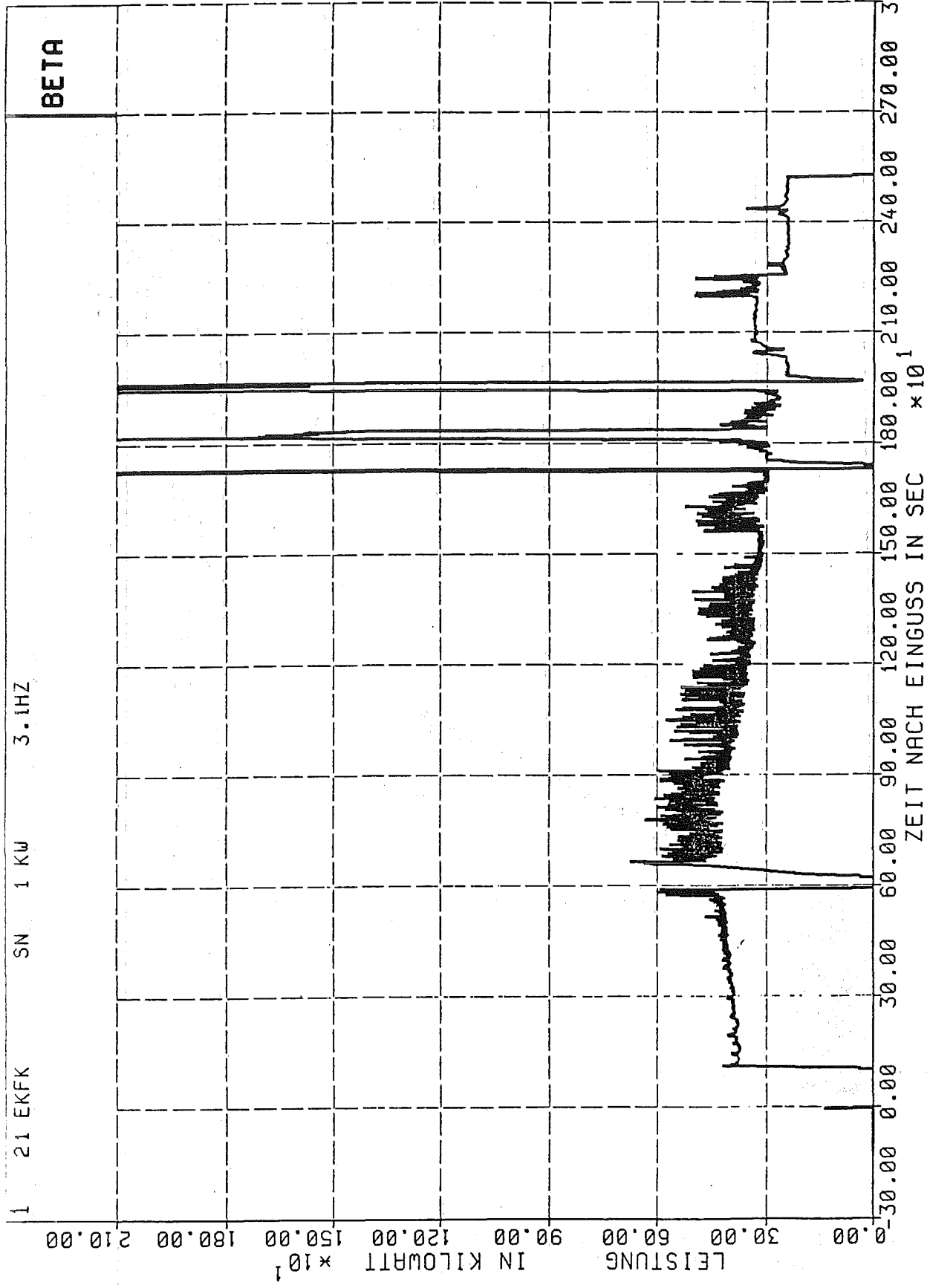
kfk

IT-1984  
06.01.12

BETA- Abnahmeversuch A3  
Tiegelschnitt B8

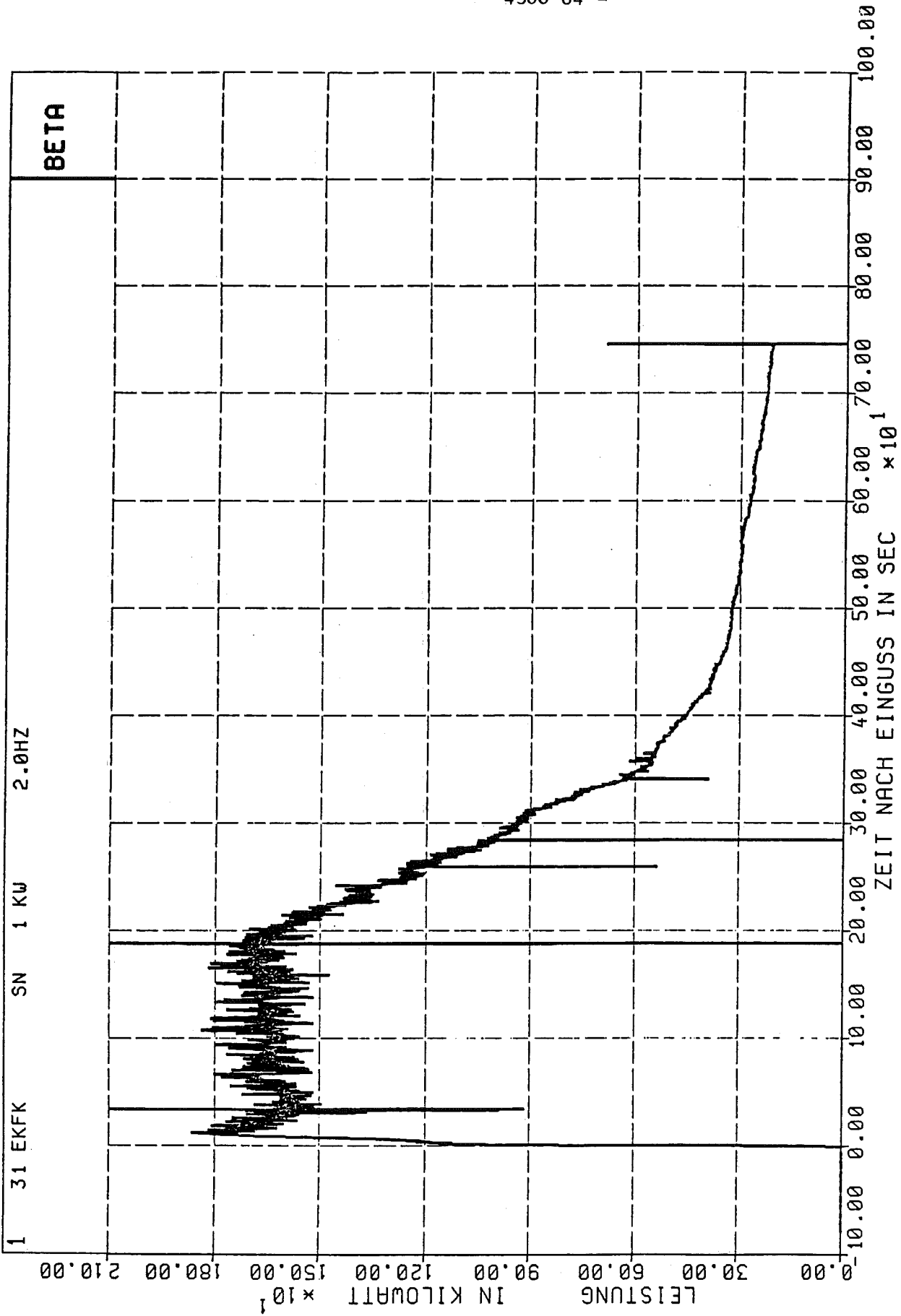
Abb. 7





IT-1984  
06.01.12

Induzierte Schmelzbadleistung Versuch A2 Abb: 8



IT-1984  
06.01.12

06.01.12/32A Hydrodynamische und thermische Modelle zur Wechselwirkung  
PNS 4331 einer Kernschmelze mit Beton  
(M. Reimann, S. Stiefel, IRB)

### 1. Vorbemerkung

Der Betrieb der BETA-Anlage wurde im Februar 1984 aufgenommen. Mit dem in der Versuchsmatrix festgelegten Programm soll der gesamte Ablauf der Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton anhand einer Serie von Versuchen realisiert werden, die jeweils typische Ausschnitte des Gesamtgeschehens repräsentieren. Bei diesen Versuchen soll der Zusammenhang zwischen Wärmeflußverteilung, Temperaturen der Schichten des Schmelzbades, Abkühlgeschwindigkeit, Leistungsdichte in der Schmelze und Schmelzbadzusammensetzung jeweils für den entsprechenden Ausschnitt simuliert werden. Mit dem BETA-Versuchsprogramm soll der WECHSL-Code sowie die bei anderen Institutionen entwickelten entsprechenden Rechencodes (CORCON, KAVERN) überprüft werden, mit denen dann die Extrapolation vom Integralexperiment auf den Kernschmelzenunfall in Reaktordimensionen vollzogen werden kann.

Die meisten der bisher in der BETA-Anlage ausgeführten und in der Tabelle 1 zusammengefaßten Versuche mit induktiver Nachheizung bezogen sich auf die sogenannte "Hochtemperaturphase", in der eine relativ hohe Leistungseinspeisung (300 kW bis 1,8 MW bei 300 bis 350 kg Metallschmelze) während der Versuchsdurchführung vollständig schmelzflüssige Schichten garantiert (Versuchsserien V0 und V1). Mit dem Experiment V2.1 wurde jedoch auch schon ein Versuch der "Niedertemperaturphase" durchgeführt, bei dem durch eine wesentlich geringere Leistungseinspeisung in der Größenordnung von 100 kW die Ausbildung von Krusten an den Berandungen der Schmelze und damit eine wesentliche Reduktion der an den Beton übertragenen Wärmeflüsse erwartet werden muß.

In den BETA-Versuchen mit hoher Leistungseinspeisung wurde festgestellt, daß im Vergleich mit WECHSL-Vorausrechnungen eine wesentliche Beschleunigung des vertikalen Eindringens der Schmelze in den Tiegel bei gleich-

zeitiger Abnahme der auftretenden maximalen radialen Erosion auftrat. Dies führte zu dem Schluß, daß im Bodenbereich des Tiegels ein verstärkter Wärmeübergangsmechanismus vorliegen muß. Im vorliegenden Bericht werden zunächst die Rückschlüsse auf die Modellierung des Wärmeübergangs von der Schmelze an den Beton dargestellt. Im Anschluß daran sollen die Ergebnisse der Nachrechnungen der bisher ausgewerteten Versuche vorgestellt werden, wobei ein quantitativer Vergleich mit den gemessenen Werten des Schmelzfrontfortschritts durchgeführt wird. Andere Meßwerte, wie Schmelzbadtemperaturen oder Zusammensetzung und Menge der freigesetzten Gase, sind zur Zeit noch nicht vollständig verfügbar; deshalb soll der entsprechende Vergleich in einem späteren Bericht durchgeführt werden.

## 2. Modellierung des Wärmeübergangs zwischen Schmelze und Beton

Schon frühzeitig wurde bei der analytischen Behandlung des Wärmeübergangs von der Schmelze an den Beton eine Analogie zu Siedevorgängen an beheizten horizontalen und vertikalen Flächen festgestellt. Wenn bei der Schmelze/Beton Wechselwirkung die über die Bodenfläche gemittelte Gasgeschwindigkeit hoch genug ist, wird ähnlich wie beim Filmsieden ein stabiler Gasfilm gebildet, der die Schmelze von der horizontalen Betonoberfläche separiert und von dem sich Gasblasen ablösen. Wenn die Schmelzbadtemperatur absinkt, wird die gemittelte Gasgeschwindigkeit entsprechend reduziert. Nach Unterschreitung eines gewissen Grenzwertes stellt sich an der Bodenfläche in zunehmendem Maße ein Wärmeübergangsmechanismus ein, der durch Benetzung der Betonoberfläche mit Schmelze und durch Einzelblasen in Analogie zum Blasensieden gekennzeichnet wird. Im Bereich stark geneigter und vertikaler Wände ist der Gasfilm wesentlich stabiler als im Bodenbereich; deshalb bleibt in diesem Bereich während der gesamten Wechselwirkung das Gasfilmmodell gültig.

Ist die Schmelze so weit abgekühlt, daß Krustenbildung einsetzt, so liegen zunächst dünne Häute vor, die sich mit den konvektiven Strömungen der Schmelze mitbewegen. Mit weiterem Krustenwachstum kann dann eine zunehmende Stabilisierung der Krusten beobachtet werden, so daß schließlich eine feste Wand gebildet wird. Durch die Krustenbildung

tiegelt sich die Schmelzschicht so ein, daß die Krustenaußenseite von der Betonoberfläche durch einen Gasspalt getrennt wird und die freigesetzten Gase und auch die erschmolzenen Betonbestandteile durch Löcher in der Kruste strömen. Der Kruste wird auf der Innenseite ein Wärmestrom durch die Mikrokonvektion der sich ablösenden Gasblasen zugeführt, und an der Außenseite wird ein Wärmestrom über den Gasspalt an den Beton abgeführt. Die Differenz zwischen den beiden Wärmeströmen legt das Anwachsen bzw. Wiederaufschmelzen der Kruste fest. In einer späten Phase können sich die Löcher in der Kruste schließen, so daß dann der innere Wärmestrom durch Naturkonvektion mit inneren Wärmequellen und der äußere Wärmestrom durch einen zweiphasigen Mechanismus mit Gasblasen in den abströmenden erschmolzenen Betonbestandteilen im Spalt zwischen Kruste und Betonoberfläche bestimmt wird.

All diese Wärmeübergangsmodelle wurden durch Modellexperimente im Labormaßstab unter Verwendung von einfach handhabbaren Simulationssubstanzen erarbeitet. Eine wesentliche Zielsetzung der BETA-Experimente ist es, die Gültigkeitsbereiche der verschiedenen Modelle festzulegen.

Ursprünglich wurde angenommen, daß ein stabiler Gasfilm im Bodenbereich der Schmelze dann existiert, wenn die mit der gemittelten Gasgeschwindigkeit gebildete Reynolds-Zahl über dem Wert

$$Re_{\min} = 0,09 \{Gr \rho_g / (\rho_l + \rho_g)\}^{1/2}$$

liegt, wie er in der Siedeliteratur angegeben wird. In zahlreichen WECHSL-Rechnungen wurde festgestellt, daß bis zum Einsetzen der Krustenbildung die Gasgeschwindigkeit so hoch war, daß sie über diesem Kriterium lag. Die BETA-Experimente mit Nachheizung zeigten jedoch ein verstärktes vertikales Eindringen der Schmelze in den Tiegelbeton, so daß ein verstärkter Wärmeübergangsmechanismus im Bodenbereich des Tiegels vorliegen muß, was den Schluß nahelegt, daß es schon bei höheren gemittelten Gasgeschwindigkeiten zu einem partiellen Zusammenbruch des Gasfilms kommen kann. Dies erscheint auch aus den folgenden Gründen plausibel zu sein: Allgemein, also auch bei Siedevorgängen oder bei sublimierendem Trockeneis in einem Flüssigkeitsbad, wird der Zusammenbruch des Gasfilms durch seine vorangehende hydrody-

namische Destabilisierung eingeleitet. Während aber beim Sieden oder Sublimieren durch die resultierend Reduzierung der Filmdicke und der daraus folgenden Verbesserung des Wärmeübergangs das System sofort mit einer erhöhten Verdampfungs- bzw. Sublimationsrate reagiert, die den Film zu stabilisieren versucht, unterbleibt bei der Schmelze/Beton-Wechselwirkung ein derartiger stabilisierender Effekt, da zwischen der Betonoberfläche und der Zone im Beton, in der die Gase freigesetzt werden, ein Bereich entgasten Betons liegt, durch den die Wärme durch Leitung transportiert werden muß. Es ist deshalb zu erwarten, daß es bei der Schmelze/Beton-Wechselwirkung schon bei Einsetzen der hydrodynamischen Destabilisierungseffekte des Gasfilms zu einer Benetzung der Betonoberfläche kommen kann. In der Folge kommt es zu einem zeitlichen Hin- und Herpendeln zwischen einem Gasfilm und der Ausbildung von Einzelblasen. Ferner können durch größere Steine des Betonzuschlags Flächen entstehen, aus denen kein Gas austritt, woraus örtliche Zonen resultieren, in denen die Schmelze den Beton benetzt. Beiden Effekten wurde dadurch Rechnung getragen, indem das Kriterium für einen stabilen Film aus der Siedeliteratur mit einem empirischen Faktor  $F > 1$  multipliziert wurde, so daß sich ein neuer Grenzwert der Reynolds-Zahl ergibt, bei dem die Benetzungsvorgänge einsetzen:

$$Re_{\min} = F Re_{\min \text{ sieden}}$$

Nach Unterschreitung dieses Grenzwertes wird die mit einem Gasfilm bedeckte Oberfläche im Bodenbereich zunehmend reduziert und der benetzte Bereich entsprechend erweitert, bis bei  $Re_{\min \text{ sieden}}$  der gesamte Bodenbereich mit dem Einzelblasenmodell berechnet wird. Wie schon erwähnt, wird an den Seitenwänden das Filmmodell mit einem kontinuierlich abströmenden Gasfilm beibehalten. Nach dem Einsetzen der Krustenbildung werden am Boden die benetzten Flächen zunehmend reduziert, bis nach Überschreitung eines Grenzwertes der Krustendicke kein direkter Kontakt der Schmelze mit der Betonoberfläche mehr möglich ist.

### 3. Nachrechnung der BETA-Versuche

Mit dieser Modellierung wurden die auswertbaren Versuche mit Nachheizung unter Variation des empirischen Faktors F für das Stabilitätskriterium nachberechnet, bis die Metallphase nach dem Abschalten der Heizung vollständig erstarrt war. Die zur Versuchsnachrechnung verwendeten Werte des Faktors F für das Stabilitätskriterium werden in Tabelle 2 zusammengefaßt. In den Abb. 1 bis 5 werden die folgenden Diagramme jeweils für die ausgewerteten sieben Versuche wiedergegeben:

Abb. 1: Profile für die in die Schmelze eingekoppelte Leistung, wie sie durch Approximation der Meßsignale gewonnen wurden. Daneben sind die Wärmeentbindung durch chemische Reaktionen und die Wärmeströme eingetragen, die insgesamt an den Beton bzw. über die Schmelzbadoberfläche abfließen.

Abb. 2: Profile für die berechneten Temperaturen in den Schichten der Schmelze und an der Schmelzbadoberfläche sowie die Solidustemperaturen der Schichten.

Abb. 3: Profile für die berechneten molaren Gasströme, wie sie die Schmelzbadoberfläche verlassen.

Abb. 4: Profile der berechneten vertikalen und radialen Schmelzfrontfortschritte im Vergleich mit den Versuchsergebnissen, wie sie aus den Versagenszeiten der an definierten Positionen in den Beton eingegossenen Thermoelementen ermittelt wurden.

Abb. 5: Vergleich der berechneten Endkaverne mit den Schmelzkavernen, wie sie jeweils nach dem Schneiden des Tiegels vermessen wurden.

Aus den in Abb.4 zusammengefaßten Diagrammen ergibt sich, daß die sehr unterschiedlichen Anfangsraten der Betonerosion mit gemessenen Werten zwischen 1mm/s und 0,05 mm/s durch die Rechnung mit guter Genauigkeit reproduziert werden. Aus den Rechnungen geht auch die Verringerung der radialen Erosion hervor, wenn die vertikale Eindringgeschwindigkeit verstärkt wird. Die geringe vertikale Eindringgeschwindigkeit des Versuchs V2.1 (Abb. 4g) kann befriedigend durch die Ausbildung von Krusten erklärt werden. Unbefriedigend ist zur Zeit noch die zur Versuchsnachrechnung notwendige sehr starke Variation des Stabilitätsfaktors F. Zur Zeit werden Anstrengungen unternommen, die Modellierung

in WECHSL so weiterzuentwickeln, daß eine wesentliche Reduzierung dieses Bereichs erreicht wird.

Versuch V2.1 wurde mit der bisher niedrigsten Leistungseinspeisung aller bisher ausgewerteten Versuche durchgeführt. Aber auch für den Versuch V0.2 mit dem nächsthöheren Leistungsniveau ist aus dem Tiegelschnitt (Abb. 5a) ersichtlich, daß bis zur Erstarrung eine ausreichende Menge der Metallschmelze im Bodenbereich vorhanden gewesen sein muß, um eine regelmäßige Schmelzkaverne mit ebenem Bodenbereich auszubilden. Versuch V0.3 wurde dagegen mit der höchsten Leistungseinkoppelung aller bisherigen Versuche durchgeführt. Nach etwa 300 s hatte sich die Metallmasse im Bodenbereich durch Einmischung von Metalltropfen in die Oxidphase derart verringert, daß sich zwei Metallfladen ausbildeten, die getrennt in den Beton eindringen. Ein derartiges "Vorausseilen" der Metallschmelze kann sicher nur bei den BETA-Experimenten auftreten, nicht aber beim Kernschmelzenunfall, bei dem der überwiegende Anteil der Nachzerfallswärme in der Oxidphase freigesetzt wird. Daraus folgt, daß die Versuche abubrechen sind, wenn die induktive Leistungseinspeisung einen starken Abfall aufweist. Andererseits kann die Versuchsnachrechnung in einer späten Phase der Versuche sicher noch verbessert werden, wenn in WECHSL ein realistisches Entrainmentmodell für die Einmischung von Metalltropfen in die Oxidphase implementiert wird, wobei dieser Effekt auch für den Kernschmelzenunfall relevant sein kann.

#### 4. Auswirkung auf den Kernschmelzenunfall

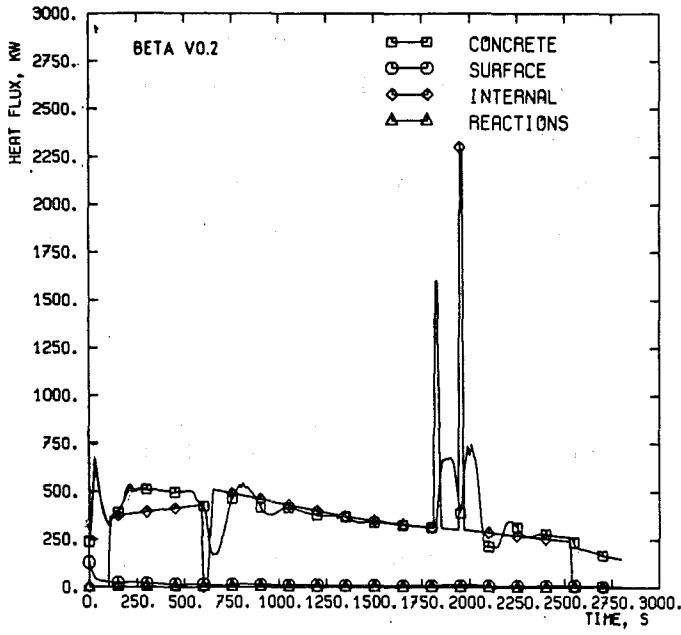
Beim Niederdruckpfad eines Kernschmelzenunfalls ergießen sich 80 t metallische und 130 t oxidische Schmelze mit einer Anfangstemperatur von 2400 °C in die Schildgrube des Reaktorfundaments. Mit dieser Anfangsbedingung wurden zwei Rechenläufe mit dem WECHSL-Code durchgeführt, wobei der empirische Faktor zu  $F = 1$  (Beibehaltung des Filmmodells) bzw.  $F = 10$  (Benetzungsvorgänge) festgelegt wurde. Die jeweilige Kavernenausbildung während 10000 s (2 h 47 min) wird in Abb. 6 wiedergegeben. Mit dem verstärkten Wärmeübergang im Bodenbereich ergibt sich zunächst eine viel stärkere Erosion. Dies führt zu einer wesentlich rascheren Abkühlung des Schmelzsees und damit zur früheren Ausbildung von Krusten an der Metallschmelze. Die Schmelzkavernen bei



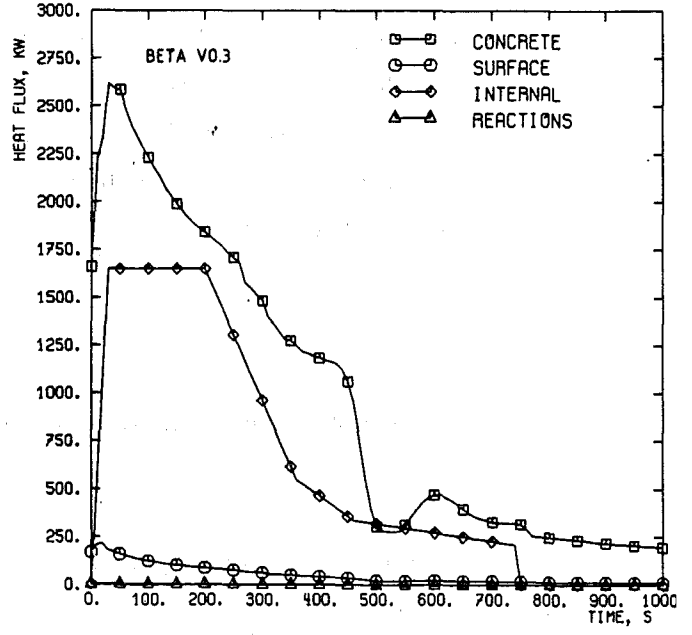
der Endzeit sind für beide Fälle nicht sehr unterschiedlich: Die Wandung der Schildgrube wird in beiden Fällen so stark geschwächt, daß der Sumpfwassereinbruch im Fall 1 nur etwas früher als im Fall 2 erwartet werden muß. Der weitere Verlauf des Kernschmelzenunfalls ist durch teilerstarnte Schmelzschichten charakterisiert. Dies unterstreicht die Bedeutung der Niedertemperaturversuche in der BETA-Anlage.

Versuch	Anfangsschmelze	Anfangstemperatur (geschätzt)	Niveau der Heizleistung	Stabilitätsfaktor
V0.2	300 kg Eisen	2200 °C	400 - 200 kW	5,6
V0.3	300 kg Eisen, 150 kg Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2200 °C	1700 kW	33,0
V1.2	200 kg Eisen, 140 kg Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2200 °C	gepulst	7,0
V1.3	200 kg Eisen, 150 kg Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + SiO <sub>2</sub>	1900 °C	1000 kW	15,0
V1.5	300 kg Stahl	2000 °C	500 kW	6,4
V1.6	300 kg Stahl, 50 kg Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + SiO <sub>2</sub>	2000 °C	1000 kW	13,2
V2.1	300 kg Stahl, 150 kg Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + SiO <sub>2</sub>	2000 °C	100 - 150 kW	2,5

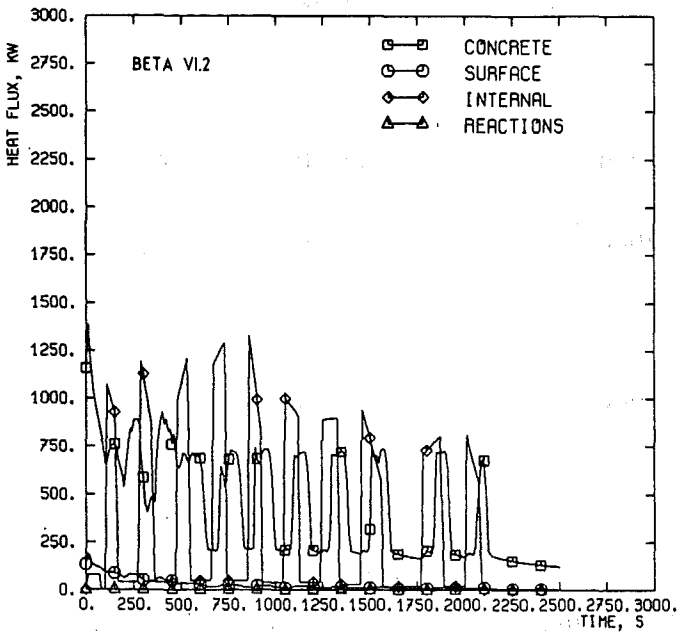
Tabelle 1: Ausgewertete BETA-Versuche und Stabilitätsfaktor F für die Versuchsnachrechnung



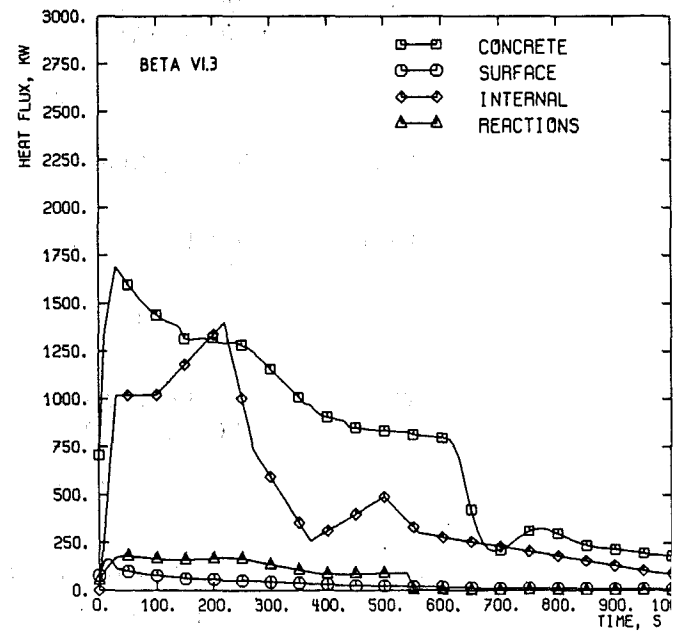
a) Versuch V0.2



b) Versuch V0.3

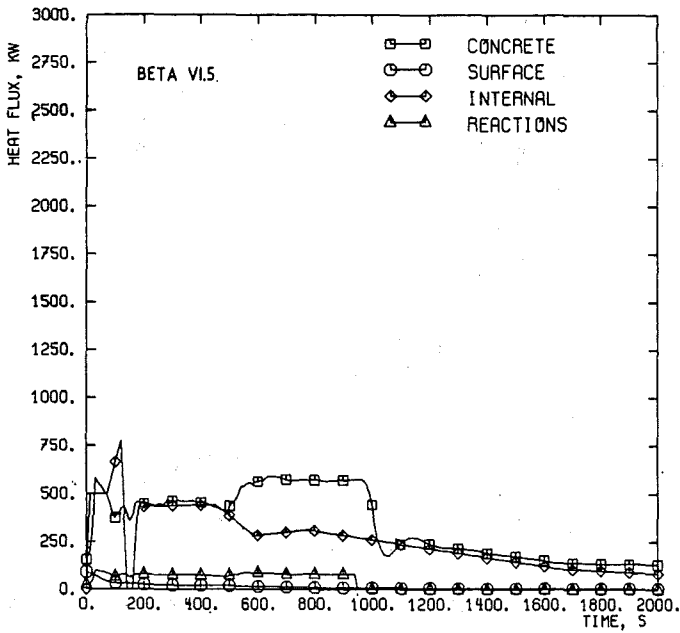


c) Versuch V1.2

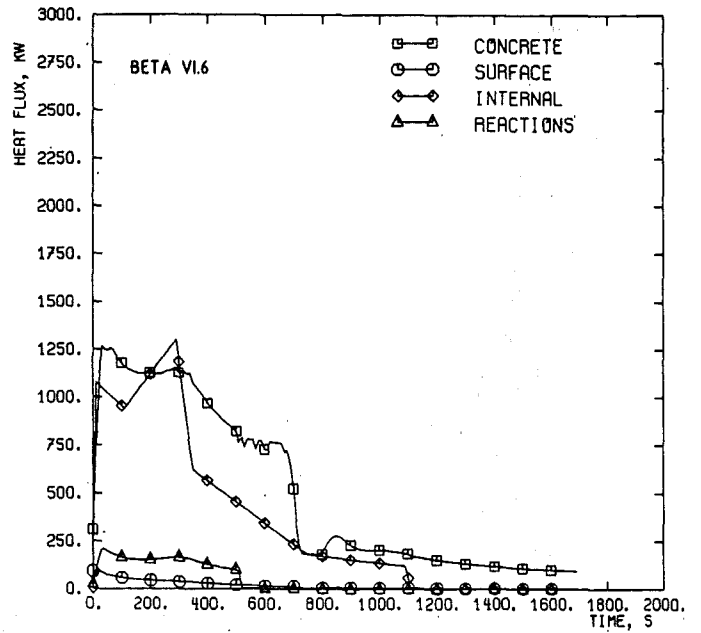


d) Versuch V1.3

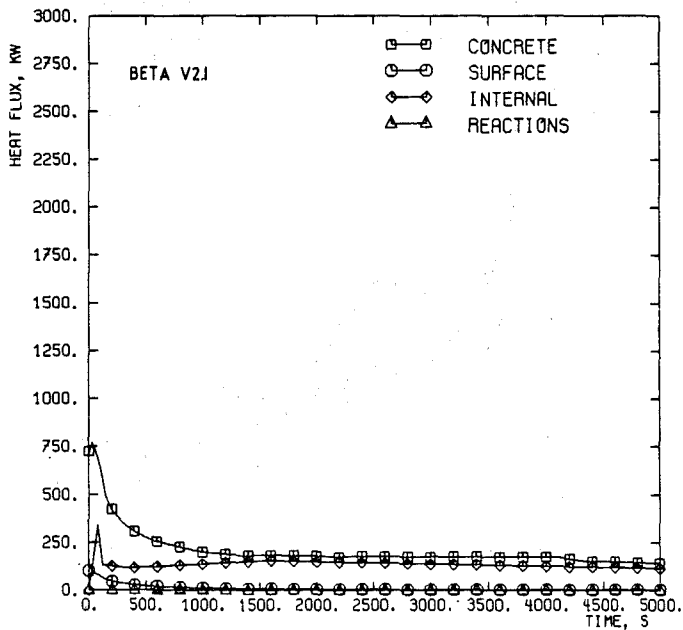
Abb. 1: Versuchsnachrechnung mit dem WECHSL-Code: Energiezufuhr und übertragene Wärmeströme



e) Versuch VI.5

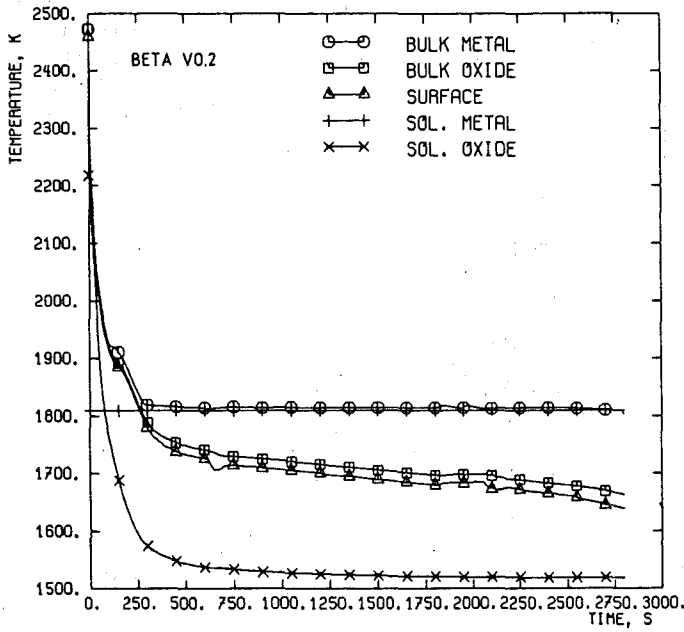


f) Versuch VI.6

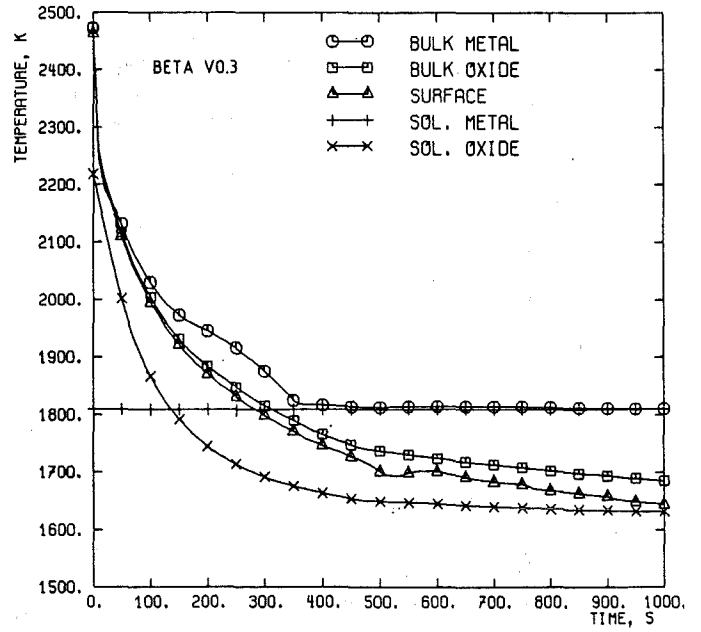


g) Versuch V2.1

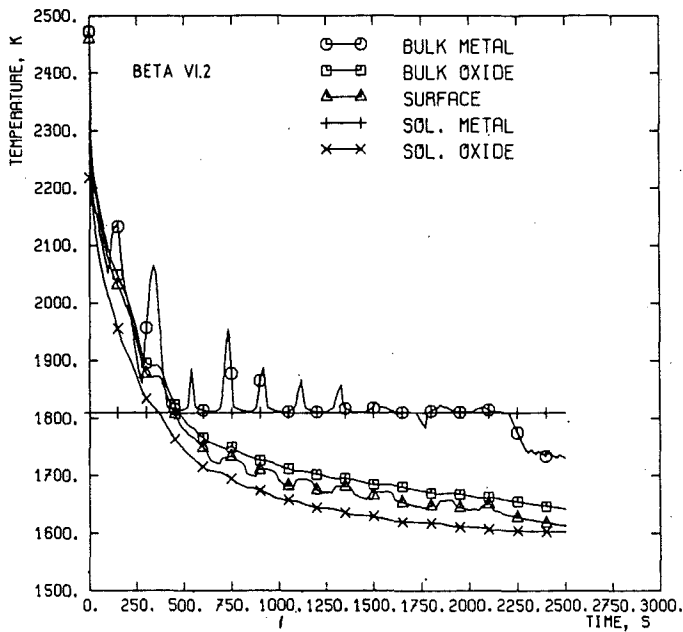
Abb. 1: (Fortsetzung)



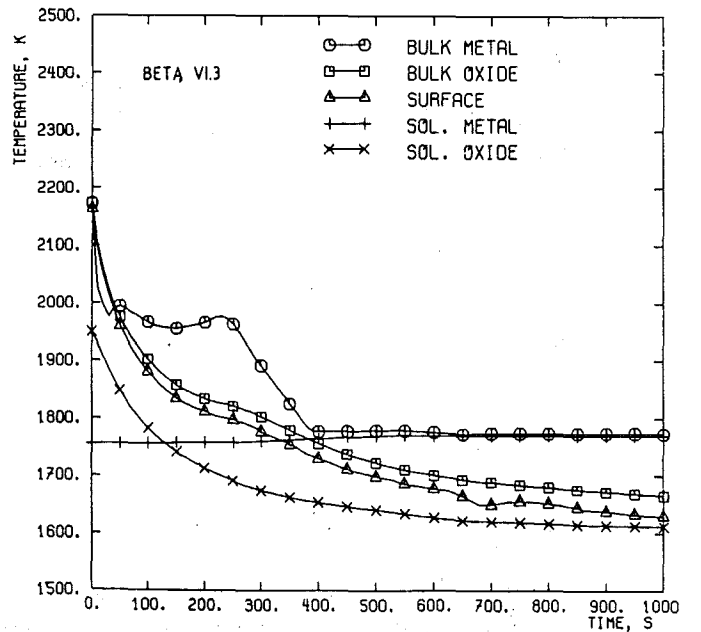
a) Versuch V0.2



b) Versuch V0.3

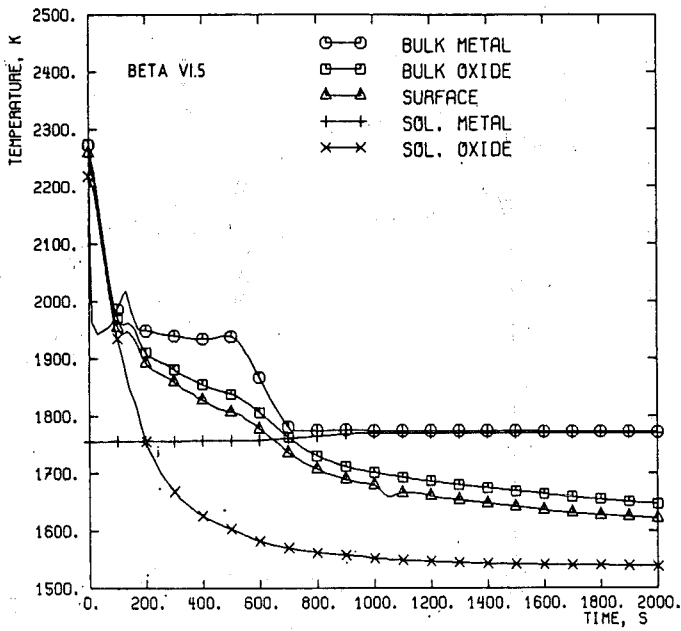


c) Versuch V1.2

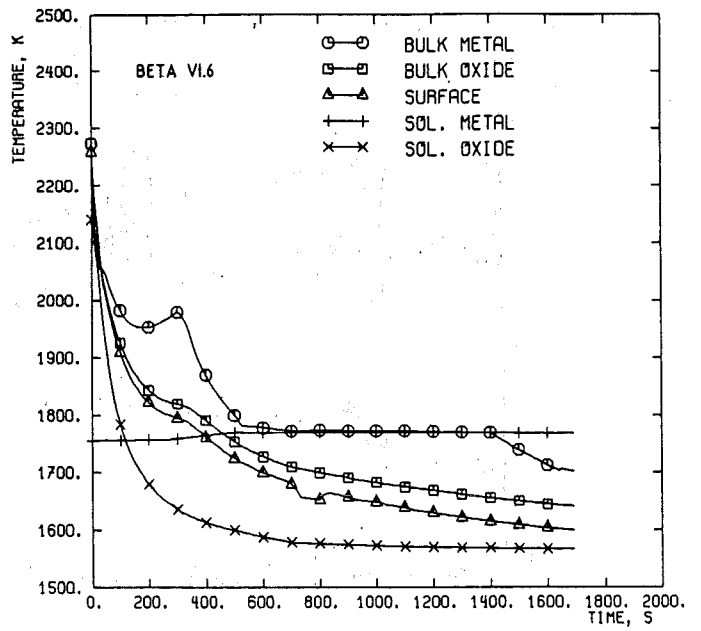


d) Versuch V1.3

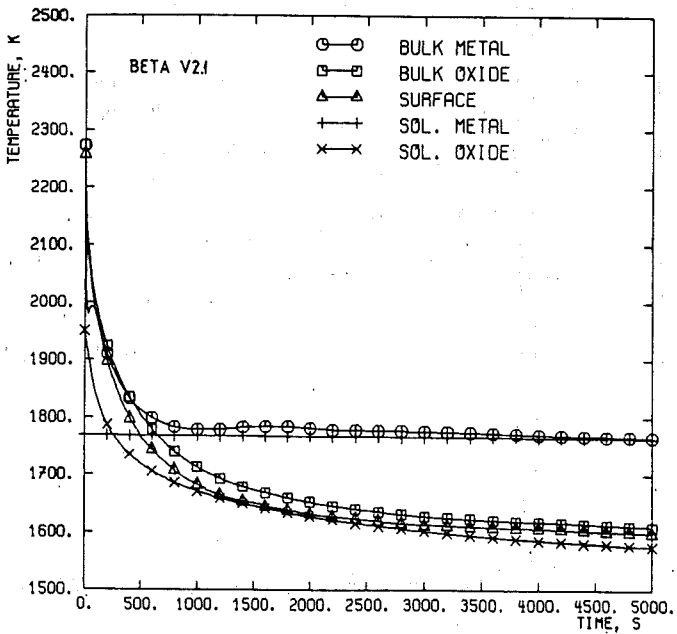
Abb. 2: Versuchsnachrechnung mit dem WECHSL-Code: Temperaturen



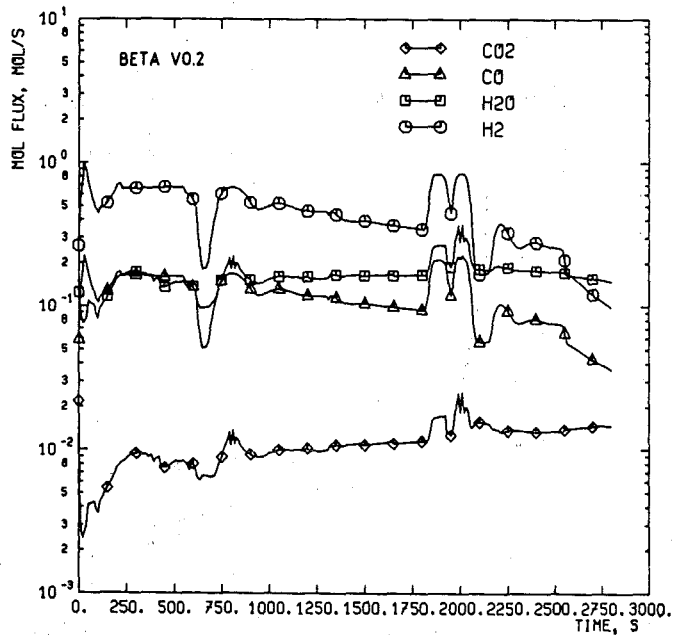
e) Versuch V1.5



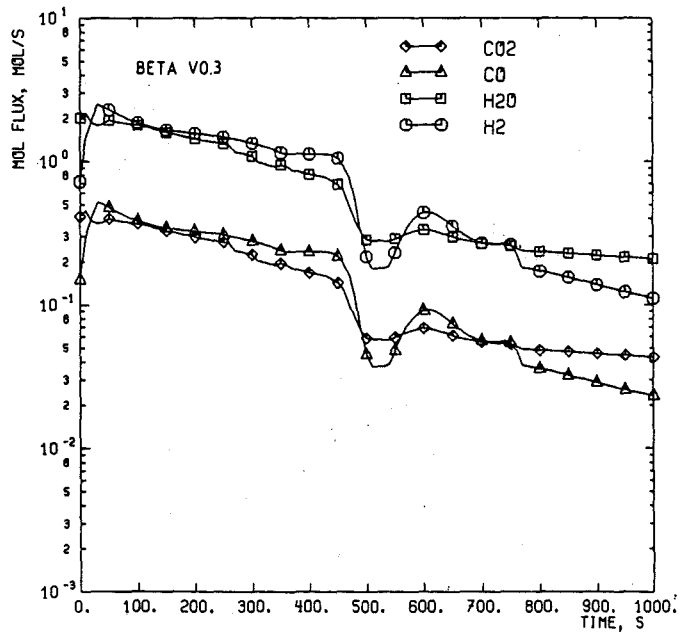
f) Versuch V1.6



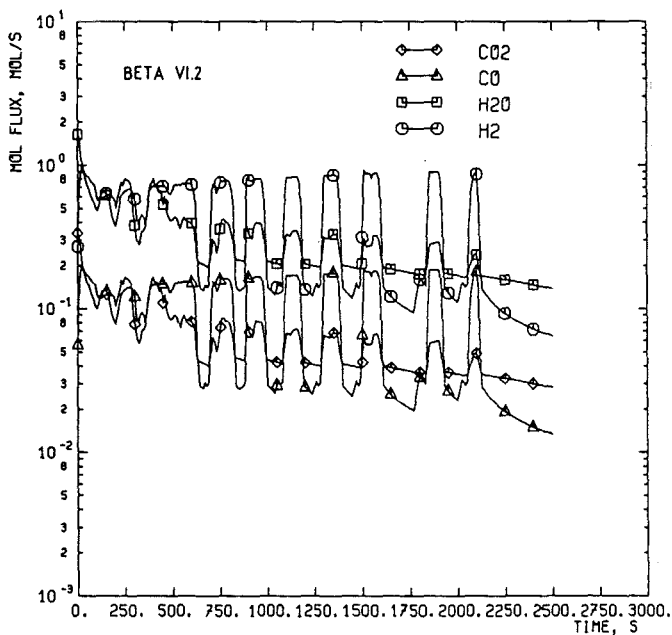
g) Versuch V2.1



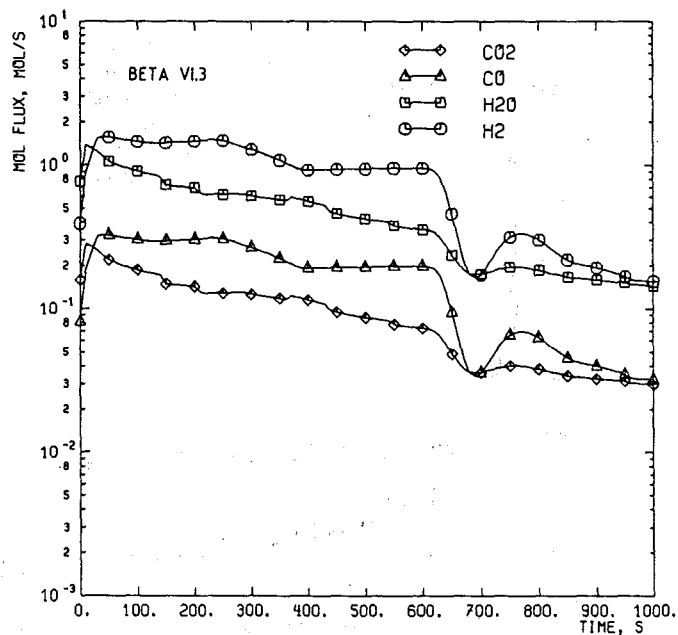
a) Versuch VO.2



b) Versuch VO.3

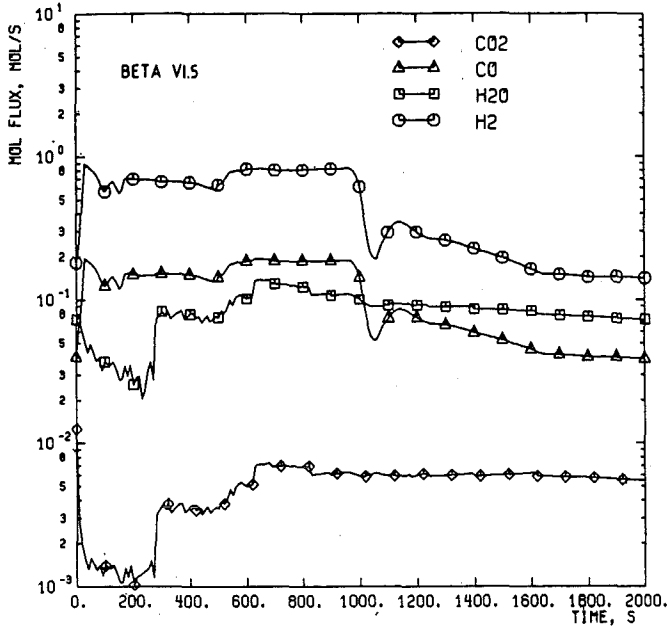


c) Versuch VI.2

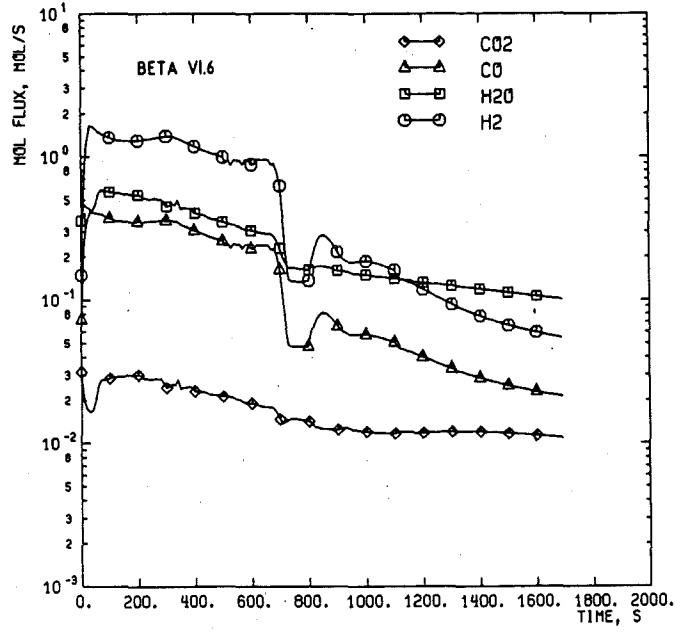


d) Versuch VI.3

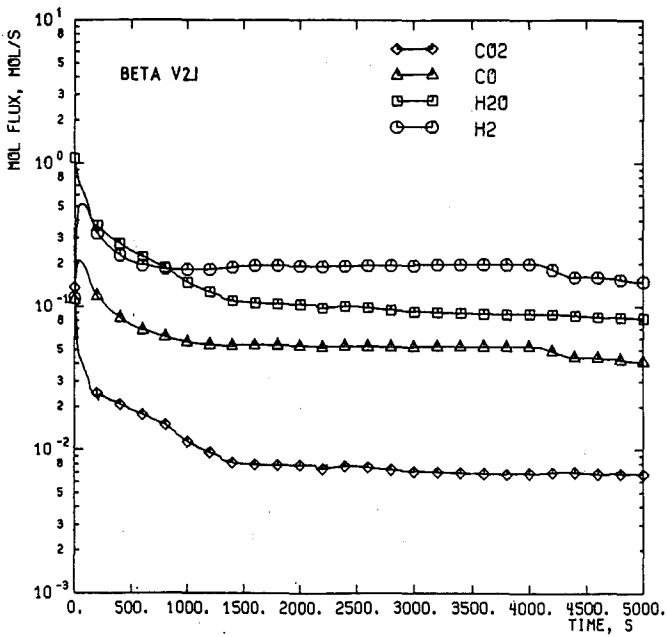
Abb. 3: Versuchsnachrechnung mit dem WECHSL-Code: Molare Gasströme



e) Versuch V1.5

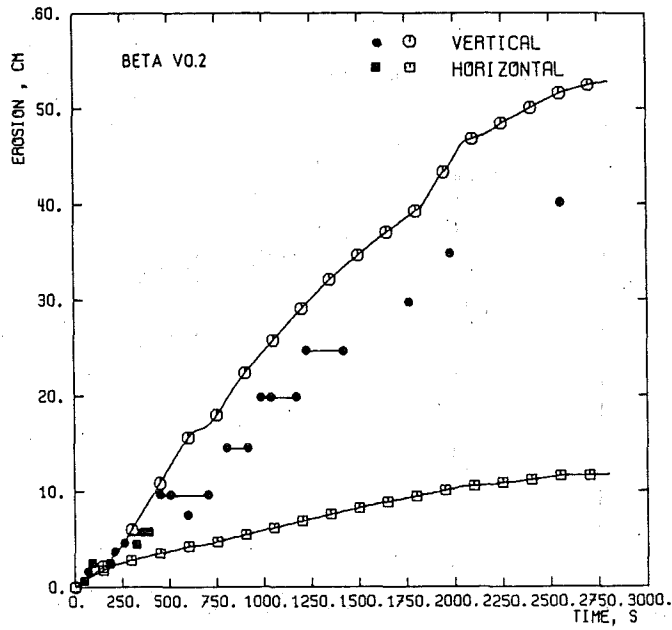


f) Versuch V1.6

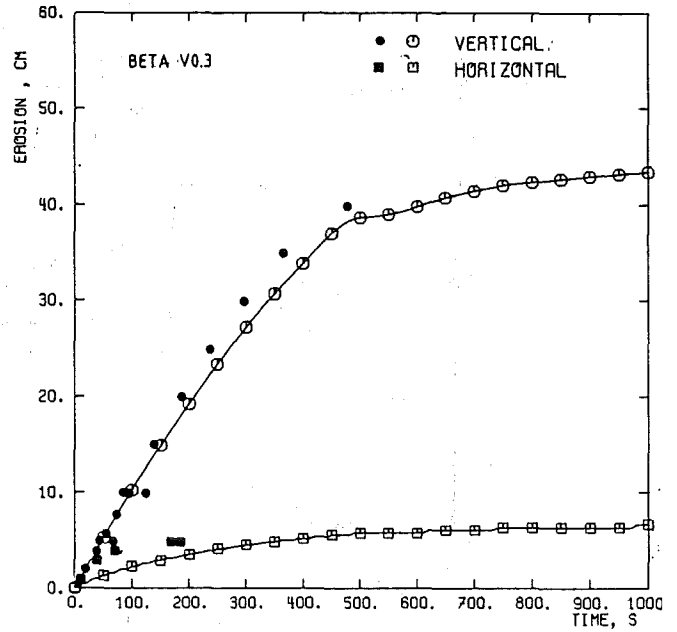


g) Versuch V2.1

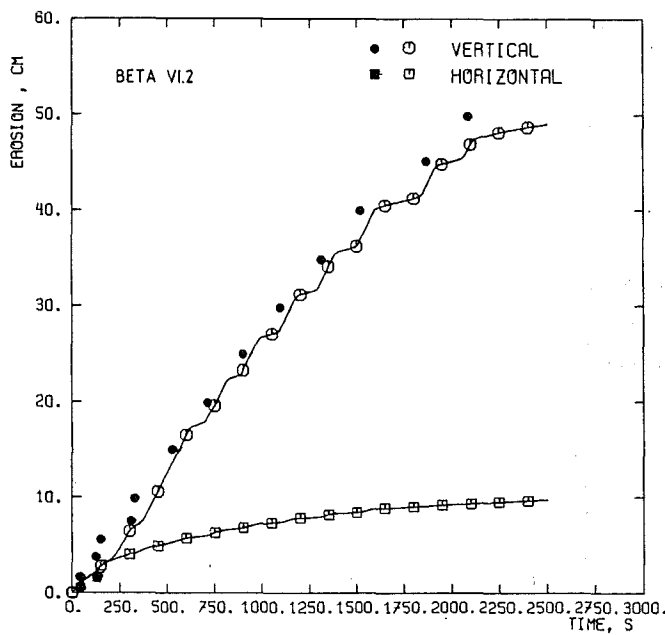
Abb. 3: (Fortsetzung)



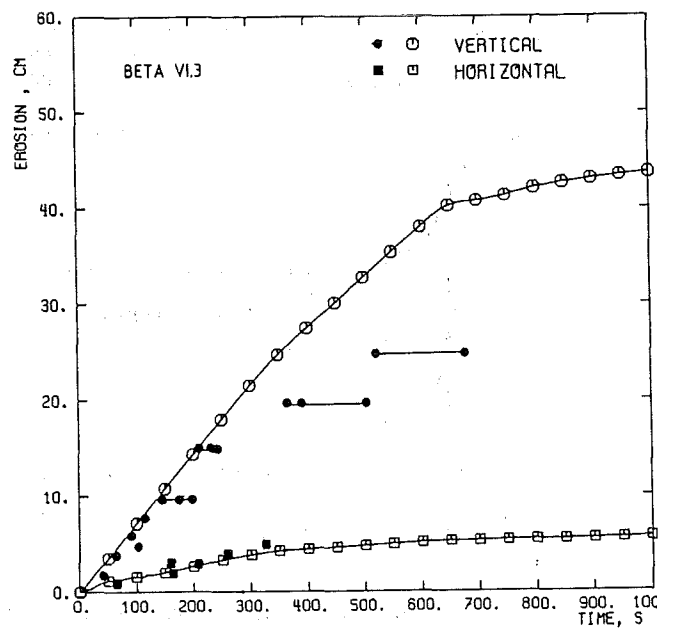
a) Versuch V0.2



b) Versuch V0.3



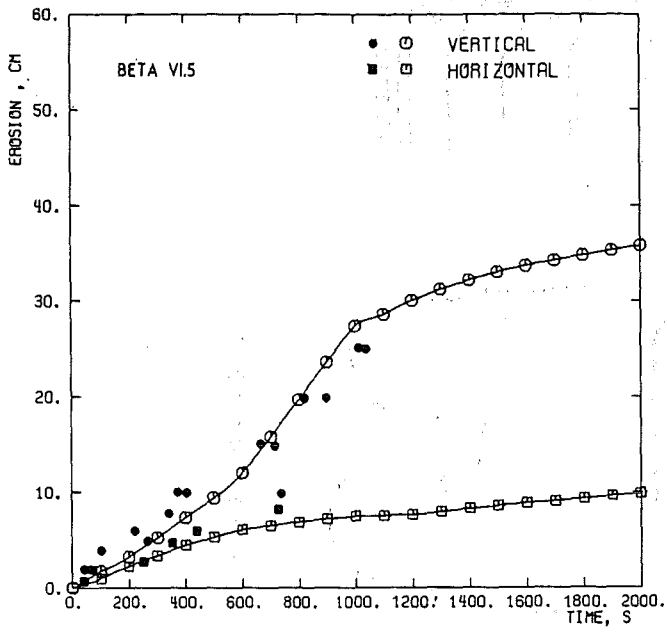
c) Versuch V1.2



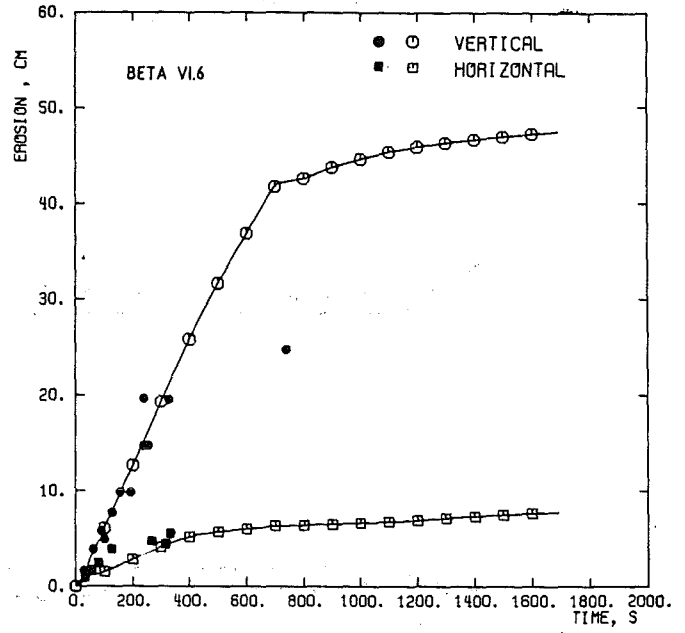
d) Versuch V1.3

Abb. 4: Versuchsnachrechnung mit dem WECHSL-Code: Vertikale und horizontale Betonerosion

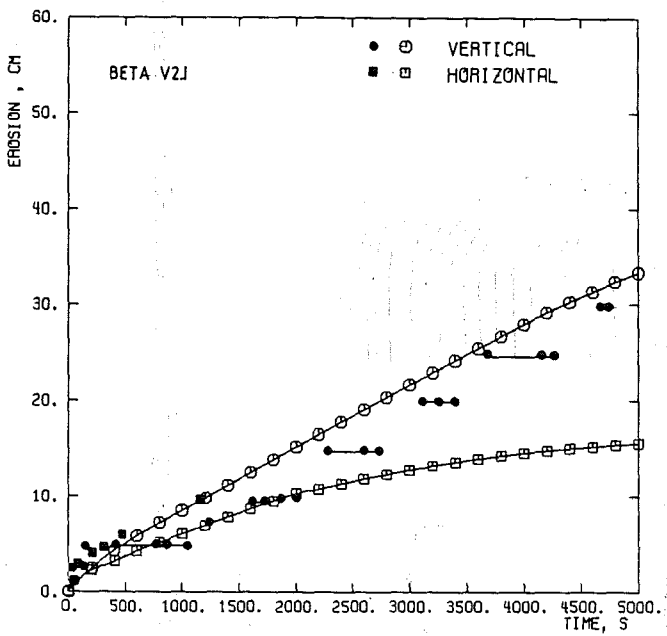




e) Versuch V1.5

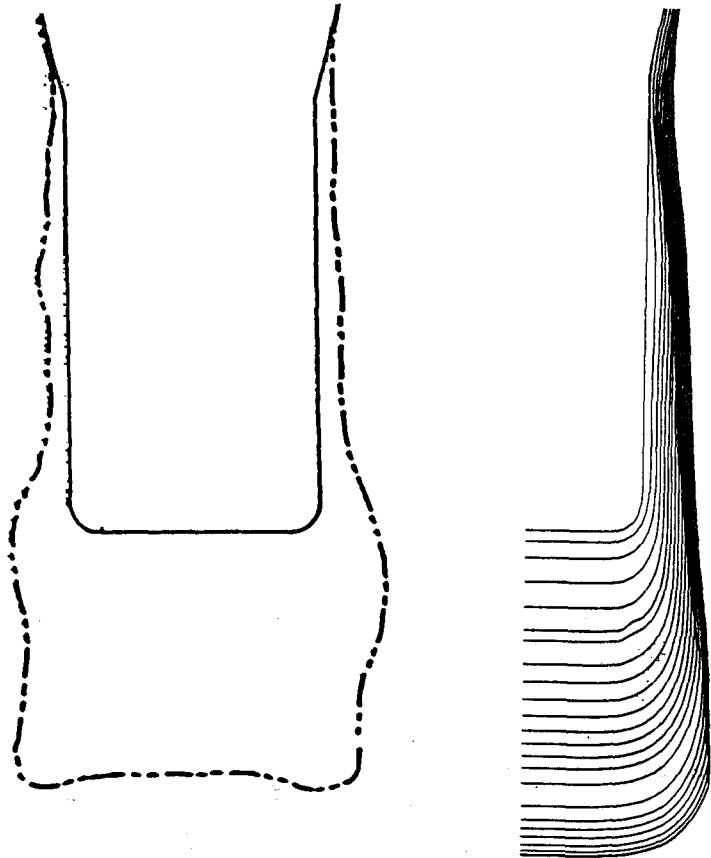


f) Versuch V1.6

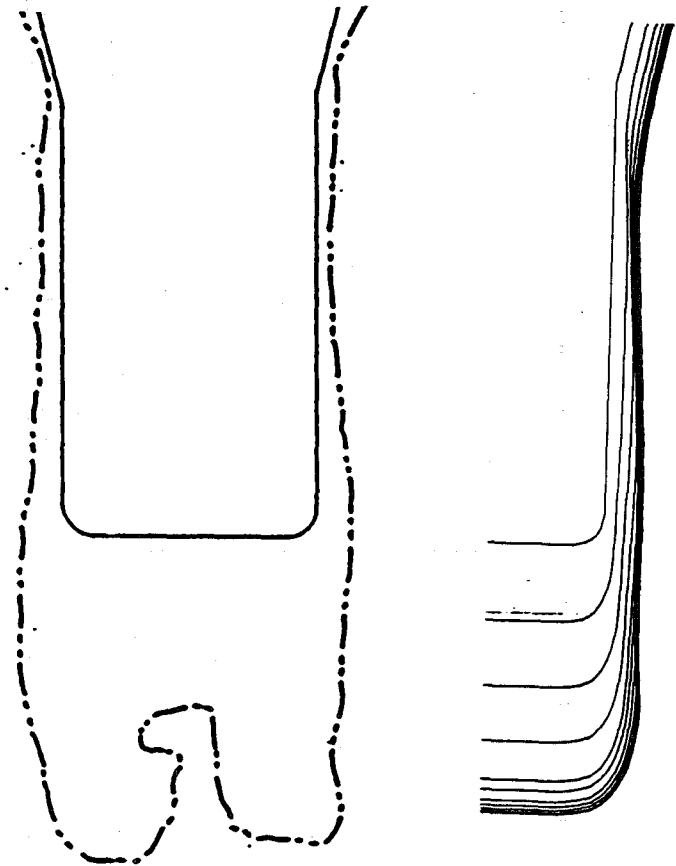


g) Versuch V2.1

Abb. 4: (Fortsetzung)

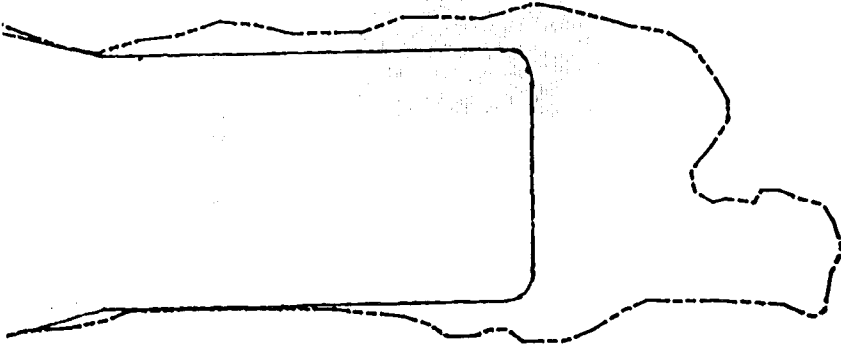


a) Versuch V0.2

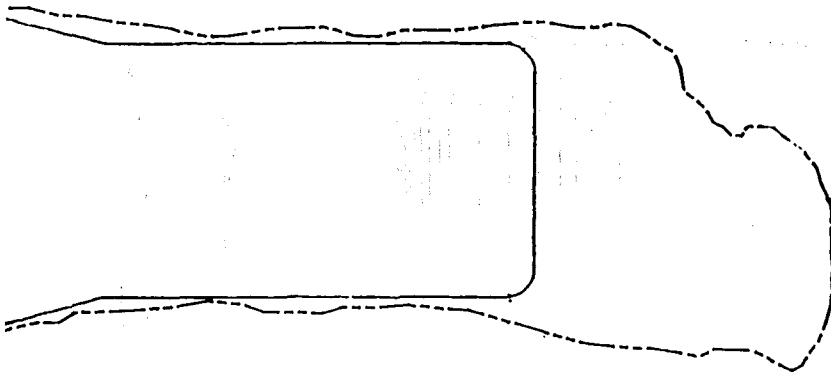


b) Versuch V0.3

Abb. 5: Versuchsnachrechnung mit dem WECHSL-Code: Kavernenausbildung

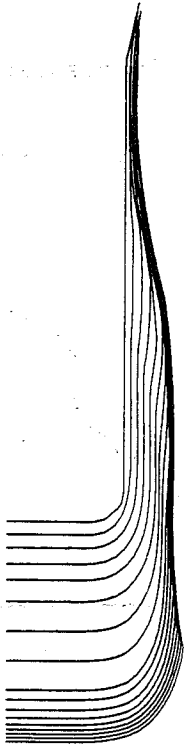


d) Versuch V1.3



c) Versuch V1.2

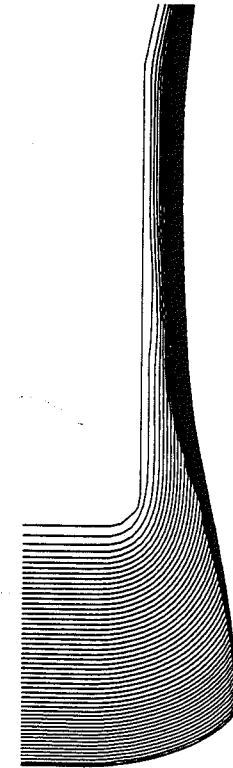
Abb. 5: (Fortsetzung)



e) Versuch V1.5



f) Versuch V1.6

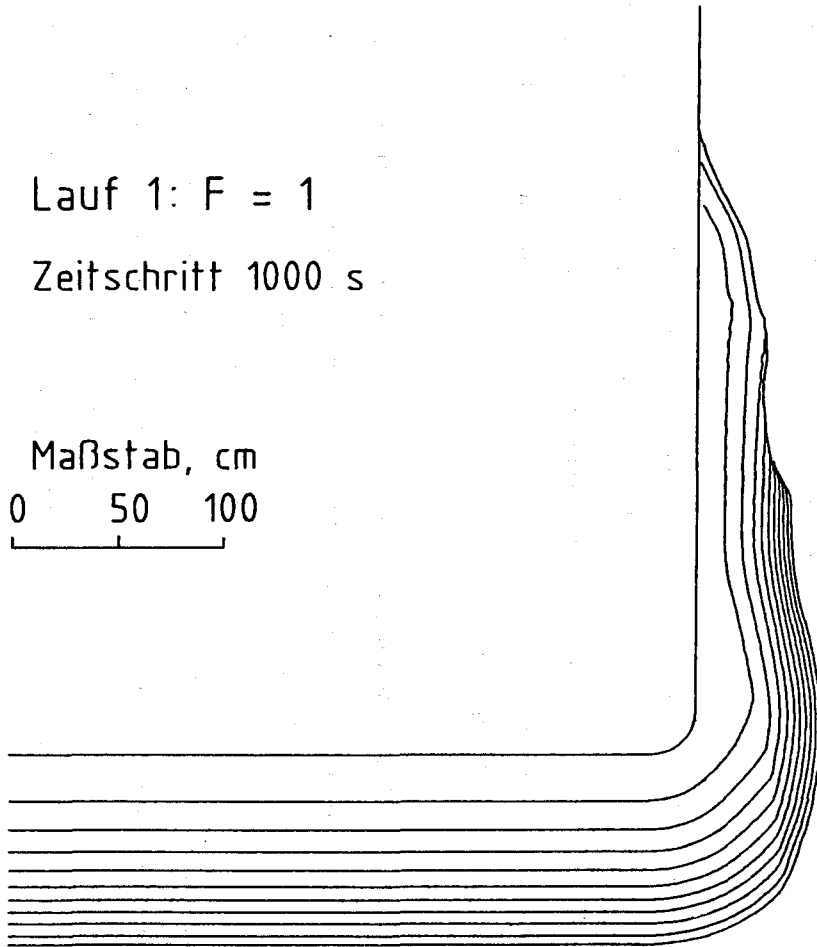


g) Versuch V2.1

Abb. 5: (Fortsetzung)

Lauf 1:  $F = 1$   
Zeitschritt 1000 s

Maßstab, cm  
0 50 100



Lauf 2:  $F = 10$   
Zeitschritt 1000 s

Maßstab, cm  
0 50 100

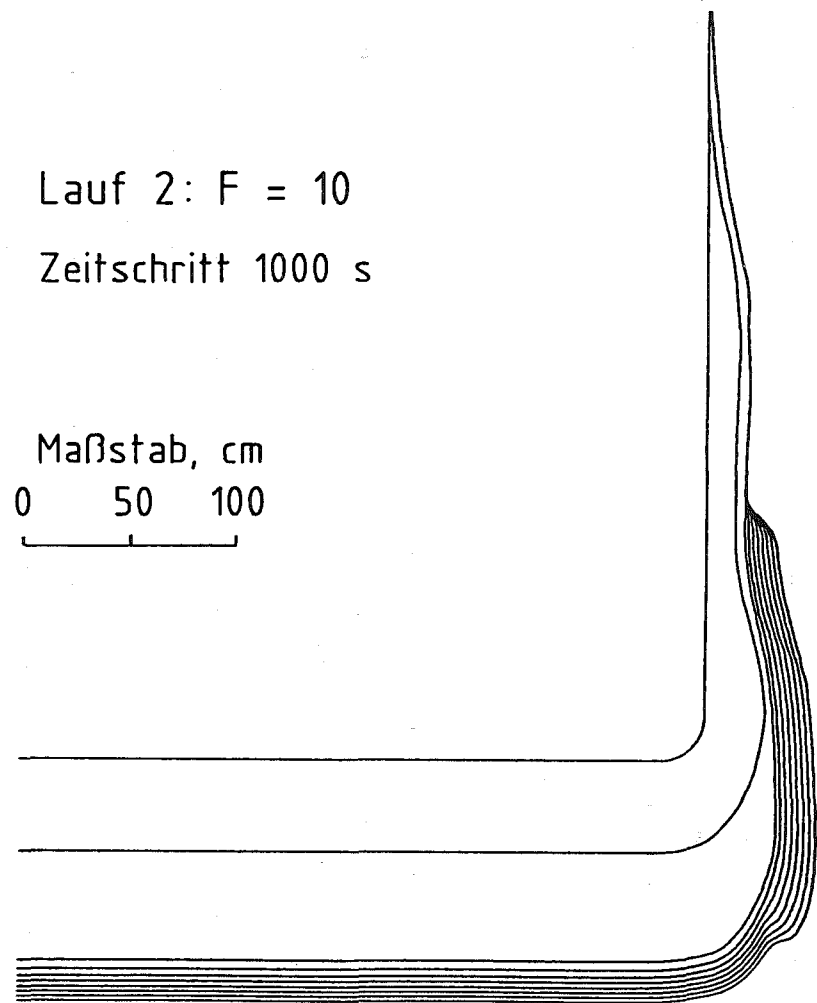


Abb. 6: Niederdruckpfad eines Kernschmelzenunfalls: Berechnung der Kavernenausbildung mit WECHSL

06.01.12/33A Modellentwicklung zur analytischen Beschreibung von Kern-  
PNS 4334 schmelzenunfällen  
(H. Alsmeyer, K. Dres, IRB; H. Benz, M. Oehmann, E. Schönthal,  
H. Ziegler, KTB)

## 1. Einführung

Die Analyse von Kernschmelzenunfällen in Leichtwassereaktoren wird im Hinblick auf die Risikobewertung durchgeführt. Sie wird in der Bundesrepublik gegenwärtig nicht als Basis von Genehmigungsverfahren angesehen.

Um die wichtigsten Mechanismen und Pfade der Freisetzung und Rückhaltung von Radioaktivität bei schweren Reaktorunfällen zutreffend beschreiben zu können, ist die eingehende Kenntnis des Ablaufs von Kernschmelzenunfällen notwendig /1/. Wegen der bedeutenden Rückhaltefunktionen des Sicherheitsbehälters bis zu dessen Versagen nach 4 bis 5 Tagen und der in diesem Zeitraum ablaufenden physikalischen und chemischen Prozesse, die eine Reduktion der in der Containmentatmosphäre vorhandenen Aktivität um 4 bis 5 Größenordnungen bewirken, wird bei derzeitigen Unfallablaufanalysen auf eine detaillierte mechanistische Beschreibung der Spaltproduktfreisetzung beim Kernniederschmelzen sowie der Spaltproduktrückhaltung im Primärkreis verzichtet und durch eine konservative Betrachtungsweise ersetzt.

Demgegenüber wird jedoch die Phase 4 des Kernschmelzenunfalles mit dem Schmelze-Beton-Kontakt im einzelnen modelliert. Hier stehen im Vordergrund des Interesses die Zusammensetzung der Containmentatmosphäre bis zum Überdruckversagen, das Aerosolverhalten, die Chemie der Spaltprodukte und die Versagensart des Sicherheitsbehälters.

Da hierbei der Schmelze-Beton-Wechselwirkung eine Schlüsselstellung zukommt, wurden bereits seit mehreren Jahren theoretische und experimentelle Untersuchungen angestellt, mit dem Ziel der Entwicklung der leistungsfähigen Rechen-codes WECHSL /2/ und KAVERN /3/. Diese Codes beschreiben mechanistisch das Schmelze-Beton-Verhalten unter Berücksichtigung der Erosion des Betons, der Gasfreisetzung und der chemischen Reaktionen. Zur abschließenden Verifizierung dieser Codes wurde die Versuchsanlage BETA konzipiert und gebaut. Im Berichtszeitraum wurde diese Anlage in Betrieb genommen und in einer Serie

von Experimenten eingesetzt. Anlagenkonzept und die ersten experimentellen Ergebnisse werden im folgenden beschrieben.

## 2. Beschreibung der BETA-Versuchsanlage

Die BETA-Versuchsanlage wurde als eine große Induktionsschmelzanlage konzipiert und gebaut, in der eine simulierte Kernschmelze über hinreichend lange Zeiten in einem Betontiegel gehalten und beheizt werden kann. Auf diese Weise können alle Prozesse der Schmelze/Beton-Wechselwirkung untersucht werden, beginnend mit sehr hohen Schmelzbadtemperaturen von mehr als 2000°C über das Einsetzen von Krustenbildung bis zur vollständigen Erstarrung der Schmelze.

Die Grundidee der Konzeption besteht darin, den gesamten Ablauf der Schmelze-Beton-Wechselwirkung, der sich im hypothetischen Reaktorunfall über Tage und Wochen erstrecken würde, in eine Abfolge von Einzelexperimenten zu zerlegen, die auf dem jeweils entsprechenden Temperaturniveau unter quasi-stationären Bedingungen durchgeführt werden. Die Schmelze wird dabei intern beheizt mit Hilfe einer Induktionsanlage sehr hoher Leistung, die es erlaubt, die Temperatur der Schmelze, entsprechend den Anforderungen an das jeweilige Experiment, auf einem mehr oder minder hohen Niveau zu halten. Diese Experimentführung besitzt den großen Vorteil, daß die komplexen physikalischen und chemischen Vorgänge in größerem Detaillierungsgrad untersucht werden können als dies bei gleitenden Temperaturen möglich wäre. Weiterhin stimmen dann die Zeitskalen im Experiment mit denen beim Unfall näherungsweise überein. Demzufolge sind auch die Wärmeströme in den Beton sowie Schmelzfrontfortschritt und die meisten anderen wichtigen Vorgänge 1:1 Simulationen des Kernschmelzenunfalls, was für die Anwendbarkeit der experimentellen Ergebnisse von großer Wichtigkeit ist. Die Übertragung der BETA-Ergebnisse auf den Kernschmelzenunfall geschieht schließlich mit Hilfe der verifizierten Rechenprogramme.

Abb. 1 zeigt die Charakteristika der Versuchsanlage:

- Die Schmelze (1) wird in einem Betontiegel (2) gehalten, der aus silikatischem Reaktorbeton besteht und das Reaktorfundament hinreichend gut simuliert. Der Anfangsdurchmesser der Kaverne ist mit 38 cm so groß gewählt, daß Gasfreisetzung und Wärmeübergang am Boden des Tiegels nicht durch die senkrechte Wandung beeinflusst werden. Die Außenabmessungen des Tiegels sind 108 cm Durchmesser bei 280 cm Höhe.

- Die Schmelze besteht aus bis zu 350 kg metallischer und 350 kg oxidischer Phase. Die Metallzusammensetzung entspricht im Hinblick auf Eisen-, Chrom- und Nickel-Anteile dem Reaktorfall. Die Oxidschmelze besteht aus einem Gemisch von Aluminium- und Siliziumoxid, wobei der letztere Anteil sich durch die Betonzersetzung im Experiment erhöht. Die unterschiedlichen Stoffeigenschaften der Oxidschmelze gegenüber der Reaktorsituation mit  $UO_2$ -Silikat-Gemischen werden in den Rechenprogrammen durch physikalisch begründete Modellierung berücksichtigt, stellen aber keine Einschränkung der Experimente dar, vor allem, da in beiden Fällen die Silikatzumischung die Oxideigenschaften bestimmt. Die Schmelze wird im Reaktionstank (5) durch eine Eisen-Thermit-Reaktion erzeugt und danach in den Tiegel eingegossen.
- Die Schmelze wird induktiv beheizt, um die charakteristischen Temperaturen eines bestimmten Experimentes aufrecht zu halten. Der intensive Wärmeübergang in der stark turbulenten, gasdurchströmten Schmelze sorgt für die Übertragung der zunächst im Stahl freigesetzten Heizleistung an die Oxidschmelze und gewährleistet, daß nur ein geringer Temperaturunterschied zwischen Metall und Oxidphase existiert. Die maximal in die Schmelze einkoppelbare Leistung beträgt 1,7 MW. Der große Außendurchmesser des Tiegels, der aus Gründen der ungestörten radialen Schmelzfrontausbreitung erforderlich ist, begrenzt die Effektivität der Heizung, so daß eine Bruttoleistung von 8,4 MW bei 1 kHz Mittelfrequenz zur Verfügung gestellt werden muß.
- Die Dauer eines einzelnen Experiments wird durch die maximal mögliche Erosion des Betontiegels begrenzt. Bei maximaler Heizleistung beträgt sie ca. 7 Minuten, bei Temperaturen dicht oberhalb des Erstarrungsbeginns etwa 30 Minuten, und sie erhöht sich auf mehrere Stunden bei erstarrter oder teil-erstarrter Schmelze.

Der Betontiegel (2) mit der Schmelze (1) wird von der Induktionsspule (3) umschlossen. Die Leistungsversorgung des Induktors mit der sehr großen Kondensatorenbank ist hier nicht eingezeichnet. Die Tiegelhaube und das Abgasrohr (4) führen alle Gase, die bei der Schmelze-Beton-Wechselwirkung entstehen, zur physikalischen und chemischen Analyse. Oberhalb des Betontiegels erkennt man den Thermit-Reaktions-Behälter (5) mit einer steuerbaren Gießrinne und den Sondenbehälter (6) zur Analyse des Schmelzbades.



Die wichtigsten Messungen während des Experiments sind:

- Heizleistung in der Schmelze.
- Temperaturen und Schmelzfrontfortschritt im Betontiegel, gemessen durch 110 Thermoelemente im Tiegel an bestimmten Positionen. Das Versagen eines Tiegel-Thermoelements zeigt die jeweilige Position der Schmelzfront an. Zusätzlich detektieren Feuchtefühler Änderungen des Wassergehalts im Beton.
- Temperaturen der Schmelze. Diese werden zu vorgewählten Zeiten durch W-Re- Thermoelemente, die als Tauchsonden ausgebildet sind, in Metall- und Oxid- phase gemessen. Weiterhin werden während des Experimentes Proben aus der Schmelze gezogen.
- Gasfreisetzung und -Zusammensetzung. Diese werden durch on-line und off- line Massenspektrometer bestimmt, wobei Argon als Schutz- und Trägergas benutzt wird. Die Konzentration der Aerosole im Abgas wird durch ein Streu- lichtverfahren gemessen und die Zusammensetzung der Aerosole wird nach dem Versuch aus Filterproben bestimmt.
- Weitere Messungen betreffen den Anfangszustand der Schmelze (Masse, Tem- peratur) und die Oberflächentemperatur des Schmelzbades mit Pyrometern. Film- und Fernsehkameras blicken während des Experiments auf die Schmelze und geben wertvolle Informationen über die Gasabströmung aus der Schmelze, Krustenbildung an der Oberfläche und Aerosol-Freisetzung.

Der Aufbau der Anlage wurde 1983 abgeschlossen. Abb. 2 zeigt die Vorbereitung eines Beta-Tiegels vor der Induktorspule, die durch einen Aluminiumbehälter abgeschirmt ist. Abb. 3 zeigt einen Blick auf die Anlage mit der Kondensato- renbank im Vordergrund, dem Sondenbehälter und dem Thermit-Reaktionstank.

### 3. Erste experimentelle Ergebnisse

Der Betrieb der Anlage wurde im Februar 1984 aufgenommen /4/. Zunächst wurden drei Experimente V0.1 bis V0.3 zur Erprobung der Anlage und aller Meßsysteme durchgeführt (Tab. 1). In Versuch V0.1 wurden die thermitische Erzeugung und der gesteuerte Abguß der Schmelze mit Temperaturen über 2000°C erfolgreich getestet. Die nachfolgenden Experimente V0.2 und V0.3 sind die ersten Experi- mente mit kontinuierlicher Beheizung und entsprechen weitgehend den Versuchen

in der Testmatrix. Sie zeigten, daß die Beheizung entsprechend den geplanten Daten mit bis zu 1700 kW Leistungsfreisetzung in einer 300 kg Eisenschmelze erreicht wird. Anlage und Meßsysteme konnten in diesen Versuchen sicher betrieben werden.

Die anschließende Experimentserie V1 untersucht die Hochtemperatur-Wechselwirkung der flüssigen Schmelze mit dem Beton. Da in den Experimenten V0.2 und V0.3 ein unerwarteter Schmelzfrontfortschritt zu beobachten war, wurde im Versuch V1.2 der mögliche Einfluß magnetischer Lorentz-Kräfte untersucht. V1.3 ist ein Experiment zum Studium des Schmelzverhaltens bei mittlerer Leistung und gleichzeitiger Anwesenheit metallischer und oxidischer Phasen. Die weiteren Experimente untersuchen das Schmelzverhalten bei unterschiedlichem Leistungs- und Temperaturniveau unter Verwendung silikatischen Betons, wobei zunächst die Heizleistung so hoch gewählt wird, daß die Erstarrung der Schmelze vermieden wird. Die in 1985 geplanten Experimente werden die Erstarrungsprozesse in die Untersuchung mit einbeziehen.

Einige der Beton-Tiegel, die nach dem Experiment geschnitten werden, zeigt Abb. 4a-c. Der Tiegel in Abb. 4a stammt aus einem transienten Vorexperiment ohne induktiver Beheizung der Schmelze, die aus 600 kg Thermitpulver im Tiegel erzeugt wurde. In diesem Fall dauert der Aufschmelzprozess des Betons wegen der schnellen Abnahme der Schmelzbadtemperatur nur wenige Minuten, und die Erosion des Tiegels beträgt etwa 5 cm sowohl in horizontaler wie in vertikaler Richtung.

Demgegenüber weisen die Tiegel der "beheizten" Experimente in Abb. 4b und 4c mit 400 bzw. 1000 kW Leistungseinspeisung wesentliche Unterschiede im Schmelzverhalten auf. Die senkrechte Fortschrittsrichtung dominiert deutlich, wenn die Schmelze über längere Zeiten auf hohen Temperaturen gehalten wird, wogegen das seitliche Vordringen begrenzt ist. Dies Verhalten wurde ebenfalls im Experiment V0.3 bei 1,7 MW Leistungseinspeisung beobachtet, so daß, in Übereinstimmung mit den übrigen Experimenten, gefolgert werden kann, daß es für die Hochtemperaturphase der Schmelze-Beton-Wechselwirkung charakteristisch ist.

Der Einfluß der auf Grund der induktiven Beheizung entstehenden Lorentz-Kräfte auf den Schmelzfrontfortschritt wurde sowohl experimentell wie auch theoretisch bei der Planung der BETA-Anlage untersucht und im Vergleich mit

der Schmelzbadbewegung durch die Gasabströmung als vernachlässigbar abgeschätzt. Auf Grund der im Vergleich zu früheren transienten Experimenten geänderten Schmelzfront wurde in V1.2 ein Experiment zur Absicherung der neuen Ergebnisse ausgeführt. Durch wiederholte gepulste Beheizung mit maximaler Leistung wurde die Schmelze kurzzeitig erhitzt und konnte dann in den heizungsfreien Zeiten ohne den Einfluß des Induktionsfeldes wechselwirken. Nach einer Folge von 10 Leistungszyklen (vergl. Abb. 5c) weist die Schmelzfront keinen signifikanten Unterschied zum Referenzversuch V0.2 auf, und ein Einfluß der Heizmethode auf horizontale und senkrechte Erosion kann damit ausgeschlossen werden.

Ein weiterer bisher nicht beobachteter Effekt wurde bei den beheizten BETA-Experimenten gefunden, der besonders deutlich in Experiment V1.3 zu Tage tritt. Dieses Experiment, bei 1000 kW Heizleistung, startet mit einer metallischen und oxidischen Schmelze, wobei die metallische Schmelze zu Anfang unter die oxidische geschichtet ist. Durch die hohe Gasfreisetzung aus dem Beton werden Eisentröpfchen in die oxidische Schmelze eingetragen, bis nach etwa 5 bis 6 Minuten die Dispersion des Metalls in das Oxid nahezu vollständig ist. Da damit keine kontinuierliche Metallphase mehr vorhanden ist, entfällt die Voraussetzung für eine wirkungsvolle induktive Beheizung der Schmelze, und die Heizleistung sinkt auf einen niedrigen Wert (Abb. 5d). Der Dispersionsvorgang wird im wesentlichen beeinflusst durch den freigesetzten Gasvolumenstrom sowie Zähigkeit und Dichte der metallischen und oxidischen Schmelzen. Daher ist der Dispersionsprozess stark temperaturabhängig, und der inverse Vorgang der Segregation muß in Betracht gezogen werden, wenn auf Grund niedrigerer Schmelzetemperaturen die Gasfreisetzung über lange Zeiten reduziert ist. Insbesondere ist im Hinblick auf den Kernschmelzenunfall zu berücksichtigen, daß dort, anders als beim BETA-Experiment, die oxidische Schmelze heißer als die metallische ist, was durch die verminderte Zähigkeit den Segregationsprozess begünstigt.

Wie bereits erwähnt, steht die in die Schmelze induktiv einkoppelbare Heizleistung in Zusammenhang mit der Konstitution der Schmelze. Da nun die BETA-Experimente bei konstanter Heizspannung und -Frequenz gefahren werden, müssen alle Veränderungen der Heizleistung auf eine geänderte Verteilung der metallischen Schmelze im Tiegel zurückgeführt werden, so lange sich die Schmelze im homogenen Magnetfeld befindet. Darum enthalten die Leistungskurven in den

Abb. 5a-f wichtige Informationen, die für eine detaillierte Analyse der Experimente genutzt werden.

Der Schmelzfront-Fortschritt in den BETA-Experimenten wird aus den Versagenszeiten der Thermoelemente im Betontiegel gewonnen und ist in Abb. 6a-d für verschiedene Experimente enthalten. Der abwärts gerichtete Schmelzfront-Fortschritt ist zeitlich nahezu konstant und weist auf quasi-stationäre experimentelle Bedingungen hin. Er liegt bei 0,18 mm/s bei 400 kW Heizleistung in VO.2 und erreicht 1,0 mm/s bei 1700 kW Leistung in VO.3. Die abwärts gerichtete Erosionsgeschwindigkeit ist im betrachteten Temperaturbereich näherungsweise proportional zur Heizleistung; sie ist jedoch bis um einen Faktor 2 höher, als sie in früheren transienten Experimenten gemessen wurde. Die entsprechende maximale Wärmestromdichte liegt bei  $4,4 \text{ MW/m}^2$ . Hingegen ist der seitliche Schmelzfrontfortschritt auf nur wenige Zentimeter begrenzt. Nach nur wenigen Minuten der Wechselwirkung ändert sich der Durchmesser der Kavertne nicht mehr.

Die Temperaturmessungen im Schmelzbad erbringen, nach Abfall der anfangs sehr hohen Temperatur aus der Thermitreaktion, Werte von etwa 1500 bis 1700 °C, auch für die Experimente mit sehr hoher Heizleistung. Dies bedeutet, daß der Wärmeübergangskoeffizient an den Beton erheblich größer ist, als er aus transienten Experimenten oder bisher angewandten Theorien abgeleitet wurde. Besonders charakteristisch ist der sehr schnelle Abfall der Schmelzbadtemperatur innerhalb von etwa 60 sec nach Einguß, wie er zum Beispiel in Experiment V1.2, Abb. 7, zu erkennen ist.

Die Aerosolfreisetzung aus der Schmelze/Beton-Wechselwirkung soll hier am Beispiel des gepulsten Experiments V1.2 dargestellt werden (Abb. 8). Die Extinktionsmessung eines Laserstrahls zeigt eine Anzahl von Aerosol-Peaks über einem niedrigen Untergrund; nur dieser ist für die sehr geringe Aerosolfreisetzung aus der Betonzerstörung charakteristisch, während die scharfen Peaks experimentell bedingte Ursachen haben. Der Anfangspeak beim Einguß der Schmelze resultiert wahrscheinlich aus der inneren Oberfläche des Tiegels, die mit Fett benetzt ist, das als Trennmittel für die Tiegelform bei der Herstellung verwendet werden muß. Nach Abklingen dieses Peaks innerhalb von 40 s bleiben Tiegelraum und Abgase klar mit einer Aerosolkonzentration von weniger  $10^{-2} \text{ g/m}^3$ , sofern nicht durch das Eintauchen vor allem der Tauchsonden mit Pappisolation die sehr geringe Aerosolfreisetzung aus der Schmelze-

Beton-Reaktion durch eine zweite Aerosolquelle überdeckt wird. Aus den BETA-Experimenten folgt also, daß für Silikatbeton in der hier betrachteten Phase des Kernschmelzenunfalls keine weiteren Aerosole in den Sicherheitsbehälter freigesetzt werden.

Die Gasanalysen bei den Experimenten ergeben, daß sich das freigesetzte Reaktionsgas neben dem als Spül- und Trägergas verwendeten Argon aus  $H_2$ ,  $CO$ ,  $CO_2$  und  $H_2O$  zusammensetzt. Der Hauptbestandteil ist bei den bisher durchgeführten Versuchen Wasserstoff. Die freigesetzte Gasmenge nimmt, entsprechend der Änderung der Aufschmelzrate des Betons, mit abnehmender Temperatur der Schmelze ab, wobei sich die Gaszusammensetzung nur geringfügig ändert. Abb. 9 zeigt die On-Line-Analyse der Abgaszusammensetzung, charakterisiert durch die Ionenströme der verschiedenen Gaskomponenten für das Experiment Vl.2 mit gepulster Beheizung. Der schnelle Anstieg der  $H_2$ -Freisetzung mit Erhöhung der Heizleistung weist auf den bedeutenden Einfluß der Metall-Oxidation hin.

#### 4. Anwendung der Experimente zur Code-Verifizierung - Ausblick

Die bisherigen experimentellen Ergebnisse bestätigen die globalen Modellansätze der Rechencodes. Im Detail liegen jedoch neuartige Ergebnisse vor, die eine Modifizierung verschiedener Modelle notwendig machen. Die wichtigsten neuen Beobachtungen sind:

- Während der Phase der Schmelze-Beton-Wechselwirkung bei hohen Temperaturen dominiert die abwärts gerichtete Ausbreitung der Schmelze. Die seitliche Erosion ist begrenzt.
- Der Wärmeübergang von der Schmelze an den aufschmelzenden Beton ist deutlich höher als aus bisherigen transienten Experimenten und Rechnungen ermittelt. Damit gewinnen beim Kernschmelzenunfall nach einer kurzen Phase der Entspeicherung fühlbarer Wärme aus der Schmelze die Erstarrungsprozesse an Bedeutung.
- Die metallische Phase der Schmelze wird bei hoher Gasfreisetzung aus dem Beton in die Oxidphase dispergiert. Bei niedrigeren Temperaturen der Schmelze kann mit nachlassender Gasrate eine Segregation der metallischen und oxidischen Schmelze einsetzen, die für das Erstarrungsverhalten wichtig ist.

Die bisherigen Arbeiten zur Codeverifizierung konzentrieren sich auf die Änderung der Modellierung von Wärmeübergang und Schmelzfrontfortschritt /5/. Zum Dispersionsverhalten sind weitere Analysen notwendig. Als Basis der Verifizierung dienten die Experimente V0.1 - V1.3. Für die Experimente V1.4 - V1.6 wird durch eine blinde Nachrechnung - lediglich die Anfangswerte und der Leistungsverlauf des Experiments sind bekannt - die Aussagefähigkeit der Codes geprüft.

Die Experimente in BETA werden im Jahr 1985 mit weiteren Experimenten zum Hochtemperaturverhalten und mit der Untersuchung des Niedertemperaturverhaltens der Schmelze fortgesetzt. Ergänzend zum bisherigen Versuchsprogramm mit silikatischen Betontiegeln ist der Einsatz von Tiegeln aus Karbonatbeton in Zusammenarbeit mit der USNRC vorgesehen.

## 5. Literatur

- /1/ Hosemann, J.P., Hennies, H.-H., Hassmann, K., "German Results on Consequences of LWR Severe Accidents", ANS/ENS 1984 International Conference, Nov. 11-16, 1984, Washington
- /2/ Reimann, W., Murfin, W.B., "The WECHSL-Code: A Computer Program for the Interaction of a Core Melt with Concrete", KfK 2890, 1981
- /3/ Schwarzott, W. et al., "Detaillierung von KAVERN und Modellentwicklung zur Gasabströmung aus der Schildgrube", Abschlußbericht BMFT 150 379, KWU Erlangen, 1983.
- /4/ Alsmeyer, H., Reimann, M., Hosemann, J.P., "Preliminary Results of the KfK Molten Core/Concrete Experimental BETA Facility", 12. Water Reactor Safety Research Information Meeting, Oct. 22-26, 1984, Gaithersburg, Maryland
- /5/ Reimann, M., Alsmeyer, H., "Core Melt-Concrete Interaction: Status of the WECHSL Code Development and BETA Test Results", ANS-Winter Meeting, Washington 1984.

Tab. 1: BETA - Experimente im Jahre 1984

	Anfangsschmelze im Tiegel	Heizleistung	Zielsetzung
V0.1	300 kg Eisen	keine Beheizung	Anlagentest, V0.2 und
V0.2	300 kg Eisen	400 - 200 kW	V0.3 ähnlich zu Experimenten der Versuchsmatrix
V0.3	300 kg Eisen, 150 kg Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1700 kW	
V1.1	20 kg Eisen	gepulst	(Versagen der Abgießeinrichtung)
V1.2	200 kg Eisen, 140 kg Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	gepulst	Einfluß von Lorentz-Kräften
V1.3	300 kg Stahl <sup>1)</sup> , 150 kg Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> +SiO <sub>2</sub>	1000 kW	Schmelzeverhalten bei mittl. Leistung
V1.4	400 kg Stahl <sup>1)</sup>	—	(Versagen durch Sicherheitssystem)
V1.5	300 kg Stahl <sup>1)</sup>	450 kW	Schmelzeverhalten dicht über Erstarrung
V1.6	300 kg Stahl <sup>1)</sup> , 50 kg Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> +SiO <sub>2</sub>	1000 kW	Schmelzeverhalten bei mittl. Leistung

1) 82 Gew.% Fe, 10 % Cr, 8 % Ni

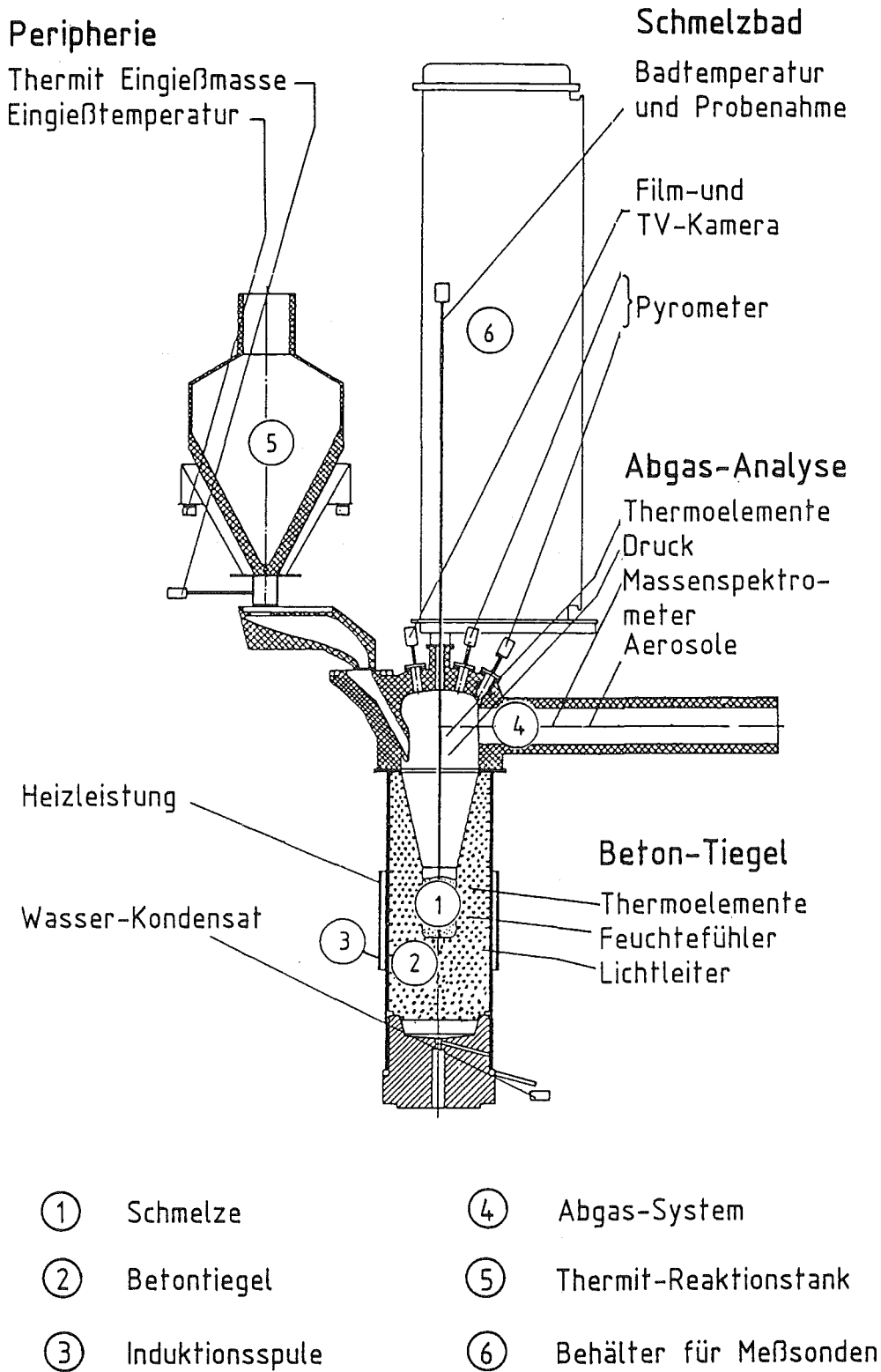


Abb. 1: Prinzipskizze der BETA-Versuchsanlage und Instrumentierung



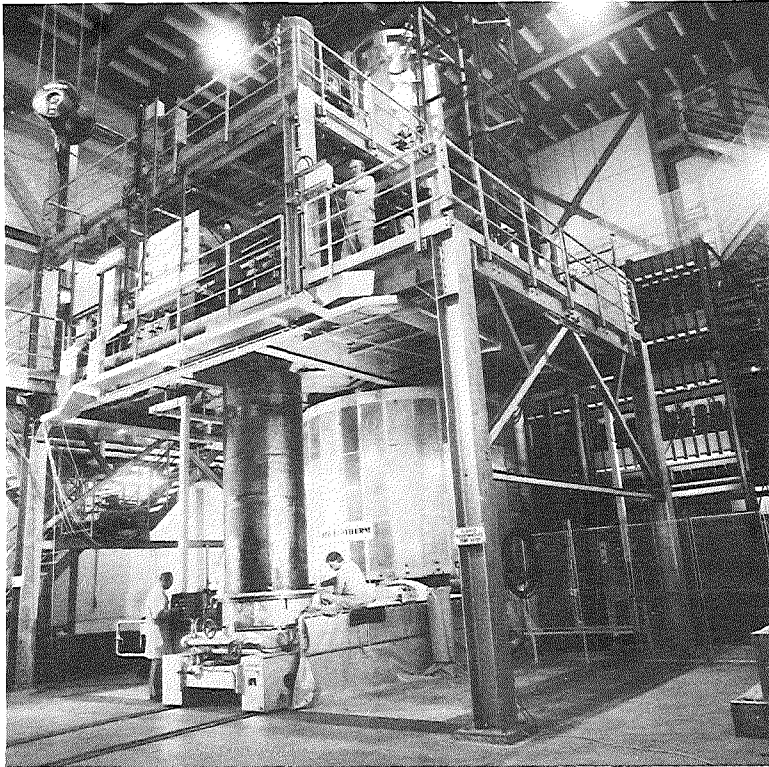


Abb. 2: BETA-Anlage: Vorbereitung des Beton-Tiegels

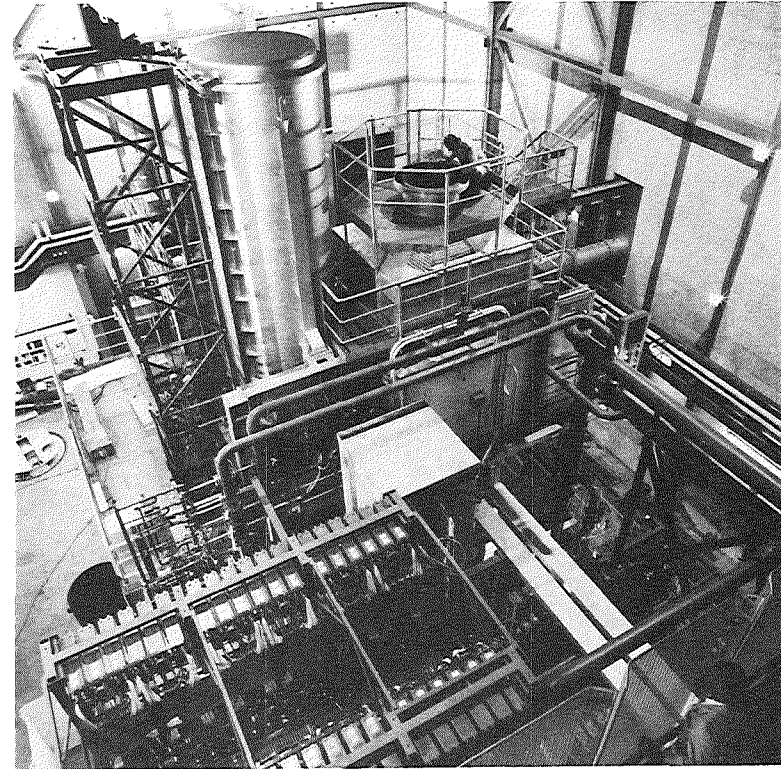
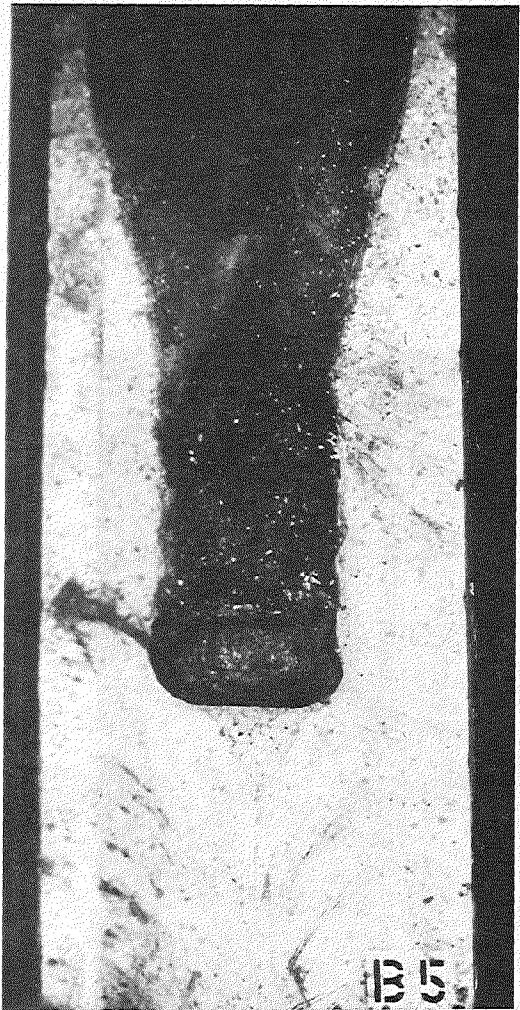
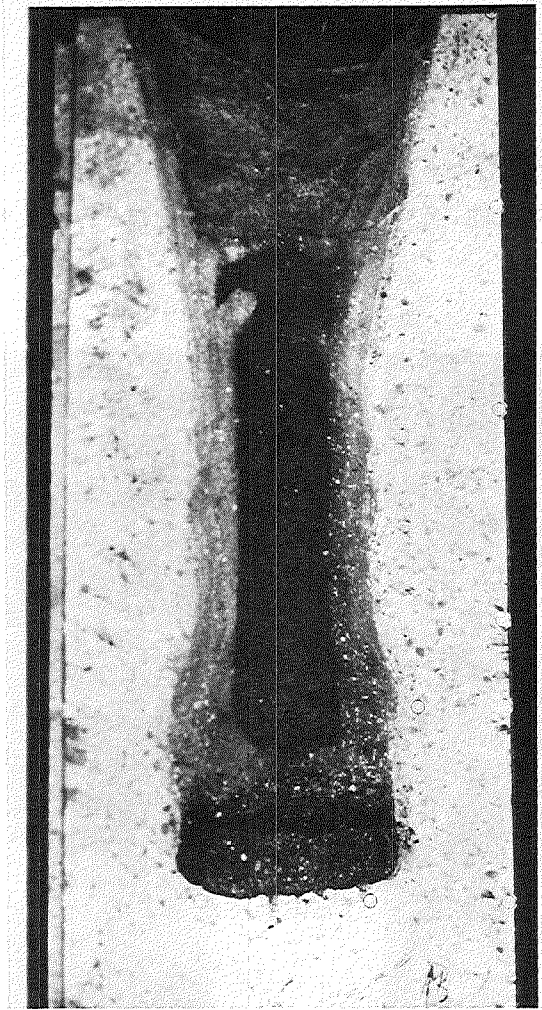


Abb. 3: Blick auf die BETA-Anlage mit Kondensatorenbank, Tauchsonden-Anlage und Thermit-Reaktionstank



a)



b)



c)

Abb. 4: Tiegelschnitte von BETA-Experimenten: a) Vorexperiment ohne Nachheizung,  
b) Experiment V0.2 mit 400 kW Beheizung,  
c) Experiment V1.3 mit 1000 kW Beheizung

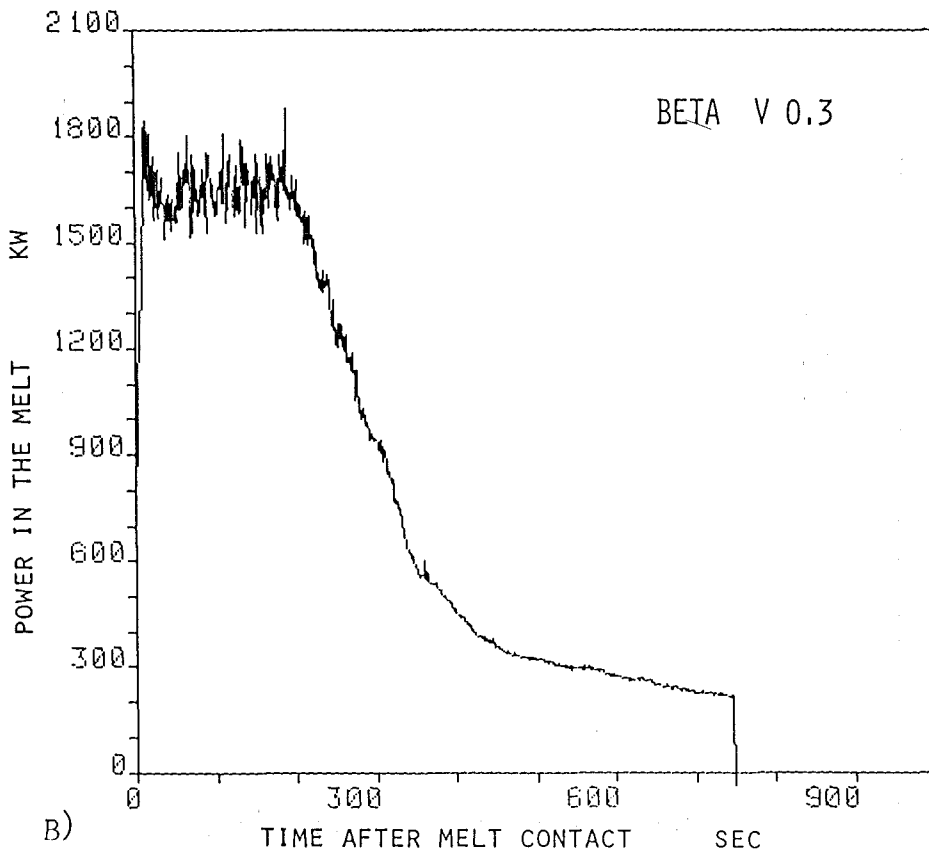
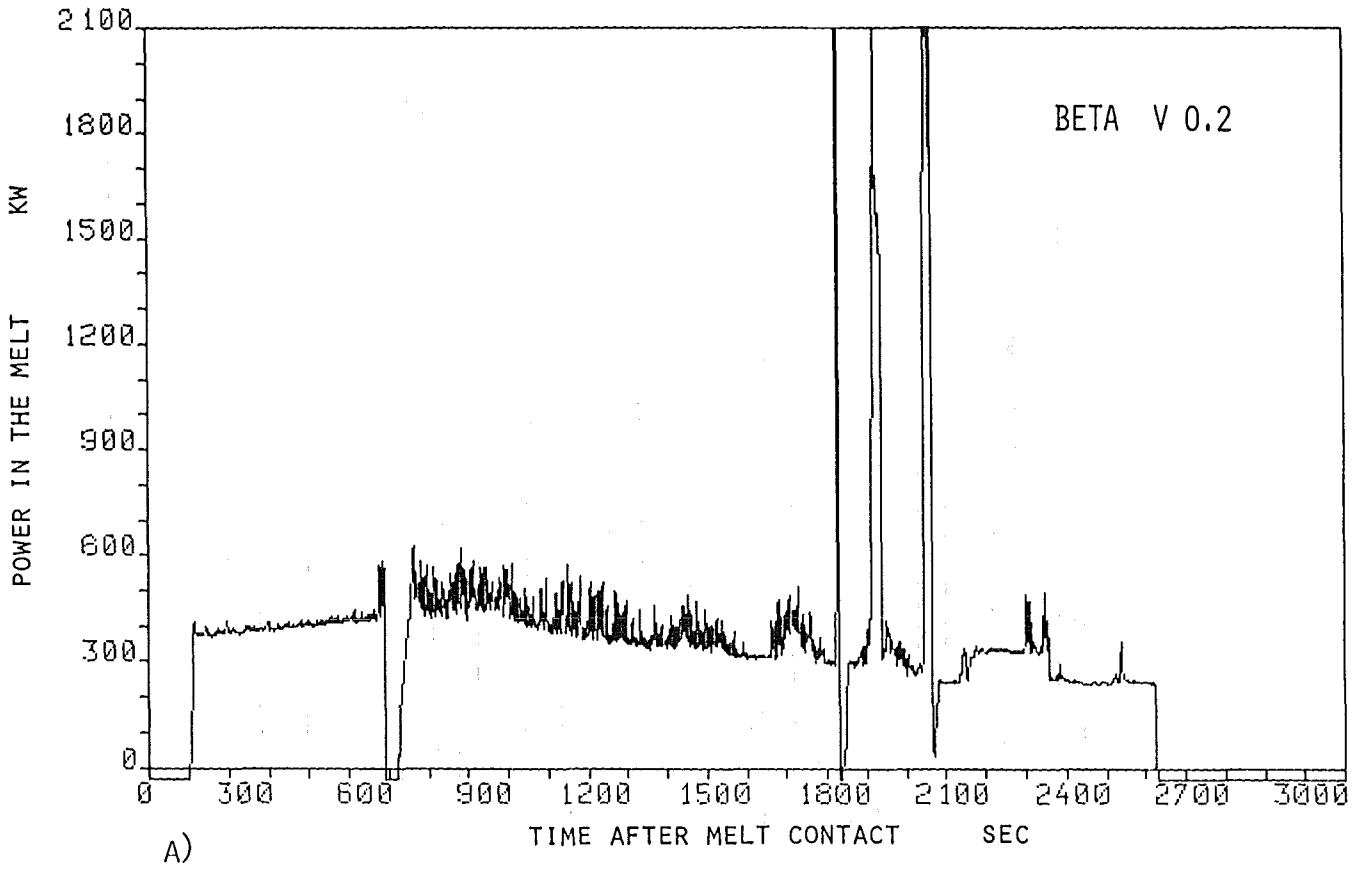
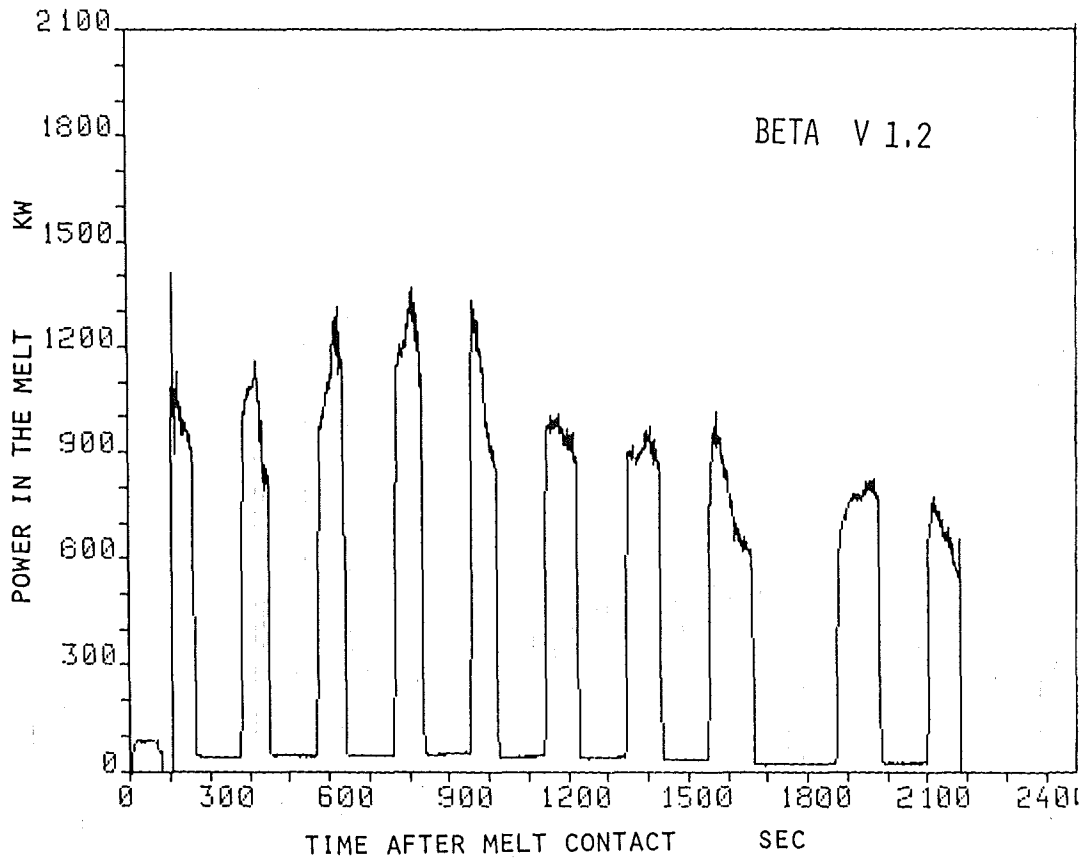
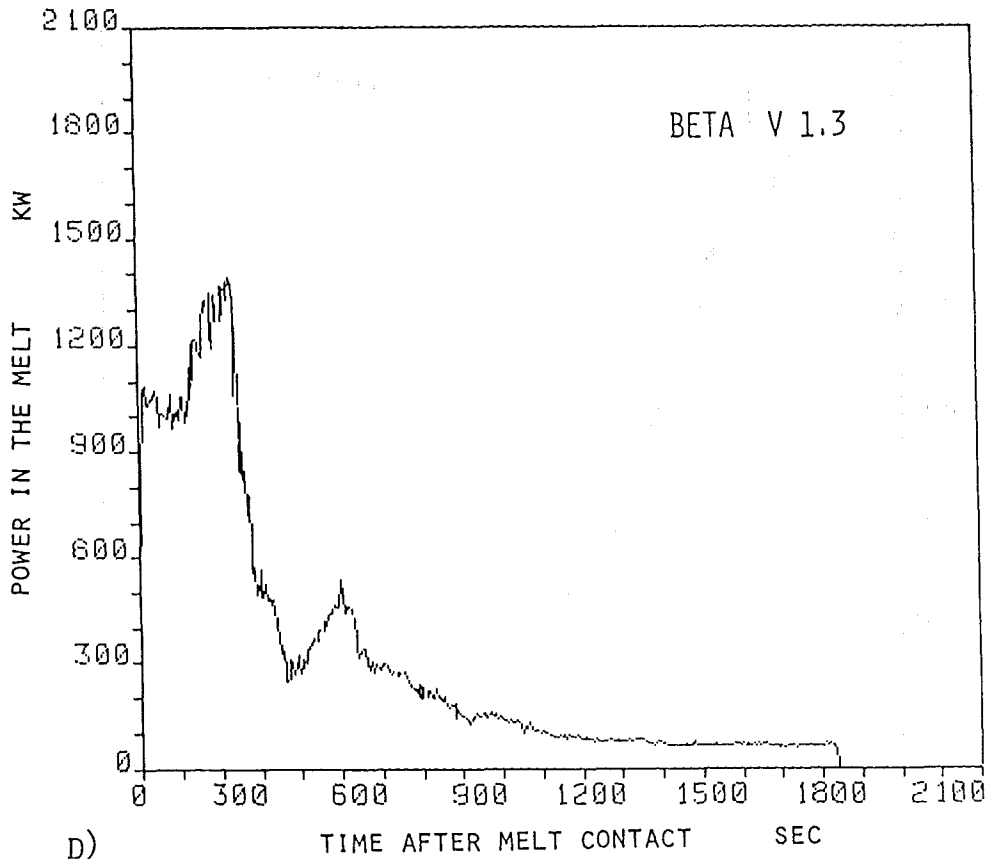


Abb. 5: Leistungseinspeisung in den BETA-Experimenten  
a) V0.2, b) V0.3, c) V1.2, d) V1.3, e) V1.5, f) V1.6

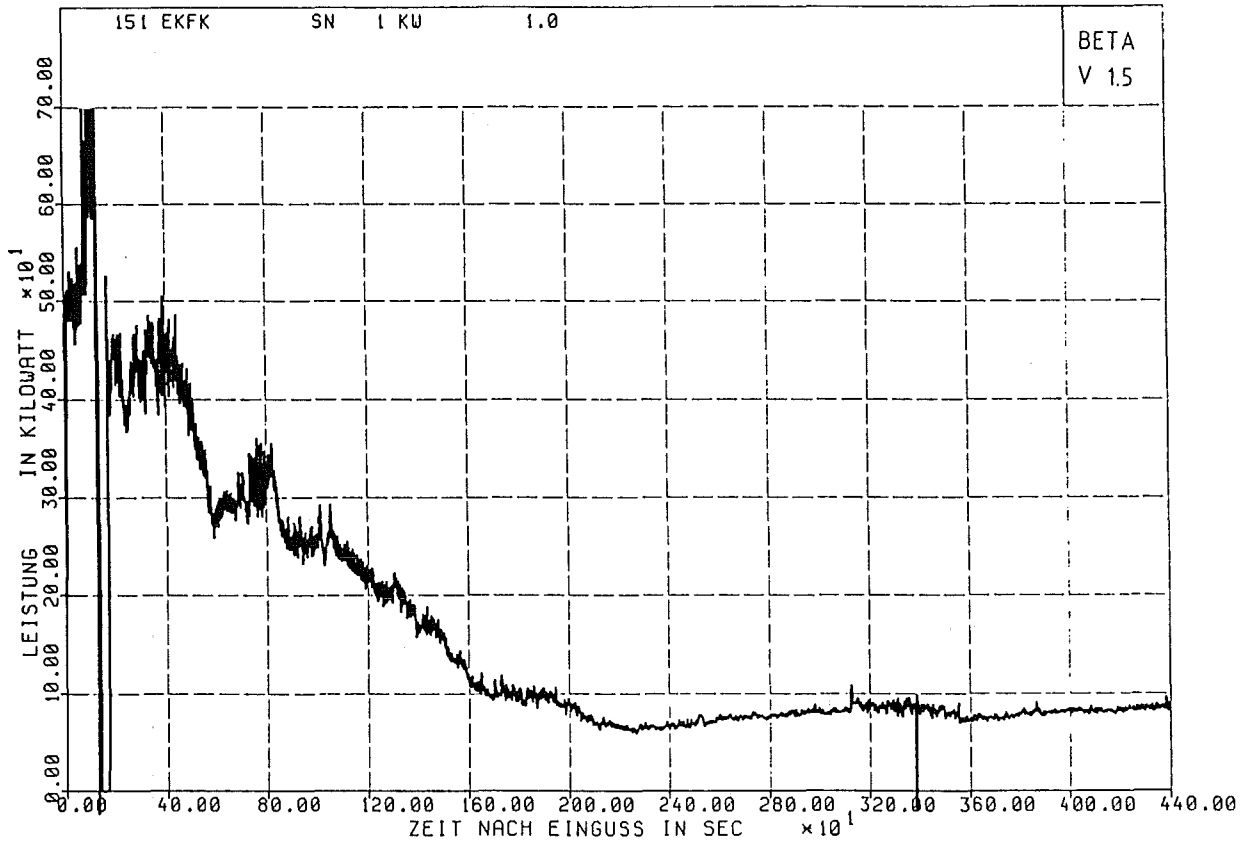


c)

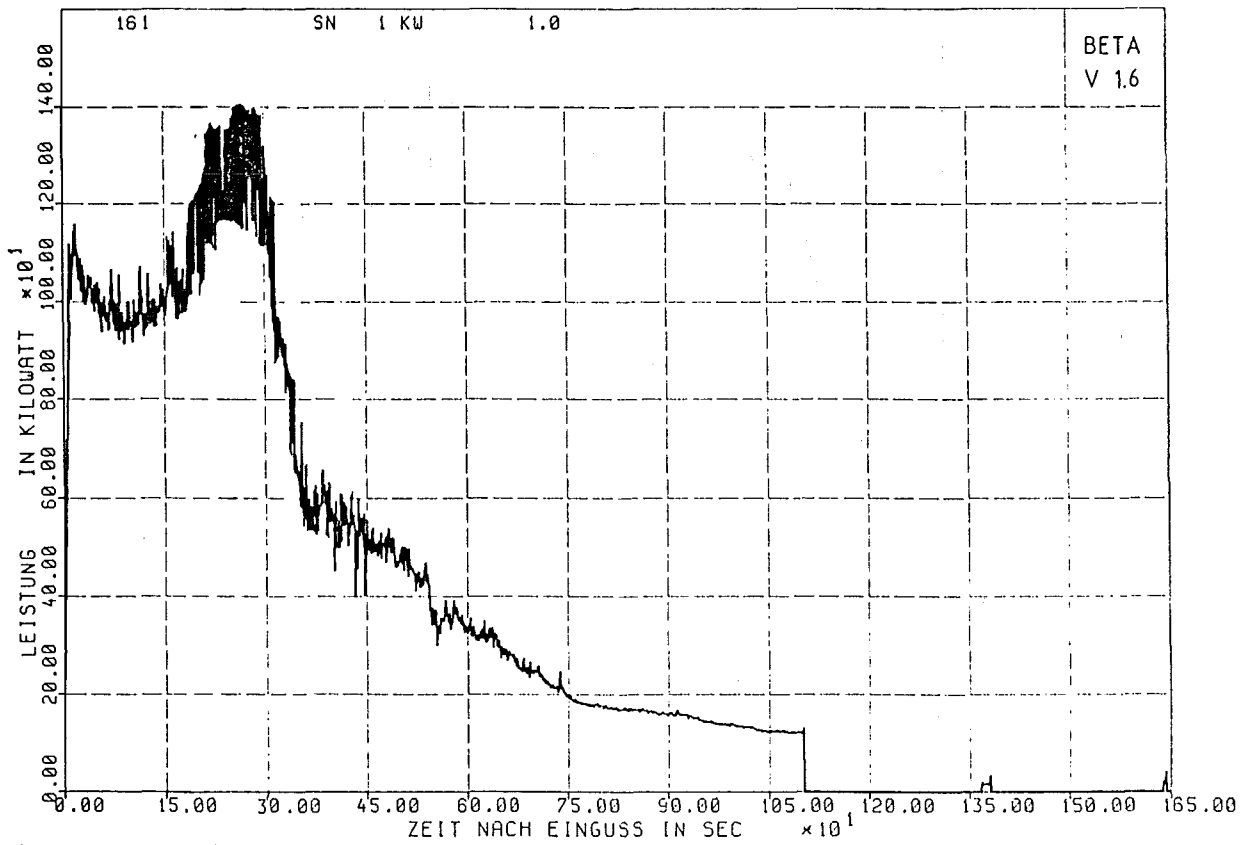


d)

Abb. 5: Leistungseinspeisung in den BETA-Experimenten  
a) V0.2, b) V0.3, c) V1.2, d) V1.3, e) V1.5, f) V1.6



E)



F)

Abb. 5: Leistungseinspeisung in den BETA-Experimenten

a) V0.2, b) V0.3, c) V1.2, d) V1.3, e) V1.5, f) V1.6

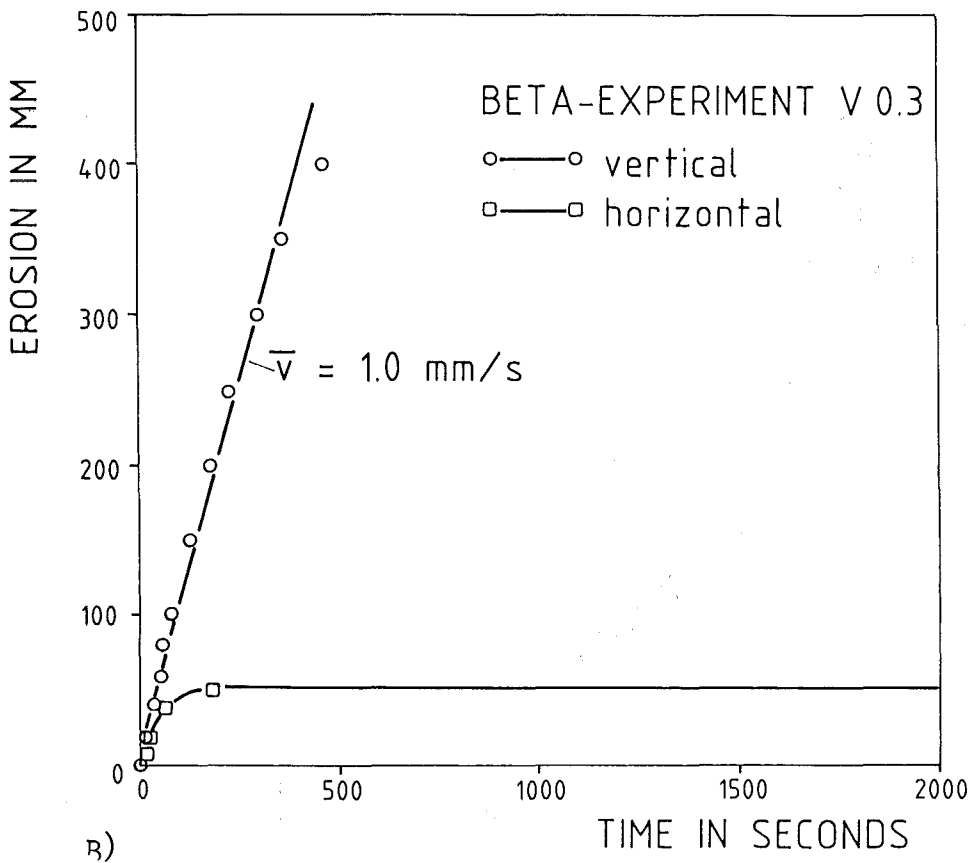
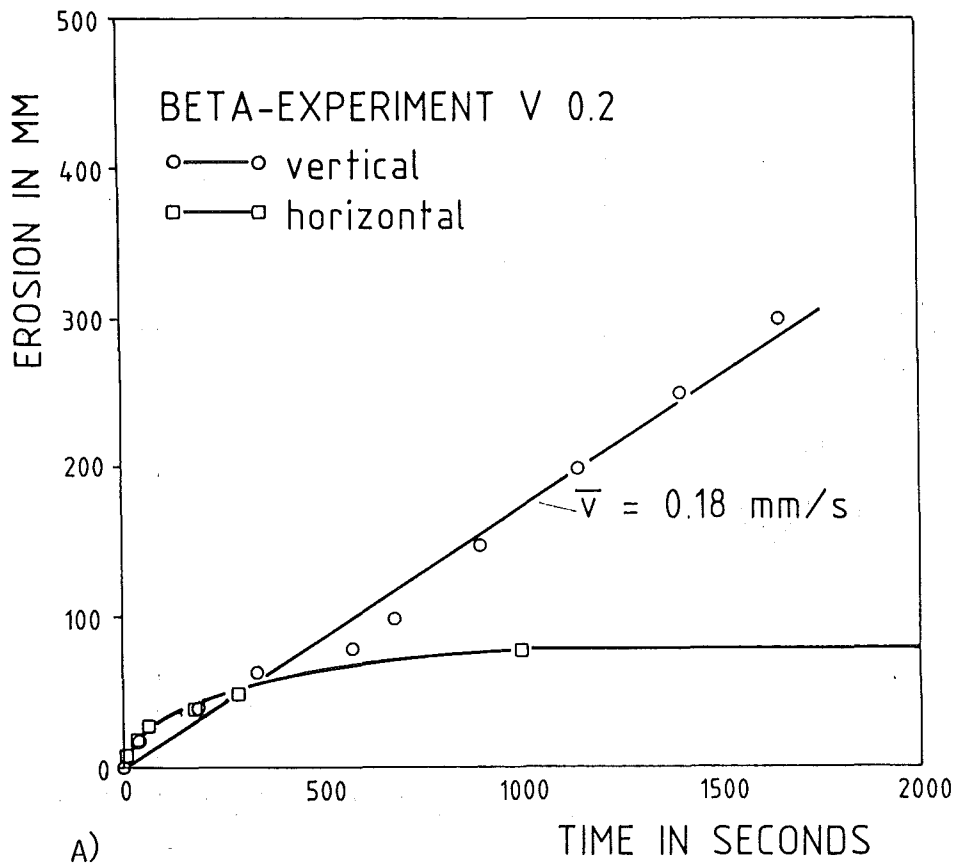


Abb. 6: Schmelzfrontfortschritt in den BETA-Experimenten  
a) V0.2, b) V0.3, c) V1.2, d) V1.3

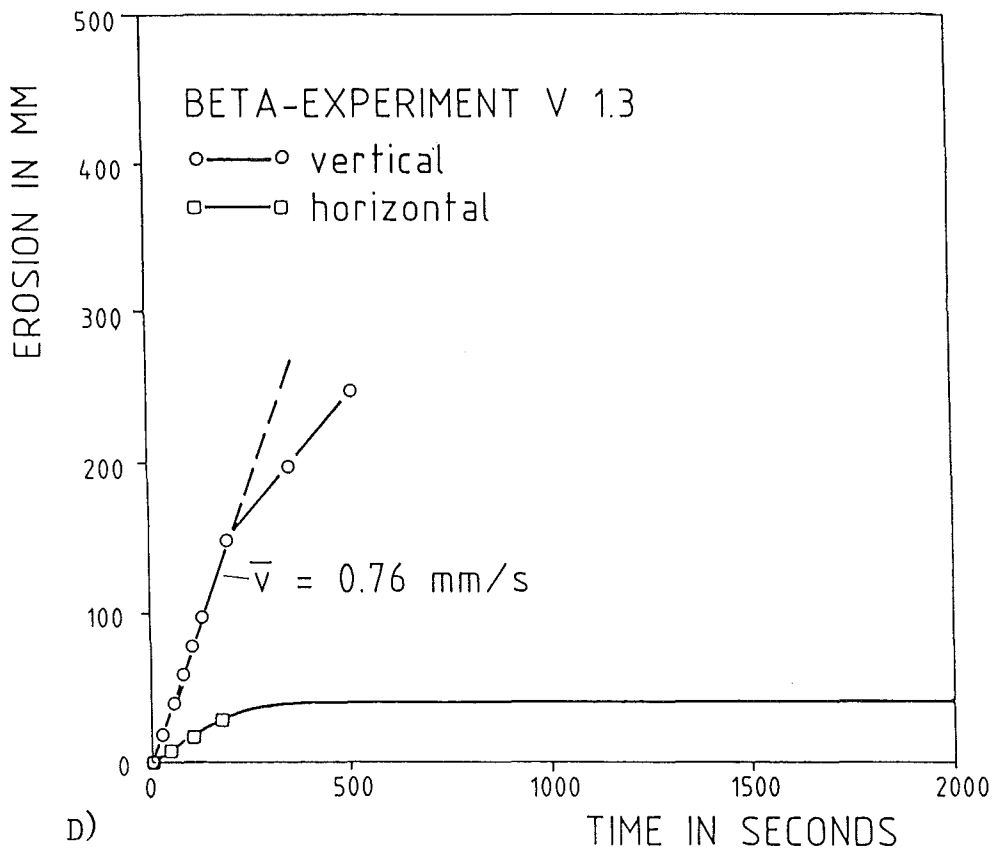
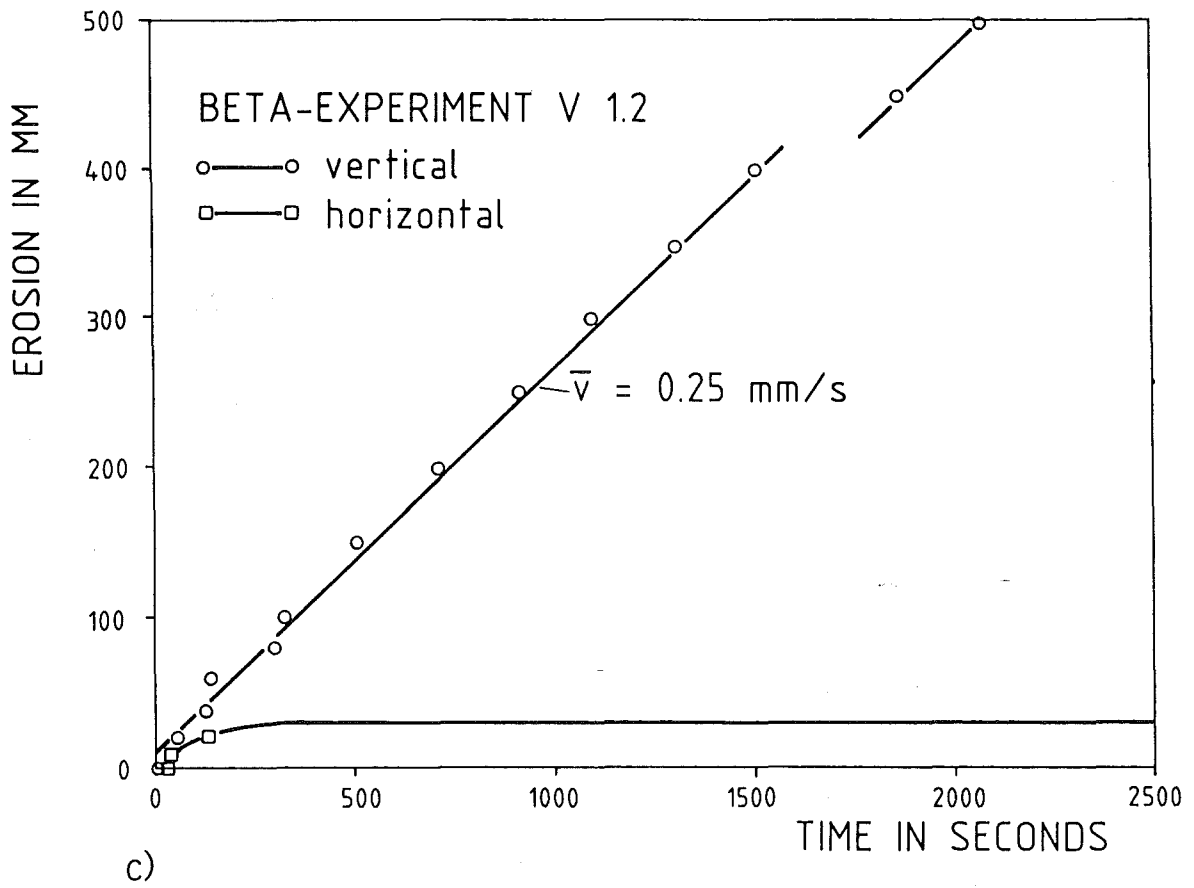


Abb. 6: Schmelzfrontfortschritt in den BETA-Experimenten  
a) V0.2, b) V0.3, c) V1.2, d) V1.3

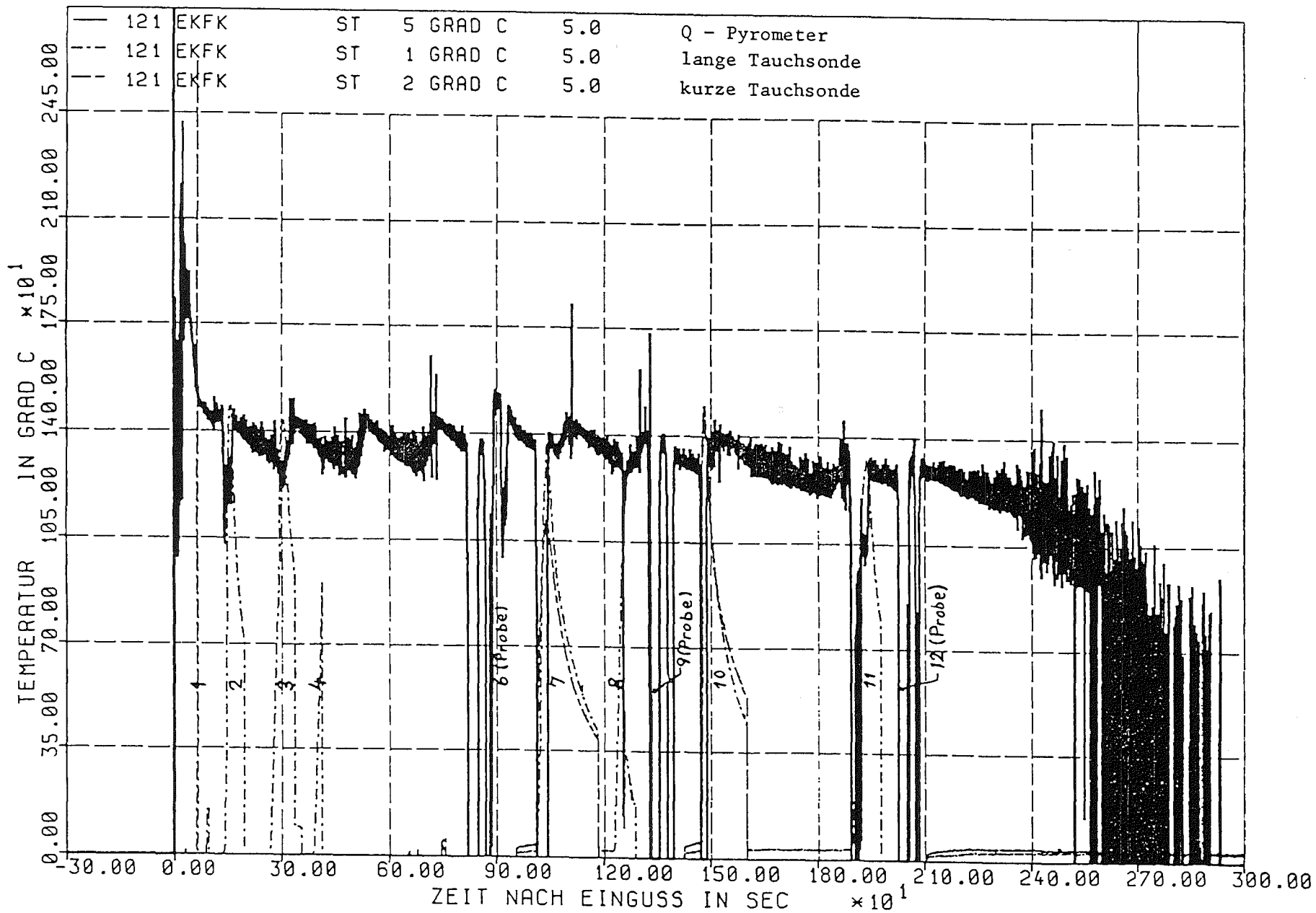


Abb. 7: Schmelzbadtemperaturen aus Pyrometer- und Tauchsondenthermoelement- Messungen in Experiment V1.2



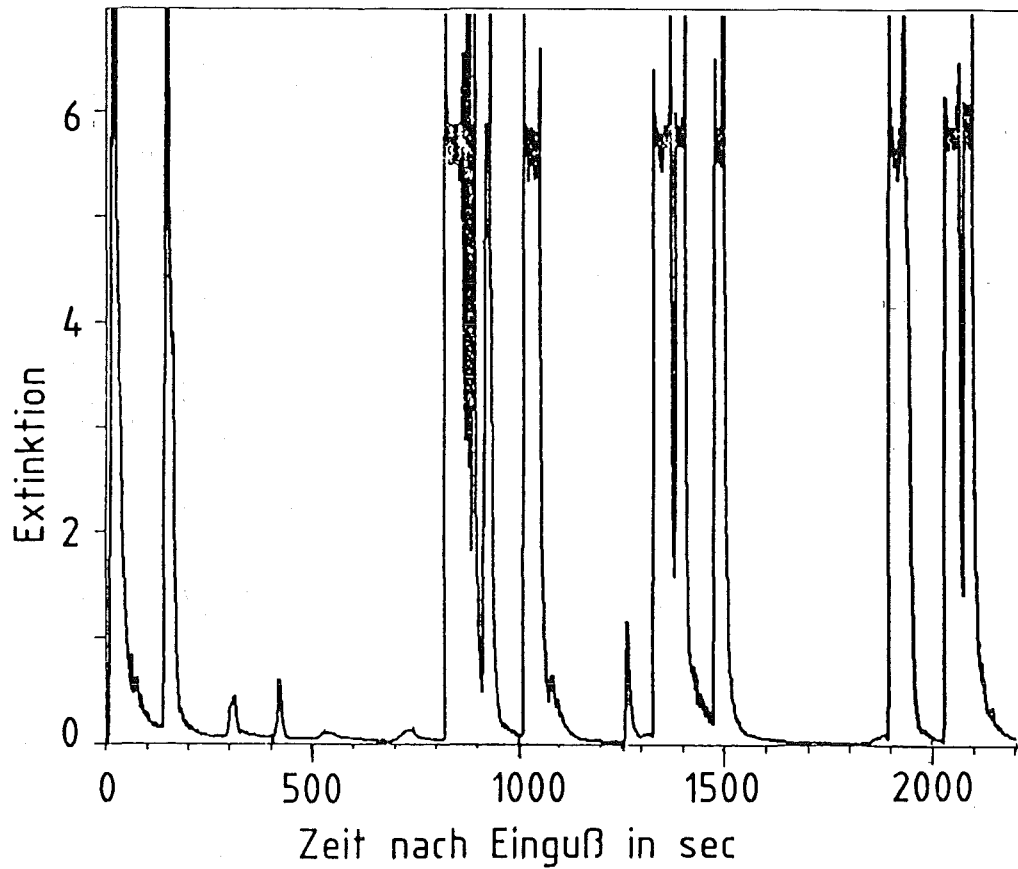


Abb. 8: Aerosolfreisetzung in Versuch V1.2: Über dem sehr schwachen Aerosoluntergrund aus der Schmelze-Beton-Reaktion erkennt man Spitzen, die durch das Eintauchen von pappisolierten Sonden in die Schmelze hervorgerufen werden.

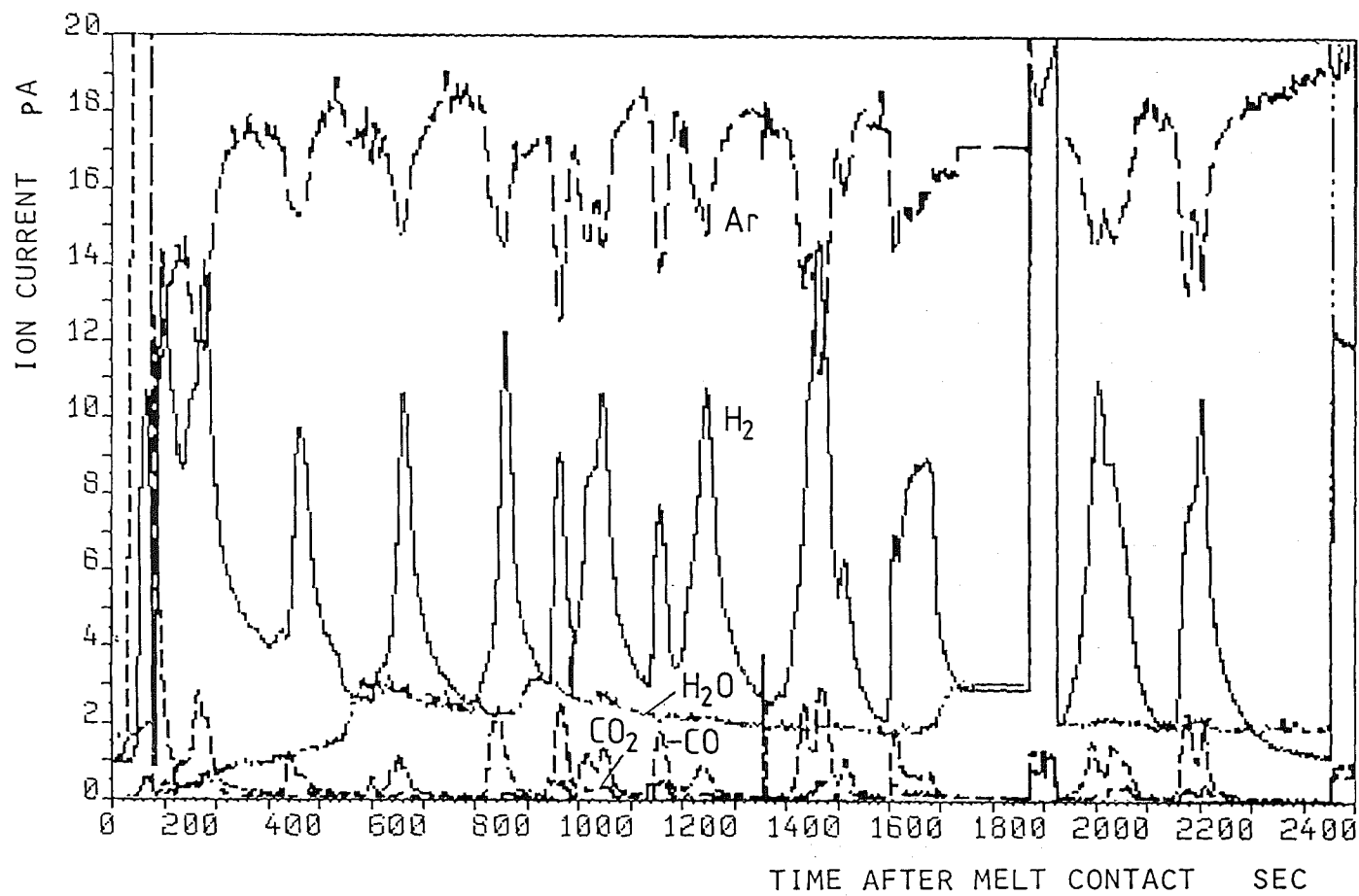


Abb. 9: Abgaszusammensetzung in BETA-Versuch V1.2 aus On-Line-Massenspektrometer für Ar, H<sub>2</sub>O, H<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> und CO.

06.01                    SICHERHEIT UND UMGEBUNGSSCHUTZ VON KKW

PNS-Teilprojekt 4400 - Verbesserung der Spaltproduktrückhal-  
tung und Reduktion der Strahlenbelastung

06.01.14                Abluftfilterung an Reaktoren

4400 - 1



06.01.14 Abluftfilterung an Reaktoren

06.01.14/19A Untersuchungen zum Auftreten und zur Abscheidung von  
PNS 4414 penetrierenden Iodverbindungen in der Abluft von Kern-  
kraftwerken

(H. Deuber; LAF II)

### 1. Allgemeines

In der Abluft von Kernkraftwerken tritt gasförmiges Radioiod i. allg. vorwiegend als elementares Iod ( $I_2$ ) und Methyljodid ( $CH_3I$ ) auf.

Daneben kommen andere Iodverbindungen vor, die u.U. von den in den Iodfiltern enthaltenen Aktivkohlen nur in geringem Maße abgeschieden werden. Der Anteil der schwer abscheidbaren Iodverbindungen ist in der Abluft von Kernkraftwerken gewöhnlich gering (Größenordnung: 1 % /1/. Viel größere Anteile können aber nicht ausgeschlossen werden.

In einem deutschen Siedewasserreaktor wurde während einer Revision, bei der infolge von Brennelementschäden sehr hohe  $^{131}I$ -Konzentrationen in der Abluft auftraten, ein Anteil der penetrierenden Iodverbindungen von bis zu ca. 50 % in der Spülluft festgestellt. Der Abscheidegrad des Spülluftfilters für  $^{131}I$  war teilweise gleich Null /2/.

Natur, Herkunft und Sorptionsverhalten der penetrierenden Iodverbindungen sind nicht bekannt. Sie sollen im Rahmen dieser Untersuchungen bestimmt werden. Außerdem soll das Sorptionsverhalten weiterer, bisher nicht oder nur in unzureichendem Maße untersuchter Iodverbindungen geklärt werden.

Es werden Untersuchungen in Kernkraftwerken und im Labor durchgeführt.

## 2. Untersuchungen in Kernkraftwerken

### 2.1 Einleitung

Im Berichtszeitraum wurden  $^{131}\text{I}$ -Messungen im oben erwähnten Siedewasserreaktor (SRW 5) während einer Revision und im anschließenden Leistungsbetrieb durchgeführt. Mit diesen Messungen sollte vor allem der Anteil des penetrierenden  $^{131}\text{I}$  in verschiedenen Abluftströmen bestimmt bzw. dessen Herkunft geklärt werden.

### 2.2 Experimentelles

In weitgehend üblicher Weise wurden die  $^{131}\text{I}$ -Komponenten durch fortlaufenden einwöchigen Einsatz von diskriminierenden Iodsammlern in verschiedenen Abluftströmen bestimmt /3/. Es wurden jedoch spezielle diskriminierende Iodsammler verwendet. Sie enthielten in Anströmrichtung folgende Sammlerkomponenten:

- a) 1 Schwebstofffilter GF/A;
- b) 2 Betten Sorptionsmaterial DSM11 zur Abscheidung von elementarem  $^{131}\text{I}$ ;
- c) 2 Betten Sorptionsmaterial AC 6120 zur Abscheidung von leichter abscheidbarem organischem  $^{131}\text{I}$  (z.B.  $\text{CH}_3\text{I}$ );
- d) 4 Betten imprägnierte Aktivkohle RKJ1 zur Abscheidung von schwerer abscheidbarem organischem  $^{131}\text{I}$  (z.B. Iodbenzol).

Die Verweilzeit pro Bett betrug wie üblich 0,075 s. Bei den in der Abluft von Kernkraftwerken meistens vorliegenden Bedingungen (ca.  $30^\circ\text{C}$ ,  $\leq 50\%$  r.F.) werden die genannten Iodkomponenten praktisch vollständig an jeweils zwei Betten abgeschieden. Aus der Verteilung des  $^{131}\text{I}$  auf die Betten können Rückschlüsse auf die Trennung der  $^{131}\text{I}$ -Komponenten bzw. auf das Vorkommen weiterer, insbesondere penetrierender  $^{131}\text{I}$ -Komponenten gezogen werden.

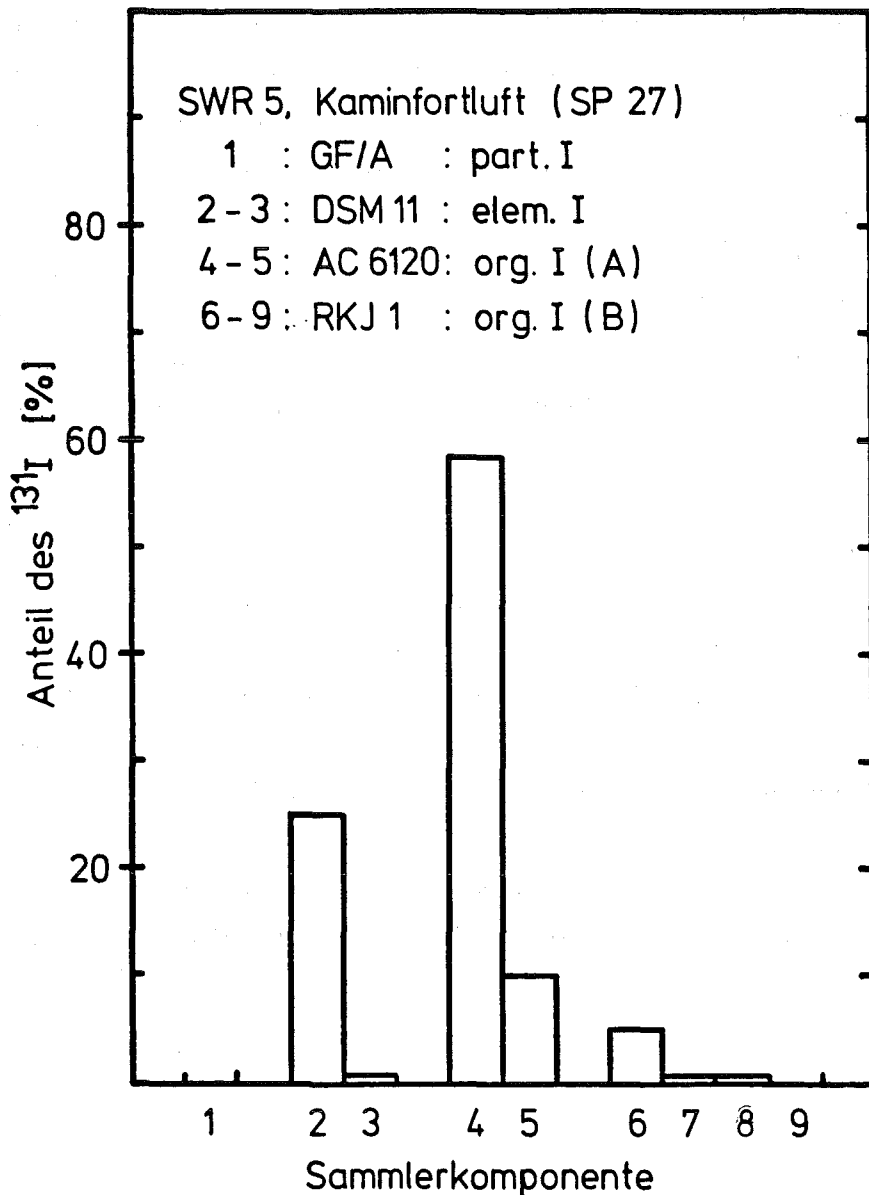
In Abb. 1 ist als Beispiel die Verteilung des  $^{131}\text{I}$  in einem diskriminierenden Iodsammler des genannten Aufbaus wiedergegeben. Sie gilt für die Kaminfortluft des SWR 5 während der in diesen Untersuchungen ersten Meßwoche (Sammelperiode 27).<sup>\*</sup> Es ist unter anderem ersichtlich, daß bei den RKJ1-Betten nur das erste Bett einen höheren Anteil  $^{131}\text{I}$  enthielt. In den weiteren RKJ1-Betten wurde nur ein sehr geringer Anteil oder kein  $^{131}\text{I}$  festgestellt. Daraus geht hervor, daß das schwerer abscheidbare  $^{131}\text{I}$  (Anteil: ca. 6 %) nur zu einem geringen Teil aus sehr schwer abscheidbarem, d.h. Betten einer Verweilzeit von 0,15 s penetrierendem  $^{131}\text{I}$  bestand.

Die Messungen wurden in der Kaminfortluft sowie in der Reaktorgebäudeabluft, Maschinenhausabluft und ungefilterten Spülluft durchgeführt. Reaktorgebäudeabluft und Maschinenhausabluft liefern gewöhnlich den weitaus größten Teil des in der Kaminfortluft enthaltenen  $^{131}\text{I}$ . Der potentiell hohe Beitrag der Spülluft wird durch Iodfiltrierung gewöhnlich auf unbedeutende Werte reduziert /4/.

Die Messungen erfolgten, wie erwähnt, während einer Revision (7 Wochen; Sammelperioden 27 bis 33) und im anschließenden Leistungsbetrieb.

---

\* Sammelperioden sind gewöhnlich aneinandergrenzende, fortlaufend nummerierte Meßzeiträume von einwöchiger Dauer.



KfK LAF I D8448

Verteilung des  $^{131}\text{I}$  im diskriminierenden Iodsammler

Abb. 1 <sup>a</sup>

- <sup>a</sup>
- part. I: partikelförmiges (schwebstoffförmiges)  $^{131}\text{I}$
  - elem. I: elementares  $^{131}\text{I}$
  - org. I: organisches  $^{131}\text{I}$ 
    - org. I (A): leichter abscheidbares  $^{131}\text{I}$
    - org. I (B): schwerer abscheidbares  $^{131}\text{I}$
- (auch in den folgenden Abbildungen)



### 2.3 Ergebnisse

Im folgenden wird nur auf die während der Revision erzielten Ergebnisse näher eingegangen. Während des Leistungsbetriebs wurden wegen niedriger  $^{131}\text{I}$ -Konzentrationen keine belastbaren Ergebnisse gewonnen.

Die während der einzelnen Sammelperioden in den verschiedenen Abluftströmen ermittelten  $^{131}\text{I}$ -Konzentrationen und Anteile der  $^{131}\text{I}$ -Komponenten sind in den Tab. 1 und 2 wiedergegeben. Die entsprechenden mittleren Anteile der  $^{131}\text{I}$ -Komponenten sind in Abb. 2 aufgeführt.

Bei der Kaminfortluft ist u.a. folgendes zu erkennen:

- a) Der Anteil des partikelförmigen  $^{131}\text{I}$  war meistens sehr klein. Im Mittel betrug er 2 %.
- b) Der Anteil des elementaren  $^{131}\text{I}$  war i.allg. sehr groß. Es ergab sich ein mittlerer Anteil von 65 %.
- c) Der Anteil des organischen  $^{131}\text{I}$  schwankte in hohem Maße. Im Mittel betrug er 33 %. Davon entfielen im Mittel 31 % auf leichter abscheidbares  $^{131}\text{I}$  und 2 % auf schwerer abscheidbares  $^{131}\text{I}$ .

Es ist außerdem ersichtlich, daß in der Kaminfortluft nur bei einer Messung ein geringer Anteil  $^{131}\text{I}$  (< 10 %) an den letzten beiden RKJ1-Betten festgestellt wurde (Sammelperiode 27; vgl. Abb. 1). Sehr schwer abscheidbares, d.h. Betten einer Verweilzeit von 0,15 s penetrierendes  $^{131}\text{I}$  trat im Mittel also nicht in meßbaren Anteilen auf.

In den anderen Abluftströmen wurden weitgehend analoge Befunde erzielt. Das gilt insbesondere auch für die Spülluft, in der, wie erwähnt, in einer vorhergehenden Revision hohe Anteile an penetrierendem  $^{131}\text{I}$  festgestellt worden waren.

Tab. 1 :  $^{131}\text{I}$ -Konzentrationen und Anteile der  $^{131}\text{I}$ -Komponenten in der Kaminfortluft des SWR 5

Sammel- periode <sup>a</sup>	$^{131}\text{I}$ - Konzentration <sup>b</sup> [Ci/m <sup>3</sup> ]	Anteil der $^{131}\text{I}$ -Komponenten [%] <sup>c</sup>				Nachweisgrenze <sup>f</sup> [%]
		part. I	elem. I	org. I (A) <sup>d</sup>	org. I (B) <sup>e</sup>	
27	8,5(-13)	0	25	68	6/ < 1	< 1
28	8,0(-13)	0	83	17	< 1/ 0	< 1
29	6,0(-13)	0	90	10	0	< 1
30	4,4(-13)	6	90	4	0	< 1
31	1,2(-13)	14	75	11	0	2
32	2,8(-14)	0	100	0	0	8
33	1,7(-13)	5	11	78	6/ 0	1

<sup>a</sup> aneinandergrenzende, fortlaufend nummerierte Meßzeiträume von einwöchiger Dauer

<sup>b</sup> 8,5(-13) =  $8,5 \cdot 10^{-13}$  u.s.w.

<sup>c</sup> bei Unterschreiten der Nachweisgrenze gleich 0 gesetzt

<sup>d</sup> leichter abscheidbares  $^{131}\text{I}$  ( $^{131}\text{I}$  an AC6120)

<sup>e</sup> schwerer abscheidbares  $^{131}\text{I}$  ( $^{131}\text{I}$  an RKJ1);  
erster Wert: erste beide Betten; zweiter Wert: letzte beide Betten

<sup>f</sup> Nachweisgrenze der  $^{131}\text{I}$ -Komponenten, bezogen auf insgesamt abgeschiedenes  $^{131}\text{I}$  (Nettozählrate gleich Standardabweichung der Nettozählrate)

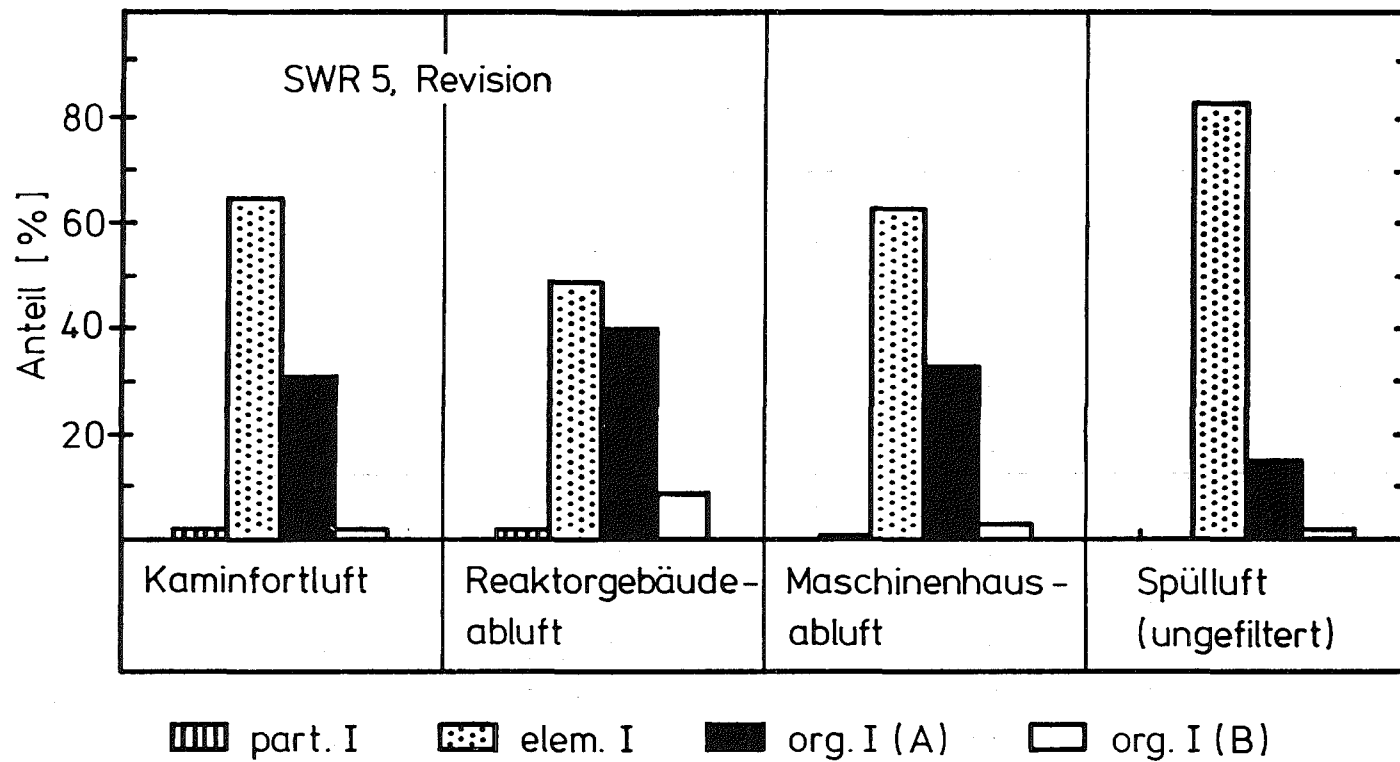
Tab. 2:  $^{131}\text{I}$ -Konzentrationen und Anteile der  $^{131}\text{I}$ -Komponenten in verschiedenen Abluftströmen des SWR 5

Abluftstrom	Sammelperiode <sup>a</sup>	$^{131}\text{I}$ -Konzentration <sup>b</sup> [Ci/m <sup>3</sup> ]	Anteil der $^{131}\text{I}$ -Komponenten [%] <sup>c</sup>				Nachweisgrenze <sup>f</sup> [%]
			part. I	elem. I	org. I(A) <sup>d</sup>	org. I(B) <sup>e</sup>	
Reaktor- gebäude- ablufte	27	1,8(-13)	0	17	68	13/2	1
	28	2,8(-13)	0	50	36	13/0	< 1
	29	3,0(-13)	0	82	18	0	< 1
	30	3,8(-13)	2	74	11	8/5	< 1
	31	8,2(-14)	18	53	28	0	3
	32	1,8(-14)	0	66	34	0	12
	33	3,5(-13)	3	5	84	8/0	< 1
Maschinen- haus- ablufte <sup>g</sup>	27	2,5(-12)	0	23	72	5/0	< 1
	28	1,7(-12)	0	82	17	2/0	< 1
	29	1,2(-12)	0	91	8	<1/0	< 1
	30	1,0(-12)	2	92	5	1/0	< 1
	31	3,4(-13)	3	77	10	9/0	< 1
	32	1,3(-13)	0	94	2	4/0	2
Spüllufte <sup>h</sup> (ungefiltertet)	29	1,9(-13)	0	80	17	3/0	1
	30	9,7(-14)	0	90	10	0	2
	31	3,5(-14)	0	82	18	0	6

<sup>a-f</sup> s. Tab. 1

<sup>g</sup> in Sammelperiode 33 keine belastbaren Werte erzielt

<sup>h</sup> in den anderen Sammelperioden Spüllufte nicht in Betrieb bzw. keine belastbaren Werte erzielt



- 4400-8 -

KfK LAF II D8453

Mittlere Anteile der  $^{131}\text{I}$ -Komponenten in verschiedenen Abluftströmen

Abb. 2 <sup>a</sup>

<sup>a</sup> Anzahl der Sammelperioden entsprechend Tab. 1 und 2;  
 Berechnung der Anteile aus den Agbaberaten der  $^{131}\text{I}$ -Komponenten;  
 org. I(A): leichter abscheidbares  $^{131}\text{I}$ ;  
 org. I(B): schwerer abscheidbares  $^{131}\text{I}$

## 2.4 Geplante Weiterarbeit

Es werden weitere Messungen mit speziellen diskriminierenden Iodsammlern in den genannten und eventuell weiteren Abluftströmen des SWR 5 und eines anderen Siedewasserreaktors durchgeführt. Bei Auftreten von hohen Anteilen an penetrierendem  $^{131}\text{I}$  soll dessen Sorptionsverhalten hinsichtlich verschiedener Aktivkohlen geklärt werden. Außerdem soll durch Massenspektrometrie die Natur des penetrierenden  $^{131}\text{I}$  bestimmt werden.

## 3. Untersuchungen im Labor

### 3.1 Einleitung

Es wurde verschiedentlich darauf hingewiesen, daß aus wässrigen, insbesondere alkalischen Lösungen verflüchtigtes Iod eine penetrierende Iodform darstellen könnte. Diese Form wurde unteriodige Säure (HIO) genannt, obwohl eine eindeutige Identifikation nicht durchgeführt werden konnte /5,6/.

Im Berichtszeitraum wurden zur Gewinnung von belastbaren Daten Untersuchungen zur Abscheidung von aus wässriger alkalischer Lösung verflüchtigtem  $^{131}\text{I}$  an verschiedenen kommerziellen Aktivkohlen durchgeführt.

### 3.2 Experimentelles

Die untersuchten Aktivkohlen sind in Tab. 3 aufgeführt. Die Testparameter gehen aus Tab. 4 hervor. Die Testbetten waren unterteilt, um die Ermittlung des Abscheidegrads oder Durchlaßgrads als Funktion der Bettiefe bzw. Verweilzeit zu ermöglichen.

"HIO" wurde durch Leiten von  $\text{I}_2$ , markiert mit  $^{131}\text{I}$ , durch eine wässrige alkalische Lösung ( $\text{p}_\text{H}=13$ ) hergestellt. In Tests mit besonderen Iodsorptionsmaterialien wurde nachgewiesen, daß das verflüchtigte Iod vernachlässigbare Anteile an  $\text{I}_2$  und  $\text{CH}_3\text{I}$  enthielt. Zum Vergleich wurde z.T. die Abscheidung dieser Iodverbindungen an den verwendeten Aktivkohlen unter den genannten Bedingungen ebenfalls bestimmt.

Tab. 3 : Untersuchte Aktivkohlen

Bezeichnung	Grundmaterial	Korngröße <sup>a</sup> [mesh]	Imprägnans	Lieferant
207B (KI)	Steinkohle	8 - 12	KI	Sutcliffe Speakman, GB
207B (TEDA)	Steinkohle	8 - 12	TEDA	Sutcliffe Speakman, GB
Kiteg II	Kokosnußschale	8 - 16	KI, tert. Amin	Nuclear Consul- ting Services, USA
Radshield 25	Kokosnußschale	8 - 16	tert. Amin	Charcoal Engi- neering, USA
207BPA (KI)	Steinkohle	8 - 12	KI	Sutcliffe Speakman, GB
Q	Kokosnußschale	8 - 16	Chinucli- din	Nuclear Consul- ting Services, USA
207B (KI) <sup>b</sup>	Steinkohle	8 - 12	KI	Sutcliffe Speakman, GB
207B	Steinkohle	8 - 12	—	Sutcliffe Speakman, GB

<sup>a</sup> 8 - 12 mesh: BS 410; 8 - 16 mesh: ASTM D2862

<sup>b</sup> gealtert (in der Spülluft eines Siedewasserreaktors)

Tab. 4: Testparameter

Parameter	Einheit	Wert
Temperatur	°C	30
relative Feuchte	%	98-100
Luftgeschwindigkeit	cm/s	25
Bettiefe <sup>a</sup>	cm	10
Verweilzeit	s	0,4
Vorströmzeit	h	≥ 16
Einleitzeit	h	1
Nachströmzeit	h	2 bzw. 168
Trägerkonzentration	g/m <sup>3</sup>	10 <sup>-7</sup> -10 <sup>-6</sup> <sup>b</sup>

<sup>a</sup> 4 Betten einer Tiefe von 2,5 cm; erstes Bett in Teilbetten einer Tiefe von 1,25 cm unterteilt; Bettdurchmesser jeweils 2,5 cm

<sup>b</sup> 10<sup>-3</sup> g/m<sup>3</sup> in den Vergleichstests mit I<sub>2</sub> und CH<sub>3</sub>I

### 3.3 Ergebnisse

Die Abb. 3 und 4 geben einen Überblick der Durchlaßgrade verschiedener Aktivkohlen für aus wässriger Lösung verflüchtigtes  $^{131}\text{I}$  bei verschiedenen Bettiefen und Nachströmzeiten. Die wichtigsten Ergebnisse sind:

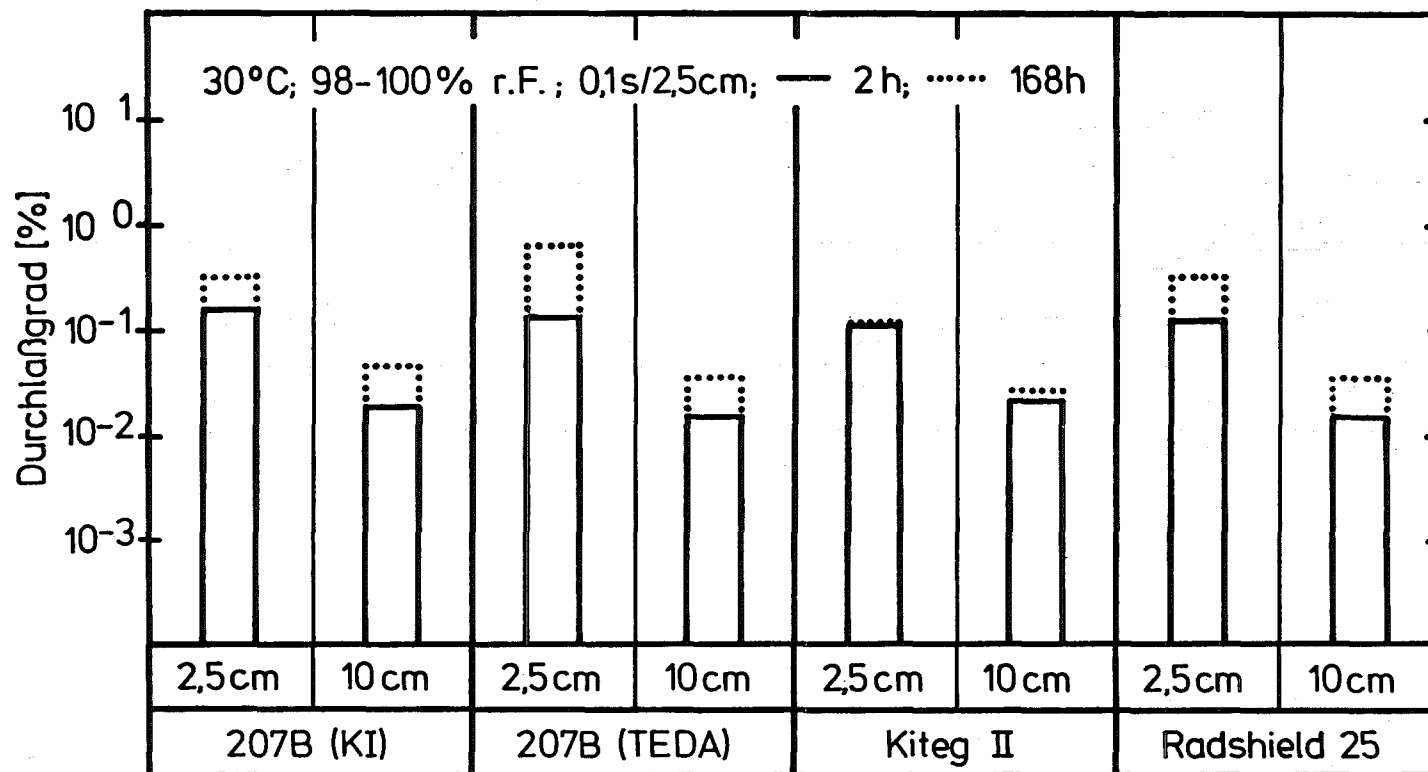
- a) Die bei verschiedenen frischen imprägnierten Aktivkohlen ermittelten Durchlaßgrade unterschieden sich bei beiden Nachströmzeiten nur in geringem Maße. Bei einer Nachströmzeit von 2 h betragen die Durchlaßgrade größenordnungsmäßig  $10^{-1} \%$  bei einer Bettiefe von 2,5 cm und  $10^{-2} \%$  bei einer Bettiefe von 10,0 cm. Bei einer Nachströmzeit von 168 h waren die Durchlaßgrade um Faktoren von 1 bis 5 höher.
- b) Die Durchlaßgrade der gealterten Aktivkohle 207B (KI) waren etwas höher als die der frischen Aktivkohle 207B (KI). Die Unterschiede entsprachen Faktoren von  $< 5$ .
- c) Die Durchlaßgrade von 207B (ohne Imprägnans) waren viel höher als die von 207B (KI). Die Unterschiede entsprachen Faktoren von  $> 10$ .

Abb. 5 zeigt die entsprechenden Durchlaßgrade der Aktivkohle 207B (KI) als Funktion der Bettiefe bei verschiedenen Nachströmzeiten. Zum Vergleich sind auch die Werte für  $\text{I}_2$  und  $\text{CH}_3\text{I}$  angegeben. Daraus geht hervor:

- a) Der weitaus größte Teil des Iods lag in einer Form vor, die schlechter als  $\text{I}_2$  und besser als  $\text{CH}_3\text{I}$  abgeschieden wurde ("HIO").
- b) Ein minimaler Teil des Iods trat in einer Form auf, die schlechter als  $\text{I}_2$  und  $\text{CH}_3\text{I}$  zurückgehalten wurde.

Bei der Beurteilung der Befunde ist zu berücksichtigen, daß minimale Anteile penetrierender Iodformen auch in Tests mit anderen Iodverbindungen (z.B.  $\text{I}_2$ ) beobachtet werden.



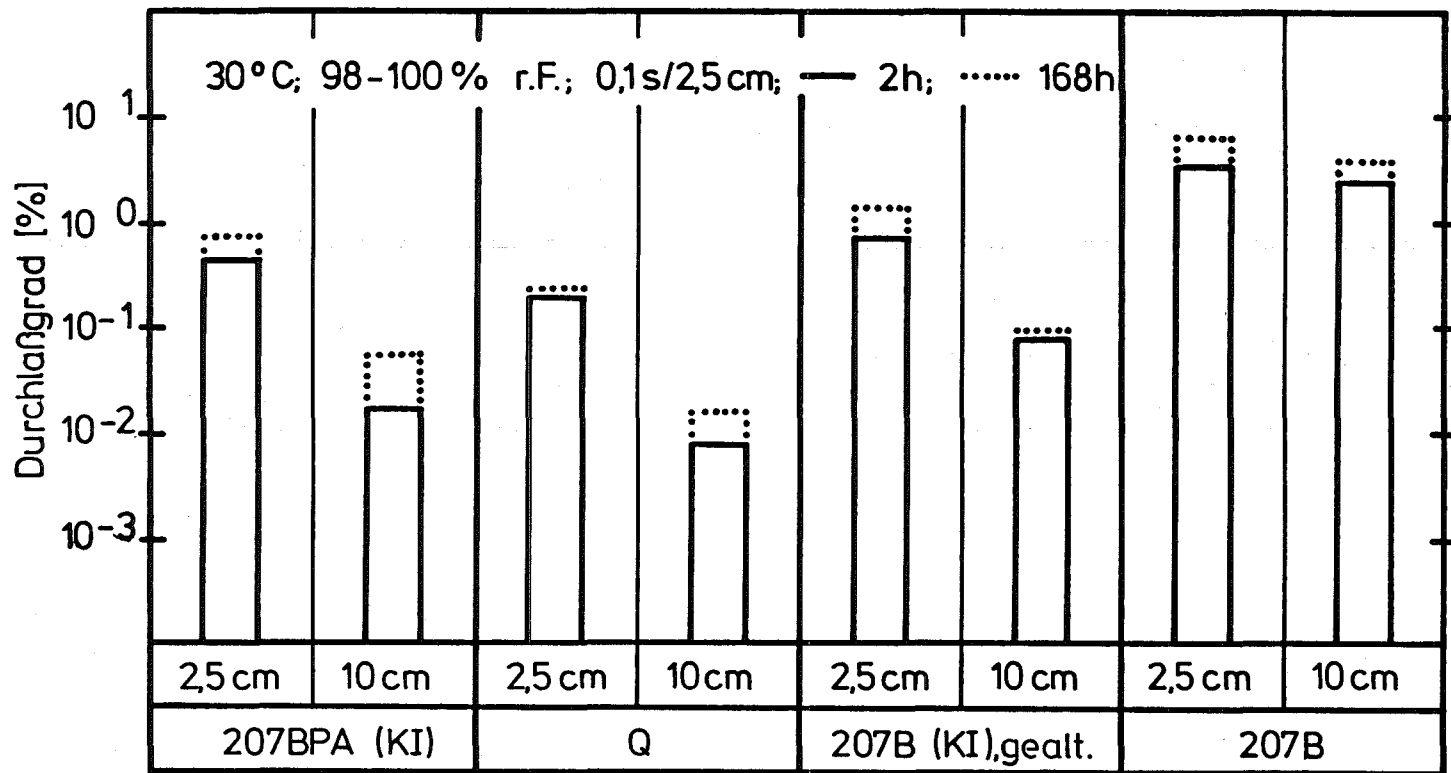


- 4400-13 -

**KIK** LAF II D8394

Durchlaßgrad verschiedener Aktivkohlen für  $^{131}\text{I}$ , verflüchtigt aus wässrigen Lösungen, bei verschiedenen Bettiefen und Nachströmzeiten

Abb. 3

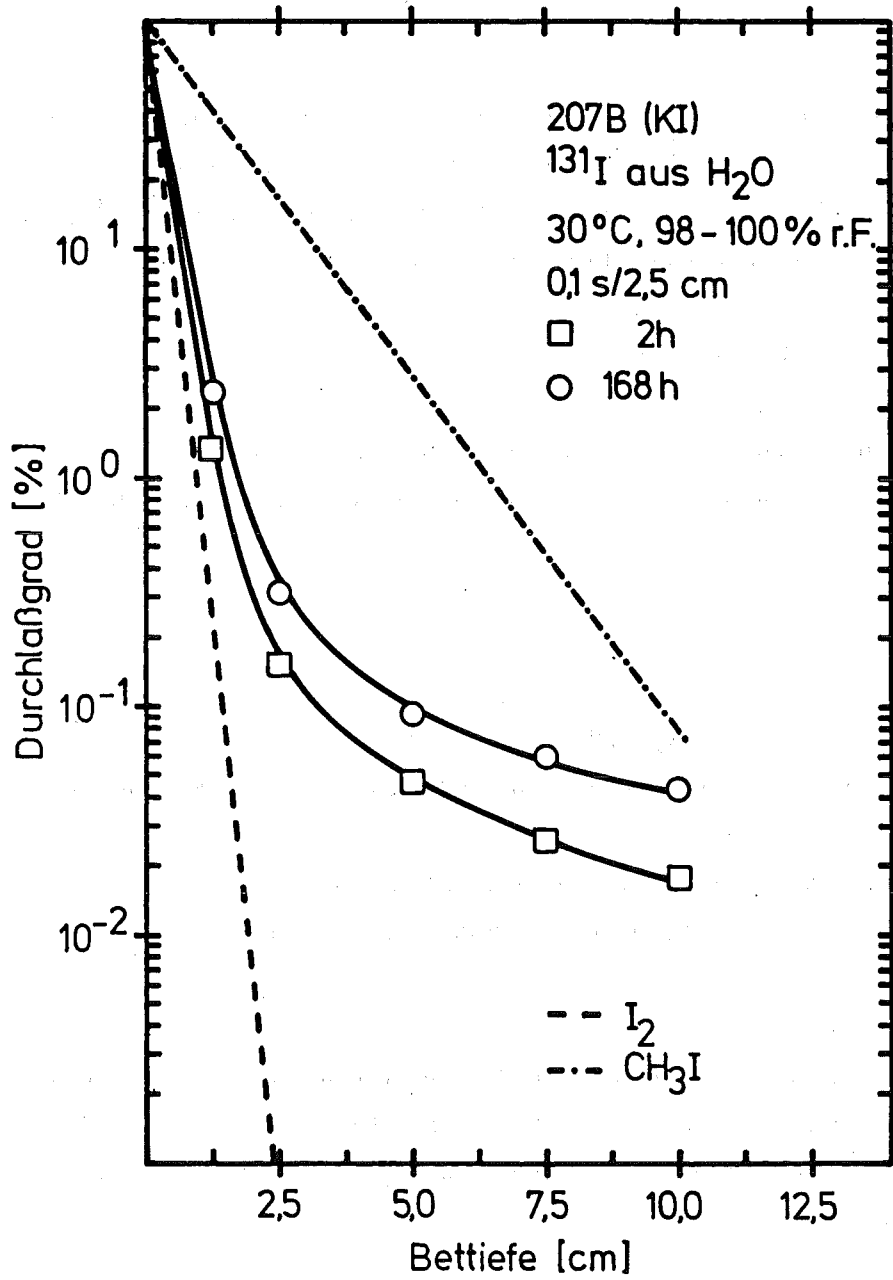


- 4400-14 -

KfK LAF II D8395

Durchlaßgrad verschiedener Aktivkohlen für <sup>131</sup>I, verflüchtigt aus wässrigen Lösungen, bei verschiedenen Bettiefen und Nachströmzeiten

Abb. 4



Durchlaßgrad als Funktion der Bettiefe  
bei verschiedenen Nachströmzeiten.

Abb. 5

### 3.4 Schlußfolgerung

Aus den Untersuchungen zur Abscheidung von aus wässriger alkalischer Lösung verflüchtigtem  $^{131}\text{I}$  an verschiedenen kommerziellen Aktivkohlen ist zu schließen, daß die resultierende Iodform ("HIO") kein Problem für die Iodfilterung darstellen sollte.

### 3.5 Geplante Weiterarbeit

Es werden Untersuchungen zur Abscheidung von Iodwasserstoff (HI) und anderen Iodverbindungen an verschiedenen Aktivkohlen durchgeführt.

## 4. Literatur

- /1/ Deuber, H., Wilhelm, J.G.,  
Occurrence of Penetrating Iodine Species in the Exhaust Air of  
PWR Power Plants,  
16th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,  
San Diego, 20. - 23.10.1980, CONF-801038 (1981) 1354
- /2/ Deuber, H. et al.,  
Investigations on the Extremely Low Retention of  $^{131}\text{I}$  by an  
Iodine Filter of a Boiling Water Reactor,  
18th DOE Nuclear Airborne Waste Management and Air Cleaning  
Conference,  
Baltimore, 12. - 16.8.1984
- /3/ Deuber, H.  
Die physikalisch-chemischen Radioiodkomponenten in der Abluft  
eines Druckwasserreaktors (DWR 3),  
KfK 3207 (1981)
- /4/ Deuber, H.  
Die physikalisch-chemischen  $^{131}\text{I}$ -Komponenten in der Abluft eines  
Siedewasserreaktors (SWR 5),  
KfK 3666 (1984)

/5/ Kabat, M.J.,

Chemical Behavior of Radioiodine Under Loss of Coolant Accident  
Conditions,

16th DOE Nuclear Air Cleaning Conference,

San Diego, 20.-23.10.1980,

CONF-801038 (1981) 867

/6/ Toth, L.M., Kirkland, O.L.,

The Chemical Behavior of Iodine in Aqueous Solutions up to 150 °C:

An Interim Report,

ORNL (1981)

06.01.14/20A Entwicklung und Verbesserung von Abluftfiltern zum  
PNS 4415 Einsatz unter extremen Belastungen  
(H.-G. Dillmann, R. Maier, H. Pasler, H. Schmitt;)

### Ein Filter-Konzept für extreme Belastungen

Deutsche Druckwasserreaktoren sind ausgelegt für einen maximalen Containmentdruck von ca. 6 bar. Der Berstdruck wird auf 8 bis 9 bar geschätzt. Damit liegt der Einsatzpunkt eines Unfallfilters im Bereich zwischen 6 und 8 bar. Die Gasbildungsrate ist nach "Wechsl" Berechnungen aus /1/ bekannt und liegt zwischen 3000 und 5000 m<sup>3</sup>/h. Abb. 1 zeigt ein Konzept für ein solches Unfallfilter. Als erste wesentliche Filterkomponente eines Unfallfilters ist ein kombinierter Tropfen- Nebelabscheider innerhalb des Containments anzuordnen. Damit wird erreicht, daß der zu filternde Gasstrom hinter dem Tropfenabscheider eine maximale Gasfeuchte von 100 % r.F. hat und somit tropfenfrei ist.

Die zweite wesentliche Komponente ist ein über den Innendruck gesteuertes Regelventil, das es erlaubt, den Gasstrom so zu regeln, daß der Innendruck des Containments auf zulässigem hohem Niveau konstant bleibt. Gleichzeitig wird sichergestellt, daß die luftgetragene Aktivität so lange wie möglich im Containment gehalten und durch aerosolphysikalische Prozesse wie Agglomeration und Sedimentation reduziert wird. Die zweite wesentliche Funktion des Ventiles ist die einer isenthalpen Drossel. Hiermit wird das Gas in seiner relativen Feuchte stark herabgesetzt,

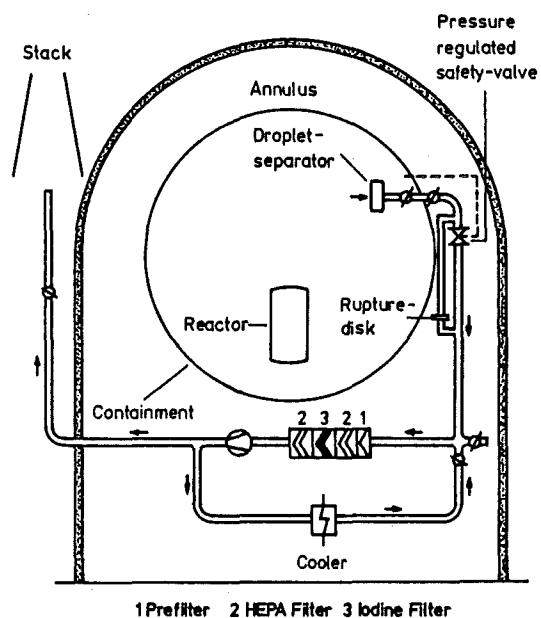
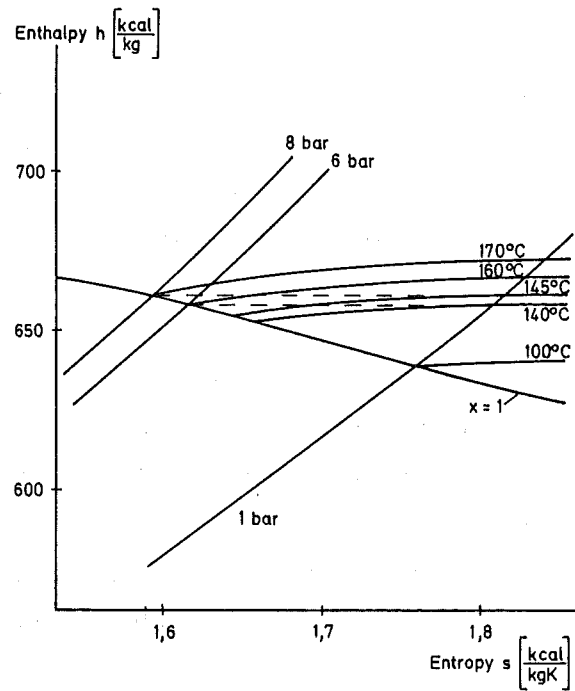


Abb. 1

Unfallfilterkonzept für LWR

und zwar von ca. 160 °C und 100 % r.F. auf ca. 140 °C und 1 bar mit einem Taupunktabstand von ca. 40 °C (Abb. 2). Eine Heizstufe vor dem Filter erübrigt sich.

Mit Ausnahme der kurzen Anfahrphase von ca. 10 s Dauer, bei der z. B. nur ca. 8 l Kondensat in der S-Filterstufe anfallen, bis diese auf über 100 °C aufgeheizt ist, sind die Filterkomponenten ausschließlich überhitzten Dampf-Luftgemischen ausgesetzt.



Zusätzlich kann zur Erhöhung der Sicherheit bei Unterstellung eines Versagens des Regelventiles diesem eine Berstscheibe mit etwas höher ausgelegtem Berstdruck und einer Volumenstrombegrenzung parallel zugeschaltet werden. Damit wäre zwar der Aktivitätseinschluß nicht entsprechend der Vorgabe so lange wie möglich gegeben und es käme zu einem Druckabbau in einem kürzeren Zeitraum. Die Filterfunktion wäre trotzdem nicht betroffen.

Abb. 2  
Absenkung der rel. Feuchte durch isenthalpe Entspannung



Nach Unfalleintritt vergehen ca. 4 bis 5 Tage, bis ein Unfallfilter in Betrieb genommen wird. In dieser Zeit kann das Filter, falls erforderlich, inertisiert werden, um einer  $H_2$ -Deflagration vorzubeugen. Die erste Filterstufe für Feststoff-Partikeln besteht aus einem Vorfilter, bestückt mit mehreren Schichten von Edelstahlfasern mit fallendem Faserdurchmesser. Damit wird die Masse der Grobaerosole vor der S-Filterstufe zur Standzeitverlängerung abgeschieden (Meßwerte sind unten angegeben). Die zweite Stufe besteht aus 2  $\mu\text{m}$  Edelstahlfasern mit Abscheidegraden, die denen von Glasfaserfiltern gleichwertig sind. Hier werden die Partikeln  $< 1 \mu\text{m}$  abgeschieden.

Dem auf das S-Filter folgenden Iodfilter, ausgerüstet mit hochtemperaturfestem Molekularsieb in der Silberform, kann ein weiteres S-Filter zur Abscheidung möglicherweise auftretender Abriebsaerosole aus dem Iodfilter nachgeschaltet werden. Das Abgas wird dann über ein Gebläse und eine Flammsperre (wegen des  $H_2$  Anteils) zum Kamin geführt. Zusätzlich ist im Ringraum ein Anschluß vorgesehen, um diesen bei Vorhandensein von Leckagen vom Containment her ebenfalls mitfiltern zu können.

Um nach Ende des Filterbetriebes (Druck  $< 6$  bar und fallend) die im Filter anfallende Zerfallswärme abzuführen, ohne zusätzliche Abluft zu erzeugen, ist ein Bypass über einen Kühler zum Filtersystem vorgesehen. Ein Fehler in diesem System wäre allerdings nicht als Störfall zu betrachten, da die Filterkomponenten bis ca.  $500\text{ }^\circ\text{C}$  beständig sind (es werden keine organischen Vergußmassen und Dichtungen eingesetzt). Bei diesen Temperaturen kann die Zerfallswärme über Wärmestrahlung abgeführt werden kann.

Ein Unfallfilter kann bei Dauerinstallation einen Strang der bisher 2 x 100 % vorhandenen Ringraumfilter ersetzen, da das Unfallfilter diese Funktion mit übernehmen kann.

Eine Alternative besteht aus einer mobilen Filterstrecke (Abb. 3), da 4 bis 5 Tage bis zum Einsatz des Filters vergehen und damit genügend Zeit zur Anlieferung und Anflanschung vorhanden ist. Es müssen nur

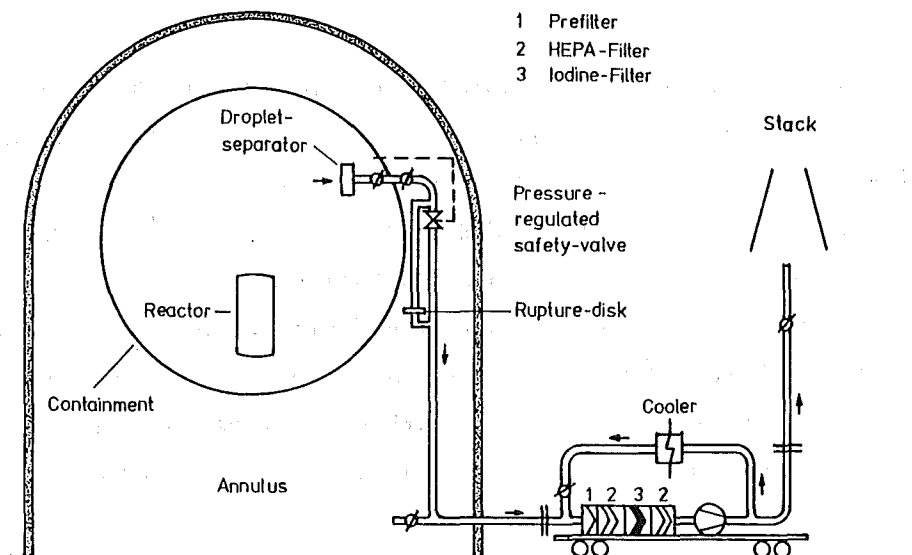


Abb. 3

Konzept einer mobilen Unfallfilteranlage



Tropfenabscheider, Regelventil, Verrohrung sowie die Anschlußteile am Reaktorgebäude und Kamin installiert sein. Das größte handzuhabende Gewicht dürften die Abschirmwände sein, die aus vorhandenen Betonsteinen aufgebaut werden können.

Hier ist anzumerken, daß mit diesem Konzept der FK 6 (Versagen des Sicherheitsbehälters nach einigen Tagen) vermieden wird. Die Frage der Beherrschbarkeit des FK 2, schnelles Versagen des Sicherheitsbehälters, muß ausführlicher diskutiert werden. Der wahrscheinlichste Fall des FK 2 - Ausfall des Containmentabschlusses durch Versagen der doppelten Schnellschlußklappen kann 2 Folgen bewirken.

1. Die Durchführungsleitung durch den Ringraum zur Unterdruckhalte-Filteranlage versagt im Bereich des Ringraumes. Dann wird im Ringraum ein Druckanstieg erfolgen bis ca. 0,2 bar Überdruck. Darauf folgt ein Versagen der Verbindungstür zum Hilfsanlagengebäude, und die Containmentatmosphäre gelangt über den Ringraum in das Hilfsanlagengebäude. Durch Kondensation an Strukturmaterialien erfolgt eine Reduzierung der Volumenströme und der freigesetzten Aktivität. Ob die Filteranlage des Hilfsanlagengebäudes den dort noch anstehenden Bedingungen (Feuchte, Druckstoß, Volumenstrom) standhält, müßte noch genauer untersucht werden.
2. Die Durchführungsleitung durch den Ringraum versagt nicht (zumindest bei neuen Anlagen druckfest ausgeführt), dann erfolgt keine Belastung des Ringraumes. Jedoch versagen die Komponenten (Kanäle und Filterkomponenten sowie Gebläse) der Unterdruckhalteanlage durch den starken Druckaufbau, wofür die Anlage nicht ausgelegt ist, und das Hilfsanlagengebäude wird wegen der fehlenden Kondensation im Ringraum wesentlich stärker belastet.

Beide Fälle können durch inhärent sichere Druckstoßventile, die direkt hinter den Schnellschlußklappen eingebaut werden und ohne Reaktorschutzsignal nur durch eine Erhöhung des Volumenstromes um 20 % in wenigen ms schließen, beherrscht werden. Damit wird praktisch der FK 2 in einen FK 6 umgewandelt, der mit obigem Filterkonzept beherrscht werden kann. Solche Druckstoßventile sind in /3/ beschrieben und werden seit kurzem in DWR's eingebaut zum Schutz der Unterdruckhalteanlage. Zusätzlich ist allerdings noch erforderlich, solche Druckstoßventile in umgekehrter Einbaulage auch in die Zuluftleitung einzubauen, um auch diesen Pfad abzusichern.

### Untersuchungen mit Dampfbeaufschlagung an der S-Filter-Stufe

Die ersten Untersuchungen an der S-Filter-Stufe erfolgten mit Luft. Da jedoch bei schweren Unfällen der Hauptanteil der Containmentatmosphäre aus Dampf besteht, wurden zum Nachweis der Funktion auch Abscheideuntersuchungen in Dampf durchgeführt. Dabei wurde mit überhitztem Dampf von 1 bar und 140 °C begonnen und dann die Dampftemperatur in Schritten zur Erhöhung der Feuchte verkleinert bis nahe an den Kondensationspunkt. Die Meßwerte sind in Tab. 1 angegeben. Es wurde kein wesentlicher Unterschied zu den Versuchen mit Luft gefunden.

Auch hier nimmt mit zunehmender Temperatur der DF zu. Insgesamt zeigt sich, daß über mehrere Wochen ein sicherer Filterbetrieb mit Edelstahlfasern auch unter schwierigen Bedingungen durchführbar ist.

### Das Korrosionsproblem

Die Edelstahlfasern sind Dampf und Dampf-Luftgemischen bei Temperaturen zwischen 100 und 180 °C über mehrere Monate ausgesetzt worden. Dabei konnte an den Fasern keine Korrosion festgestellt werden. Es kann erwartet werden, daß Korrosionsprobleme für den erwarteten Einsatzzeitraum von 2 bis 4 Wochen nicht auftreten.

Tabelle 1

Dekontaminationsfaktoren eines Edelstahlfaserfilters  
unter Dampfbedingungen

Filterbelegung	: 1,5 kg/ m <sup>2</sup> Fasern
Faserdurchmesser	: 2 µm
Anströmgeschwindigkeit	: 30 cm/s
Durchsatz	: 350 m <sup>3</sup> /h
Druckabfall	: 27 mbar
Betriebsdruck	: 1 bar
Prüfmedium	: Überhitzter Dampf
Prüfaerosol	: Uranin (Natriumfluoreszein)

Temperatur °C	Dekontamina- tionsfaktor	Abscheide- grad	Dekontamina- tionsfaktor mit Luft
140	5650	99,98	
130	4100	99,98	
130	4900	99,95	
120	2050	99,95	
120	3500	99,97	
110	1800	99,94	
110	1400	99,93	
102	1070	99,9	
102	1010	99,9	
140 <sup>+</sup>		99,97	4000
100 <sup>+</sup>		99,93	1400

### Untersuchungen an Vorfiltern

Vorfilter werden untersucht in Hinsicht auf Beladepazität und Abscheidegrad. Als Testaerosol wird ein kommerzielles Feuerlöschpulver mit einer Aerosolgrößenverteilung zwischen 1 und 10  $\mu\text{m}$  eingesetzt. Abb. 4 zeigt das entsprechende Partikelspektrum. Bei einem Unfall wird nach einer Wartezeit von einigen Tagen bis zur Filterinbetriebnahme der Anteil an Partikeln keinen zu hohen Beitrag zur Filterbeladung liefern, da aerosolphysikalische Prozesse wie Agglomeration und Sedimentation zur Reduzierung führen. Die möglichen Beladungen und Abscheidegrade sind in Tabelle 2 dargestellt.

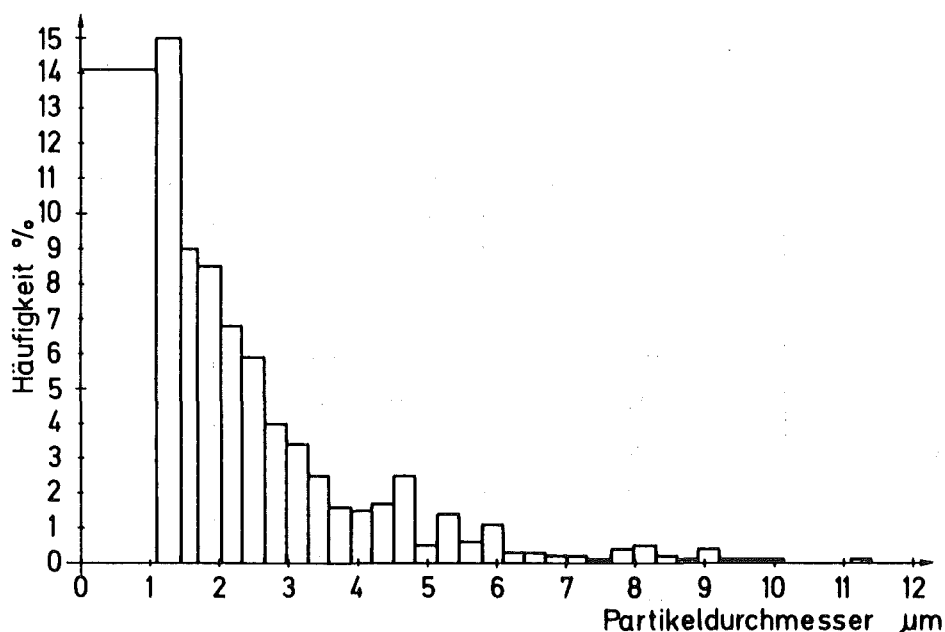


Abb.: 4

Tabelle 2

Beladung, Abscheidegrad und Druckabfall von Vorfiltern

Durchflußrate : 200 m<sup>3</sup>/h, +400 m<sup>3</sup>/h  
 Filteranströmfläche : 0,31 m<sup>2</sup>  
 Prüfaerosol : 1 - 10 µm

Faser- durchmesser (µm)	Filter- belegung (g/m <sup>2</sup> )	Anfangs- druckabfall ΔP (mbar)	Druckabfall bei Versuchs- ende ΔP (mbar)	Abscheide- grad (%)	Beladung (g)	Beladung (kg/m <sup>2</sup> )
30	2500	0,1	6	78	3243	10,5
22	1500	0,15	7	85	2348	7,6
12	1500	0,25	8,8	96	2288	7,3
8	1500	0,5	13,5	> 99	1080	3,5
4	1500	2,3	17,2	> 99	488	1,56
+8	1500	1,7	24,9	90	1430	4,6
+4	1500	5,1	31	> 99	790	2,5

Da ein Unfallfilter für den S-Filterteil eine Anströmfläche von ca. 5 m<sup>2</sup> für den erwarteten Volumenstrom von 3000 bis 5000 m<sup>3</sup>/h erfordert, kann auf einem gleich großen Vorfilter eine theoretische Beladekapazität von ca. 50 kg erreicht werden. Nach Rechnungen in anderen Arbeitsgruppen sind jedoch so hohe Beladungen nicht zu erwarten, so daß auch für das Vorfilter keine Einschränkungen im Einsatz bei Unfällen bestehen. Die Untersuchungen an den Vorfiltern werden noch bei unterschiedlichen Anströmgeschwindigkeiten weitergeführt und Abscheidegrade als Funktion des Partikeldurchmessers ermittelt, um eine Optimierung des genannten Fasermaterials durchzuführen.

Zusammenfassung

Es wurde gezeigt, daß ein Unfallabluftfilter so gebaut werden kann, daß auch hypothetische Unfälle in Leichtwasserreaktoren filtertechnisch beherrscht werden können und die Umgebungsbelastung um einen Faktor von ca. 1000 reduziert werden kann. Beim Einsatz eines solchen Filters werden die Aerosol- und Iodaktivitäten abgeschieden. Nur die Edelgase, die radiologisch nicht so kritisch sind, werden nicht abgeschieden. Die Kosten eines

entsprechenden Filtersystems werden auf 1 - 2 Mio. DM geschätzt. Das bedeutet einen Vorteil in Höhe eines Faktors von ca. 20, verglichen mit Kosten für Kondensationssysteme zur Reduzierung der Unfall-Auswirkungen.

### Renovierung der Anlage TAI FUN

Aufgrund des Alters der Anlage TAI FUN von ca. 13 Jahren treten verstärkt Ausfälle von Komponenten der MSR-Technik und der Armaturen und Pumpen auf. Daher wird 1985 eine umfassende Renovierung der Anlage durchgeführt. Hierzu wurde die MSR-Renovierung als Auftrag vergeben und ein digitales Prozeßleitsystem ausgenutzt und beschafft. Die Konfiguration des Prozeßleitsystems wird z. Z. durchgeführt. Der Feldanschluß wird voraussichtlich im 3. Quartal 1985 durchgeführt, ebenso die Überholung der Armaturen und Pumpen. Diese Renovierung wird als sinnvoll erachtet, da die Anlage TAI FUN noch für einige Jahre zur Filterprüfung und Entwicklung auch auf dem konventionellen Filtersektor eingesetzt wird.

### Literatur

/1/ Dillmann, H.G.; Pasler, H.

A filter concept to control airborne particulate releases due to severe reactor accidents and implementation using stainless-steel fiber filters.

18th DOE Nuclear Air Cleaning Conf.,  
Baltimore, Md., August 13-16, 1984

/2/ Dillmann, H.G.; Pasler, H.

A containment-venting filter concept and its implementation by use of stainless-steel fiber filters.

5th Intern. Meeting on Thermal Nuclear Reactor safety,  
Karlsruhe, September 9-13, 1984

/3/ Dillmann, H.G.; Pasler, H.; Plitt, U.

Fire and explosion protection of air cleaning systems.

LA-9911-C, Vol. 2, Conference CSNI Report No. 83  
Los Alamos, April 25-28, 1983

06.01.14/21A Zum Studium des Verhaltens von Schwebstofffiltern  
PNS 4416 unter simulierten Störfallbedingungen.

(V. Rüdinger, Th. Arnitz, R. Benesch, U. Ensinger,  
U. Geckle, C.I. Ricketts, LAF II)

### Einleitung, Zielsetzung

Die Lüftungssysteme kerntechnischer Anlagen bilden Wege über die eine Abgabe luftgetragener Radioaktivität grundsätzlich möglich ist /1,2/. Die darin angeordneten Filterelemente - Schwebstoff- und Iodsorptionsfilter - stellen im bestimmungsgemäßen Betrieb i.a. sicher, daß sowohl partikelförmige Radioaktivität als auch  $^{131}\text{I}$  nahezu quantitativ aus der Abluft entfernt werden.

Bei Störfällen sind jedoch Beanspruchungen der Filterelemente hinsichtlich Temperatur, Luftfeuchte, mechanischer Kräfte sowie Strahlendosen denkbar, die wesentlich über denen des Normalbetriebes liegen. In diesen Fällen würde die Gefahr erhöhter Aktivitätsabgaben an die Umgebung bestehen.

Um abschätzen zu können, welche Abgaben bei verschiedenen Störfallannahmen zu erwarten wären, muß das Verhalten der Filterelemente, insbesondere ihr Abscheidegrad, unter den voraussichtlichen Betriebsbedingungen bekannt sein. Solche Daten liegen bisher jedoch nicht in ausreichendem Maße vor.

Ein gravierendes Ereignis wäre das mechanische Versagen, d.h. die teilweise oder vollständige Zerstörung des Filterelementes, bei einem Störfall. Dies würde den Verlust des hohen Rückhaltevermögens bedeuten, mit der Konsequenz der Abgabe weitgehend ungefilterter Abluft an die Umgebung. Ebenso wie in der Reaktorsicherheitstechnik üblich /3/ ist es besonders wichtig die Sicherheitsmargen auch hinsichtlich eines Filterversagens bei allen Störfallszenarien zu kennen. Diese, bisher fehlenden, Informationen müssen im Rahmen von Untersuchungen des Filterverhaltens, hier insbesondere der strukturellen Festigkeit, erarbeitet werden. Um die Sicherheitsmargen ermitteln zu können, sind Filtertests auch bei solchen Bedingungen durchzuführen, die weit über die zu erwartenden Störfallbedingungen hinausgehen.

Mangels geeigneter Rechencodes zur Modellierung von Lüftungsanlagen ist es nicht möglich, die Betriebsbedingungen, die innerhalb einer Lüftungsanlage am Einbauort der Filterelemente bei verschiedenen Störfällen zu erwarten wären, mit hinreichender Zuverlässigkeit abzuschätzen. Für die Ausarbeitung solcher Lüftungsanlagencodes werden u.a. empirische Daten über das Verhalten von Filterkomponenten, z.B. Druckverlustcharakteristik, Abscheideverhalten, Versagensgrenzen und Staubspeichervermögen, bei den möglichen Störfallbedingungen benötigt.

Aus dem praktischen Einsatz in kerntechnischen Anlagen liegen Hinweise darüber vor, daß bei Schwebstofffiltern bereits im bestimmungsgemäßen Betrieb Schadensfrequenzen auftreten, die, gemessen an den Qualitätsstandards der Kerntechnik, als wesentlich zu hoch erscheinen /4,5/. Extrapoliert man auf erhöhte Störfallbeanspruchungen, so sind dann noch höhere Schadenshäufigkeiten zu erwarten. Damit zeichnet sich die Notwendigkeit ab, die Schwebstofffilter sowohl im Hinblick auf den Normalbetrieb als auch auf Störfälle zu ertüchtigen. Die Grundlagen für eine erfolgreiche Weiterentwicklung bilden die Informationen über die Schadensverläufe und Schadensmechanismen, die ebenfalls im Rahmen der Untersuchungen des Filterverhaltens erworben werden.

Untersuchungen zum Verhalten von Filtern unter Störfallbedingungen sind also notwendig, um die genannten vier Ziele zu erreichen:

- Angabe der Sicherheitsmargen gegenüber Filterversagen.
- Abschätzung des Risikos einer erhöhten Aktivitätsabgabe bei Störfällen.
- Entwicklung von ertüchtigten Filterelementen.
- Beitrag zur Entwicklung von Lüftungsanlagencodes für Störfälle.



Die vor einigen Jahren aufgenommenen Arbeiten beschränken sich auf das Studium des Verhaltens von Schwebstofffiltern. Im folgenden werden die 1984 erzielten Ergebnisse zusammengefaßt.

## 2. Schwebstofffilterverhalten unter anhaltender Einwirkung hoher Feuchten bei 50 °C

Hohe Luftfeuchten können bei Störfällen mit Brüchen kühlmittelführender Leitungen ebenso auftreten wie bei Bränden, wenn die Brandgase im zunächst noch kalten Lüftungssystem abgekühlt werden oder wenn zum Schutz vor Übertemperaturen Wasser in den Luftstrom eingesprüht wird. Daneben sind auch im bestimmungsgemäßen Betrieb kerntechnischer Anlagen hohe Luftfeuchten an den Filterelementen möglich /5/.

Für alle filternden Staubabscheider gilt die Regel, einen Betrieb bei hohen Feuchten oder gar bei Nässe zu vermeiden /6/. Auch im speziellen Fall der Schwebstofffilter sind schädliche Effekte als Folge der Einwirkung hoher Feuchten seit langem bekannt /7,8/. Es wird über Anstiege des Durchströmungswiderstandes berichtet, über die Verringerung des Abscheidegrades und über Schäden an Filtermedium und Rahmen. Allerdings decken die in der Literatur dokumentierten Daten nicht den gesamten interessierenden Bereich ab und sind außerdem sehr widersprüchlich /9/. Deshalb werden eigene systematische Untersuchungen vorwiegend unter Verwendung der Prüfanlage TAI FUN durchgeführt.

Im Berichtszeitraum wurde die Meßtechnik durch ein selbst gebautes Gerät zur Messung der Nebelnässe ergänzt, bei dem ein Teilluftstrom aufgeheizt und die relative Feuchte des nun im

untersättigten Gebiet liegenden Zustandspunktes gemessen wird. An das Beobachtungssystem mit dem starren Endoskop wurde eine Super 8 Filmkamera mit Zeitsteuerung angepaßt, so daß wahlweise auch Zeitrafferfilme von der Abströmseite der Testfilter aufgenommen werden können. Damit wird die Analyse der Schadensverläufe weiter verbessert.

Im Rahmen der experimentellen Arbeiten wurde der Verlauf des Druckverlustes in Abhängigkeit von der Luftfeuchte und oberhalb 100% r.F. in Abhängigkeit von der Nebelnässe bei 50 °C und konstantem Nennvolumenstrom von 1700 m<sup>3</sup>/h untersucht. Damit erhält man die aus der Feuchteeinwirkung resultierenden mechanischen Beanspruchungen des Filters. Sie werden darüber hinaus für die mathematische Modellierung von Lüftungsanlagen benötigt.

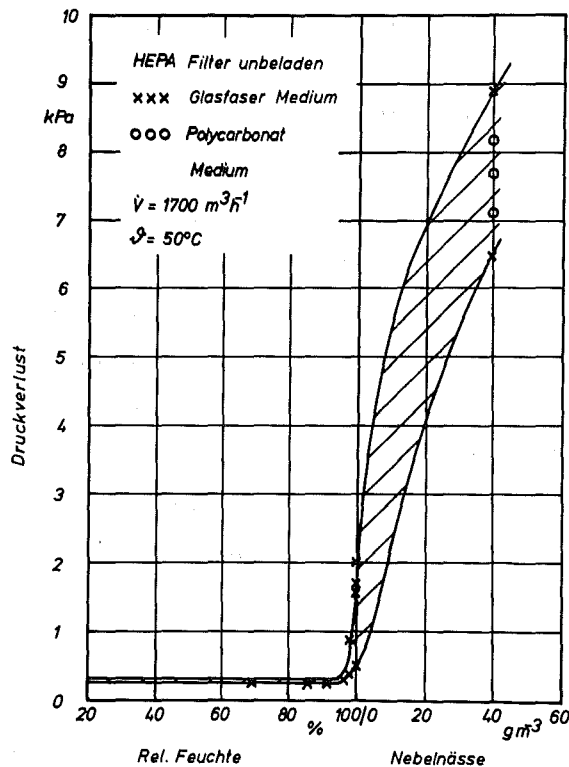


Abb. 1: Gleichgewichtsdruckverlust unbeladener Schwebstofffilter der Größe 610x610x292 mm in Abhängigkeit von der rel. Feuchte, bzw. der Nebelnässe der zu filternden Luft.

Zum Einsatz kommen sowohl neue handelsübliche Schwebstofffilter als auch solche, die im praktischen Betrieb in der Abluftanlage des Institutsgebäudes bis zu einem Differenzdruck von etwa 1000 Pa mit Raumluftstaub beladen worden waren.

Die Ergebnisse aller getesteten Filter sind in den Diagrammen der Abbildungen 1 und 2 zusammengefaßt. Es wurden die Gleichgewichtswerte des Druckverlustes bei Nennvolumenstrom jeweils für unbeladene sowie für beladene Filter eingetragen.

Bild 1 zeigt, daß der Strömungswiderstand der geprüften 16 unbeladenen Filterelemente über einen weiten Bereich der Luftfeuchte konstant bleibt. Erst oberhalb 95% r.F. stellt sich ein merklicher Anstieg auf Werte zwischen 0,5 und 2,0 kPa ein. Bei Beaufschlagung mit Nebel steigt der Differenzdruck jedoch weiter steil an.

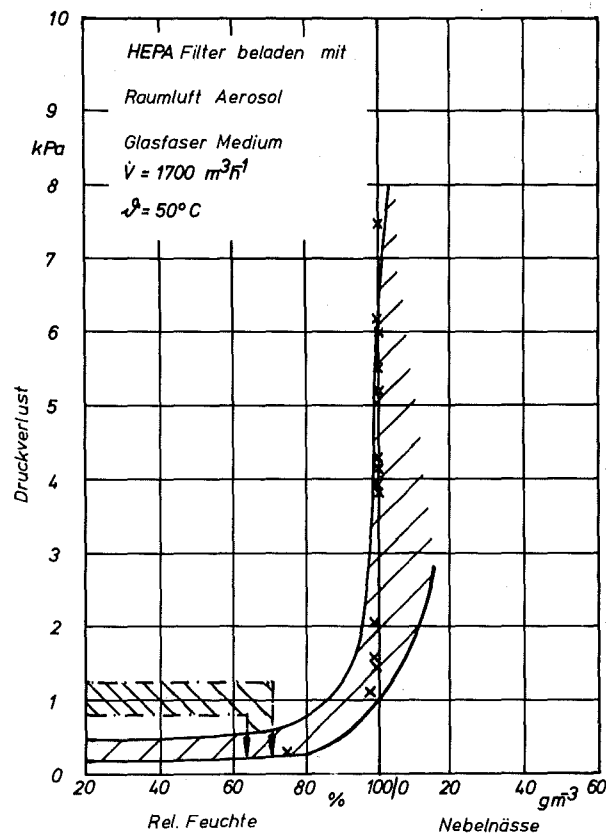


Abb. 2: Gleichgewichtsdruckverlust beladener Schwebstofffilter der Größe 610x610x292 mm in Abhängigkeit von der rel. Feuchte der zu filternden Luft.

Bei den zwei ersten Feuchtetests mit beladenen Filtern war ein irreversibler Abfall des Strömungswiderstandes auf Werte nahe denjenigen unbeladener Filter beobachtet worden, der dann eintrat, wenn die Luftfeuchte erstmals etwa 70% r.F. erreicht hatte. Dieses Phänomen trat auch im Laufe der weiteren Tests mit beladenen Filtern auf. Man kann davon ausgehen, daß Feuchtigkeit infolge Kapillarkondensation im Bereich der Kontaktflächen der Partikel eingelagert wird. Die Partikel werden mobilisiert und kompaktieren unter dem Einfluß der Oberflächenspannung auf der Faser zu einer stabilen Konfiguration. Hierdurch werden die Strömungsquerschnitte zwischen den Fasern wieder geöffnet, so daß sich der Strömungswiderstand verringert. Dieser Vorgang ist in Bild 2 durch die strichpunktiert umrahmte Fläche dargestellt.

Bild 2 zeigt weiterhin, daß mit Staub beladene Filter trotz dieses Effektes wesentlich empfindlicher auf hohe Feuchte reagieren als unbeladene, denn bei Sättigung stellen sich Druckverluste zwischen 1,0 und 7,4 kPa ein. Werte bei Beaufschlagung mit Nebel konnten deshalb nicht gemessen werden, weil alle Testfilter bereits nach Einwirkung gesättigter Luft beschädigt wurden.

Dem Eintreten von Filterschäden kommt wegen des damit verbundenen Verlustes der hohen Abscheidewirkung besondere Bedeutung zu. In Tabelle I sind die Differenzdrucke bei Schadenseintritt mit den zugehörigen wichtigsten Testdaten zusammengestellt.

Die Versagensgrenzen der handelsüblichen Schwebstofffilter liegen i.a. sehr niedrig. Ein direkter Einfluß der Vorbeladung mit Staub konnte nicht beobachtet werden. Indirekt wird ein Filterversagen jedoch dadurch begünstigt, daß die zum Schaden führenden Differenzdrucke bei beladenen Filtern bereits bei etwas niedrigeren Feuchten auftreten. Ein Einfluß der Einwirkungsdauer auf die Belastbarkeit zeichnet sich zwar ab, zu einer gesicherten Aussage reicht das vorliegende Datenmaterial jedoch noch nicht aus.

Tabelle I: Versagensgrenzen handelsüblicher Schwebstofffilter der Größe 610x610x292 mm nach anhaltender Feuchteeinwirkung bei 50 °C und Nennvolumenstrom (1700m<sup>3</sup>/h)

Nr.	Testfilter		Beanspruchungszeit		Schadens- differenzdruck kPa
	Rahmen- Werkstoff	Prüfzu- stand	100% r.F. h	Nebel h	
AP1	Preßspan	neu	62	0	2,6
AP4	"	"	0	5	4,8
AP7	"	"	45	4,5	5,9
AP8	"	"	0	5	5,3
AN1	Preßspan	mit Staub	-	1	6,3
AN2	"	beladen	-	2	4,4
AN3	"	"	17	0	5,2
AN4	"	"	25	0	4,1
AN5	"	"	25	0	5,4
DN1	Sperrholz	neu	43	5	9,0
DN2	"	"	74	3	6,3
VM1	Stahlblech	neu	69	1,5	3,3
VM2	"	"	0	6	2,1
VM3	"	"	24	0	1,7

Als hauptsächliche Schadensform wurde, wie im Rahmen früherer Tests bei hoher Strömungsgeschwindigkeit /10/, das Aufreißen von Faltungsenden auf der Abströmseite beobachtet. Ein typisches Beispiel zeigt die in Bild 3 wiedergegebene Photographie.

Ein Vergleich der in Tabelle I zusammengefaßten Schadensdifferenzdrucke mit den entsprechenden Werten aus den Untersuchungen bei hoher Strömungsgeschwindigkeit und trockener Luft zeigt, daß bei Feuchtebeanspruchung nur wesentlich niedrigere Differenzdruckbelastbarkeiten gegeben sind. Es liegen

zwei Befunde vor, die diese Daten erklären /9/. So wurde beobachtet, daß sich das Faltenpack im Laufe der Feuchteeinwirkung stark auflockert, was das Aufreißen der Faltungsenden begünstigt. Außerdem wurde festgestellt, daß die Zugfestigkeit des Filterpapiers im nassen Zustand erheblich absinkt.

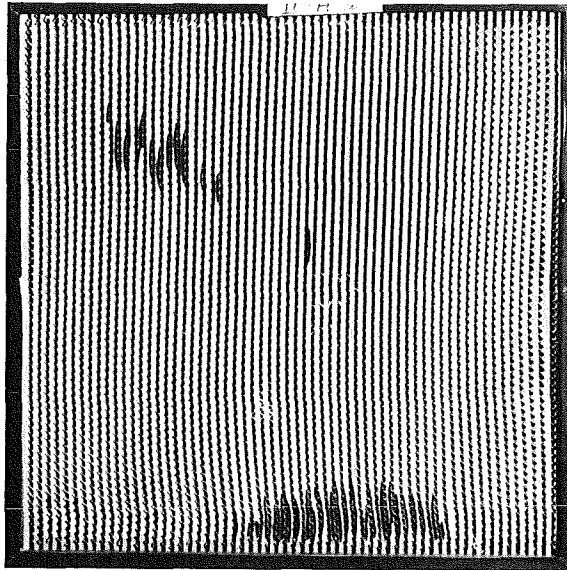


Abb. 3: Abströmseite eines Schwebstofffilters in konventioneller Faltung nach anhaltender Beaufschlagung mit Luft hoher Feuchte. Geöffnete Faltungsenden erscheinen schwarz.

3. Zur Abscheidegradprüfung bei erhöhten Temperaturen und hohen Feuchten

Der Abscheidegrad ist dann für die Abgabe partikelförmiger Radioaktivität maßgeblich, wenn die Schwebstofffilterelemente und insbesondere das Faltenpack unversehrt bleiben. Zur Vorbereitung von Untersuchungen des Abscheideverhaltens von Schwebstofffiltern bei erhöhten Temperaturen und hohen Feuchten mußte zunächst ein geeignetes Prüfverfahren entwickelt werden.

Das Testaerosol wird dabei aus  $\text{TiO}_2$ -Pulver durch Verdampfung im Argonplasma und anschließender Rekondensation im Testluftstrom erzeugt. Die Massenkonzentrationsmessungen zur Abscheidegradbestimmung erfolgen über Probenahme auf Kernporenfiltern und anschließender Analyse mit Hilfe der Graphitrohr-AAS /11/.

Im Berichtszeitraum ist es gelungen, die Empfindlichkeit des Ti-Nachweises so zu steigern, daß Dekontaminationsfaktoren (DF's) bis  $10^5$  mit guter Genauigkeit ermittelt werden können. So konnte die Nachweisgrenze durch Verringerung der Säuremenge beim Aufschluß der Probenahmefilter verbessert werden. Darüber hinaus wurde festgestellt, daß die vorliegenden Aerosolpartikel auch auf Kernporenfiltern mit einer Porenweite von  $0.4 \mu\text{m}$  praktisch quantitativ abgeschieden werden, womit höhere Probenahmeströme möglich sind. Hierdurch kann die Empfindlichkeit auf o.g. Niveau gesteigert oder die Probenahmezeiten auf Werte von 5 bis 10 min verkürzt werden.

Das neue Verfahren wurde eingehend erprobt und seine Aussagefähigkeit anhand des Vergleiches mit den Standardprüfverfahren Uranin-Test /12/ und DOP-Test mit heterodispersen Aerosol /13/ beurteilt. Das Ergebnis des Vergleiches mit unterschiedlichen Filtern ist Abb. 4 zu entnehmen.

Das Diagramm zeigt, daß die DF's der zwei Standardprüfverfahren im gesamten untersuchten Bereich größer sind, als die des Plasmaaerosolverfahrens. Die Relationen betragen 2,2:1 für das DOP-Verfahren und 1,5:1 für den Uranintest. Qualitativ sind diese Werte durch die unterschiedlichen Partikelgrößen der Testaerosole von  $0,7 \mu\text{m}$  (DOP),  $0,16 \mu\text{m}$  (Uranin) sowie  $0,05 \mu\text{m}$  (Plasmaaerosol) erklärlich.

Zur Vorbereitung von Abscheidegraduntersuchungen bei erhöhten Temperaturen wurde der Prüfstand TAI FUN mit einer Plasmaanlage zur Aerosolerzeugung ausgestattet.

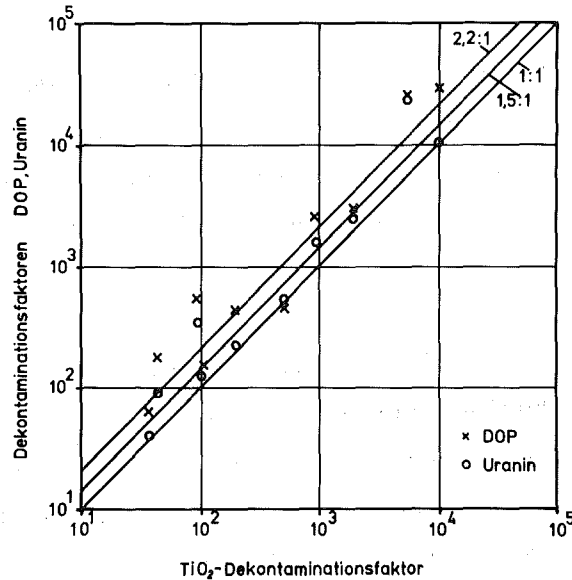


Abb. 4: Vergleich der Dekontaminationsfaktoren des TiO<sub>2</sub>-Plasmaaersolverfahrens mit denen des DOP (heterodispers)- und des Uranin-Tests.

#### 4. Orientierende Versuche zur Filterbeaufschlagung mit Abgasen aus Bränden.

Die Beaufschlagung mit Abgasen aus Bränden stellt sehr komplexe Beanspruchungsbedingungen für Schwebstofffilterelemente dar. In erster Linie interessiert in diesem Zusammenhang das Speichervermögen des Filters gegenüber Ruß, d.h. mit welcher Rußmenge das Filtermedium beladen werden kann, bevor ein exponentieller Anstieg des Strömungswiderstandes eintritt und somit die Ventilation nicht mehr aufrecht erhalten werden kann.

In der Anfangsphase eines Brandes können hohe Feuchten auftreten, nach Aufheizung der Lüftungskanäle sowie als Folge einer möglichen Einspeicherung nennenswerter Aktivitätsmengen sind hingegen Beanspruchungen durch hohe Temperaturen zu erwarten. Hieraus folgt, daß die Integrität der Filter gefährdet sein kann.



Die orientierenden Versuche, die in Zusammenarbeit mit der Universität Braunschweig mit sehr unterschiedlichen Filtertypen durchgeführt wurden, konzentrierten sich deshalb auf die Bestimmung des Staubspeichervermögens und auf die Messung des Abscheidegrades nach dem Test. Die Filterelemente waren dabei in einer Abgasleitung aus einer Brandzelle angeordnet. Die Tests erstreckten sich über 1 bis 2 Stunden.

Die wichtigsten Ergebnisse der 8 Versuche sind in Tabelle II aufgelistet. Die Messung der Abscheidegrade wurde mit der DOP-Methode mit polydispersem Aerosol durchgeführt. Bei den ersten 6 Testfiltern handelte es sich um handelsübliche Produkte der Größe 610x610x292 mm. Die beiden übrigen waren Prototypen mit Metallfaserpacks, wobei in einem Fall der Nennvolumenstrom lediglich  $500 \text{ m}^3/\text{h}$  betrug.

Tabelle II: Rußbeladung und Abscheidegrad von Schwebstofffiltern der Größe 610x610x292 mm nach Beaufschlagung mit Abgasen aus Bränden.

Filtertyp		Rußbeladung g	Abscheidegrad %
Medium	Rahmen		
Glasfaser	Holz	≈ 250	99,99
"	"	< 250	99,99
"	Metall	680	98,4
"	"	870	99,4
"	"	600	99,4
"	"	500	99,8
Metallfaser 2μ	"	-	97,7
Metallfaser 30μ*	"	600	65,5

\* Vorfilter

Zu Beginn der in den Zeilen 3ff aufgeführten Filtertests trat Taupunktunterschreitung mit Aufnahme von Feuchtigkeit durch das Filtermedium auf. Die deutliche Abnahme des Abscheidegrades dieser Filter ist vor allem auf diese Beanspruchungen zurückzuführen. Mit bloßem Auge erkennbare Schäden wurden nicht festgestellt. Der relativ niedrige Abscheidegrad des Prototypfilters mit Matten aus  $2\mu\text{m}$  Metallfasern dürfte in fertigungstechnischen Mängeln (Randabdichtung) begründet sein.

##### 5. Bau und Inbetriebnahme der Prüfanlage BORA

Die Prüfanlage BORA wurde entworfen, um das Verhalten von Schwebstofffilterelementen unter kombinierten Beanspruchungen zu untersuchen. Die Prüfung anderer Komponenten von Lüftungsanlagen soll ebenfalls möglich sein. Weiterhin können Rechencodes zur Modellierung von Lüftungsanlagen bei Störfällen mit Hilfe der Anlage BORA in gewissem Umfang experimentell verifiziert werden.

Im Berichtszeitraum wurde die Montage der Anlage einschließlich der Meß- und Regelungstechnik abgeschlossen. Im Laufe des Probetriebes wurden Fehler in der Auslegung des Kanalsystems erkannt, die das Auftreten von Schäden beim Betrieb unter hohen Temperaturen erwarten ließen. Die langwierige Mängelbeseitigung am Kanalsystem durch den verantwortlichen Unterauftragnehmer ist erfolgt. Die Anlage wurde für den Betrieb bei  $40^{\circ}\text{C}$  abgenommen. Die Montage der Wärmeisolierung und die Abnahme bei  $200^{\circ}\text{C}$  stehen noch aus. Eine Ansicht der fertig montierten Ventilatorgruppe ist in Bild 5 wiedergegeben. Bild 6 zeigt ferner eine Ansicht der Komponententeststrecke mit der Hochgeschwindigkeitskamera und der Versuchsaufsteuerung.

Im Rahmen erster Testprogramme bei niedriger Temperatur ( $40 - 60^{\circ}\text{C}$ ) wurde die neue Versuchsanlage bereits erfolgreich eingesetzt. Es wurde eine Reihe von Verifikationsexperimenten im Druckbereich 1 bis 1,4 bar durchgeführt (s. Kap. 6.2) ebenso wie verschiedene Schwebstofffiltertests zur Messung der Differenz-

druckbelastbarkeit bei trockener Luft. Aus diesen Untersuchungen zeigt Abb. 7 als typisches Beispiel den zur Prüfung der strukturellen Integrität am Testfilter erzeugten Differenzdruckverlauf.

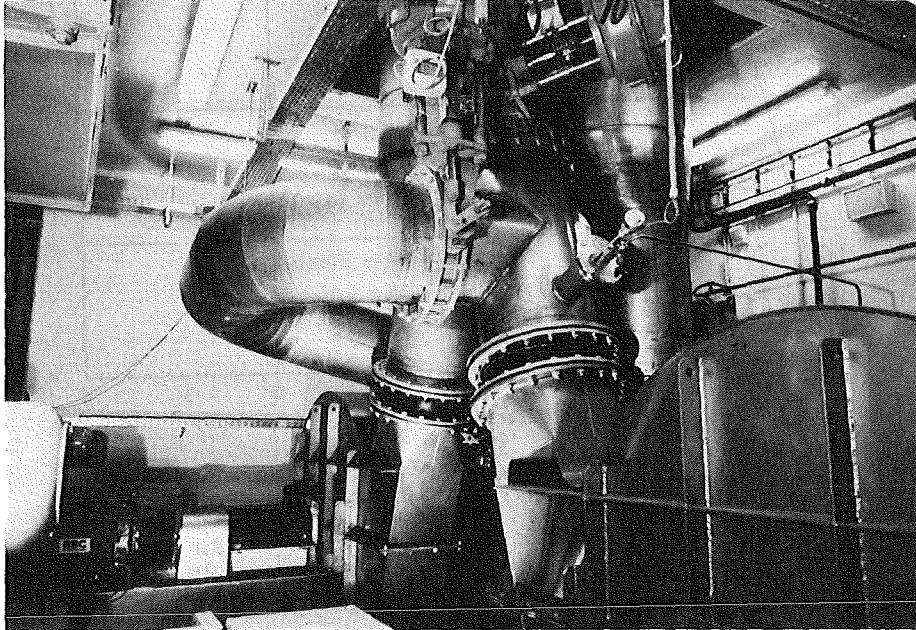


Abb. 5: Ansicht der fertig montierten Ventilatorgruppe mit den Antriebsmotoren.

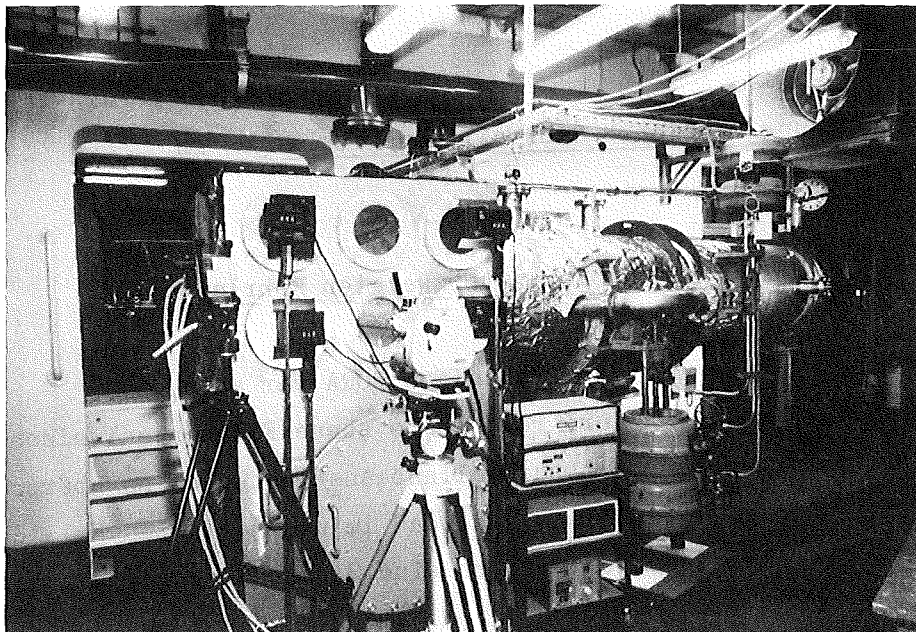


Abb. 6: Ansicht der Komponententeststrecke mit Hochgeschwindigkeitskamera und Versuchsablaufsteuerung.

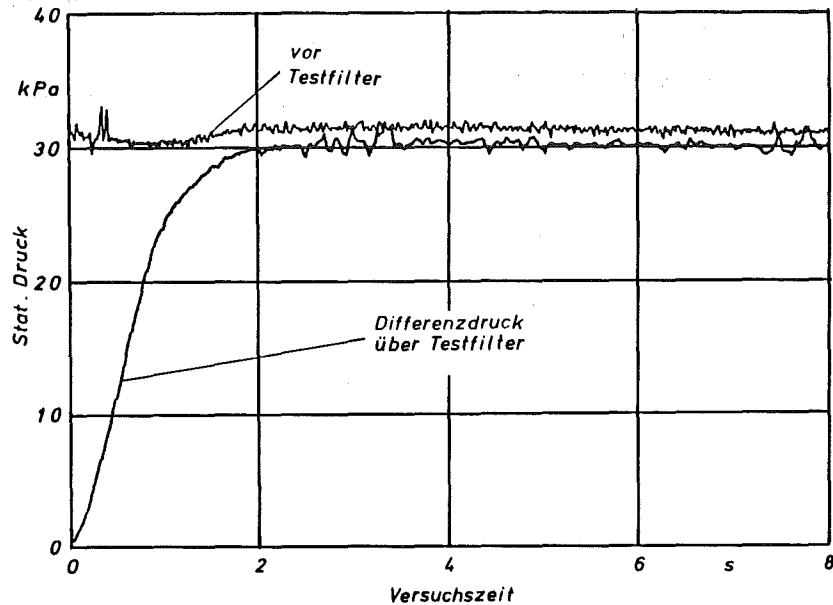


Abb. 7: Zeitlicher Verlauf des statischen Druckes vor dem Filter sowie des Differenzdruckes über das Testfilter eines typischen Belastbarkeitstests.

Die F+E-Meßdrucktechnik wurde durch ein kompaktes DV-System mit einem PC zur schnellen Registrierung des großen Meßwertstromes mit anschließender Verarbeitung vervollständigt.

## 6. Zur Abschätzung möglicher Störfallbeanspruchungen in Lüftungsanlagen

### 6.1 Ausbreitung schwacher Stöße in verzweigten Rohrleitungen

Im Zusammenhang mit dem Bau der Prüfanlage BORA war auch die festigkeitsmäßige Auslegung der, rel. große ebene Flächen aufweisenden, Schwebstofffilterbank gegenüber Druckwellenbeanspruchungen zu überprüfen. Man ging dabei von der Vorstellung aus, daß im ungünstigsten Fall des plötzlichen Versagens eines Testfilters eine Stoßwelle entsteht, die das

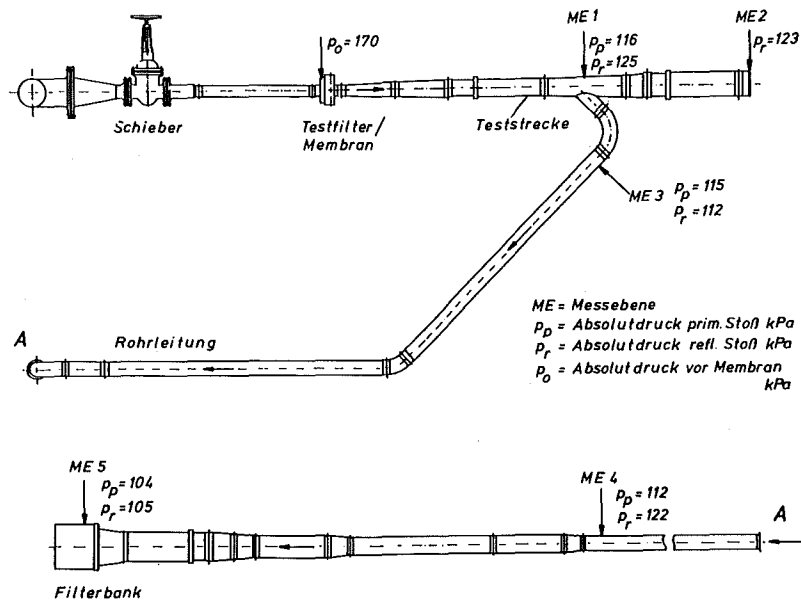
Kanalsystem stromabwärts durchläuft und schließlich die Filterbank belastet. Es war zu prüfen, ob die Filterbank und auch die Schwebstofffilter dadurch gefährdet werden würden.

Der Schwerpunkt der Untersuchungen lag auf der Klärung der Variation der Stoßstärke bei variablen Querschnitten ebenso wie der Frage der Stoßabschwächung in Verzweigungen. Im theoretischen Teil wurde ein analytisches Rechenverfahren abgeleitet /15/, das in linearisierter Form die Änderung der Stoßstärke mit der Querschnittsflächenänderung in konischen Kanalteilen verknüpft.

Zur Durchführung experimenteller Untersuchungen wurde der interessierende Teil des Kanalsystems längenrichtig aber mit auf  $1/8$  verkleinertem Durchmesser nachgebaut. Bei der Modellapparatur wurde das Testfilter durch eine Membran ersetzt, die perforiert wurde, um einen Luftstrom entsprechend der Filterkennlinie zu ermöglichen. In verschiedenen Meßebenen längs des Kanalsystems wurden die Ausbreitung des Stoßes ebenso wie die Stoßstärken mit Hilfe piezoresistiver Druckaufnehmer gemessen.

Wie die Meßergebnisse zeigen, erbrachte die Aufprägung einer Grundströmung durch die Membran respektive das Testfilter im geprüften Bereich bis 10 m/s keine meßbare Änderung der Stoßstärke. Es wurde lediglich die Ausbreitungsgeschwindigkeit geringfügig erhöht.

Das wichtigste Ergebnis ist in Abb. 8 dokumentiert. Es zeigt das Kanalsystem mit den an den Meßebenen ME 1 bis ME 6 gemessenen Stärken der primären und reflektierten Stöße. Es konnte gezeigt werden, daß am Eintritt in die Filterbank im ungünstigsten Fall eines Gesamtdruckes von 1,7 bar (170 kPa) vor dem Testfilter sowie unter Anerkennung der getroffenen ungünstigen Annahmen eine Stoßstärke von 1,05 bar auftreten würde. Bei einer Auslegung auf 1,4 bar ist somit eine Gefährdung ausgeschlossen.



**Abb. 8:** Stärken des primären und reflektierten Stoßes im Kanalsystem im Falle des maximalen Druckes von 1,7 bar vor der Membran.

Darüber hinaus konnte in sehr guter Übereinstimmung mit der abgeleiteten Gleichung experimentell nachgewiesen werden, daß die Stoßstärke in divergierenden Kanälen stark abgebaut wird. Ihre Abschwächung an Verzweigungen ist jedoch bei dem vorliegenden Niveau der Stoßstärke nur gering. Die gemessenen Reduktionen lagen lediglich im Bereich weniger %, was den in der Literatur dokumentierten Daten entspricht /16,17/.

Diese Ergebnisse sind nicht nur für die Prüfanlage BORA von Bedeutung. Sie sind ebenfalls wichtig bei der Betrachtung der Auswirkungen von Explosionen auf Lüftungssysteme.

## 6.2 Vorarbeiten zur Entwicklung von Lüftungscodes

Bekanntlich sind die bisher vorliegenden Informationen über die wahrscheinlichen Beanspruchungen innerhalb von Lüftungsanlagen nur unzureichend. Eine Ursache hierfür liegt im Mangel

geeigneter Rechenprogramme begründet. Im Rahmen vorbereitender Arbeiten zur Entwicklung geeigneter Codes wurden die relativ einfachen Programme TVENT und EVENT, die am Los Alamos National Laboratory entwickelt worden waren /18,19/, implementiert und zur Modellierung sich bewegender Klappen oder anderer aktiver Komponenten erweitert.

Zur Bewertung der Genauigkeit beider Codes wurden Verifikationsexperimente mit Hilfe der Prüfanlage BORA durchgeführt. Beide Codes unterscheiden sich hinsichtlich des zugrunde liegenden physikalischen Modells und somit auch bezüglich des notwendigen Rechenaufwandes. Deshalb sollte außerdem geprüft werden, in welchem Parameterbereich das weniger aufwendige Programm TVENT noch Rechnungen mit ausreichender Genauigkeit liefert.

Zu diesem Zweck wurde die Prüfanlage BORA mit beiden Programmen zur Berechnung der Strömungsvorgänge modelliert. Die erforderlichen Codeeingangsdaten wie die zeitlich unveränderlichen Druckverlustcharakteristiken von Wärmetauschern, Filterbank, Kanalsystem und Testfilter wurden durch stationäre Messungen bestimmt. Die zeitabhängig variierenden Druckverlustkennlinien der bewegten Klappen wurde durch Aufnahme der Klappenbewegungsgleichung und durch Messung des Durchflußwiderstandes in Abhängigkeit von der Klappenstellung ermittelt.

Mit beiden Codes wurden die aus verschiedenen Versuchsabläufen resultierenden Strömungsverhältnisse modelliert, die sich aus den Umschaltvorgängen der Strömung vom Bypass-Strang auf die Komponententeststrecke ergaben. Diese Versuchsabläufe wurden bisher im Temperaturbereich von 40 bis 60 °C sowie bei Vordrucken vor dem Testfilter von 35 kPa mit der Anlage realisiert und die zeitlichen Vorläufe von statischem Druck und Volumenstrom an verschiedenen Stellen des Kanalsystems registriert/20/.

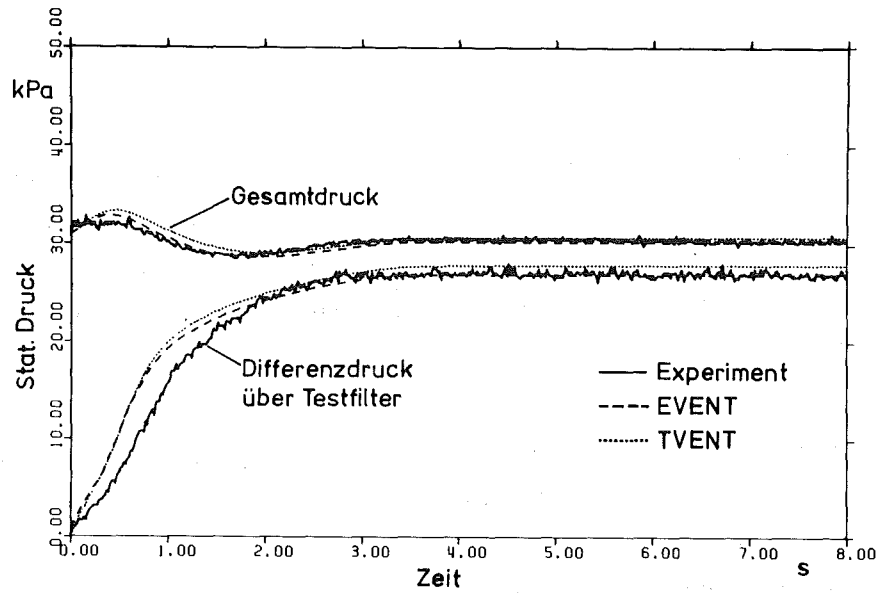


Abb. 9: Beispiel eines Vergleiches zwischen Rechnung und Experiment anhand des zeitlichen Verlaufes des statischen Druckes vor dem Testfilter und des Differenzdruckes über das Testfilter.

Ein typisches Beispiel der erhaltenen Resultate ist in Abb. 9 wiedergegeben. Man erkennt, daß beide Rechenprogramme Werte liefern, die mit den tatsächlichen Druckverläufen sehr gut übereinstimmen. Geringfügig genauere Rechenwerte werden mit dem aufwendigeren Code EVENT erhalten. Lediglich die Druckrampe tritt tatsächlich um etwa 250 ms später auf als es die numerischen Rechnungen ausweisen. Die Ursache hierfür könnte in Ungenauigkeiten bei der Modellierung der Regelklappe RK liegen.

Im Rahmen künftiger Arbeiten wird die Modellierung in dem genannten Detail überprüft und die Verifikationsexperimente auf Temperaturen bis 300 °C und auf den maximal möglichen Differenzdruck von 1,7 bar (170 kPa) ausgedehnt.



## 7. Ausblick

Um die in der Einleitung formulierten Ziele zu erreichen, müssen in erster Linie die Kenntnisse zum Verhalten der Schwebstofffilterelemente wesentlich erweitert und vertieft werden. Der Schwerpunkt der Arbeiten wird dabei auf dem gründlichen Studium der Feuchteeffekte liegen, die zu sehr frühem Filterversagen führen und deshalb als besonders kritisch zu betrachten sind.

Weiterhin ist das Verhalten unter hohen Temperaturen genauer zu untersuchen und das Datenmaterial zur Beaufschlagung mit Brandprodukten zu erweitern. Nachdem die Prüfanlage BORA fertiggestellt ist, wird ein weiterer Schwerpunkt der Arbeiten auf Untersuchungen zum Filterverhalten unter kombinierter Beanspruchung liegen.

Die bisher erarbeiteten Kenntnisse zu den Schadensverläufen und Schadensmechanismen erlauben es nunmehr, die Arbeiten zur Filterertüchtigung zu intensivieren.

Um die im Rahmen der genannten Arbeiten gewonnenen Ergebnisse richtig bewerten zu können, müssen die voraussichtlichen Beanspruchungsverhältnisse genauer bekannt sein. In einem ersten Schritt soll versucht werden, die Strömungsvorgänge innerhalb der wichtigsten Lüftungssysteme eines typischen Kernkraftwerkes zunächst unter stark vereinfachten Annahmen zu modellieren.

## 8. Literatur

- / 1/ Andrae, R.W.; et al.; "Investigations of Air Cleaning System Response to Accident Conditions"; Proc. 16th DOE Nuclear Air Cleaning Conference, San Diego 1980, CONF 80 1038 (1981) S. 1142.
- / 2/ First, M.W.; Gilbert, A.; "Aerosol Filtration"; ibidem. S. 638.

- / 3/ Birkhofer, A.; "Advances and Trends in Reactor Safety Research and Technology"; Proc. 5th Int. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe 1984, KfK 3880 (1984) S. 165.
- / 4/ Ohlmeyer, M.; "Vor-Ort-Prüfung von Schwebstofffiltern und Entnahme von Sorptionsmaterialien bei Iod-Sorptionsfiltern"; Atomenergie-Kerntechnik 40 (1982) S. 259 ff.
- / 5/ Carbaugh, E.H.; "A Survey of HEPA-Filter Experience"; Proc. 17th DOE Nuclear Air Cleaning Conference, Denver 1982, CONF 82 0833 (1983) S. 790.
- / 6/ Löffler, F.; Dietrich, H.; Flatt, W.; "Staubabscheidung mit Schlauchfiltern und Taschenfiltern"; Vieweg, Braunschweig/Wiesbaden, 1984, S. 56 ff.
- / 7/ Sapple, C.E.; "Deep Bed Sand and Glass-Fiber Filters"; WASH 149 (1952) S. 99.
- / 8/ Palmer, J.H.; "Moisture and Burning Tests of Space Filters"; TID 7551 (1957) S. 53.
- / 9/ Rüdinger, V.; Ricketts, C.J.; Wilhelm, J.G.; "Limits of HEPA-Filter Application Under High Humidity Conditions"; Proc. 18th DOE Nuclear Airborne Waste Management and Air Cleaning Conference, Baltimore 1984, im Druck.
- /10/ Ricketts, C.J.; Rüdinger, V.; Wilhelm, J.G.; "HEPA-Filter Response to High Differential Pressures and High Air Velocities"; Proc. 5th Int. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe 1984, KfK 3880 (1984) S. 1572.

- /11/ Ensinger, U.; Rüdinger, V.; Wilhelm, J.G.; "A Procedure to Test HEPA-Filter Efficiency Under Simulated Accident Conditions of High Temperature and High Humidity"; Proc. 18th DOE Nuclear Airborne Waste Management and Air Cleaning Conference, Baltimore 1984, im Druck.
- /12/ "Methode de mesure de l'efficacite des filtres au moyen d'un aerosol d'uranine (fluoresceine)"; Norme Francaise homologue NFX 44011 (1972).
- /13/ "Testing of Nuclear Air Cleaning Systems"; American National Standard ANSI/ASME N510 (1980).
- /14/ Rüdinger, V.; Arnitz, Th.; Ricketts, C.J.; Wilhelm, J.G.; "BORA - A Facility for Experimental Investigation of Air Cleaning During Accident Situations"; Proc. 18th DOE Nuclear Airborne Waste Management and Air Cleaning Conference, Baltimore 1984, im Druck.
- /15/ Kneer, R.; Hartig, S.; Arnitz, Th.; unveröffentlicht.
- /16/ Sloan, S.A.; Nettleton, M.A.; "The Propagation of Weak Shock Waves Through Junctions"; Proc. 8th Int. Shock Tube Symposium, London 1971.
- /17/ Dadone, A.; Pandolfi, M.; Tamanini, F.; "Shock Waves Propagating in a Straight Duct With a Side Branch"; Proc. 8th Int. Shock Tube Symposium, London 1971.
- /18/ Duerre, K.H.; Andrea, R.W.; Gregory, W.S.; "TVENT - A Computer Program for Analysis of Tornado-Induced Transients in Ventilation Systems"; LA-7397-M (1978).
- /19/ Tang, P.K.; Andrea, R.W.; Bolstad, J.W.; Gregory, W.S.; "EVENT User's Manual - A Computer Code for Analysing Explosion-Induced Gas-Dynamic Transients in Flow Networks"; LA-9624-M (1983).

/20/ Hartig, S.H.; Wurz, D.E.; Arnitz, Th.; Rüdinger, V.;  
"Comparison and Verification of Two Computer Programs  
Used to Analyze Ventilation Systems Under Accident  
Conditions"; Proc. 18th DOE Nuclear Airborne Waste Manage-  
ment and Air Cleaning Conference, Baltimore 1984, in  
Druck.

06.01.14/22A      Untersuchungen zur Abscheidung von Iod an Sorptions-  
PNS 4418            Materialien bei Bränden  
                      (H. Deuber, V. Giraud; LAF II)

### 1. Einleitung

Brände in Kernkraftwerken können zur Freisetzung erheblicher Mengen aerosol- und gasförmiger Brandprodukte führen. Es ist zu erwarten, daß die Rückhaltung von Radioiod mit Iodfiltern durch die Beladung der Iodsorptionsmaterialien mit gasförmigen Brandprodukten u. U. stark beeinträchtigt wird. Außerdem kann nicht ausgeschlossen werden, daß Reaktionsprodukte aus Radioiod und Brandprodukten entstehen, die von den Iodfiltern nur in geringem Maße zurückgehalten werden. Ein Lüftungstechnischer Abschluß der Brandherde ist nicht in jedem Fall möglich.

Belastbare Aussagen über die Rückhaltung von Radioiod mit Iodfiltern von Kernkraftwerken beim Auftreten von Bränden können z. Z. nicht gemacht werden. Sie sollen mit diesen Untersuchungen ermöglicht werden.

Die Untersuchungen umfassen

- a) die Herstellung und Analyse von gasförmigen Brandprodukten relevanter, in Kernkraftwerken verwendeter Materialien und von gasförmigen Reaktionsprodukten aus Radioiod und Brandprodukten sowie
- b) die Bestimmung der Abscheidung der normalerweise auftretenden Iodverbindungen ( $\text{CH}_3\text{I}$ ,  $\text{I}_2$ ) und der genannten Iodreaktionsprodukte an Iodsorptionsmaterialien unter dem Einfluß von Brandprodukten.

Im Berichtszeitraum wurden eine Literaturstudie sowie erste experimentelle Arbeiten durchgeführt.

## 2. Literaturstudie

Die Literaturstudie beinhaltet die derzeitige Situation der Abscheidung von Radioiod mit Iodfiltern in Kernkraftwerken bei Bränden. An dieser Stelle soll in kurzer Form auf die wesentlichen Befunde eingegangen werden. Alle Einzelheiten werden an anderer Stelle wiedergegeben /1/.

Die Literaturstudie geht insbesondere auf das brennbare Inventar eines Kernkraftwerks und die gasförmigen Brandprodukte relevanter Materialien ein. Das brennbare Inventar eines Druckwasserreaktors geht aus Abb. 1 hervor. Im vorliegenden Zusammenhang ist das brennbare Inventar des Reaktorgebäudes von besonderer Bedeutung. Angaben dazu finden sich in Tab. 1. Die relevanten Materialien umfassen Isolationsmaterialien für elektrische Leitungen (insbesondere PVC) und Flüssigkeitsleitungen (Polyurethane) sowie Schmiermittel (insbesondere Mineralöle) und Dekontanstriche (Epoxide). In Zukunft dürften zum großen Teil schwerer entflammbare Materialien (FRNC-Kabel, Öle auf Phosphorsäureesterbasis) verwendet werden.

Tab. 1 enthält ebenfalls gasförmige Brandprodukte der genannten Materialien. Wie ersichtlich, treten, außer  $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $CO$  und Kohlenwasserstoffen, Brandprodukte auf, von denen eine erhebliche Beeinträchtigung der Iodabscheidung mit Iodfiltern zu erwarten ist (z.B.  $HCl$ ,  $SO_2$ ). (Diese Brandprodukte stammen teilweise aus Verunreinigungen und Hilfsprodukten.) Es ist zu betonen, daß die Brandprodukte in Abhängigkeit von der Art des brennenden Materials und der Brandbedingungen stark schwanken und nur unzureichend bekannt sind.

Die Literaturstudie hat weitere Wissenslücken wie Art der Reaktionsprodukte aus Radioiod und Brandprodukten bestätigt.

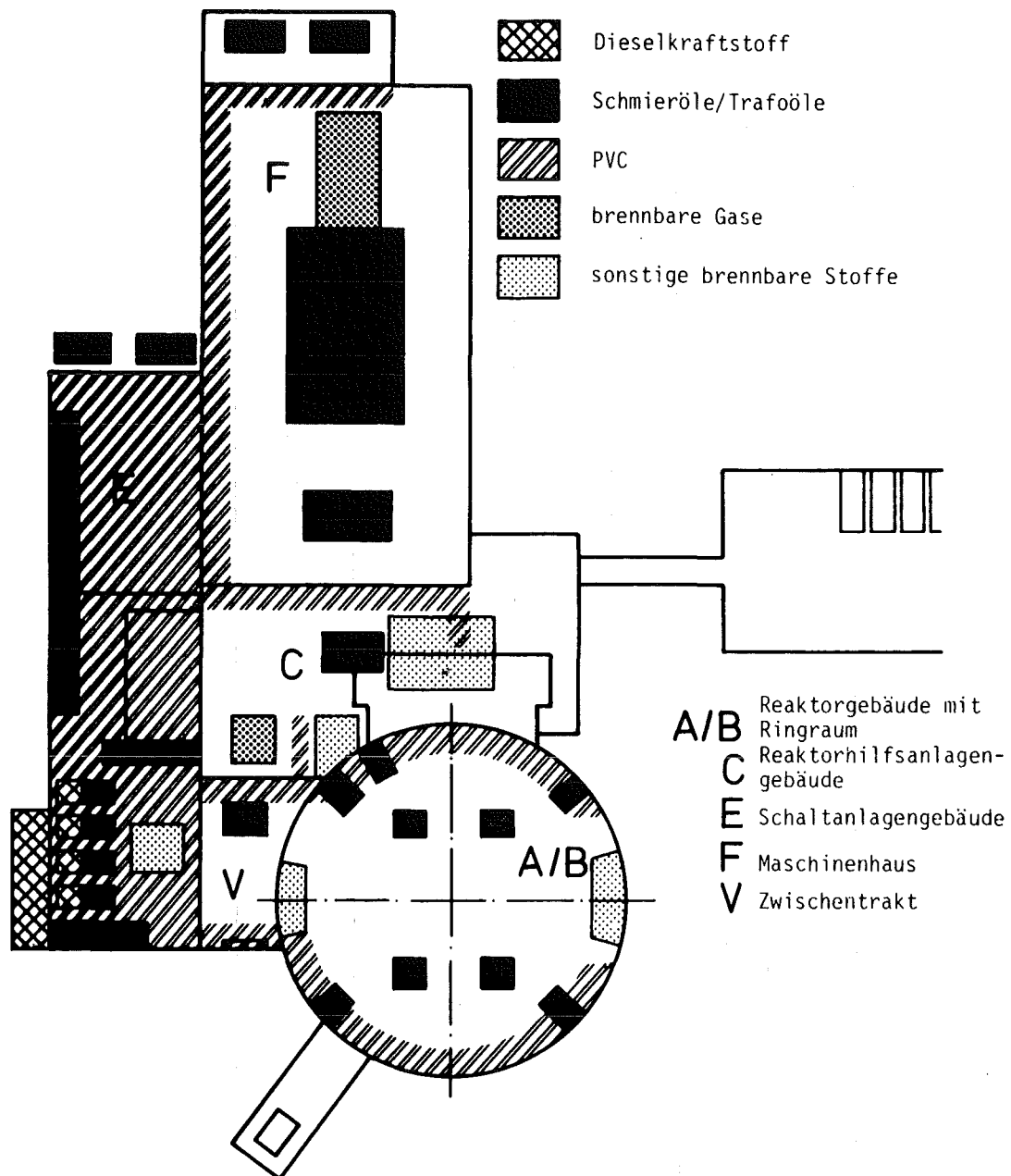


Abb. 1: Orte größerer Mengen brennbarer Materialien in einem Druckwasserreaktor (Biblis B) /2/

Tab. 1: Relevante, in KKW verwendete brennbare Materialien und Brandprodukte

Materialien		Brandprodukte <sup>+</sup>
Art	Klasse	
Isolationsmaterialien	a) PVC u. a. b) Polyurethane	a) HCl, CH <sub>3</sub> COOH b) Amine, HCN
Schmiermittel	Mineralöle	SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , unverbrannte Schmiermittel
Dekontanstriche	Epoxidharze	Amine, HCN

<sup>+</sup> Beispiele (außer H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>, CO, Kohlenwasserstoffe)



### 3. Experimentelle Arbeiten

Die experimentellen Arbeiten im Berichtszeitraum umfaßten im wesentlichen:

- a) Inbetriebnahme einer Verbrennungsapparatur mit angeschlossener Gassammelstrecke;
- b) Durchführung von Verbrennungen von PVC-Kabeln zur Bestimmung der Reproduzierbarkeit und Analyse der gasförmigen Brandprodukte (Gaschromatographie).
- c) Durchführung erster Tests zur Abscheidung von  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  an der Aktivkohle 207B (KI) unter dem Einfluß des synthetischen Brandproduktes HCl.

Auf die Ergebnisse dieser Arbeiten soll im nächsten Fortschrittsbericht eingegangen werden.

Die nächsten geplanten Arbeiten sind:

- a) Durchführung von Verbrennungen von zukünftig zu verwendenden Kabeln (FRNC), Schmiermitteln und Dekontfarben zur Bestimmung der Reproduzierbarkeit und Analyse der gasförmigen Brandprodukte (Gaschromatographie, Massenspektrometrie).
- b) Herstellung und Analyse gasförmiger Reaktionsprodukte aus  $\text{I}_2$  und Brandprodukten.
- c) Tests zur Abscheidung von  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  und  $^{131}\text{I}_2$  an verschiedenen imprägnierten Aktivkohlen unter dem Einfluß verschiedener synthetischer Brandprodukte ( $\text{HCl}$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{CH}_3\text{COOH}$ ) und wirklicher, aus der Verbrennung relevanter Materialien (Kabel, (PVC; FRNC), Mineralöl, Dekontfarbe) stammender Brandprodukte.

4. Literatur

- /1/ Giraud, V.,  
Die Abscheidung von Iod mit Iodfiltern in Kernkraftwerken  
bei Bränden (Literaturstudie),  
KfK 3867 (erscheint 1985).
- /2/ Gesellschaft für Reaktorsicherheit,  
Deutsche Risikostudie Kernkraftwerke,  
Fachband 4: Einwirkung von außen,  
Verlag TÜV Rheinland (1980).

06.02                    SICHERHEIT UND UMGEBUNGSSCHUTZ VON  
                          WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGEN

PNS-Teilprojekt 4500 - Sicherheit der Wiederaufarbeitung

06.02.01                Störfallanalysen für die große Wiederauf-                4500 - 1  
                          arbeitungsanlage (WAA)



- 06.02.01 Störfallanalysen für die große Wiederaufarbeitungsanlage (WAA)
- 06.02.01/12A Störfallablaufanalysen für die Abgasreinigung  
PNS 4513 der großen Wiederaufarbeitungsanlage  
(K. Nagel, S. Fenyi, G. Weber, H. Wenzelburger; IDT)

### Die Störfallablaufanalyse für die Auflöserabgasreinigungsstrecke

Die Modellierung der Jod- und Aerosolentfernung aus dem Auflöserabgas einer Wiederaufarbeitungsanlage wurde abgeschlossen. Dabei wurden zwei Klassen von Modellen verwendet:

- deterministische
- stochastische

#### Deterministische Modelle

Die mathematischen Modelle, die auf experimentellen Ergebnissen der Testanlage PASSAT beruhen, erlauben eine deterministische Berechnung der Jodfreisetzung unter Normal- und Störfallbedingungen /1/. Die Berechnung zur Freisetzung von Aerosolen benötigt allerdings noch Annahmen über den Aerosolquellterm /2/.

Die Trägheitsabscheidung von Aerosolen am Beispiel des Fangrillenabscheiders konnte quantitativ beschrieben werden /3/.

Zur Adsorption von  $H_2O$  und  $CO_2$  bzw. die Koadsorption von Krypton und Xenon an Silicagel und Molekularsieb in der Testanlage ADAMO wurden bisher durch heuristische Exponentialfunktionen beschrieben. Die Interpretation dieser Funktionen ist allerdings äußerst schwierig, da sich die approximierten Parameter schlecht mit den physikalischen Versuchsbedingungen in Beziehung setzen lassen. Aus diesem Grund wurden Lösungen von Differentialgleichungen, die Diffusionsvorgänge modellieren, zur Approximation der experimentellen Ergebnisse benutzt. Die folgende Abbildung zeigt experimentelle Werte, und deren Approximation durch zwei verschiedene Lösungsansätze.

Die Ergebnisse der Approximationen zeigen deutlich, daß der Übergang aus dem strömenden Gas an die Adsorberoberfläche über eine stationäre Schicht, den sogenannten Flüssigkeitsfilm, die Adsorption bestimmt.

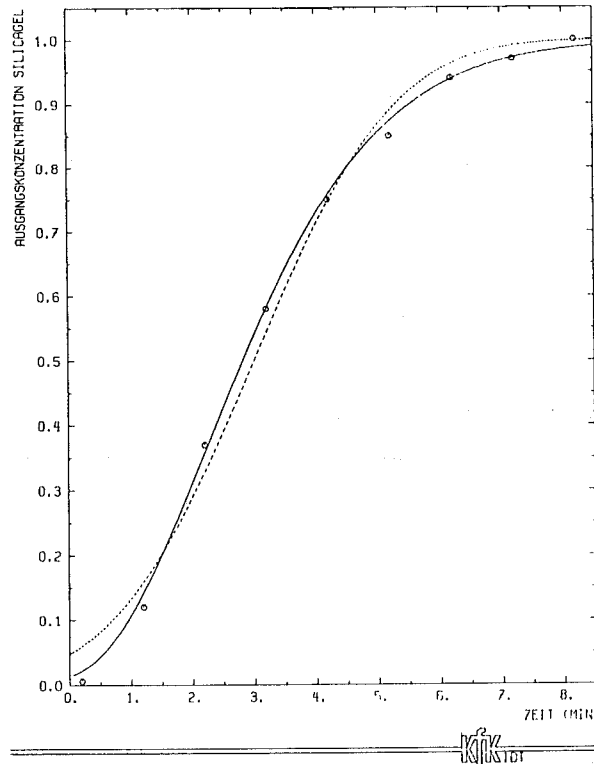


Abbildung: Durchbruchkurven für Kr an Silicagel, experimentelle Werte (0) und zwei verschiedene Approximationen

### Stochastische Modelle

Die Theorie stochastischer Freisetzungsmodele und deren Anwendung auf die Freisetzung von radioaktivem Jod in der Abgasreinigungsstrecke PASSAT wurden im wesentlichen abgeschlossen /4/.

Die stochastischen Kurz- und Langzeitmodelle für PASSAT wurden entwickelt, um vorhersagen zu können, mit welchen Mengen an radioaktivem Jod in welchen Zeiten die Umwelt belastet wird /5/. Die "Kurzzeit"-Modelle für den ersten Störfall lassen sich mit einer einzigen Wahrscheinlichkeitsverteilung charakterisieren, der Verteilung  $P(C_1 \geq z)$  der im ersten Störfall freigesetzten Schadstoffmenge  $C_1$ . Für die "Langzeit"-Modelle, die im Prinzip die "Kurzzeit"-Modelle enthalten und die einen beliebigen vorgegebenen Zeitraum  $(0, t)$  repräsentieren, müssen jedoch stochastische Prozesse betrachtet werden. Dabei ist  $C(t)$  die im Zeitintervall  $(0, t)$  angesammelte Menge von Schadstoff.

Die "Kurzzeit"-Modelle sind gegenüber dem verwendeten Typ der Lebensdauer-Verteilungen für die Komponente außerordentlich robust (=unempfindlich). Dies

Dies hat zwei Ursachen:

(1) die mittlere Dauer der Störfälle, während der eine merkliche Schadstoffmenge freigesetzt werden kann, ist überaus klein. Sie ist so klein gegenüber der mittleren Lebensdauer des betreffenden Systems, daß die Lebensdauer-Verteilungen der Komponenten praktisch durch Gleichverteilungen ersetzt werden dürfen.

(2) Die Schadstofffreisetzung ist im Störfall um so viele Größenordnungen höher als im Normalbetrieb, daß deren Verteilung mit guter Näherung einer Gleichverteilung mit einem "Atom" genügt. Dabei gibt das "Atom" die Wahrscheinlichkeit für eine Freisetzung im Normalbetrieb an. Dies heißt aber, daß bei den vorliegenden Eingangsdaten die noch mit erheblichen Unsicherheiten behaftet sind, die stochastischen Modelle für den ersten Störfall, wenn wir uns auf die Haupteffekte beschränken, in guter Näherung deterministisch sind /6/.

Den ausgearbeiteten "Langzeit"-Modellen der PASSAT liegen Markoff-Erneuerungsprozesse mit Kostenfunktionen zugrunde, bei denen die Freisetzung die Rolle der Kosten übernimmt. Dabei wurde die vorhandene Theorie von linearen auf monotone Kostenfunktionen erweitert und ein numerisches Verfahren entwickelt, um konkrete Zahlenwerte zu erhalten.

Das neue numerische Verfahren besteht aus bestmöglichen zahlentheoretischen und mehrdimensionalen Integrationsmethoden, mit denen die auftretenden zweidimensionalen Laplace-Stieltjes Transformierten invertiert werden.

In den der Realität entsprechenden Grenzfällen werden die "Langzeit"-Modelle zu einfachen Zähl-Prozessen wie z. B. Poisson-Prozesse mit konstanter Freisetzung.

#### Zur Thermochemie der Nebenreaktionen in der Anlage REDUKTION

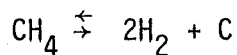
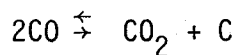
Bei der Abgasreinigung in einer Wiederaufarbeitungsanlage ist vor der Kryptonabtrennung (Kryogenverfahren) eine katalytische Reduktion von  $O_2$  und  $NO_x$  mit Wasserstoff vorgesehen. Da das Abgas auch Luftanteile enthält gelangt auch  $CO_2$  an den Katalysator, das dort zu CO oder  $CH_4$  reduziert werden kann. Das Methan und Ammoniak, das durch katalytische Nebenreaktionen aus  $NO_x$  ausreduziert wird, gefährden die Sicherheit der kryogenen Destillation. Die Beimengung von Wasserstoff zum Abgas ist sonst auch nicht ungefährlich und verlangt eine Abwägung des Risikopotentials.

Eine sorgfältige Analyse der Thermochemie der katalytischen Nebenreaktionen, die wir zum Ziel gesetzt haben, sollte die optimale Prozeßführung und mögliche Unterdrückung der Nebenreaktionen ermöglichen. Das thermochemische Studium der Nebenreaktionen, die extra in Laboruntersuchungen im katalytischen Mikroreaktor untersucht worden sind, besteht aus der Bestimmung des thermischen Gleichgewichtes aus tabellierten Werten der freien Enthalpiefunktion in einem System von Simultangleichgewichten. Zu diesem Zweck wurden die numerischen Verfahren zur Bestimmung von Simultangleichgewichten kritisch durchmustert. Es wurde der RAND-Dantzig und NASA-Brinkley Algorithmus ausselektiert und implementiert.

Es stellte sich heraus, das das Reaktionssystem



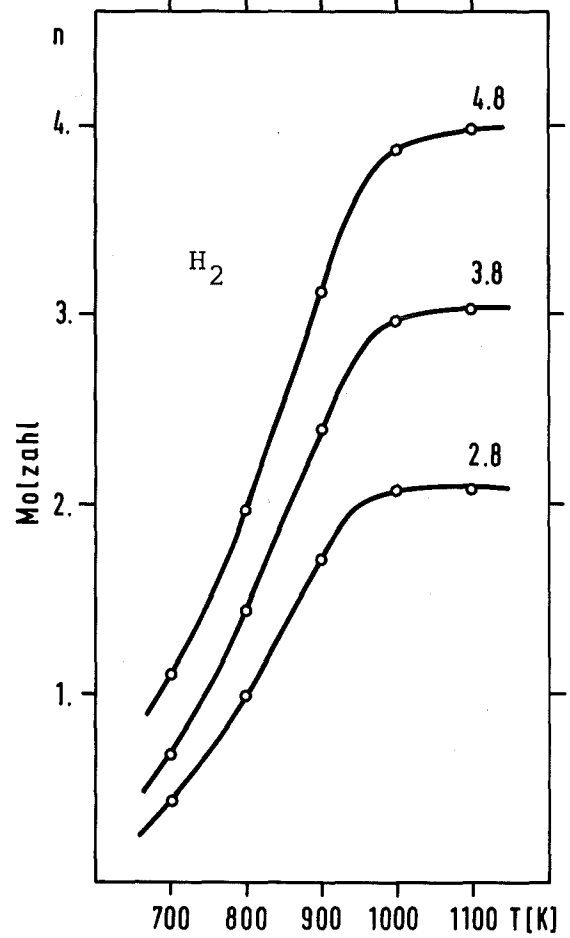
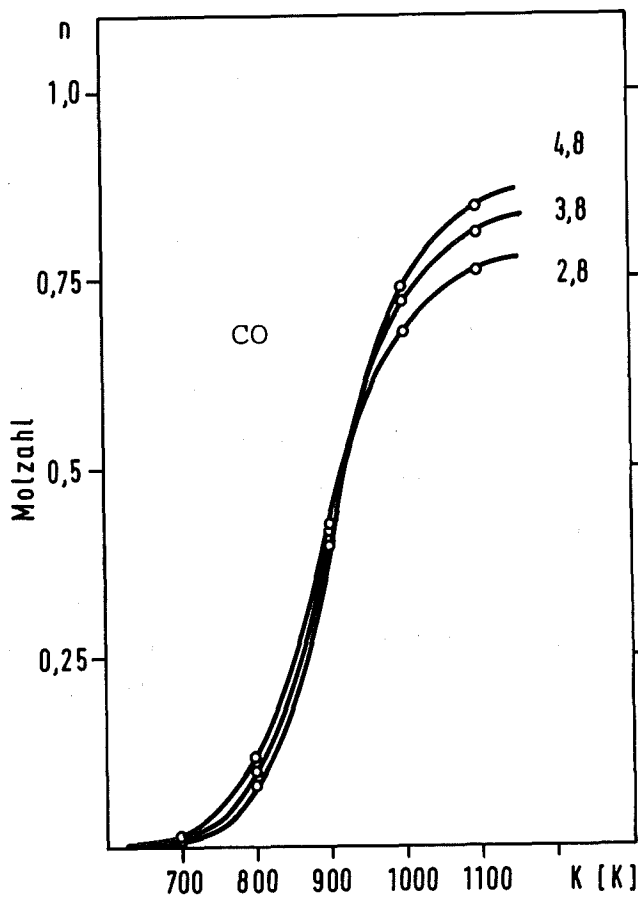
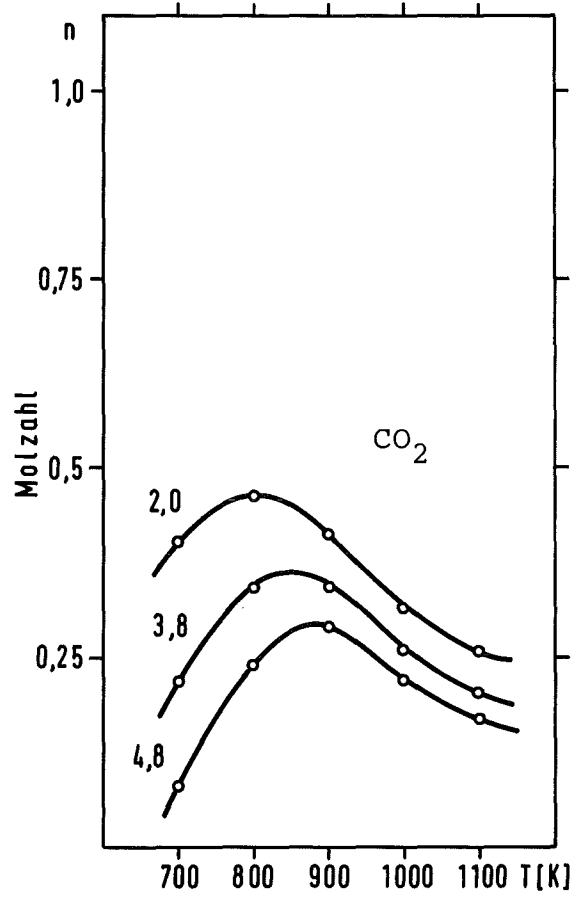
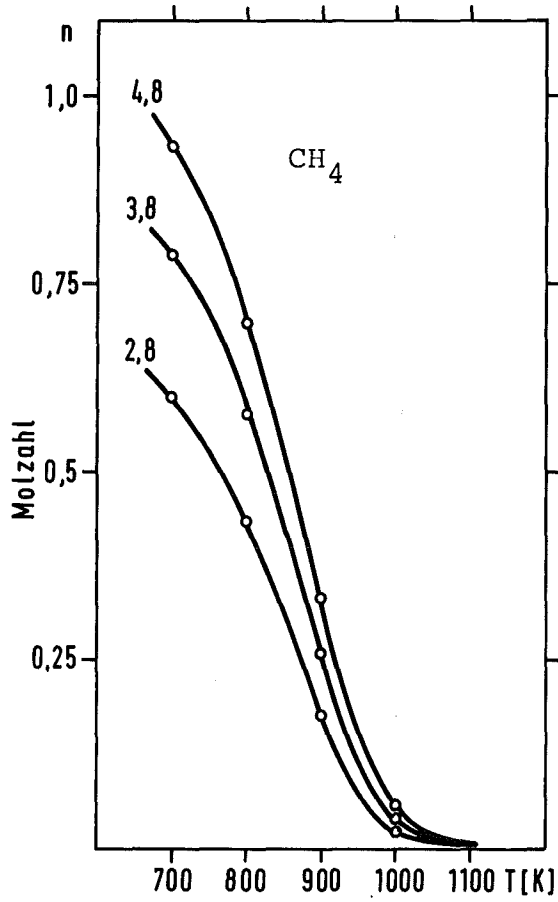
das die unerwünschte  $\text{CH}_4$ -Bildung beschreibt, kann unter Umständen heterogen werden und zu Kohlenausscheidung



führen. Zu diesem Zweck wurde auch ein Verfahren für heterogene Gleichgewichte konzipiert, mit dem die Kohlenausscheidungsgrenzen festgestellt werden können. Diese Rechenergebnisse haben gezeigt, daß die Anlage REDUKTION wegen des hohen Wasserstoffüberschusses nicht von Kohlenausscheidung gefährdet ist, wohl aber die Laborexperimente mit dem Mikroreaktor.

Die Ergebnisse der Thermochemischen Untersuchungen und der Vergleich derselben mit den katalytischen Mikroreaktorexperimenten wurde auf den untenstehenden Abbildungen dargestellt. Es wurde zuerst der Einfluß der Temperatur auf die Gaszusammensetzung kombiniert mit dem Einfluß des Feeds qualitativ studiert. Hierfür wurde das LeChatelier-Braun Prinzip der Gleichgewichtsverschiebung sowohl für die Temperatur als auch für die Konzentrationseffekte benutzt.





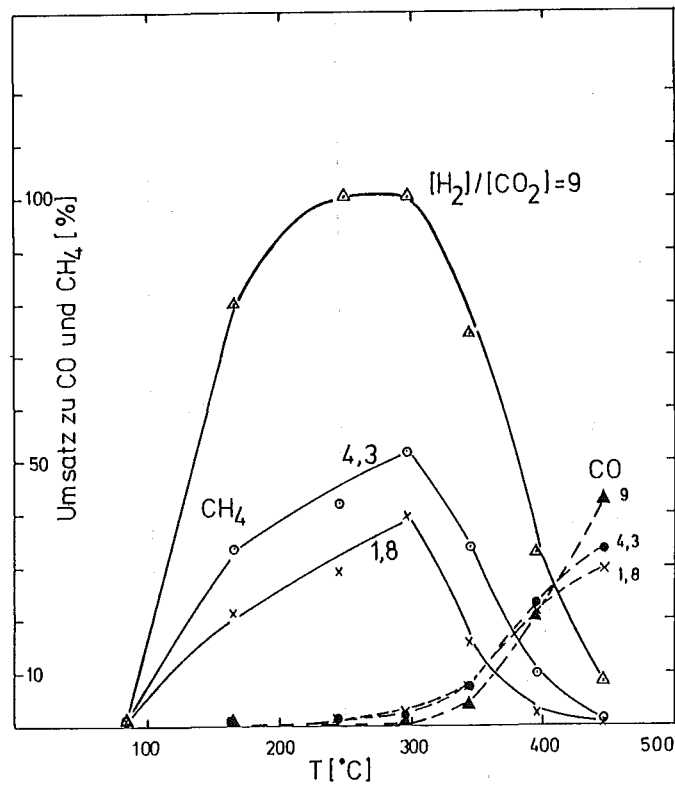


Abbildung: Experimentelle Ergebnisse der katalytischen CO<sub>2</sub> Reduktion. Der niedrige Feed  $H_2/CO_2 = 1.8$  ist von Kohleausscheidung am Katalysator gefährdet.

Der Vergleich der Berechnungen mit den Mikroreaktorversuchsergebnissen zeigen eine befriedigende Übereinstimmung. Sogar die feine Überschneidungserscheinung der CO-Entwicklung mit dem steigenden  $H_2/CO_2$  Eduktpartialdruck ist einwandfrei zu interpretieren. Diese Überschneidung kann man bei den Mikroreaktorergebnissen auch wiederfinden. Der Effekt ist signifikant und diese thermochemischen Untersuchungen ermöglichen die Bestätigung, daß es sich nicht um eventuelle Fehler bei den CO-Analysen handelt.

Der Vergleich der Gleichgewichtsberechnungen mit den experimentellen Werten hat ergeben, daß sich die katalytischen Reaktionsprodukte in einer Vorgleichgewichtsphase befinden. Es konnte gezeigt werden, daß sich die Wassergasreaktion in einer Vorlaufphase befindet.

Im Rahmen der Zusammenarbeit auf dem Gebiet der Gleichgewichtsbestimmung mit dem Projekt Nukleare Fernwärme (KFA Jülich) wurden Vergleichsrechnungen durchgeführt. Die folgende Tabelle zeigt die Genauigkeit und Zuverlässigkeit der Gleichgewichtsrechnungen, die im IDT und in der KFA mit verschiedenen Algorithmen gewonnen wurden.

Gleichgewichtszusammensetzung (mol) bei 700K

Feed		IDT-Lösung	KFA-Lösung
H <sub>2</sub>	0.4	.10558	.10567
CO	0.1	.00028	.00027
H <sub>2</sub> O	4.	.87213	.87209
CO <sub>2</sub>	0.	.02062	.02063
CH <sub>4</sub>	0.	.00139	.00138

Hardware-Fehlerbaum Simulation

Die Funktionstüchtigkeit der digitalen stochastischen Simulation an Hardware-Fehlerbäumen wurde an einem komplexeren Fehlerbaum (am Nakashima-Baum) demonstriert. Der entsprechende Hardware-Baum wurde mit MOSFET-Schalttransistoren im Parallelbetrieb mit Speicherung in der Mikroprozessoren-Umgebung gelöst, nachdem die statistischen Qualitätstests positive Ergebnisse zeigten. Die größtmögliche Parallelisierung des Simulationsprozesses hat gute Simulationszeiten erbracht. Diese Ergebnisse berechtigen zur Annahme, daß diese stochastische Spezialmaschine mit dem Großrechner konkurrenzfähig ist /7/.

Fehlerbaumanalyse

Im Berichtsjahr wurden vor allem drei Schwerpunkte behandelt:

- (a) Methodische Weiterentwicklung der Fehlerbaumanalyse,
  - (b) Untersuchung von Kriterien für die Zulässigkeit der Strukturfunktionen.
  - (c) Fehlerdiagnose
- (a) Ein System, das während seiner ganzen Lebenszeit dieselbe Konfiguration besitzt, kann mit den bekannten Methoden der Fehlerbaumanalyse ausgewertet werden. Liegt jedoch ein System vor, das eine in Phasen aufgeteilte Mission ausführen soll, so werden sich die Konfigurationen für aufeinander folgende Abschnitte (Phasen) der Mission ändern. Systeme, die in Pha-

sen aufgeteilte Missionen ausführen müssen, sind z. B. Reaktoren mit Notkühlung (während verschiedener Phasen eines Reaktorunfalls) sowie fehlertolerante Rechnersysteme (während verschiedener Phasen eines Fluges). Die Analyse der Zuverlässigkeit und Leistungsfähigkeit solcher Systeme erfordert die Verwendung von verallgemeinerten Strukturfunktionen sowie ein Verlassen des Bereichs stochastischer Unabhängigkeit.

- (b) Es ist häufig von Bedeutung, für Systeme Kriterien zur Zulässigkeit einer Strukturfunktion zu haben. So wurden verschiedene Typen von Grenzen für die Fehlerbaumanalyse untersucht. Es sollen hier einige Beispiele genannt werden:
- Logische Grenzen: Widerspricht eine Darstellung eines Systems der graphentheoretischen Fehlerbaumdefinition, so ist eine Strukturfunktion unzulässig. Läßt sich ein System auf eine kombinatorische Schaltung abbilden, so ist die Strukturfunktion immer zulässig. Läßt sich ein System nur als sequentielle Schaltung darstellen, so sind im Allgemeinen von der Fehlerbaumauswertung abweichende Methoden notwendig.
  - Probabilistische Grenzen: Es gibt hier eine größere Zahl von Einschränkungen (z. B. bei Abhängigkeit, bei Abschätzung der Zuverlässigkeit).
  - Algebraische Grenzen: Es gibt Systeme, die so aufgebaut sind, daß eine Komponente eines solchen Systems für einen Weg zum Erfolg beiträgt, für einen anderen Weg aber zum Ausfall beiträgt. Dabei ändert sich der Zustand der Komponente nicht. Dann ist eine Strukturfunktion nicht mehr zulässig /8/.
- (c) Auch die Weiterführung der Fehlerbaumdiagnose von durch Fehlerbäume darstellbaren Systemen gehört zu diesem Themenkreis. Es wurden folgende Tests untersucht:
- Ein Test zur Diagnose und Lokalisierung von Komponentenfehlern, wenn ein System ausgefallen ist.
  - Ein Test zur Erkennung von Zuständen, die zu einem Systemausfall benachbart sind.

Die Erkennung der zum Systemausfall benachbarten Zustände verkleinert die Erwartete Anzahl der Systemausfälle und erhöht gleichzeitig die Zuverlässigkeit. Für eine gegebene Zahl N von erkennbaren (benachbarten) Zuständen läßt sich das entsprechende Anwachsen der Zuverlässigkeit quantitativ angeben.

- /1/ Nagel, K.; Weit, J.  
Deterministische Berechnung der Jodfreisetzung über das Auflöserabgas im Normal- und Störfall. KfK 3821 (1984).
- /2/ Nagel, K.; Furrer, J.  
Berechnung der Aerosolfreisetzung durch das Auflöserabgas. Atomwirtschaft -Atomtechnik, 29 (1984), S. 235-237.
- /3/ Nagel, K.; Furrer, J.  
Trägheitsabscheidung am Beispiel eines Fangrillen-Abscheiders, Chemie-Ingenieur-Technik, 56 (1984), S. 543-546.
- /4/ Fenyi, S.; Nagel, K.; Weber, G.; Wenzelburger, H.  
Störfallablaufanalyse für die Abgasreinigung der großen Wiederaufarbeitungsanlage, KfK-3450 (1984).
- /5/ Wenzelburger, H.; Zinterhof, P.  
Stochastische Kurzzeit- und Langzeitmodelle für die Freisetzung von radioaktivem Jod in der Abgasreinigungsstrecke PASSAT, KfK-3787 (1984).
- /6/ Wenzelburger, H.  
Zur stochastischen Modellierung des ersten Störfalls in der Abgasreinigungsstrecke einer WAA. Operations Research Proceedings 1983. Berlin, Springer-Verlag (1984).
- /7/ Fenyi, S.; Beedgen, R.; Nagel, K.  
Stochastische Simulation an Hardware-Fehlerbäumen zur Untersuchung der Zuverlässigkeit von Systemen, Berlin, Springer-Verlag (1984), S. 102-106, (Informatik-Fachberichte 85).
- /8/ Weber, G.  
Methods of fault tree analysis and their limits. KfK-3824 (1984).



06.03. EINDÄMMUNG VON FOLGESCHÄDEN

PNS-Teilprojekt 4800 - Verhalten, Auswirkung und Beseitigung  
freigesetzter nuklearer Schadstoffe

06.03.01	Untersuchung des physikalischen und chemischen Verhaltens biologisch besonders wirksamer Radionuklide in der Umwelt	4800 - 1
06.03.03	Untersuchung der radiologischen Folgen von Reaktorunfällen unter probabilistischen Gesichtspunkten	4800 - 31





- 06.03.01            Untersuchung des physikalischen und chemischen Verhaltens  
biologisch besonders wirksamer Radionuklide in der Umwelt
- 06.03.01/11A      Untersuchung des physikalischen und chemischen Verhaltens  
PNS 4812            biologisch besonders wirksamer Radionuklide in der Umwelt  
(H. Schüttelkopf, W. Schmidt, T. Liese, M. Pimpl,  
K. Gamer, G. Hefner, J. Hiller, T. Sollich; HS)

### Zielsetzung

Als Folge der Freisetzung von Schadstoffen aus kerntechnischen und konventionellen Industrieanlagen ist eine ausgedehnte Kontamination der terrestrischen oder aquatischen Ökosysteme der Umgebung zu erwarten. Um beim Eintreten eines solchen wenn auch unwahrscheinlichen, so doch möglichen Unfalls geeignete Maßnahmen ergreifen zu können, muß das Verhalten der Schadstoffe in der Umwelt detailliert verstanden werden. Zu diesem Zweck ist es notwendig, deren Löslichkeit und Beweglichkeit in Böden und Oberflächengewässern zu untersuchen und Transportmechanismen, insbesondere den Boden/Pflanzen-Transfer, aufzuklären. Untersuchungen zu den Elementen Pu, Am, Cm, Np, Co, Pb und Cr wurden 1984 durchgeführt.

### Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

Im Laufe des Jahres 1984 wurden verschiedene Themen weiter bearbeitet. Die experimentelle Messung des Transferfaktors Boden/Pflanze wurde weitergeführt, ebenso die Untersuchungen zum Migrationsverhalten von Aktiniden in Bodensäulen in Gegenwart von Komplexbildnern. Parallel dazu wurden die analytischen Verfahren zur Multielementbestimmung in Pflanzen- und Bodenproben weiter verbessert und der Analysenumfang erweitert. Stellvertretend für die radioökologisch wichtigen Nuklide Co-60, Pb-210 und Cr-51 wurde der Transfer von stabilen Isotopen dieser Elemente in Gras gemessen. Weiterhin wurde untersucht, wie sich die Tätigkeit von Regenwürmern auf die Verlagerung von Schadstoffen in Bodensäulen auswirkte, nachdem die Schadstoffe in definierte Bodenschichten eingebracht wurden. Schließlich wurde mit der Entwicklung eines neuen Verfahrens zur homogenen und sicheren Kontamination von Böden begonnen, wobei die Aktivitäten auf kleine Glaskugeln aufgebracht, mit einer wasserlöslichen Deckschicht ummantelt und dann in den Boden eingemischt werden.

Die durchgeführten Arbeiten und die erzielten Ergebnisse sind im folgenden ausführlich beschrieben.

### **1 Experimentelle Untersuchungen zur Aufnahme von Aktiniden aus Böden in Pflanzen**

Die im Mai 1983 begonnenen Messungen des Boden/Pflanzen-Transfers von Np-237, Pu-238, Am-241 und Cm-244 wurden 1984 weitergeführt. Nach der ersten Vegetationsperiode, die von Mai bis Oktober 1983 dauerte, wurde von November 1983 bis März 1984 und von April bis Oktober 1984 die zweite und dritte Vegetationsperiode durchgeführt. Auf zwei Böden aus dem Raum Schwandorf - einem Kreideverwitterungs- und einem Granitverwitterungsboden - wurden Kartoffeln der Sorte "Saphir", Mais der Sorte "Cargill" und Sommerweizen der Sorte "Kolibri" unter Einhalten eines Fruchtwechsels angebaut. In jedem zur Aufzucht verwendeten Kulturgefäß wurde im November 1984 wieder die gleiche Frucht wie zu Beginn der Versuche im Mai 1983 ausgesät. In einem mit Gley-Boden aus Schwandorf gefüllten Lysimeter wurde außerdem der Aktinidentransfer von Boden in Gras über drei Vegetationsperioden gemessen. Nach jeder Vegetationsperiode wurden die Kartoffeln nach dem vollständigen Absterben des Krautes geerntet, Weizen und Mais zum Zeitpunkt der Vollreife. Das Erntegut wurde bei 105 °C getrocknet, mit Salpetersäurezusatz bei 550 °C vollständig verascht und zur radiochemischen Analyse gebracht. Die veraschten Pflanzenproben der ersten und zweiten Vegetationsperiode wurden 1984 analysiert.

Die in den Pflanzen gemessenen Konzentrationsbereiche für Np, Pu, Am und Cm sind in Tab. 1 zusammengefaßt. Zum Vergleich sind die Konzentrationsbereiche in den Böden mit aufgeführt. Der Transferfaktor für jede Pflanzenprobe wurde durch Division der gemessenen Nuklidkonzentration der Pflanzentrockensubstanz durch die in dem jeweiligen Pflanzungsgefäß vorhandene Nuklidkonzentration in trockenem Boden erhalten. Die Mittelwerte der so erhaltenen Transferfaktoren sind zusammen mit den Standardabweichungen in Tab. 2 aufgeführt.

	Konzentrationsbereich in Bq/g TS			
	Np-237	Pu-238	Am-241	Cm-244
Gras	≤ 0,007 - 376	≤ 0,07 - 6	≤ 0,06 - 13	≤ 0,01 - 6
Weizen, Körner	0,7 - 65	≤ 0,01 - 0,09	≤ 0,01 - 0,6	≤ 0,02 - 0,2
Mais, ganze Pflanze	0,7 - 476	0,1 - 1	0,1 - 14	0,02 - 11
Kartoffel, Knolle	0,8 - 113	0,8 - 265	1 - 25	0,4 - 18
Boden	1 180 - 10 500	7 550 - 19 100	4 900 - 20 300	1 850 - 8 100

Tab. 1: In Pflanzen aus dem Gewächshaus gemessene Konzentrationen von Np, Pu, Am und Cm

Pflanze	Boden	N	Mittlerer Transferfaktor $\pm \sigma$ · 10 <sup>5</sup>			
			Np-237	Pu-238	Am-241	Cm-244
Gras	Gley	3	4900±400*	21 ± 4	61 ± 2	70 ± 12
Sommerweizen, Körner	Kreide verwitterung	26	78± 10	3,0± 0,4	4,0± 0,5	≤ 2,6
	Granit-verwitterung	22	1120±140	0,9± 0,1	2,4± 0,3	2,4± 0,3
Mais, ganze Pflanze	Kreide verwitterung	14	670±160	21 ± 10	15 ± 5	10 ± 4
	Granit-verwitterung	12	9000±980	12 ± 1	99 ± 12	92 ± 8
Kartoffel, Knolle	Kreide-verwitterung	18	360± 50	380 ± 140	120 ± 12	86 ± 12
	Granit-verwitterung	21	1630±190	66 ± 1	86 ± 16	66 ± 14

$$*) \sigma = \sqrt{(\sum(\bar{x} - x_i)^2) / (N(N-1))}$$

$\bar{x}$  = Mittelwert;  $x_i$  = einzelner Meßwert, N = Anzahl der Bestimmungen

Tab. 2: Mittlere Transferfaktoren für Nutzpflanzen, die im Gewächshaus auf kontaminierten Böden aufgezogen wurden

Nach zwei Vegetationsperioden zeichnen sich folgende Trends im Transferverhalten von Np, Pu, Am und Cm ab:

#### Wurzelaufnahme der verschiedenen Nutzpflanzen

Vergleicht man die Aufnahme in die verwendeten Nutzpflanzen, so findet man den höchsten Transfer bei Gras. Geringer ist die Wurzelaufnahme in Mais, sehr geringe Transferfaktoren werden für Weizenkörner gemessen. Dieses Ergebnis deckt sich mit Literaturangaben.

### Einfluß des Bodens auf die Wurzelaufnahme

Der Transfer von Np aus dem Granitverwitterungsboden in die Pflanzen ist nennenswert höher als aus Kreideverwitterung - im Mittel um den Faktor 15. Der Grund hierfür könnte der unterschiedliche pH der Böden sein: pH = 5,2 bei Granitverwitterung und pH = 6,8 bei Kreideverwitterung. Während eine Literaturobwertung keine Hinweise auf eine Abhängigkeit des Transferfaktors vom pH des Bodens gibt, zeigen Extraktionsuntersuchungen für Aktiniden eine höhere Pflanzenverfügbarkeit bei pH = 5 als bei pH = 7.

### Transferverhalten der einzelnen Nuklide

Der Transferfaktor der einzelnen Aktiniden steigt in der Reihenfolge Pu < Am = Cm < Np an. Für Am und Cm kann aus den vorliegenden Daten kein signifikanter Unterschied im Transfer abgeleitet werden. Der für Np gemessene Transferfaktor ist bis zum Faktor 1 000 höher als bei Pu.

### Einfluß des Kontaminationsverfahrens auf den Transfer

Die unterschiedlichen Techniken zum homogenen Einbringen der Nuklide in den Boden zeigen eine große Auswirkung auf die Wurzelaufnahme. Bei Verwendung der Gießtechnik ist der Transferfaktor bei allen Versuchspflanzen um eine Größenordnung höher als bei der konventionellen Mischtechnik. Ursache hierfür ist vermutlich die Kontamination einer wesentlich größeren Fläche (ca. 15fach) gegenüber den normalen Mischverfahren, so daß mehr Wurzeln direkten Kontakt mit kontaminierten Partikeln haben. Es bleibt abzuwarten, ob Alterungsprozesse und mechanische Bodendurchmischung im Verlauf der nächsten Vegetationsperioden die unterschiedliche Pflanzenverfügbarkeit als Folge der verschiedenen Kontaminationsverfahren nivellieren.

### Einfluß der Gefäßgröße und der Düngung

Aufgrund der wenigen bisher zur Verfügung stehenden Daten ist keine eindeutige Aussage hinsichtlich des Einflusses der Gefäßgröße auf das Transferverhalten der betrachteten Aktiniden möglich. Zwischen den in Töpfen gemessenen Transferfaktoren und den in Lysimetern erhaltenen ist kein signifikanter Unterschied feststellbar, obwohl während der Vegeta-

tionsperiode sehr große Unterschiede im Wasserverbrauch und im Nährstoffangebot bestanden.

## **2 Einfluß der Np-Konzentration im Boden auf Wasserverbrauch und Ertrag von Graskulturen**

Bei den experimentellen Untersuchungen zur Aufnahme von Aktiniden aus dem Boden in die Pflanze werden als Versuchsgefäße u. a. auch Kick-Brauckmann-Töpfe für ca. 10 kg Boden verwendet. Als bei der Anlage solcher Töpfe die Erdbeerpflanzen in dem kontaminierten Versuchsboden - im Gegensatz zum nicht kontaminierten Boden - nicht anwachsen, sondern trotz ausreichender Wasserzufuhr vertrockneten, stellte sich die Frage nach den Ursachen des Pflanzensterbens. Dabei war es denkbar, daß die toxische Schwermetallwirkung eines dieser Elemente ein Anwachsen der Erdbeeren verhindert hat. Np hat gegenüber den anderen Elementen Pu, Am und Cm eine höhere Löslichkeit und damit auch eine höhere Pflanzenverfügbarkeit. Da darüber hinaus ein Gleichgewicht zwischen Boden und zugegebener Aktinidenlösung unmittelbar nach der Kontamination nicht zu erwarten war, könnte dies einen "toxischen Schub" in der Anwuchsphase erklären.

Um diesen Sachverhalt zu prüfen, wurde eine Versuchsreihe mit steigender Np-Konzentration angelegt und zwar 150, 300, 600, 1500 und 3000 Bq Np/g trockenem Boden bei jeweils fünf Wiederholungen. Np wurde als Nitrat zugeführt. Der Aufbau der Töpfe besteht aus 500 g Kiessand, 5000 g nicht-kontaminiertem Boden und 5000 g Boden der kontaminierten Schicht. Die Einbringung der Aktivität erfolgte über die Gießmethode mit acht Schichten zu 500 g Boden und zwei inaktiven Abdeckschichten. Als Versuchsboden diente eine sandige Braunerde. *Lolium multiflorum* der Sorte "Lema" wurde mit 1,5 g pro Topf ausgesät. Die Düngung bestand in der dritten Woche nach Versuchsbeginn aus 3 g Phosphatkali 15/20, in der sechsten Woche aus 3 g Kalkammonsalpeter pro Topf. Eine Nachsaat mit 1 g Saatgut erfolgte in der 15. Versuchswoche. Der Boden wurde bei einer Feldkapazität von 60 % feucht gehalten. Um den pH-Wert abzusenken und damit eventuell eine höhere Pflanzenverfügbarkeit für Np zu erreichen, wurde ab der 19. Versuchswoche eine saure Bewässerung vorgenommen (0,001 N  $H_2SO_4$ ).

Die Beurteilung einer eventuellen toxischen Wirkung von Np auf Pflanzen am Beispiel von *Lolium multiflorum* erfolgte indirekt über den Wasserver-

brauch und die Ertragsbildung des Grases. Danach lassen geringerer Wasserverbrauch und geringeres Erntegewicht auf eine Beeinträchtigung des Wachstums schließen.

Die Produktion der Erntefrischsubstanz ist in Tab. 3 aufgeführt. Danach deutet sich an, daß im ersten Versuchsabschnitt geringere Np-Konzentrationen im Boden zu einer höheren Grasproduktion führten. Das ergibt sich auch aus den Erntetrockengewichten (Abb. 1). Bis zum vierten Schnitt in der 13. Woche ist bei 150 Bq Np/g Boden der höchste Zuwachs gegenüber den anderen Varianten mit höheren Np-Konzentrationen erzielt worden; ab dem fünften Schnitt lassen sich keine Unterschiede mehr feststellen. Die Tendenz, daß in der ersten Versuchsphase Np das Pflanzenwachstum geringfügig negativ beeinflußt ergibt sich andeutungsweise auch aus den in Tab. 4 dargestellten Wasserverbrauchswerten. Ab der 11. Versuchswoche sind dann überhaupt keine Unterschiede mehr erkennbar.

Ernte in Woche	Np-Konzentration in Bq/g Boden				
	150	300	600	1500	3000
3	25 + 2	26 ± 2	18 ± 3	19 ± 2	16 ± 2
6	40 ± 3	37 ± 3	40 ± 4	37 ± 5	33 ± 3
9	52 ± 4	40 ± 3	30 ± 4	34 ± 6	43 ± 10
13	50 ± 18	37 ± 9	16 ± 7	20 ± 5	21 ± 6
16	15 ± 5	19 ± 5	14 ± 4	20 ± 6	25 ± 5
19	22 ± 4	24 ± 5	21 ± 4	28 ± 4	33 ± 5
22	40 ± 6	43 ± 9	41 ± 12	49 ± 9	53 ± 9
24	45 ± 8	42 ± 3	46 ± 5	54 ± 6	47 ± 4

Tab. 3: Erntefrischsubstanz (g) bei *Lolium multiflorum* bei verschiedenen hohen Np-Konzentrationen im Boden

Wenn man überhaupt eine Beziehung zwischen Np-Gehalt und reduziertem Graswachstum unmittelbar nach der Kontamination herstellen kann, dann kommt als Ursache hierfür nur das nichteingestellte Gleichgewicht zwischen dem zugeführten Np und dem Boden in Frage. In dieser Phase ist Np in vergleichsweise hohem Maße pflanzenverfügbar, während es später mehr und mehr immobil wird. Aus anderen Versuchen wird für den Zeitraum der Gleichgewichtseinstellung drei bis sechs Monate angegeben, während aus den hier vorliegenden Ergebnissen eine kürzere Zeit angenommen werden kann, nämlich zwei bis vier Monate. Für weitere Versuche wäre es vorteilhaft, die Einsaat bzw. Bepflanzung der Versuchsgefäße nicht unmittelbar nach der Kontamination vorzunehmen, sondern mindestens zwei Monate abzuwarten.

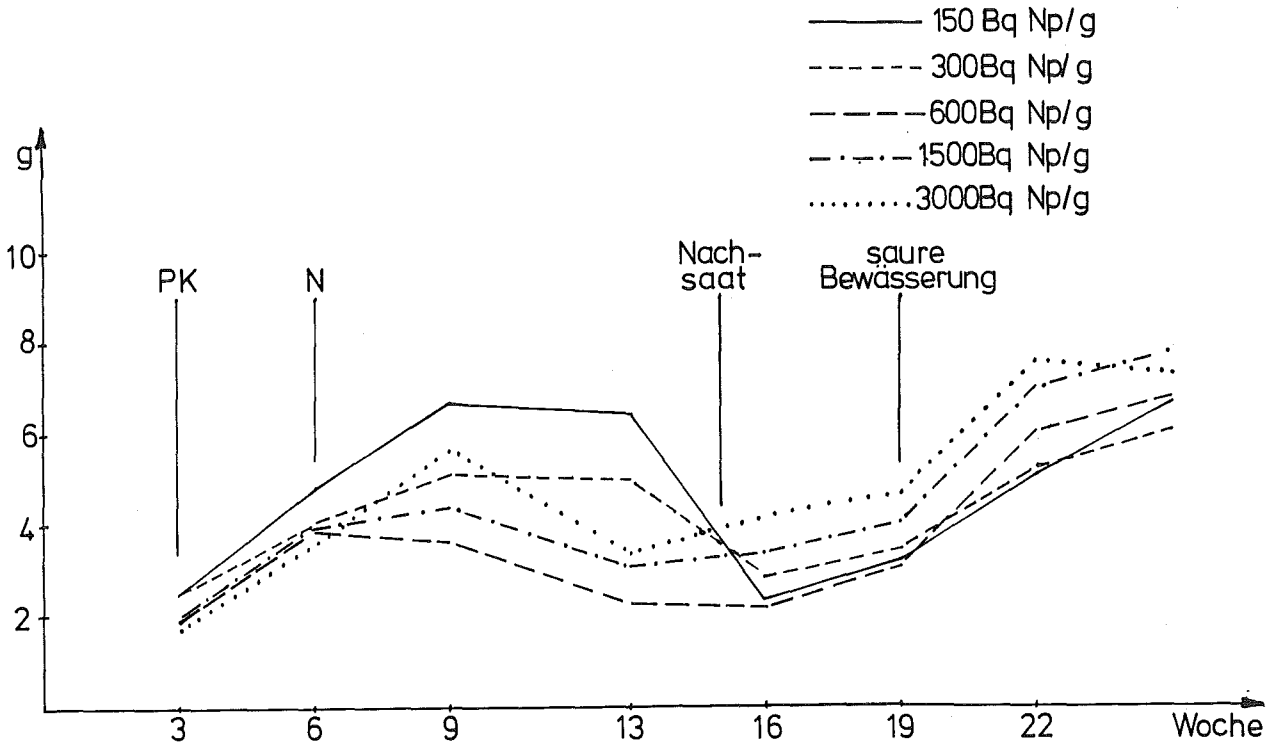


Abb. 1: Erntetrockensubstanz bei *Lolium multiflorum* mit verschiedenen hohen Np-Zugaben zum Boden

Ernte in Woche	Np-Konzentration in Bq/g Boden				
	150	300	600	1500	3000
1	770 ± 70	700 ± 110	790 ± 70	890 ± 40	770 ± 20
2	950 ± 130	850 ± 90	790 ± 40	850 ± 80	670 ± 70
3	740 ± 70	770 ± 60	680 ± 40	770 ± 60	680 ± 160
4	1100 ± 80	1100 ± 30	900 ± 30	940 ± 50	890 ± 130
5	1620 ± 110	1500 ± 140	1260 ± 90	1470 ± 190	1340 ± 230
6	1150 ± 30	930 ± 70	850 ± 80	890 ± 70	860 ± 90
7	1160 ± 70	880 ± 70	660 ± 70	700 ± 80	790 ± 120
8	1360 ± 390	1280 ± 60	940 ± 150	1010 ± 160	1170 ± 220
9	920 ± 30	860 ± 50	660 ± 100	740 ± 60	800 ± 90
10	680 ± 50	720 ± 110	430 ± 60	420 ± 70	490 ± 100
11	780 ± 70	810 ± 70	720 ± 140	740 ± 90	810 ± 80
12	340 ± 40	370 ± 30	340 ± 30	390 ± 60	440 ± 50
13	410 ± 60	460 ± 50	380 ± 40	450 ± 80	510 ± 60
14	540 ± 80	580 ± 70	440 ± 40	530 ± 80	620 ± 40
15	340 ± 10	390 ± 70	340 ± 20	330 ± 10	350 ± 20
16	750 ± 80	830 ± 100	720 ± 50	800 ± 90	850 ± 200
17	510 ± 80	550 ± 70	520 ± 90	550 ± 70	610 ± 120
18	530 ± 60	530 ± 60	500 ± 30	520 ± 60	520 ± 80
19	660 ± 90	680 ± 130	610 ± 60	650 ± 120	720 ± 150
20	720 ± 110	740 ± 120	710 ± 80	750 ± 130	780 ± 170
21	500 ± 60	490 ± 50	450 ± 50	490 ± 30	520 ± 20
22	780 ± 120	740 ± 70	730 ± 100	760 ± 70	800 ± 40
23	920 ± 160	880 ± 80	910 ± 130	960 ± 80	950 ± 30
24	520 ± 90	450 ± 50	510 ± 60	520 ± 60	520 ± 60

Tab. 4: Wasserverbrauch (ml) von *Lolium multiflorum* bei verschiedenen hohen Np-Konzentrationen im Boden

Im weiteren Verlauf des Versuchs - auch bei durch saure Bewässerung reduzierten pH-Wert - ergaben sich keine Anzeichen für eine toxische Schwermetallwirkung des Np mehr.

Von Interesse in diesem Versuch ist auch die zeitliche Veränderung des pH-Wertes selbst. 19 Wochen nach Versuchsbeginn wurde der pH-Wert in 0 - 10 cm und 10 - 20 cm Tiefe gemessen, wobei die pH-Werte mit 6,0 und 6,6 deutlich voneinander und gegenüber dem Ausgangswert von 6,8 abweichen. Bedingt durch den hohen Wasserdurchsatz bei Pflanzenversuchen in Kick-Brauckmann-Töpfen ist innerhalb eines kurzen Zeitraumes mit einer zunehmenden Versauerung des Bodens zu rechnen. Die saure Beregnung mit 0,001 N  $H_2SO_4$  reduzierte den pH-Wert innerhalb von sechs Wochen in 0 - 10 cm Tiefe auf 5,6, während in 10 - 20 cm Tiefe der Wert mit 6,0 unverändert blieb.

### **3 Untersuchungen zum Migrationsverhalten von H-3, Tc-99, Np-237, Pu-238, Am-241 und Cm-244 in Bodensäulen**

Als Folge eines allerdings extrem unwahrscheinlichen, schweren Unfalles in einer Wiederaufarbeitungsanlage muß mit der Freisetzung von radioaktiven Substanzen, darunter Aktiniden, gerechnet werden, die zu einer ausgedehnten Kontamination der Umgebung führen können. Um eine schleichende Ausdehnung des Kontaminationsraumes zu verhindern, muß nach heutigem Kenntnisstand entweder die kontaminierte Erde abgetragen werden, oder aber mit einer dicken Schicht nichtkontaminierten Mutterbodens oder einer Betonschicht bedeckt werden.

Eine weitere Lösung dieses Problems könnte darin bestehen, daß eine Dekontamination der Erdoberfläche durch Verlagern der Aktiniden in tiefere Erdschichten auf chemischem Wege erfolgt. Durch Beregnen der Erdoberfläche mit komplexierenden Lösungen sollte es möglich sein, die Mobilität der Aktiniden im Boden drastisch zu erhöhen und sie mit dem Sickerwasser in tiefere Erdschichten oberhalb des Grundwasserspiegels zu verdrängen.

In einer ersten Versuchsreihe wurde das Sorptions-/Desorptions-Verhalten von Pu, Am und Cm an verschiedenen Böden in Gegenwart von verschiedenen Komplexbildnern untersucht. Die Ergebnisse zeigten, daß die stärkste Verschiebung des Adsorptions-/Desorptions-Gleichgewichts für Aktiniden in Richtung Desorption und damit eine maximale Mobilität mit konzen-



trierter DTPA-Lösung (DTPA = Diethylentriaminpentaacetat) zu erreichen ist. Daraufhin wurden in einem Vorversuch zwei Plexiglassäulen von 30 cm Durchmesser und 40 cm Höhe mit Sandboden aus dem Gelände des KfK gefüllt, mit Pu-239, Am-241 und Cm-244 an der Oberfläche kontaminiert und acht Wochen lang mit 0,1 M DTPA-Lösung von pH = 7 gegossen. Nach acht Wochen war bereits 75 % der aufgegebenen Aktivität mit dem Sickerwasser ausgespült worden, bei Verdopplung der Gießmenge sogar 90 %.

Aufbauend auf diesen Voruntersuchungen wurde nun die Verlagerung von Aktiniden in Bodensäulen von 80 cm Länge und 34,5 cm Durchmesser untersucht, die neun verschiedene Böden in ungestörter Lagerung von zehn Stellen im Umkreis von maximal 150 km um das KfK enthielten. Die wichtigsten Kenndaten der verwendeten Böden sind in Tab. 5 zusammengestellt.

Säule Nr.	Entnahmeort	Bodenart	pH (CaCl <sub>2</sub> )	org. Substanz %	Abschlammbar %	Gesamt N %	Austauschkap. in meq/100 g		Ca meq/100 g	Nährstoffgehalt in ppm (einst. Extrakt)							
							T	S		P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	K <sub>2</sub> O	MgO	B	Na	Cu	Mn	Mo
1 2	Limburgerhof	Sand	6,3	0,8	18	0,05	4,8	4,0	3,8	180	50	40	0,35	8	8	161	0,10
3 4	Langenalb	Löß	4,1	0,3	25	0,02	6,1	1,7	1,7	30	30	20	0,13	7	1	85	0,14
5 6	Mühlacker	Muschelkalk	7,4	2,2	54	0,15	13,6	13,6	12,5	90	170	60	0,63	20	11	94	0,04
7 8	Sandhofen	Sand	4,3	2,0	9	0,07	2,5	0,5	0,5	230	90	10	0,13	4	9	79	0,14
9 10	KfK	Sand	4,7	0,2	15	0,01	8,4	5,9	5,0	20	30	90	0,12	14	1	35	0,12
11 12	KfK	Sand	4,6	0,3	15	0,02	2,0	0,1	0,1	20	10	10	0,1	4	0,2	34	0,12
13 14	Pfungstadt	Lehm	7,1	1,4	34	0,09	15,6	15,6	14,4	230	100	110	0,63	33	10	25	0,16
15 16	Neuhofen	Ton	7,3	1,9	51	0,11	10,6	10,6	9,2	300	340	30	0,79	8	9	100	0,17
17 18	Grötzingen	Löß	7,2	1,8	20	0,12	11,4	11,4	10,1	350	250	50	0,86	8	17	68	0,18
19 20	Durbach	Granitverwitterung	6,0	3,3	30	0,18	13,6	9,0	8,2	150	140	60	0,58	18	15	494	0,07

Tab. 5: Kenndaten der verwendeten Böden

Auf der Oberfläche der Bodensäulen wurde Gras angesät. Von März 1983 bis Mai 1984 wurden die Säulen dreimal pro Woche gegossen, wobei die Wasserzufuhr entsprechend 750 mm Niederschlag pro Jahr bemessen wurde, um eine Wiedereinstellung des bodenphysikalischen Gleichgewichts zu erreichen. Anschließend wurde die Wasserzufuhr um das 10fache erhöht, da eine Dekontamination des Bodens nur im wassergesättigten Zustand möglich ist.

Als erstes wurden die Bodensäulen 3 cm unter der Oberfläche mit HTO versetzt, das mit dem Gießwasser durch die Säulen wanderte und im aufgefangenen Eluat gemessen wurde. Nachdem so sichergestellt war, daß die Erd-säulen keine Spalten und Risse aufwiesen, wurden nun die Säulen mit Tc, Np, Pu, Am und Cm 4 cm unter der Oberfläche kontaminiert. Durch Gießen mit Wasser wurde zunächst das Elutionsverhalten von Tc untersucht, bevor dem Gießwasser DTPA zugegeben wurde, um die Aktiniden zu mobilisieren. Im Eluat der Säulen wurde durch Alpha-Brutto-Messung überprüft, welcher Anteil der auf die Säulen aufgegebenen Aktiniden mit der DTPA-Lösung ausgespült wurde.

Als Beispiel für die durchgeführten Untersuchungen sind in Abb. 2 die Ergebnisse der Aktivitätsmessungen in den aufgefangenen Sickerwasserproben der Säulen 7 und 8 aufgezeichnet. Die oberen Abbildungen zeigen für die einzelnen Säulen die im Sickerwasser gemessenen Aktivitätskonzentrationen in Abhängigkeit von der Zeit. Dabei ist zu beachten, daß die Kontamination der Säulen mit HTO, Tc und Aktiniden zeitlich versetzt durchgeführt wurde. HTO wurde am 23.06.1984 auf die Säulen aufgegeben und die Konzentration im Sickerwasser wurde bis 10.07.1984 gemessen. Tc wurde zusammen mit den Aktiniden am 27.06.1984 auf die Säulen gebracht und ab diesem Tag wurde die Tc-Konzentration und die Alpha-Brutto-Aktivität im Sickerwasser gemessen. Da die Tc-Bestimmung eine chemische Aufarbeitung der Proben erfordert und deshalb nicht alle Proben gemessen wurden, wurden in der Darstellung nur die bis dahin vorliegenden Ergebnisse berücksichtigt. In den Abbildungen in der Mitte ist für jede Säule die mit fortdauernder Versuchszeit insgesamt ausgespülte Aktivitätsmenge, bezogen auf die aufgegebene Aktivität  $A_0$ , als Funktion des insgesamt durch die Säule durchgelaufenen Wassers aufgetragen. Als Startpunkt wurde für HTO und Tc der Zeitpunkt der Kontamination festgelegt, für die Aktiniden der Beginn der Bewässerung mit DTPA-Lösung am 12.07.1984. Um den Austrag der einzelnen Nuklide mit dem Perkulationswasser vergleichen zu können, wurde die in einem Liter Eluat enthaltene Aktivitätsmenge, bezogen auf die zur Kontamination verwendete, gegen die insgesamt durch jede Säule perkolierte Flüssigkeitsmenge aufgetragen. Die unteren Abbildungen zeigen diese normierten Darstellungen.

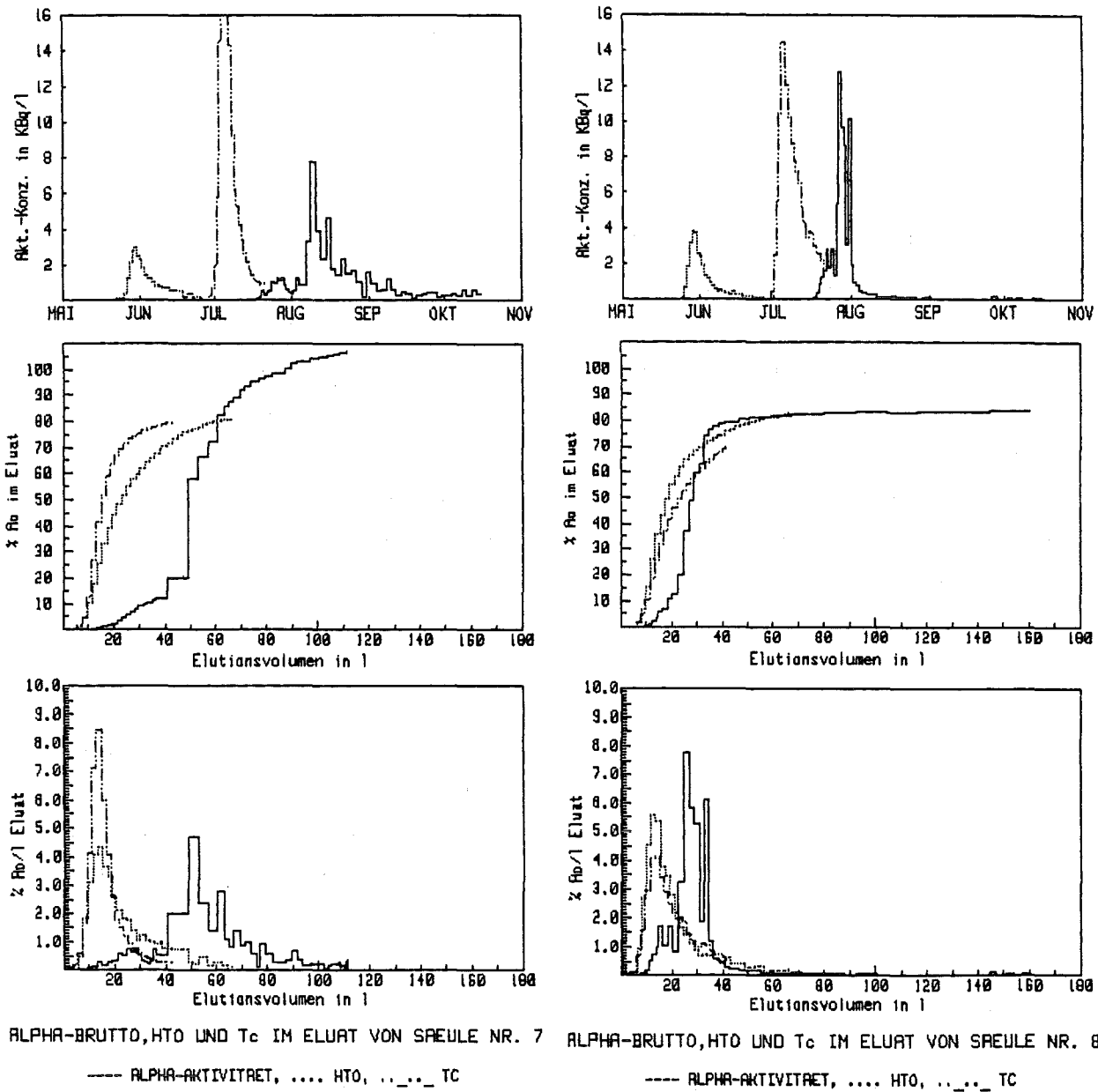


Abb. 2: Alpha-Brutto, HTO und Tc in den Eluaten der Säulen Nr. 7 und Nr. 8

Elution von HTO

Die Markierung der Säulen mit HTO und das anschließende Ausspülen mit Wasser zeigte, daß in keiner der Säulen ein direktes Durchlaufen des Gießwassers durch die Säule in das aufgefangene Sickerwasser erfolgte, da im Eluat erst einige Tage nach der Kontamination HTO in meßbarer Konzentration gefunden wurde. Die Wanderung des HTO mit dem Gießwasser durch die einzelnen Säulen erfolgt sehr unterschiedlich und wird durch

die Art des Bodens stark beeinflusst. Während bei Sandboden ein Elutionsprofil zu beobachten ist, wie es bei chromatographischen Prozessen auftritt, ist der Elutionspeak bei Ton und Lehm sehr viel schwächer ausgeprägt. Bei Muschelkalk, Granitverwitterung und Löß ist nur eine gleichmäßige HTO-Ausspülung aus den Säulen zu beobachten. Die Ursachen für dieses nicht einheitliche Wanderungsverhalten von HTO in den verschiedenen Böden sind mit den Kenndaten der Böden nicht zu erklären. Nach Abschluß der Versuche müssen beim Zerlegen der Säulen weitere Bodenparameter wie Porenverteilung, Lagerungsdichte und Korngrößenverteilung bestimmt werden. Aus dem Elutionsprofil von HTO wird für jede Säule die Wanderungsgeschwindigkeit des Sickerwassers durch den wassergesättigten Boden bestimmt werden. In den wenigen Fällen, wo dies nicht möglich ist, wird die Markierung mit HTO wiederholt und das Elutionsprofil erneut aufgenommen werden.

#### Elution von Tc

Aus den wenigen bisher vorliegenden Daten kann der Schluß gezogen werden, daß Tc - wenn es als  $\text{TcO}_4^-$  auf die Säulen gegeben wird - sich völlig analog dem HTO verhält, da die Elutionsprofile identisch sind. Erst die Analyse von Bodenproben wird Aufschluß darüber geben, ob ein Teil des  $\text{TcO}_4^-$  im Boden reduziert und als Tc(IV) adsorbiert wird.

#### Elution von Aktiniden

Die Aktiniden wurden zusammen mit Tc auf die Säulen aufgegeben. Während der Elution von Tc mit dem Gießwasser wurde keine Erhöhung der Alphaaktivität im Sickerwasser gemessen. Erst einige Zeit nach Beginn des Gießens mit DTPA-Lösung stieg die Alphaaktivität im Eluat der Säulen an. Die für die Alphaaktivität gemessenen Elutionsprofile der einzelnen Säulen gleichen denen, die für HTO und Tc gemessen wurden. In Abb. 2 ist deutlich zu erkennen, daß die Peakmaxima der Alphaaktivitätsmessung deutlich später auftreten als bei HTO und Tc, also eine gegenüber dem Sickerwasser verzögerte Ausspülung der Aktiniden erfolgt. Weiterhin ist festzustellen, daß bei höherer DTPA-Konzentration im Gießwasser (Säule 8) die Auswaschung von Aktiniden schneller erfolgt als beim Gießen mit der verdünnten DTPA-Lösung (Säule 7). Dies ist auf die Verschiebung des Adsorptions-/Desorptions-Gleichgewichts in Richtung Desorption durch die

höhere Komplexbildnerkonzentration zurückzuführen. Aus dem gleichen Grund wurde auch aus den Säulen, die mit der höher konzentrierten DTPA-Lösung gegossen wurden, ein höherer Anteil der insgesamt aufgegebenen Aktiniden eluiert. Lediglich bei leichten Sandböden ist der Elutionsvorgang für Aktiniden so vollständig, daß kein Konzentrationseinfluß mehr feststellbar ist.

Im Anschluß an die Beregnung mit DTPA-Lösung werden die Bodensäulen nun so lange mit Wasser gegossen, bis das Komplexon vollständig aus dem Boden ausgewaschen ist. Durch gezielte Düngergaben werden dann die ausgelaugten Böden so konditioniert werden, daß sich wieder eine gesunde Graskultur entwickeln kann. Als Abschluß der experimentellen Untersuchungen werden die Säulen in Schichten von 3 - 5 cm zerlegt und die Konzentration an Tc und Aktiniden in den einzelnen Schichten wird gemessen werden. Die Verteilungsprofile im Boden und das Elutionsverhalten mit der Komplexbildnerlösung werden eine Aussage darüber zulassen, ob es möglich ist, im Feldversuch größere Bodenoberflächen durch Berieseln mit Komplexbildnern zu dekontaminieren, oder ob man mit einem solchen Vorgehen das Gefährdungspotential von der Erdoberfläche in den Grundwasserbereich verlagert.

#### **4 Multielementbestimmung in Pflanzen-, Boden- und Wasserproben**

Die Messung von Transferfaktoren Boden/Pflanze wird häufig mit radioaktiven Tracern durchgeführt. Die Messung mit inaktiven, natürlichen Spuren in Boden und Pflanze hat den Vorteil, daß die Meßtechnik für viele Elemente wesentlich billiger ist und die Spuren mit der Erde sich bereits im chemischen Gleichgewicht befinden. Zusätzlich zu der radiochemischen Analytik wurden und werden - soweit möglich - Vorversuche mit entsprechenden inaktiven Elementen bzw. Proben gemacht. Dies betrifft zum Beispiel die Überprüfung der erreichbaren Homogenität bei Zugabe von Elementen zu Böden, die Ermittlung des Einflusses der Gefäßgröße auf die Ergebnisse, die Erarbeitung von Extraktionsverfahren, Ermittlung der notwendigen Anzahl von Parallelbestimmungen und das Auswählen der geeigneten Aufschlußmethoden zum Lösen der Pflanzenproben. Das inaktive Arbeiten dient außerdem der Vorbereitung entsprechender aktiver Versuche bzw. der Klärung des Verhaltens dieser radioaktiven Elemente in der Umwelt. Bei der Bestimmung des Transfers Boden/Pflanze hat man sich in vielen Fällen damit begnügt, die Konzentration des betrachteten Element-

tes in diversen Pflanzenteilen und im Boden zu bestimmen. Für ein besseres Verständnis des Verhaltens der betreffenden Elemente im Boden und in der Pflanze ist es jedoch auch wichtig zu wissen, wie sich simultan zur Aufnahme eines Schadstoffes die Gehalte bzw. Aufnahmen der anderen Elemente ändern. Man erhält so tiefere Aussagen über die möglichen Wirkungen, Angriffsorte und Konkurrenzreaktionen.

Ein wesentlicher Gesichtspunkt ist auch das Verhalten der Elemente im Boden selbst. Je nach Art und chemischer Konstitution des Bodens ist die Bindung an den Boden, die Pflanzenverfügbarkeit und Neigung zur Auswaschung unterschiedlich. Um darüber Kenntnisse zu erlangen, ist die Erarbeitung und der Einsatz gezielter Auslaugeverfahren sowie eine Kenntnis der Gesamtzusammensetzung des Bodens (Kationen und Anionen) notwendig. Aufgrund der Vielzahl an Einzelmessungen eignen sich für solche Untersuchungen nur schnelle Meßverfahren wie z. B. die ICP-AES und die AAS. Seit 1983 wurden in der HS/R geeignete Meßmethoden eingeführt, geeicht und auf verschiedene Fragen angewandt.

Die Abb. 3 zeigt schematisch die Analysengänge zur Bestimmung von Elementen in Pflanzen- und Bodenproben.

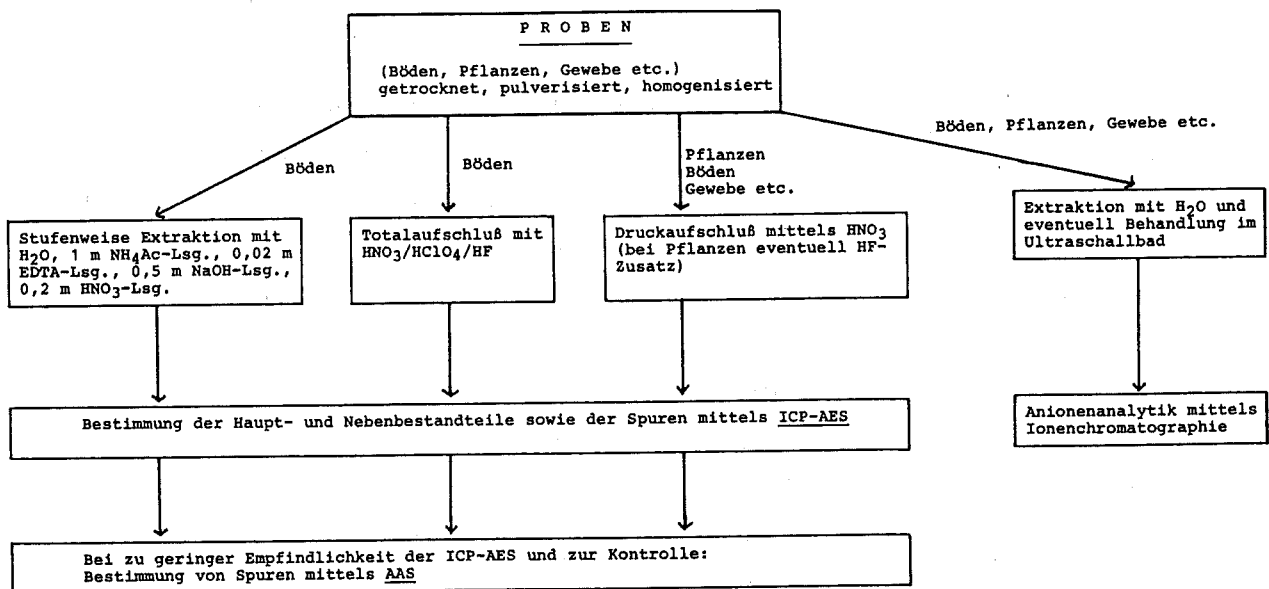


Abb. 3: Schema der konventionellen Analytik

#### 4.1 Atomemissionsspektroskopie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-AES)

Für die ICP-AES wurden bisher 22 Meßabläufe erstellt, die insgesamt 53 Elemente erfassen. Für einen Teil dieser Elemente ist jedoch noch Entwicklungsarbeit zu leisten bzw. eine Bestimmung in Pflanzen- und Bodenproben dieser Elemente ist wegen zu geringer Empfindlichkeit der ICP-AES nicht möglich. In diesen Fällen wird, sofern möglich, eine Analyse mit der AES bzw. der Flammenphotometrie durchgeführt. Die für Pflanzen wichtigen Elemente können jedoch mit wenigen Ausnahmen (Kalium, Stickstoff) aufgrund der vorhandenen Analysenverfahren mittels ICP-AES und/oder AAS bestimmt werden. Neben den 22 auf umweltrelevante Matrices bezogenen Meßabläufen wurde im Rahmen eines Ringversuchs noch ein Verfahren zur Bestimmung von 16 Elementen in High-Activ-Waste-Simulat entwickelt.

Die Überprüfung der Meßverfahren geschah und geschieht durch direkten Vergleich der ICP-AES mit der AAS, durch Teilnahme an Ringversuchen sowie durch die Analyse von Standardreferenzmaterialien.

Tab. 6 gibt die momentane Elementpalette sowie die erzielten Nachweisgrenzen bei der ICP-AES wieder und zeigt an, für welches Element in Pflanzen- und Bodenproben die Empfindlichkeit im allgemeinen ausreichend ist.

In der Tab. 7 wird am Beispiel dreier Standardreferenzmaterialien die Leistungsfähigkeit der ICP-AES demonstriert.

Element	NWG* für Böden (µg/g TG)	NWG ausreichend zur Bestimmung in		Element	NWG* für Böden (µg/g TG)	NWG ausreichend zur Bestimmung in	
		a) Pflanzen	b) Böden			a) Pflanzen	b) Böden
Fe	3,5	ja	ja	La	0,86	nein	ja
Al	8,6	ja	ja	Ce	11	nein	ja
Ca	2,4	ja	ja	K	6600	nein	nein
Mg	0,23	ja	ja	Rb	600	nein	nein
Na	5	ja	ja	Li	1,3	nein	ja
Mn	0,15	ja	ja	In	23,5	nein	ja
Zn	0,24	ja	ja	Dy	1,02	nein	ja
Sr	0,06	ja	ja	Er	1,4	nein	ja
Ba	0,1	ja	ja	Nd	10,7	nein	ja
Cd	0,3	nein	unsicher	Sm	3,3	nein	ja
Co	1,5	nein	ja	Y	0,14	nein	ja
Cr	2,4	nein	ja	Th	3,6	nein	ja
Cu	0,5	unsicher	ja	Eu	0,42	nein	ja
Ni	2	nein	ja	Sc	0,17	nein	ja
Pb	6,6	unsicher	ja	Ga	5,7	nein	ja
S	8,6	ja	ja	Gd	2,0	nein	ja
P	7,2	ja	ja	Zr	1,3	nein	ja
Ti	0,2	unsicher	ja	Te	11,0	nein	nein
As	6	nein	unsicher	Ru	2,6	nein	nein
V	2,4	unsicher	ja	Rh	8,0	nein	nein
Be	0,05	nein	ja	Yb	3,0	nein	unsicher
B	2,4	unsicher	ja	Hf	49	nein	nein
Mo	0,2	nein	ja	Re	1,6	nein	nein
Sb	22	nein	nein	Hg	0,240	nein	nein
Si	17	ja	ja	Se	1,05	nein	unsicher
Bi	7,7	nein	nein	Tl	1,3	nein	unsicher
Sn	39	nein	nein				

\*Nachweisgrenze hier als  $3\sigma/s$  ( $s = \text{Empfindlichkeit}$ )  $\times 100$  (Verdünnungsfaktor für Bodenproben). Diese Nachweisgrenze stellt somit die qualitative Grenze dar (LOD = Limit of Detection). Die Grenze zum sicheren quantitativen Nachweis (LOQ = Limit of Quantitation) liegt 3,3mal höher. Die entsprechenden Nachweisgrenzen für Pflanzen sind ca. 30 % niedriger, da der Verdünnungsfaktor geringer ist.  
TG = Trockengewicht

Tab. 6 Elemente, die aufgrund der vorhandenen Meßabläufe mittels ICP-AES bestimmt werden können bzw. vorbereitet werden.

#### 4.2 Atomabsorptionsspektrometrie (AAS)

Die Atomabsorptionsspektrometrie wird in erster Linie als Ergänzung zur ICP-AES eingesetzt. Dies geschieht einerseits, um mittels ICP-AES erzielte Ergebnisse zu überprüfen, andererseits zur Durchführung von Analysen, die aufgrund der Nachweisgrenze mittels ICP-AES nicht möglich sind. Beispiel hierfür wäre die Bestimmung von Cadmium, Chrom, Cobalt und Blei in Pflanzenproben. Da bei der konventionellen Spurenanalytik die Kontaminationsgefahr groß ist und mit zunehmender Anzahl der Arbeitsschritte steigt, ist man bemüht, leistungsfähige Methoden, welche Anreicherungs- und Extraktionsschritte überflüssig machen, einzusetzen. Die Atomabsorptionsspektrometrie mit Anregung im Graphitrohrföfen ist so eine Methode. Mittels dieser Methode wurden bisher die Elemente Arsen, Cadmium, Cobalt, Chrom, Blei, Selen, Kupfer und Antimon in Pflanzen und Bodenproben bestimmt.



Element	BCR 144 <sup>1)</sup>		BCR 143 <sup>2)</sup>		BCR 141 <sup>3)</sup>	
	gefunden	"Soll"	gefunden	"Soll"	gefunden	"Soll"
Fe	46400±700	(47700±1700) <sup>4)</sup>	25300±900	(21400±2500)	22600±700	(23600±2600)
Al	16200±100	(18500)	49200±2000	(50400±1700)	51100±2500	(54200)
Ca	38000±800	(41000)	62300±1400	(35000)	118200±3600	(113000)
Mg	4960±95	(4400±400)	25100±430	(25000)	5700±200	(6000)
Na	1047±16	( 700±300)	3116±34	(200/3100)	3100±100	(3000)
Mn	423±9	449±13	1013±10	999±62	494±9	( 547)
Zn	3188±42	3143±103	1291±8	1272±30	81±2	81,3±3,7
Sr	97±2	---	145±1	(136/140)	397±5	( 470)
Ba	561±14	---	981±7	(920/940)	214±5	(251/235)
Cd	4,9±0,3	4,82±0,97	32,7±1,5	31,1±1,2	1,5±0,1	0,36±0,1
Co	10,4±0,6	9,06±0,6	14,2±0,7	11,8±1,2	12±0,4	(9,2)
Cr	450±8	( 485±44)	204±21	228±19	66,4±0,1	( 75)
Cu	686±11	713±26	232±1	236,5±8,2	30,8±2,4	32,6±1,4
Ni	897±18	942±22	93,2±3	99,5	28,6±0,2	(30,9)
Pb	451±10	495±19	1249±19	1333±39	27,4±2,1	29,4±2,6
S	6129±99	---	2128±38	---	1372±24	---
P	21400±350	(22200)	4212±145	---	632±17	( 700)
Ti	1160±30	( 1230)	4093±32	( 3580)	2847±101	(2800)
As	11,1±3,2	( 6,7±0,7)	18,1±0,1	(18,5/16,1/19,6/15)	9±1,4	7,9±1,3
V	---	(14,1±3)	87,1±1,3	---	81±2,1	---
Be	0,5±0,01	(0,66±0,03)	1,73±0,23	---	2±0,1	---

\*Alle Angaben in µg/g TG (n = 3)

1) Sewage Sludge of Domestic Origin

2) Sewage Sludge Amended Soil

3) Calcareous Loam Soil

4) Werte in Klammern sind lediglich Informationswerte. Teilweise sind mehrere im Report angegebene Einzelwerte zu einem Mittelwert zusammengefaßt

Tab. 7 Überprüfung des ICP-Meßverfahrens mit Standardreferenzmaterialien

Für die Atomabsorptionsspektrometrie mit Anregung im Graphitrohr wurden in Böden folgende Nachweisgrenzen erreicht: Cr 0,024; Co 0,2; Cu 0,06; Ni 0,08; Pb 0,022; Cd 0,003; Se 0,032; As 0,013; Sb 0,02. Alle Angaben beziehen sich auf µg/g TG und stellen die Nachweisgrenze im Sinne der LOD dar (s. Tab. 6). Bei den Elementen Se, As und Sb wurde mit elektrodenlosen Entladungslampen und der Plattform-Technik gearbeitet.

### 4.3 Ionenchromatographie

Im Rahmen der im Gewächshaus des KfK durchgeführten Versuche zur Messung von Transferfaktoren Boden/Pflanze sowie zur Untersuchung des Einflusses von Radionukliden und Schwermetallen auf Pflanzen ist es zur besseren Interpretation der Ergebnisse notwendig, parallel zur Kationenbestimmung eine Anionenbestimmung durchzuführen. Anionen sind nicht nur entsprechende Begleitelemente der Kationen, sondern auch für die Ernährung der Pflanzen von Bedeutung (z. B. Nitrat, Phosphat) oder können als Schadstoffe wirken (z. B. Fluorid).

Bisher wurden geringe Konzentrationen an Anionen meist photometrisch oder mit ionensensitiven Elektroden bestimmt. Zusätzlich zu der teilweise hohen Anfälligkeit beider Methoden in Bezug auf Störungen ist der Arbeitsaufwand besonders bei der Photometrie bezogen auf die Einzelelementbestimmung groß.

Die Ionenchromatographie brachte hier entscheidende Verbesserungen, da sie nicht nur die sequentielle Bestimmung mehrerer Anionen in einem Analysengang ermöglicht, sondern zusätzlich für viele Anionen ein hervorragendes Nachweisvermögen besitzt. Heute gibt es bereits mehrere Methoden und Techniken der Ionenchromatographie, wobei man grundsätzlich Einsäulen- und Zweisäulensysteme unterscheidet. Das von uns verwendete Gerät arbeitet nach dem Zweisäulensystem. Durch Kopplung einer Ionenaustausch-Trennsäule mit einer zweiten Ionenaustauschsäule, die den Elektrolyten im Elutionsmittel "neutralisiert", d. h. die Untergrundleitfähigkeit vermindert, kann ein Leitfähigkeitsdetektor zur Bestimmung von Ionen verwandt werden. Heute erfolgt die Neutralisation des Eluenten, wie auch bei dem von uns betriebenen Gerät, mittels eines Hohlfasermembransuppressors. Der Eluent gelangt über eine Hohlfasermembran mit einem entsprechenden Neutralisationsmittel in Kontakt, welches ständig erneuert wird. Eine den Analysenbetrieb unterbrechende Regeneration der Suppressorsäule entfällt also.

Durch Wahl der entsprechenden Ionenaustauschmaterialien und des Eluenten ist entweder eine Kationen- oder eine Anionenbestimmung möglich. In der Anionenanalytik wird ein Harz mit quarternären Ammoniumgruppen eingesetzt. Als Elutionsmittel dient ein Gemisch von Natriumkarbonat und Natriumhydroxid (Karbonat- und Hydrogenkarbonationen). Das Verhältnis dieser beiden Anionen bestimmt die Elutionsstärke. Im Hohlfasermembransuppressor werden die Natriumionen gegen Wasserstoffionen ausgetauscht. Es entsteht kaum dissoziierte Kohlensäure. Die Hintergrundleitfähigkeit ist also äußerst gering, so daß eine empfindliche konduktometrische Messung möglich wird.

Die Leitfähigkeitsmessung bietet den Vorteil, daß sie universell ist, in einem Analysengang also mehrere Ionen sequentiell bestimmt werden können. Die heute verwendeten Leitfähigkeitsdetektoren (Zellvolumen meist im Bereich von einigen  $\mu\text{l}$ ) haben oft einen linearen Arbeitsbereich von einigen ppb bis hin zu 100 ppm.

Heute wird die Ionenchromatographie bereits in einem weiten Feld eingesetzt. Meist bei der Bestimmung von Ionen in Wässern aller Art, aber auch in Gesteinen und Böden, zur Reinheitskontrolle bei Lebensmitteln, pharmazeutischen und kosmetischen Produkten sowie in der technischen und klinischen Analytik.

Zur Ermittlung von Parametern wie Stabilität, Nachweisgrenze, Temperaturabhängigkeit, Reproduzierbarkeit usw. wurde eine Serie von Trinkwasserproben aus der Umgebung des KfK untersucht. Die Tab. 8 gibt die Ergebnisse wieder. Die für das Nitrat gefundenen Werte bestätigen die von anderen Autoren veröffentlichten Daten, die in Gegenden hohen Weinanbaus (Brunnen in Fließrichtung unterhalb des Weinbaus) und intensiver landwirtschaftlicher Nutzung ebenfalls erhöhte Nitratgehalte fanden. Da jeweils nur eine Probe gezogen wurde, sind die angegebenen Daten lediglich Informationswerte. Hinsichtlich des Fluorids muß angemerkt werden, daß bei der in diesem Fall verwendeten Säulen/Eluent-Kombination auch andere Ionen (Azetat, Formiat, Lactat) mit ähnlicher Retentionszeit eluiert werden. Versuche zur Trennungsoptimierung und gezielteren Erfassung des Fluorids in Pflanzen und Böden werden derzeit durchgeführt.

Entnahmestelle	Anionenkonzentrationen in µg/kg			
	F <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>
Karlsruhe 1	0,34 ± 0,01	16,8 ± 0,2	3,6 ± 0,4	86,3 ± 0,2
Karlsruhe 2	0,32 ± 0,03	22,4 ± 0,2	5,9 ± 0,1	92,6 ± 0,7
Neureut	0,37 ± 0,06	18,0 ± 0,2	5,4 ± 0,1	103,6 ± 0,9
Linkenheim	0,17 ± 0,01	33,7 ± 0,2	10,1 ± 0,6	91 ± 1
Hochstetten	0,3 ± 0,1	36,2 ± 0,0	9,9 ± 0,4	99 ± 2
Liedolsheim	0,3 ± 0,1	5,1 ± 0,6	0,57 ± 0,07	15 ± 2
Liedolsheim/Br	0,64 ± 0,3	27 ± 1	11 ± 1	80 ± 4->
Rheinhausen	0,6 ± 0,4	19 ± 1	0,67 ± 0,01	96,7 ± 0,9
Rheinhausen/Br	1,7 ± 0,3	27,8 ± 1	1,6 ± 0,1	184 ± 1
Philippsburg	1,0 ± 0,7	32,2 ± 0,4	12,8 ± 0,1	120,6 ± 0,5
Weingarten	1,5 ± 0,1	28,6 ± 0,2	50 ± 1	98 ± 3
Bruchsal	1,2 ± 0,2	37 ± 1	39 ± 2	147 ± 3
Langenbrücken	0,88 ± 0,01	25,6 ± 0,5	46,2 ± 0,2	85 ± 1
Heidelsheim	1,9 ± 0,1	44 ± 1	51 ± 2	68 ± 2
Neuthard/Br	0,8 ± 0,3	70,6 ± 0,3	129 ± 2	120 ± 1
Neuthard	0,64 ± 0,03	33,9 ± 0,6	65,9 ± 0,7	112,7 ± 0,1
Blankenloch	1,3 ± 0,1	27,5 ± 0,6	31 ± 0,9	117 ± 3
Jockgrim	0,74 ± 0,01	5,2 ± 0,0	0,5 ± 0,3	5,3 ± 0,7
Jockgrim/Br	0,79 ± 0,07	31,8 ± 0,8	-	5,0 ± 0,1
Rheinzabern	-	4,3 ± 0,2	0,66 ± 0,02	5,2 ± 0,1
Neupotz	0,28 ± 0,03	4,0 ± 0,1	0,8 ± 0,1	5,2 ± 0,1

Tab. 8: Bestimmung von Anionen im Trinkwasser (Mittelwert aus zwei Messungen ± Standardabweichung, Br bezeichnet einen privaten Brunnen)

## 5 Aufnahme von Cobalt, Blei und Chrom in Gras durch die Wurzeln

Es wurde überprüft, inwieweit der Transferfaktor Boden/Pflanze der radioökologisch relevanten Elemente Cobalt, Blei und Chrom von der Bodenkonzentration der Elemente und der Topfgröße abhängt. Ferner war von Interesse, in welchem Maß die chemische Wirkung der Schwermetalle sich auch in einer Konzentrationsänderung von z. B. essentiellen Elementen niederschlägt. Bis zum Absterben des Grasses erfolgten in 14tägigem Rhythmus elf Schnitte, von denen bisher neun gemessen wurden.

Zu einer ersten Auswertung sind die Schnitte 1 bis 6 zusammengefaßt worden. Bestimmt wurden in jeder Probe die Elemente Schwefel, Phosphor, Eisen, Aluminium, Kalzium, Magnesium, Natrium, Mangan, Zink, Cobalt, Chrom, Blei und Kalium. Aus den bisher ausgewerteten Meßergebnissen läßt sich folgendes ableiten: Durch Zugabe von Schwermetallen zum Boden reduziert sich der Wasserverbrauch und der Ertrag gegenüber der Vergleichsprobe. Einzige Ausnahme ist im Falle der geringsten Cobaltkonzentration zu verzeichnen, wo sich eher eine positive Spurenelementwirkung bemerkbar machte. Die Aufnahme durch die Pflanze ist für alle drei untersuchten Schwermetalle unterschiedlich hoch. Der mit Abstand höchste Transfer wird bei Cobalt gefunden. So führt die Zugabe von 200 µg Cobalt/g Boden zu einem Gehalt von bis zu 100 µg Cobalt/g Gras TS, wohingegen bei Zugabe von 900 µg Blei/g Boden nur wenig mehr als 10 µg/g Gras TS gefunden werden. Nur wenig niedriger als der Transferfaktor für Blei ist jener für Chrom. Die hohe Aufnahme von Cobalt schlägt sich dann auch deutlich in der Auswirkung auf das Gras nieder. Die Zugabe von 400 µg Cobalt/g Boden führte in kurzer Zeit zum Absterben der Kultur und auch die auf mit 200 µg bzw. 50 µg Cobalt/g Boden kontaminierten Böden wachsenden Pflanzen zeigten deutliche Schäden.

Interessant ist auch die Wirkung der Schwermetalle auf die Gehalte des Grasses an anderen Elementen. Während sich für Eisen, Aluminium und Zink keine nachweisbaren Veränderungen ergaben, waren besonders bei den Pflanzen mit den höchsten Schwermetallgehalten die Konzentrationen einiger Elemente verändert. Die Abb. 4 zeigt dies am Beispiel des 5. (70 Tage nach der Aussaat) der mit Chrom kontaminierten Töpfe. Die Darstellung erfolgte doppeltlogarithmisch. Während bei der Kontrollprobe vom 2. Schnitt an (28 Tage nach der Aussaat) Kalzium, Phosphor, Magnesium und Mangan eine fallende Tendenz zeigten, ist bei Chromzugabe für Kalzium und Magnesium eine Zunahme zu verzeichnen.

Hinsichtlich der Variation der Topfgröße zeigt sich kein bedeutender Einfluß, doch muß hier erst noch eine genauere Auswertung der Ergebnisse erfolgen.

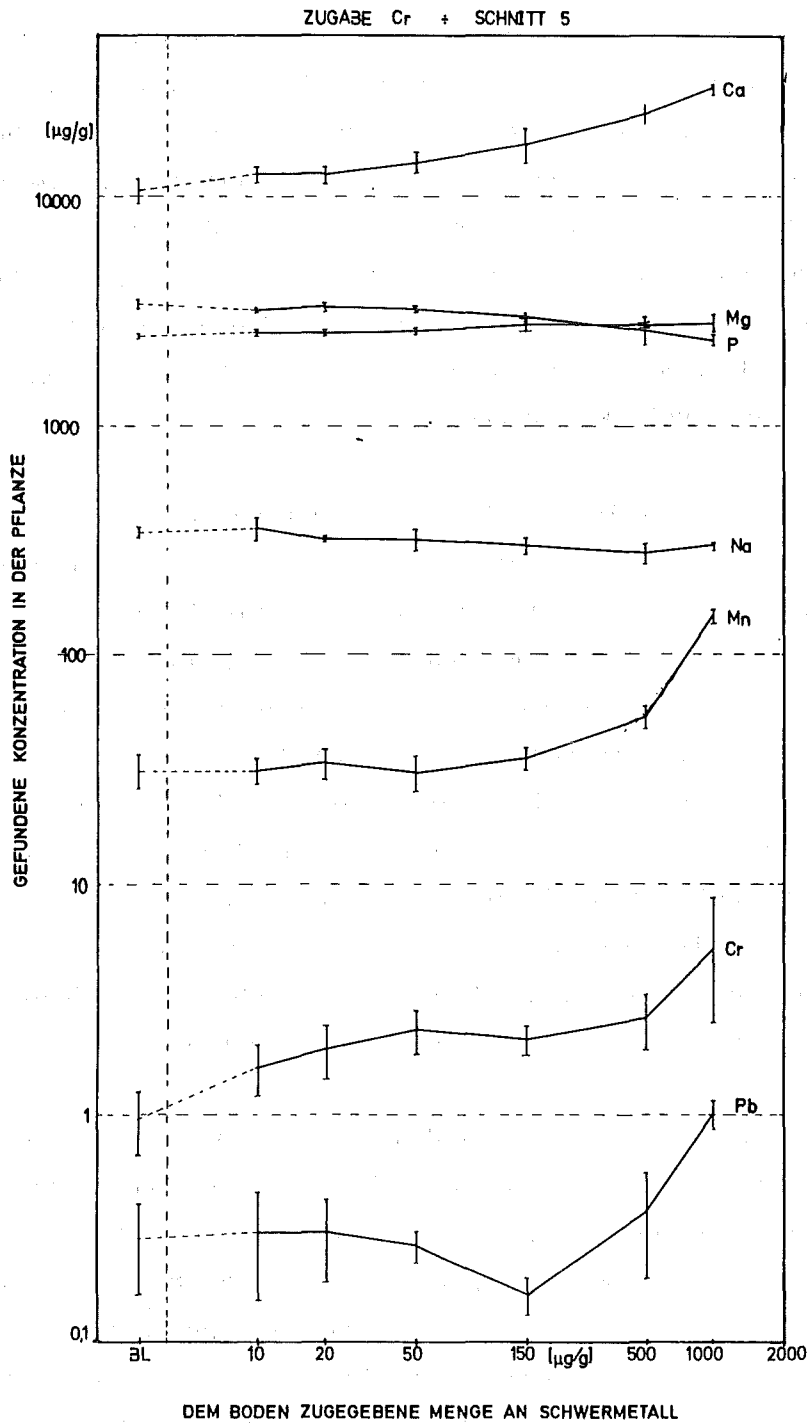


Abb. 4: Abhängigkeit des Elementgehaltes (Kalzium, Phosphor, Magnesium, Natrium, Mangan, Chrom, Cobalt und Blei) in *Lolium multiflorum* von der dem Boden zugefügten Menge an Schwermetall (BL bezeichnet die Kontrollprobe)

## 6 Untersuchungen zur Beobachtung der Verteilung von Schadstoffen im Boden durch Regenwürmer

1984 wurde ein Versuch abgeschlossen, bei dem die Verteilung von Schadstoffen im Boden durch Regenwürmer der Art *Lumbricus terrestris* untersucht wurde. Von Interesse waren die Verteilung der Schadstoffe im Boden, die Konzentrationen in den Regenwurmlosungen auf der Bodenoberfläche sowie mögliche Anreicherungen im Regenwurmgewebe. Im wesentlichen als Mittel zur Optimierung der Versuchsanlage für spätere radioökologische Untersuchungen wurden die inaktiven Elemente Pb, Cr, Co, Ni und Cd dem Rindermist beigemischt, der in verschiedenen Lagen in die Bodensäulen eingebracht wurde. Eine Beschreibung der Versuchsanlage findet sich im Jahresbericht 1983 (KfK-3450).

Bisher lassen sich folgende Ergebnisse zusammenfassen: Die Anzahl der Würmer sowie deren Einzelgewicht war gegenüber dem Versuchsbeginn bei Versuchsende teilweise stark reduziert. Ob die Ursachen hierfür in der schädigenden Wirkung der Schwermetalle liegen, muß nachgeklärt werden. Die An- bzw. Abreicherungs-faktoren der Schadstoffe im Wurmgewebe gegenüber dem als Regenwurmfutter eingelagerten kontaminierten Rindermist mit 600 µg Pb/g, 30 µg Cr/g, 60 µg Co/g, 60 µg Ni/g und 6 µg Cd/g, auf das Trockengewicht bezogen, waren nur bei Cd > 1. Wurden die Konzentrationen im Wurmgewebe auf den nichtkontaminierten Boden bezogen, dann ergaben sich für alle untersuchten Schadstoffe Anreicherungs-faktoren mit einem Wert > 1 in den Regenwürmern. Dabei läßt sich eine Reihenfolge der Anreicherung im Wurm von Cd >> Cr ≈ Co >> Ni > Pb festlegen.

Setzt man die Konzentrationen in den Ausscheidungen der Würmer in Relation zum Boden, so findet sich hier eine teilweise wesentlich höhere Anreicherung in den Wurmaggregaten mit Faktoren, die durchweg > 10 sind. Eine Reihung der Elemente ergibt dabei Cr >> Ni ≈ Pb ≈ Cd > Co. Im Vorgriff auf die noch auszuwertenden Schadstoffprofile in den einzelnen Säulen ist in allen Schichten ein deutlich höherer Schadstoffgehalt gegenüber dem Ausgangsboden festzustellen. In Abhängigkeit von der Tiefe der eingebauten, kontaminierten Futterschicht sind Zonen mit erhöhter Schadstoffablagerung zu erwarten. Dies läßt darauf schließen, daß es in den Säulen Zonen mit relativ häufigem oder zeitlich längerem Aufenthalt gibt, in denen - ähnlich wie auf der Bodenoberfläche - vermehrt mit Schadstoffen angereicherte Ausscheidungen abgelagert werden.

## 7 Entwicklung eines Verfahrens zur homogenen Kontamination von Böden

Für die Bestimmung von Transferfaktoren Boden/Pflanze für radioaktive Elemente ist es notwendig, daß diese homogen im Boden verteilt sind. Aus diesem Grunde wurde eine Methode entwickelt, die eine homogene und sichere Einbringung von Radioaktivität in den Boden gewährleistet. Nachforschungen über Mischtechniken auf dem Markt in der Bundesrepublik Deutschland, Frankreich, Schweiz und USA ergaben, daß sich zwar mit Hilfe herkömmlicher Mischer eine ausreichende Homogenität beim Einbringen der Aktivität in den Boden erreichen läßt, daß aber ein hohes Kontaminationsrisiko, insbesondere beim Entleeren und Reinigen des Mixers, besteht.

Eine Kontamination der Luft und des Gerätes während des Einmischens der Radioaktivität in den Boden kann dann vermieden werden, wenn die Aktivität feinkörnig eingekapselt wird und mit einer zweiten inaktiven Schicht abgedeckt wird. Für das Aufbringen der Schichten wird ein Verfahren aus der Pharmazie (Dragierung) verwendet. Im Versuch haben sich als Trägermaterial Glaskügelchen mit einem Durchmesser von 0,65 bis 0,7 mm als vorteilhaft erwiesen. Durch Einbringen der Glaskügelchen in den Boden werden die Transferfaktoren nicht beeinflusst, da durch sie chemisch betrachtet dem Boden kein Fremdstoff zugeführt wird. Physikalisch wird die Zusammensetzung der Bodenfraktionen nur geringfügig geändert. Außerdem finden keine chemischen Reaktionen zwischen den Kügelchen und dem Boden statt.

Die Anlage besteht aus einem Dragierkessel, in dem sich die Glaskügelchen befinden. Die Luft im Dragierkessel wird auf 70 °C aufgeheizt. Damit wird eine optimale Verdunstung des Lösungsmittels erzielt. Zum Versprühen der Lacklösung wird eine Spritzpistole verwendet, die eine sehr feine Versprühung erlaubt. Die Lacklösung für die Umhüllung der Kügelchen besteht aus einem Filmbildner, einem Lösungsmittel, einem Neutralisator ( $H_2SO_4$ ) und Hilfsstoffen. Der Filmbildner ist in Wasser und organischen Lösungsmitteln gut löslich und unflüchtig, so daß auf dem Weg zwischen Verlassen der Spritzpistole und Berührung des Granulats keine Lösung verdunstet.

Die Einkapselung der Radioaktivität wurde bisher mit dem Nuklid Tc-99m erprobt. Tc-99m wurde deswegen ausgewählt, weil es den Vorteil einer kurzen Halbwertszeit (6 h), einer niedrigen Gammaenergie und einer guten Löslichkeit hat. Der Lösung wird die Radioaktivität zugesetzt und auf die Kügelchen aufgesprüht. Die Abluft wird über ein Filter zum Abzug geleitet und gemessen. Nach ca. 2 h, wenn die Radioaktivität der Abluft konstant ist, wird mit dem Aufsprühen der inaktiven Schicht begonnen. Diese zweite Schicht wird als Schutzschicht über die erste zum Abdecken aufgesprüht, wobei der radioaktive Zusatz entfällt und ein anderer Farbstoff genommen wird, um die Abdeckung unterschiedlich zu kennzeichnen. Um eine Inhalation von Tc-99m zu vermeiden, wurde eine Schutzvorrichtung konstruiert, die den ganzen Dragierkessel abdeckt. Messungen ergaben keine Kontamination der Raumluft während des Aufsprühens der Aktivität.

Die homogene Verteilung der Kügelchen im Boden wurde mit inaktiv eingefärbtem Material untersucht. Die Glaskügelchen wurden mit einem Schüttelmischer, einem Betonmischer und einem Walzenmischer in den Boden gemischt. Dabei stellte sich der Walzenmischer als ungeeignet heraus, da einzelne Kugeln zerbrachen und der Filmüberzug zersprang. Bei den anderen Mixchern konnte kein Abrieb bis zur zweiten Schicht festgestellt werden. Der Anteil der Kügelchen im Boden wurde so gering wie möglich gehalten, damit die Zusammensetzung des Bodens und damit die Transferfaktoren nicht beeinflusst werden.

Die Untersuchung zeigte, daß bei einer Gewichtszugabe an Kügelchen von 0,4 % des eingesetzten Bodens und einer Mischzeit von 30 min unabhängig von der Bodenart eine ausreichende Homogenität der Mischung zu erreichen ist. Bei den im Gewächshaus verwendeten Kick-Brauckmann-Versuchsgefäßen bedeutet dies z. B., daß für jeweils 10 kg Boden 40 g Glaskügelchen einzumischen sind.

Im Verlauf der weiteren Entwicklungsarbeit müssen folgende Probleme gelöst werden:

- Es ist zu prüfen, ob die Transferfaktoren Boden/Pflanze durch diese Methode im Vergleich zu anderen Mischtechniken verändert werden.
- Es muß technisch gelöst werden, daß bei einem Ausfall der Abluft im Kessel kein Rückstau und damit die Gefahr einer Raumkontamination entsteht, weil die angewärmte Zuluft und die einzuspritzende Aktivitätslösung weiterhin zugeführt werden.



- Um beim zentralen Vorgang der Pelletierung, dem Aufsprühen, ein Tropfen und Verstopfen der Düse zu vermeiden, muß die herkömmliche Spritzpistole durch eine Spezialdüse mit Selbstreinigung ersetzt werden.

## 8 Veröffentlichungen im Jahr 1984

- 1 Pimpl, M., Schmidt, W.  
Uptake of plutonium, americium, curium and neptunium in plants cultivated under greenhouse conditions.  
Meeting of the UIR Workshop on Soil-to-Plant Transfer Factors, Cadarache, F, April 16-17, 1984.
- 2 Pimpl, M., Schmidt, W., Schüttelkopf, H.  
Investigation of the soil-to-plant transfer behaviour of Pu, Am, Cm, and Np by aid of a very fast and sensitive radiochemical procedure.  
5th Symp. on Nuclear Chemistry, Radiochemistry, and Radiation chemistry, Guanajuato, MEX, December 4-7, 1984.
- 3 Pimpl, M., Schmidt, W., Schüttelkopf, H.  
Messung des Boden/Pflanzen-Transfers von Pu, Am, Cm und Np in einem Gewächshaus für radioökologische Studien.  
Strahlung und Radionuklide in der Umwelt: Tagung der Arbeitsgemeinschaft der Großforschungseinrichtungen, Bonn, 8.-9. November 1984
- 4 Pimpl, M., Schüttelkopf, H.  
Das Verhalten von Aktiniden in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe.  
In: Kaul, A., et al. (Hrsg.), Radiation - Risk - Protection. 6th Internat. Congress, Berlin, May 7-12, 1984. Internat. Radiation Protection Association. Org. by the Fachverband für Strahlenschutz e. V.; Köln: Verlag TÜV Rheinland, 1984, Vol. II, S. 886-89
- 5 Pimpl, M., Schüttelkopf, H.  
A fast radiochemical procedure to measure neptunium, plutonium, americium and curium in environmental samples for application in environmental monitoring and in radioecology research.  
5th Internat. Conf. on Nuclear Methods in Environmental and Energy Research, Mayaguez, Puerto Rico, April 2-6, 1984.
- 6 Pimpl, M., Schüttelkopf, H., Schmidt, W., Liese, T., Hefner, G., Sollich, T., Hiller, J.  
Untersuchung des physikalischen und chemischen Verhaltens biologisch besonders wirksamer Radionuklide in der Umwelt. Pu, Am, Cm und Np.  
In: Projekt Nukleare Sicherheit. Jahresbericht 1983.  
KfK-3450 (Juni 1984) S. 4800/1-4800/23
- 7 Godoy, J.M., Schüttelkopf, H., Pimpl, M.  
The measurements of Pu-241 in environmental samples and in gaseous and liquid effluents.  
5th Internat. Conf. on Nuclear Methods in Environmental and Energy Research, Mayaguez, Puerto Rico, April 2-6, 1984

06.03.01/12A    Mikrobiologische Einflüsse auf die Mobilität und die Bioverfüg-  
PNS 4813        barkeit von Radionukliden in Böden und Sedimenten  
                  (S. Strack, A. Müller, A. Riedl, HS/R)

Die 1982 im Rahmen des Projektes Nukleare Sicherheit und eines EG-Forschungsvorhabens (EG-BIO-B-484-82 D) begonnene Forschungsarbeit zu dem Thema "Mikrobiologische Aspekte bei Verhalten und Kontrolle von Radionukliden in terrestrischen und aquatischen Ökosystemen" wurde weitergeführt. Die bisher durchgeführten Laboruntersuchungen zielen auf die Beobachtung des Einflusses der Bodenmikroflora auf das Migrations- und Retentionsverhalten von I-125 (Applikationsform: Iodidionen) in humusreichem Waldboden, der den unter einem Kiefern/Buchenwaldbestand gebildeten Humusauftragungsschichten entnommen wurde (Landhumusform).

Kleine Bodensäulen, die mit 4 g 1. unbehandeltem, 2. autoklaviertem und 3. autoklaviertem/wiederbeimpftem Bodenmaterial gepackt worden waren, wurden mit geträgerter Na<sup>125</sup>I-Lösung markiert (ca. 500 - 830 Bq pro Säule) und mit sterilem, deionisiertem Wasser beregnet. Nach unterschiedlichen Standzeiten wurden die Bodensäulen mit deionisiertem Wasser extrahiert. Der im Bodenextrakt enthaltene, wasserlösliche I-125-Anteil wurde im Flüssigszintillationsspektrometer gemessen.

In vergleichbaren Parallelansätzen mit unbehandeltem, autoklaviertem und autoklaviertem/mit einer Bakterien/Pilz-Mischpopulation wiederbeimpftem Boden wurde die zeitabhängige Iodfixierung über längere Zeiträume (max. ca. 550 h) verfolgt. In Abbn. 1 und 2 ist jeweils die wasserlösliche Fraktion (in Prozent des aufgegebenen I-125) in halblogarithmischem Maßstab gegen die Säulenstandzeit aufgetragen.

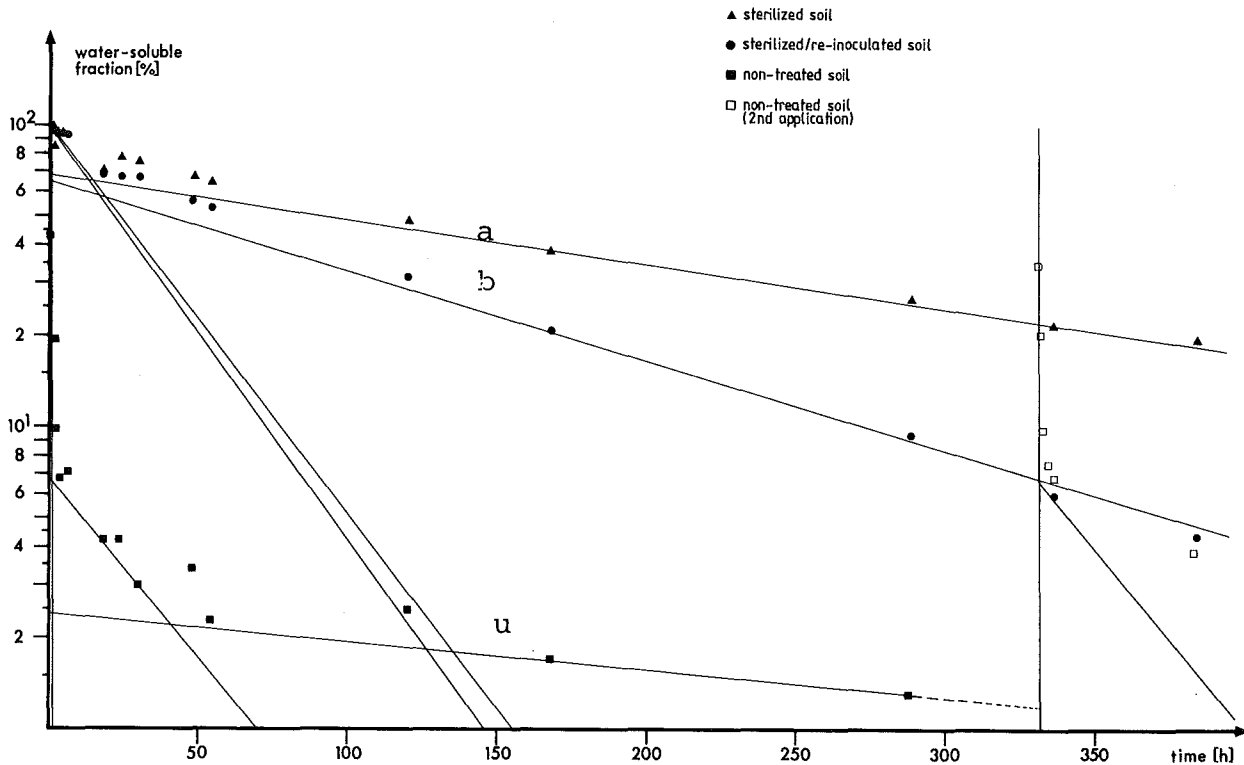


Abb. 1: Immobilisierung von I-125

In allen bisherigen Säulenversuchen wurde beobachtet, daß beim unbehandelten, mit natürlichem Mikroorganismenbesatz besiedelten Boden ca. 99 % des aufgegebenen I-125 in kürzester Zeit immobilisiert wurde und mit deionisiertem Wasser nicht mehr extrahiert werden konnte (Abbn. 1 und 2 Kurve u). In Versuchen an autoklavierten Bodensäulen konnte gezeigt werden, daß der Anteil an nicht fixiertem Iod zunächst etwa um eine Zehnerpotenz erhöht war (Abbn. 1 und 2 Kurve a). Längerfristig wurde jedoch auch hier der größte Teil des aufgetragenen I-125 in der Bodenmatrix festgelegt (in ca. 400 h zwischen 80 % und 90 % der verabreichten Iodidmenge). Diese deutliche Iodfixierung in mikrobiologisch totem Boden könnte entweder auf chemische Umsetzungen des Iodids in oder an Bodenstrukturen zurückzuführen sein (z. B. durch Redoxreaktionen oder Austausch gegen stabiles im Boden gebundenes Iod) oder auf enzymatische Umwandlung in fixierbare Iodverbindungen, wofür möglicherweise hitzeresistente mit Bodenpartikeln assoziierte Enzyme oder Enzymsysteme verantwortlich sein könnten. Die Immobilisierung der eingesetzten Iodidionen in wiederbeimpftem Bodenmaterial erfolgte nicht so rasch wie im unbehandelten Boden, ist aber im Vergleich zu autoklaviertem, unbelebtem Boden stärker ausgeprägt (Abbn. 1 und 2 Kurve b).

Der Verlauf der Immobilisierungskurven deutet an, daß sich die Fixierung vereinfacht durch eine Summe von Exponentialfunktionen beschreiben läßt, entsprechend der Gleichung:

$$Y_t = C_s \cdot e^{-\frac{\ln 2}{\tau_s} t} + C_m \cdot e^{-\frac{\ln 2}{\tau_m} t} + C_l \cdot e^{-\frac{\ln 2}{\tau_l} t} \quad (1)$$

Eine graphische Analyse der der Abb. 2 zugrundeliegenden Meßdaten in Verbindung mit einer mathematischen Regressionsanalyse führte zu den Parametern, die in Tab. 1 wiedergegeben sind.

	C <sub>x</sub> Kompartimentgröße (%)			τ <sub>x</sub> Halbwertszeit (h)		
	schnell	mittel	langsam	schnell	mittel	langsam
unbehandelt	93,4	4,2	2,4	0,37	26	330
autoklaviert	-	32	68	-	23	205
autoklaviert/ wiederbeimpft	3	32	65	0,37	22	102

Tab. 1: Kompartimentgrößen (Achsenabschnitte) und Halbwertszeiten der Iodimmobilisierung in behandeltem und unbehandeltem Boden

Danach sind zur Beschreibung der Immobilisierung im unbehandelten Boden mindestens drei Exponentialterme notwendig. Für den wiederbeimpften Boden erhält man die beste Anpassung, wenn für einen kleinen Teil des applizierten Iods ebenfalls ein schneller Fixierungsprozeß angenommen wird. Im autoklavierten Boden ist der schnelle Fixierungsvorgang nicht nachweisbar. Diese Beobachtung kann 1. durch eine Ausschaltung von Bioabsorptions- oder Aufnahmeprozessen bzw. enzymatischen Umsetzungen, die an die Anwesenheit von lebensfähigen Mikroorganismen (z. B. extrazelluläre Enzyme) gebunden sind, 2. durch Änderungen der physikalischen und chemischen Bodeneigenschaften, die die Anheftung von Iodidionen oder ihrer Umwandlungsprodukte an die Bodenmatrix beeinflussen oder 3. durch ein Zusammenspiel beider Faktoren erklärt werden.

Die in Abb. 2 dargestellten, in einem längerfristig angelegten Extraktionsversuch an unbehandelten, autoklavierten und autoklavierten/wiederbeimpften Bodensäulen ermittelten zeitabhängigen Fixierungskurven zeigen für autoklavierten und unbehandelten Boden ähnliche I-Immobilisierungscharakteristika wie in

Abb. 1 (Kurven a und u). Bemerkenswert ist jedoch die beim autoklavierten/wiederbeimpften Boden, nach anfänglich langsamer I-Fixierung in den ersten 50 h auftretende schnelle Fixierungsphase (mit der Oberflächenplattierungsmethode erfaßte Keimdichte war doppelt so hoch wie im zu Abb. 1 zugehörigen Versuch). Dieser Vorgang war bereits, obwohl noch freie, wasserlösliche Iodidionen oder ihre Umwandlungsprodukte in Lösung vorlagen, nach weiteren 120 h weitgehend abgeschlossen.

Die Versuchsergebnisse machen deutlich, daß es sich bei der Immobilisierung des Radioiods im Boden um das Resultat von komplexen, sich überlagernden Prozessen mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten handelt, wobei offensichtlich sowohl biotische als auch abiotische Vorgänge ablaufen. Während einerseits im sterilen Boden mit größerer Wahrscheinlichkeit abiotische Reaktionen stattfinden, ist andererseits der mikrobiologische Einfluß in der signifikant beschleunigten Fixierung des Iods nach der Wiederbeimpfung des sterilen Bodens direkt zu erkennen. Darüber hinaus gibt es deutliche Anzeichen dafür, daß der schnelle Fixierungsvorgang in unbehandeltem Boden auf biotische Ursachen zurückzuführen ist und nicht auf veränderte chemisch-physikalische Eigenschaften des Bodens. Zieht man in Erwägung, daß durch die Hitzeeinwirkung beim Autoklavieren der Boden in seinen chemisch-physikalischen Absorptionseigenschaften für Iod verändert worden sein könnte, so läßt sich dem entgegen, daß von anderen Autoren (Bors, Martens, Kühn, 1984) bei der Sterilisation mit  $\gamma$ -Strahlen (2,5 Mrad) sinngemäß die gleichen Beobachtungen gemacht wurden. Gerade hier ist bekannt, daß in bestrahlten Stoffen mit dieser Dosis praktisch keine chemischen Veränderungen nachweisbar sind.

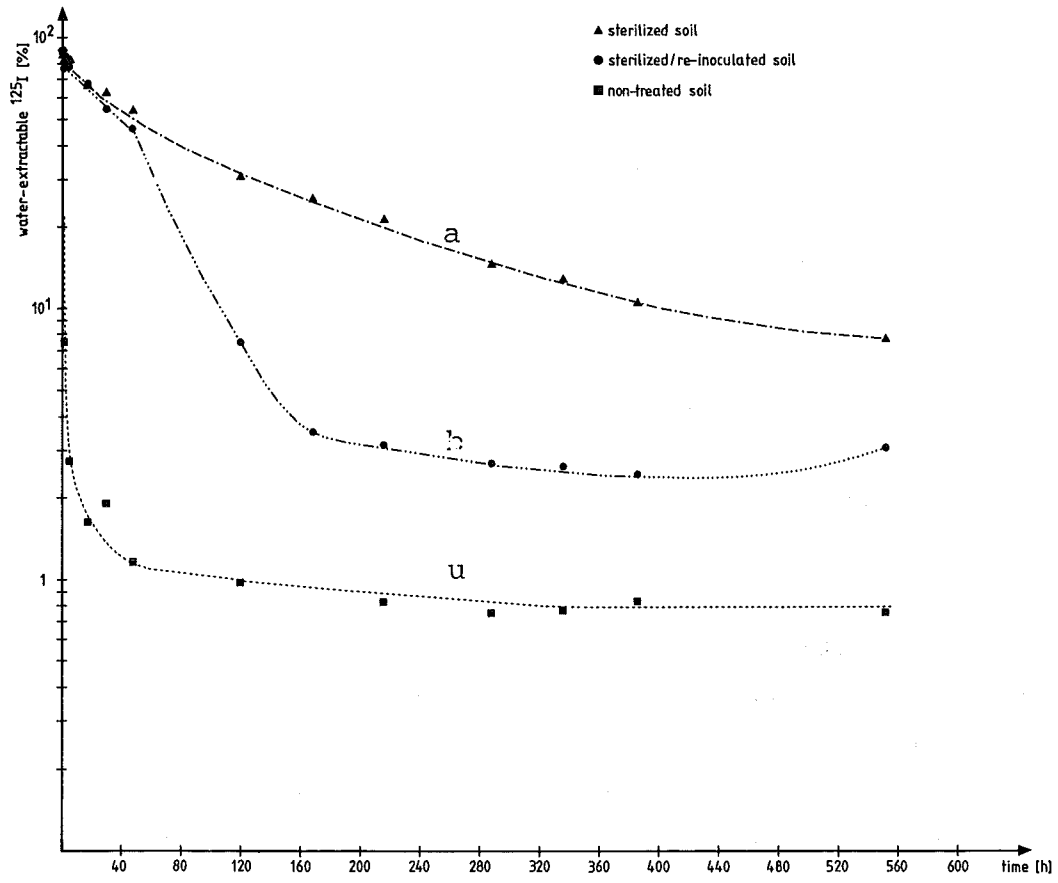


Abb. 2: Immobilisierung von I-125

- 06.03.03            Untersuchung der radiologischen Folgen von Reaktorunfällen  
                    unter probabilistischen Gesichtspunkten
- 06.03.03/16A      Unfallfolgenmodell für "Risikostudien für kerntechnische  
PNS 4831            Anlagen"
- 06.03.03/18A      Untersuchungen zu speziellen Fragestellungen aus dem Themen-  
PNS 4834            bereich "Risikostudien für kerntechnische Anlagen"  
                    (A.Bayer, J.Braun, K.Burkart, J.Ehrhardt, F.Fischer, O.Graf,  
                    E.Meder, J.Päsler, H.-J.Panitz, Claudia Steinhauer,  
                    Ursula Zöllner; INR)

Die Schwerpunkte der Weiterentwicklung des Unfallfolgenmodells UFOMOD lagen auf den Gebieten atmosphärische Ausbreitung, Abschirmwirkung von Gebäuden gegenüber externer Strahlung, Verhalten von Radionukliden in den Nahrungsketten, Schutz- und Gegenmaßnahmen, Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen sowie Auswertung und Darstellung von Teil- und Endergebnissen. Die Arbeiten wurden im Rahmen der "Deutschen Risikostudie Kernkraftwerke" - Phase B durchgeführt und von der Europäischen Gemeinschaft unterstützt (Projekt CEC-MARIA des Strahlenschutzprogramms, Vertrag Nr. B10-F-539-D). In den folgenden Abschnitten werden die wesentlichen Ergebnisse und das zukünftige Vorgehen dargestellt.

#### Transport von Radionukliden in der Atmosphäre

Die atmosphärische Ausbreitung von Schadstoffen durch Advektion und turbulente Diffusion wird durch die Diffusions-Advektions-Differentialgleichung beschrieben. Die meistverwendete stationäre Lösung dieser Gleichung ist - mit einigen vereinfachenden Annahmen - unter der Bezeichnung "Gauß'sches Ausbreitungsmodell" bekannt.

Im Rahmen der Präzisierung der Aussagen der "Deutschen Risikostudie Kernkraftwerke" (DRS) ist es besonders wichtig, die Verlässlichkeit und Anwendbarkeit des bislang verwendeten Gauß-Modells im Vergleich zu detaillierteren Ausbreitungsmodellen zu untersuchen. Hierzu wurden Vergleichsrechnungen initiiert, die auch Validierungsuntersuchungen einschließen.

In der ersten Stufe dieses Vorhabens werden Modell- und Experimentvergleiche auf der Basis von einzelnen Ausbreitungssituationen durchgeführt, d.h. boden- und bodennahe Konzentrationsfelder werden für definierte meteorologische

Bedingungen von den Modellen berechnet und untereinander bzw. mit experimentellen Ergebnissen verglichen. In der zweiten parallel laufenden Stufe werden Trajektorien- und numerischen Modelle anstelle des Gauß'schen Ausbreitungsmodells im Unfallfolgenmodell UFOMOD der DRS eingesetzt, so daß ein Vergleich auf der Basis von probabilistischen Unfallfolgenabschätzungen ermöglicht wird.

Zur Durchführung der ersten Stufe der Untersuchungen wurde der "Arbeitskreis Vergleichsrechnungen und Validierungsuntersuchungen zu atmosphärischen Ausbreitungsmodellen" (AVVA) gebildet, an dem sich derzeit acht verschiedene Institutionen mit unterschiedlichen Ausbreitungsmodellen beteiligen. Dabei handelt es sich um ein einfaches Gauß-Modell, Gauß-Puff-, Trajektorien- und Finite-Differenzen-Modelle, sowie ein Lagrange-Monte-Carlo-Modell.

Im Berichtsjahr fanden zwei Treffen des AVVA im KfK statt; dabei wurden die Eigenschaften und Eingabegrößen der Modelle besprochen und Einzelheiten zur Aufgabenstellung diskutiert. Als Ergebnis wurden den Teilnehmern drei Aufgabenpakete zu atmosphärischen Ausbreitungssituationen übermittelt.

Das erste Paket enthält einfache stationäre Ausbreitungssituationen; in den Aufgaben wird der größte Teil der vorkommenden Stabilitäts-, Windstärken- und Freisetzungshöhen-Bereiche überdeckt. Hier sollten Gauß-Modelle brauchbare Ergebnisse liefern und mit numerischen Modellen übereinstimmen.

Das zweite Paket enthält komplizierte atmosphärische Schichtungen (Windrichtungsscherungen und Inversionslagen). Dabei richtet sich das Interesse vor allem auf die Quantifizierung der Unterschiede in den Ergebnissen von verschieden komplexen Modellen.

Das dritte Paket enthält Validierungsaufgaben. Von den Teilnehmern wurden vier Ausbreitungsexperimente verschiedener Institutionen ausgewählt: KfK, KFA Jülich, Cabauw, Risø. Die Meteorologie- und Konzentrationsmeßdaten wurden KfK/INR übermittelt und hier zu Validierungsaufgabenstellungen umgearbeitet.

Die ersten Rechenergebnisse zu den Einzelaufgaben lagen entgegen ursprünglichen Vereinbarungen erst gegen Ende des Berichtsjahres vor; einige Teil-



nehmer konnten die verabredeten Termine bislang nicht einhalten. Daher liegen gegenwärtig nur vorläufige Auswertungen eines Teils der Ergebnisse vor.

Dennoch ist schon jetzt erkennbar, daß verschiedene Gauß-artige Modelle durch ihre spezielle Behandlung der  $\sigma$ -Parameter oder der Höhenmittelung der Windgeschwindigkeit ganz unterschiedliche Ergebnisse liefern. Einige numerische Modelle enthalten offensichtliche Fehler oder liefern unrealistische Ergebnisse.

Ein Beispiel für einen Vergleich zwischen Experiment und Modellrechnung ist in Abb. 1a, b dargestellt. Die Konzentrationsfelder zeigen eine Übereinstimmung zwischen Modell und Rechnung innerhalb eines Faktors 2 in der rechtsseitigen Umgebung des Maximums. Das verwendete geradlinige Gauß-Modell kann jedoch nicht die Schiefe der Verteilung, die durch Winddrehung und -scherung zustande kommt, simulieren.

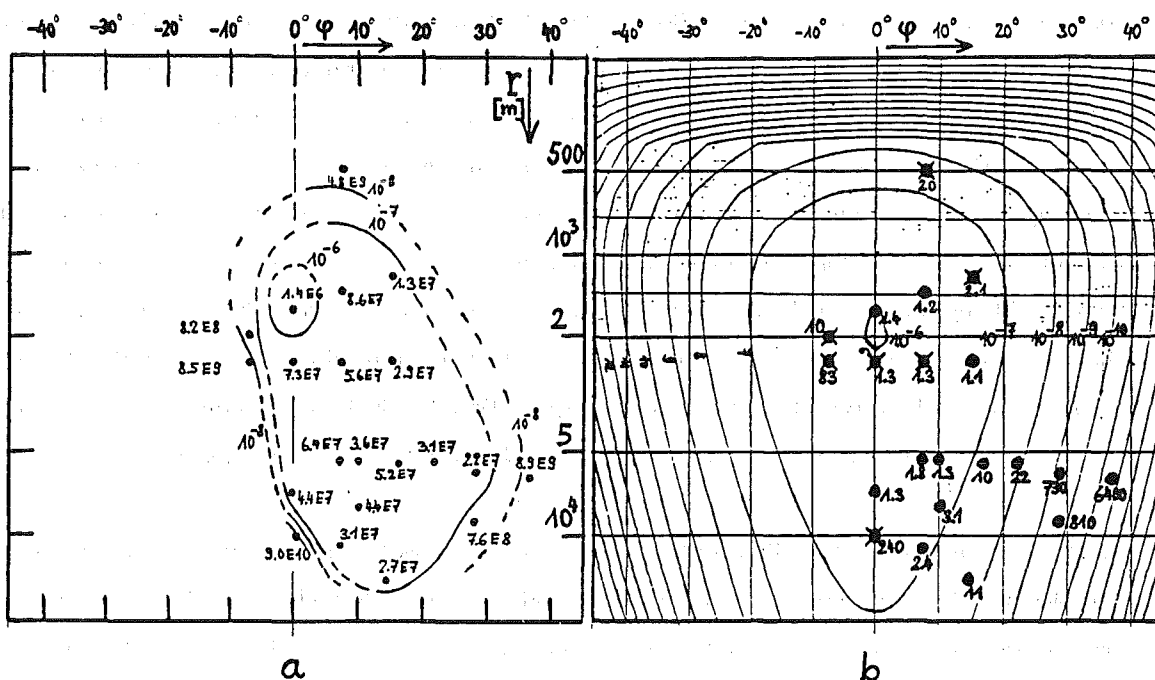


Abb.1 a: Bodenmeßpunkte und Konzentrations- Isolinien für ein Jülicher Ausbreitungsexperiment (Emissionshöhe 100 m, Quellterm: 1 Ci/h, Diffusionskategorie E) dargestellt in ebenen Polarkoordinaten ( $r, \varphi$ ).

b: Modellrechnung mit Gauß-Modell DOSI unter Verwendung der Karlsruhe-Jülich- $\sigma$ -Parameter. Die Zahlen an den Meßpunkten bedeuten:

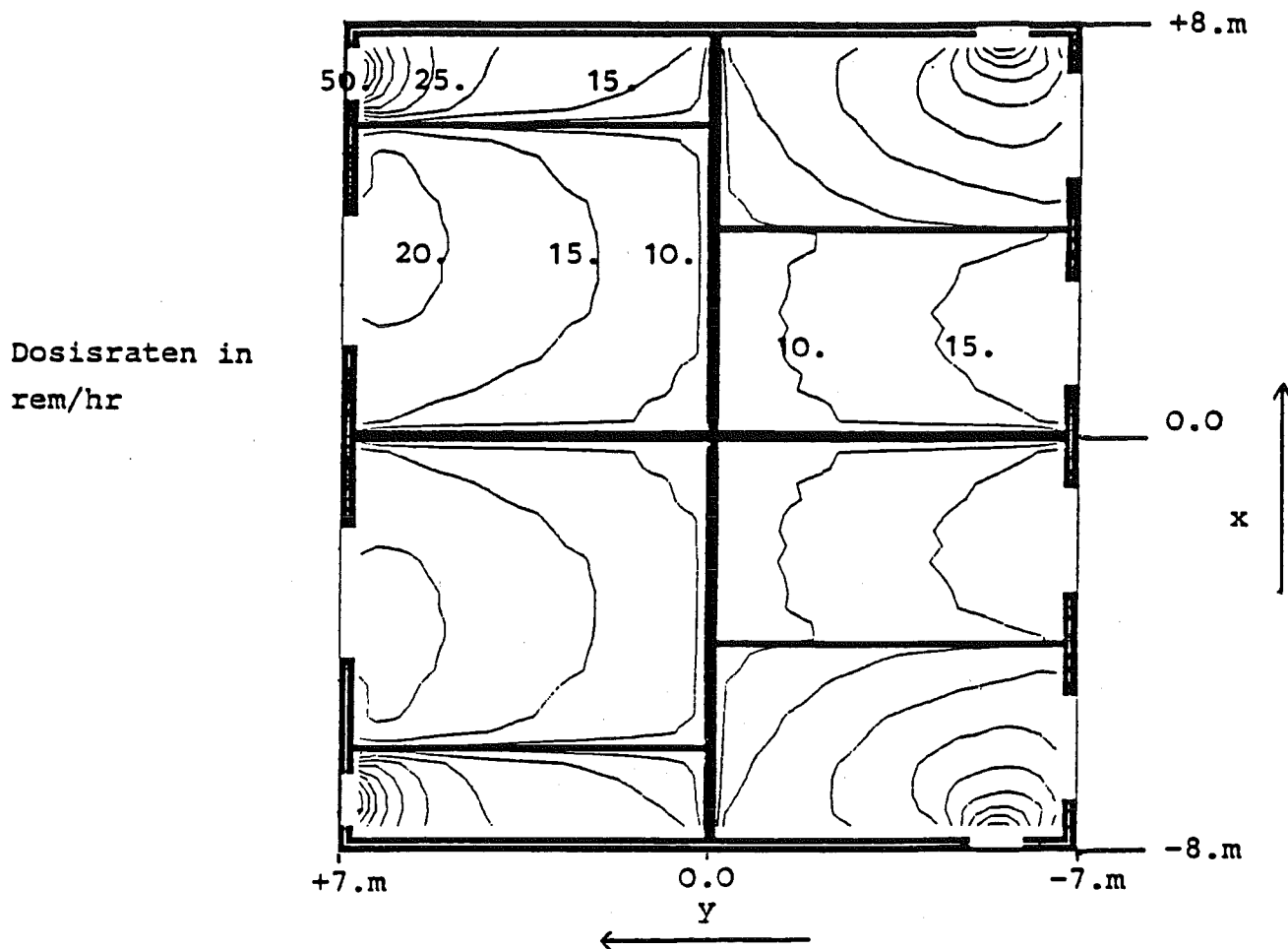
- ✕) gerechnete Konzentration/gemessene Konzentration
- ) gemessene Konzentration/gerechnete Konzentration

Zur Quantifizierung des Einflusses unterschiedlicher Ausbreitungsmodelle auf die Ergebnisse von Unfallfolgenabschätzungen ist bisher vorgesehen, die Rechenprogramme TRANSLOC, RAPT (Batelle), MUSEMET (KFA) und das RISØ-Puff-Modell an UFOMOD anzukoppeln. Die hierfür notwendigen Modifikationen am Unfallfolgenmodell werden derzeit durchgeführt (Version B5). Die vergleichenden Ausbreitungsrechnungen werden für typische Freisetzungsdaten sowohl mit als auch ohne vorberechnete Windfelder innerhalb eines Radius von etwa 200 km um die meteorologische Meßstation Frankfurt/Flugwetterwarte durchgeführt. Die hierfür notwendigen Wetterdaten einer Vielzahl von Meßstationen wurden vom Deutschen Wetterdienst ausgewählt, aufbereitet und zur Verfügung gestellt. Erste Ergebnisse werden im 1. Halbjahr 1985 erwartet.

#### Abschirmwirkung von Gebäuden gegenüber externer Strahlung

Der vorhandene  $\gamma$ -Shielding Code QAD-CG (Los Alamos 1966, Version CG (Combinatorial Geometry) Oak Ridge 1977) wurde um Unterprogramme erweitert, die die Eingabe der  $\gamma$ -Quelle und die Weiterverarbeitung der Ausgabe wesentlich vereinfachen. Mit dieser so erweiterten Version QAD-CG-E steht ein Werkzeug zur Verfügung, mit dem Abschirmrechnungen mit beliebig komplexer 3-dimensionaler Quell- und Abschirmgeometrie durchgeführt werden können. Zur graphischen Darstellung der Ergebnisse wurde das Programm PICTURE-CG entwickelt. Damit lassen sich Schnitte beliebiger Raumorientierung durch die Abschirmstruktur zeichnen. Falls durch einen vorherigen QAD-CG-E Lauf Daten zur Verfügung stehen, können in diese Schnittbilder Isodosislينien eingezeichnet werden.

QAD-CG-E benutzt die Punkt-Kern-Integrationsmethode. Diese Wahl ist durch die große Anzahl von Rechenläufen bestimmt. Um den Vergleich mit anderen Rechenmethoden zu erhalten, wurden in Zusammenarbeit mit IKE Stuttgart (G. Hehn) Vergleichsrechnungen an einem Modellhaus durchgeführt. Dazu benutzte IKE den 2-dimensionalen  $S_N$ -Transportcode DOT 4.2. Der Vergleich der Ergebnisse zeigt, daß die mit QAD-CG-E erhaltenen Abschirmfaktoren meist leicht konservativ sind (Faktor 1.2), so daß die vorgesehene Korrektur der QAD-CG-E Werte entfallen kann.



Grundriß bei  $z = +1.0\text{m}$

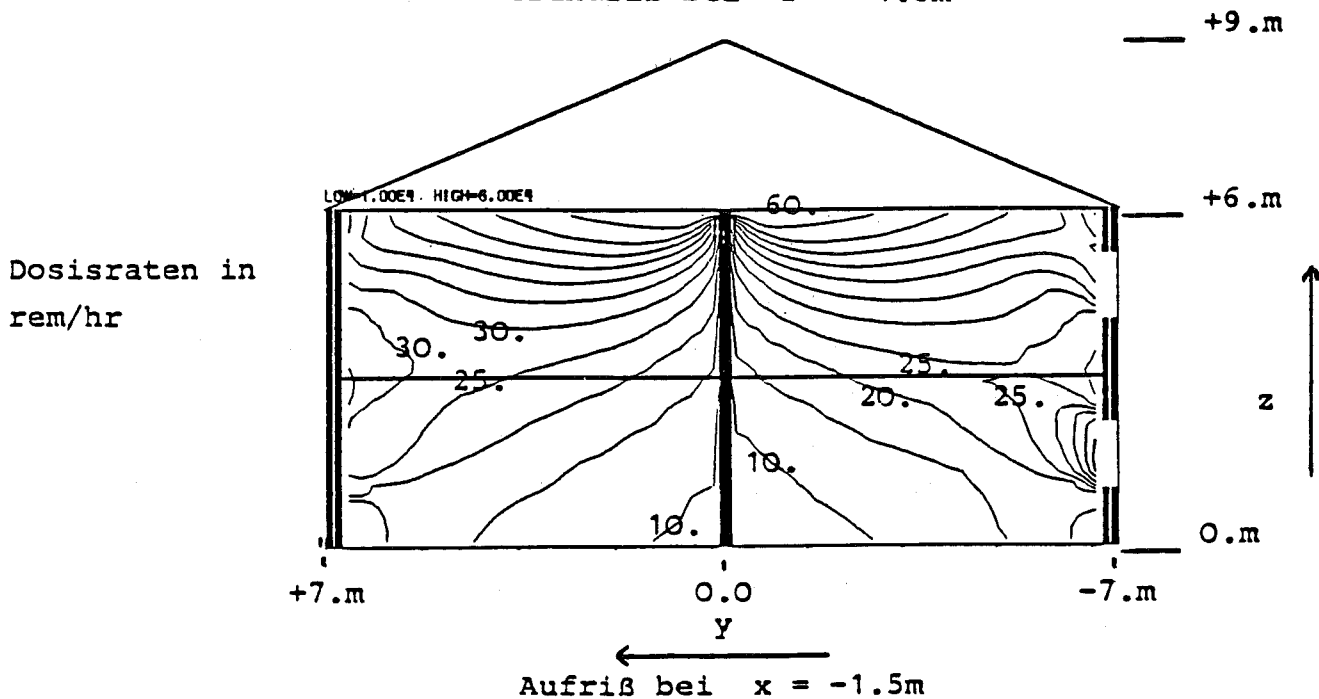


Abb. 2: Isodosislinien für ein vereinfachtes Zweifamilienhaus in gemauerter Bauweise für eine Kontamination des Daches und des umgebenden Bodens mit  $1 \text{ TBq/m}^2$  Cs-137

Es wurden Abschirmfaktoren für einen Satz von für die Bundesrepublik Deutschland repräsentativen Gebäudetypen mit QAD-CG-E berechnet. Die Dokumentation der Ergebnisse befindet sich in Vorbereitung.

Die Abb. 2 zeigt als typisches Ergebnis einer Abschirmrechnung mit QAD-CG-E am Beispiel eines vereinfachten Zweifamilienhauses Isodosislinien in einer horizontalen und einer vertikalen Schnittfläche bei einer angenommenen Kontamination des Daches und des umgebenden Erdbodens mit  $1 \text{ TBq/m}^2$  Cs-137. Deutlich sichtbar ist die relative Transparenz der (geschlossenen) Fenster und Türen.

Um verschiedene Abschirmcodes zu vergleichen, die in Ländern der Europäischen Gemeinschaft benutzt werden, und um den Einfluß verschiedener Näherungen bei der Modellierung von  $\gamma$ -Quelle und Abschirmung zu untersuchen, wurden Benchmark-Rechnungen mit NRPB (M. Crick, GRINDS Code) und RISØ (P. Hedemann Jensen, DEPSHIELD Code) durchgeführt. Ein CEC-Bericht über die Ergebnisse der Benchmark-Rechnungen ist in Vorbereitung.

Es ist vorgesehen, weitere Vergleichsrechnungen mit dem Monte-Carlo Code SAM-CE durchzuführen, der an der Universität Hannover (H.G. Vogt) zur Verfügung steht. Erste Ergebnisse liegen vor. Es ist geplant, weitere vergleichende Untersuchungen an realen Gebäudetypen durchzuführen und gemeinsam zu dokumentieren.

#### Verhalten von Radionukliden in den Nahrungsketten

Bisherige Untersuchungen im Rahmen der DRS haben gezeigt, daß der Ingestionspfad einen wesentlichen Beitrag zu Spätschäden nach unfallbedingten Aktivitätsfreisetzungen an Druckwasserreaktoren liefert. Diesen Untersuchungen lag das Nahrungskettentransportmodell aus WASH-1400 zugrunde, wie es derzeit noch im Unfallfolgenmodell UFOMOD enthalten ist. Das WASH-1400-Modell beschreibt ausschließlich die totale Aktivitätszufuhr durch Ingestion von Milch und pauschal durch alle übrigen Produkte ohne explizite Zeitabhängigkeiten und erlaubt es daher nicht, saisonale Schwankungen der Aktivitätszufuhr durch Unfallzeitpunkte zu verschiedenen Jahreszeiten zu

berücksichtigen. Eines der fortschrittlicheren Modelle, die die Möglichkeiten von Freisetzung zu verschiedenen Jahreszeiten beinhalten, ist das am NRPB entwickelte Modell FOODMARC. Durch die dynamische Modellierung wird darüberhinaus eine detaillierte Beschreibung des Zeitverhaltens des Aktivitätstransports ermöglicht. Dieses Programmsystem wurde auf der Rechenanlage der KfK implementiert.

Im Rahmen des CEC-MARIA-Projektes wurde ein Vergleich des WASH-1400-Modells mit FOODMARC auf der Basis von Unfallfolgenrechnungen mit UFOMOD durchgeführt. Damit sollte am Beispiel der Freisetzungskategorie FK2 der DRS aufgezeigt werden, welche Unterschiede sich in den Unfallfolgenabschätzungen durch beide Modelle und die Berücksichtigung saisonaler Effekte ergeben. Dazu wurden Freisetzung im Februar, April, Juni und August angenommen. Da in FOODMARC neben Milch auch Rindfleisch, Gemüse und Getreide explizit berücksichtigt werden, konnten auch die Beiträge dieser Nahrungsmittel näher untersucht werden. Allerdings basieren die FOODMARC-Daten auf englischer Agrarpraxis und sind deshalb nicht für alle Produkte auf deutsche Verhältnisse übertragbar.

In den Vergleichsrechnungen wurden potentielle Ingestionsdosen, durch Verzehverbote betroffene Flächen sowie Spätschäden untersucht. Die prozentualen Beiträge verschiedener Nahrungsmittel zu den potentiellen Dosen der Organe Knochenmark und Schilddrüse zeigt Tabelle 1.

Nahrungsmittel	direkte Ablagerung			Wurzel-aufnahme		
	WASH 1400	MARC (Febr.)	MARC (Aug.)	WASH 1400	MARC (Febr.)	MARC (Aug.)
	Verzehr im 1. Jahr					
	Verzehr ab dem 2. Jahr					
Milch	34%	45%	26%	31%	40%	22%
andere Produkte	66%	55%	74%	69%	60%	78%
Rindfleisch	-	26%	17%	-	20%	9%
Getreideprodukte	-	0%	55%	-	17%	53%
Grüngemüse	-	29%	2%	-	23%	16%
	Knochenmark					
Milch	98%	2%	84%	25%	49%	15%
andere Produkte	2%	98%	16%	75%	51%	85%
Rindfleisch	-	0%	5%	-	41%	14%
Getreideprodukte	-	0%	4%	-	5%	68%
Grüngemüse	-	98%	7%	-	5%	3%
	Schilddrüse					

Tab.1 Beitrag der verschiedenen Nahrungsmittel zu den potentiellen Strahlendosen nach Ingestion, berechnet mit den Nahrungskettentransportmodellen aus WASH 1400 und MARC (FK2, Entfernung 100 km vom Standort, unter der Fahnenachse)

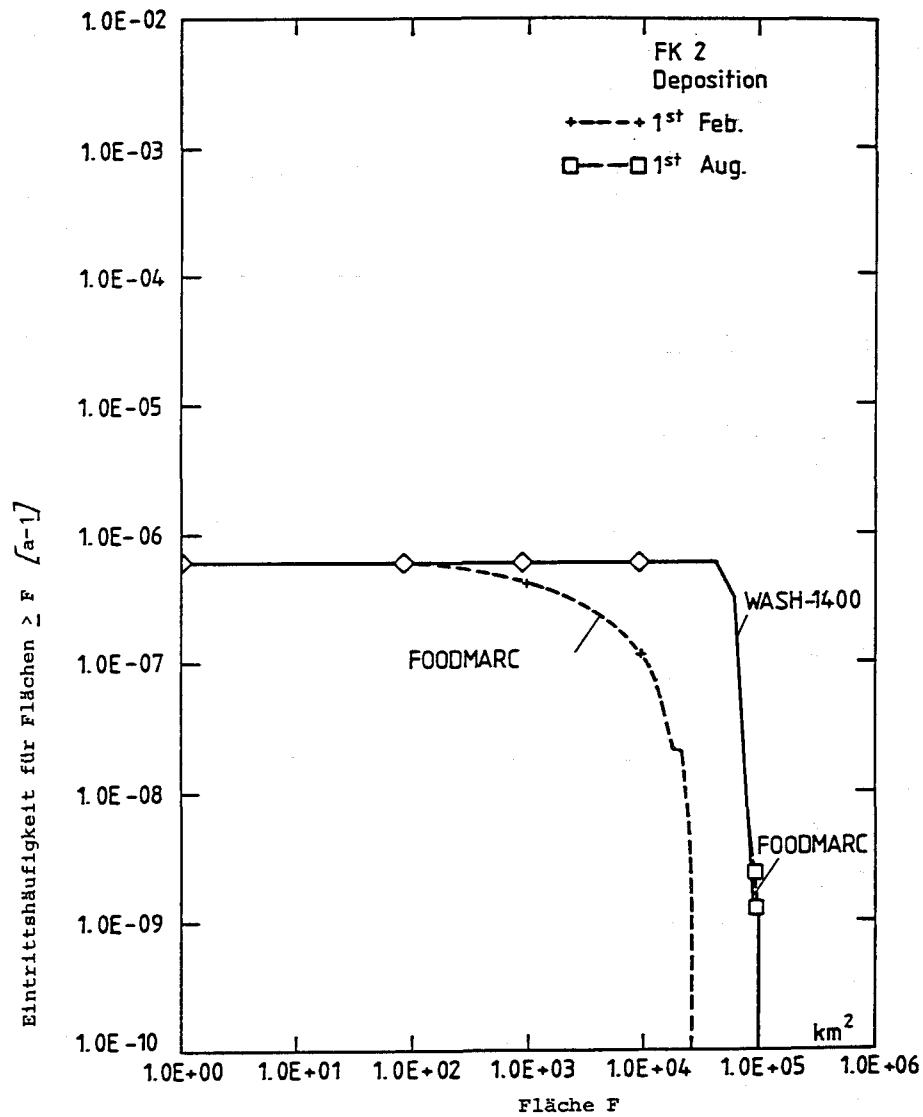


Abb. 3 Komplementäre kumulative Häufigkeitsverteilungen der von der Maßnahme "Einschränkungen beim Verzehr von Milch im 1. Jahr" betroffenen Flächen, berechnet mit UFOMOD und verschiedenen Nahrungskettentransportmodellen

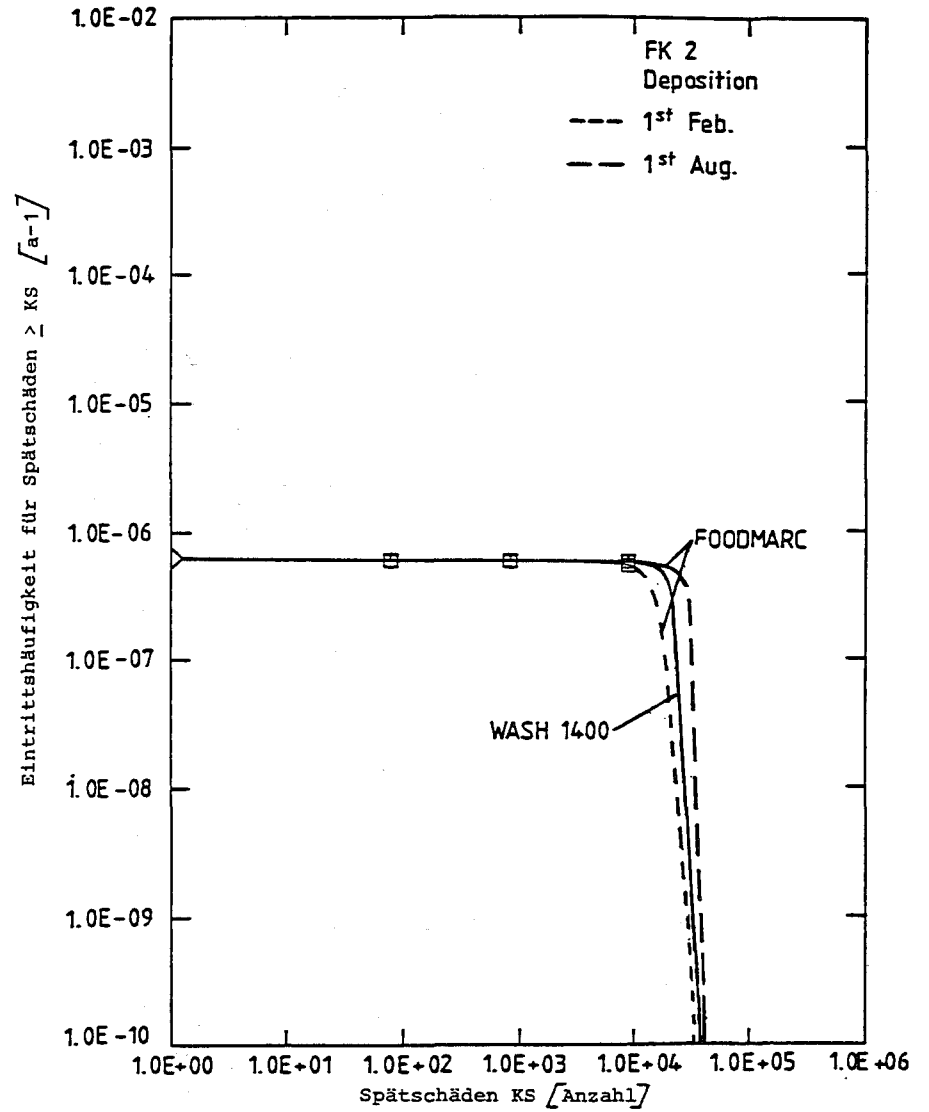


Abb. 4 Komplementäre kumulative Häufigkeitsverteilungen der Spätschäden, berechnet mit UFOMOD und verschiedenen Nahrungskettentransportmodellen

Die Zahlenwerte zeigen, daß das WASH-1400-Modell in fast allen Fällen Beiträge berechnet, die etwa zwischen den Werten liegen, die sich mit FOODMARC für die bezüglich der Vegetation extremen Unfallzeitpunkten Februar und August ergeben. Die FOODMARC-Ergebnisse zeigen jedoch auch, daß die Beiträge einzelner Nahrungsmittel beträchtlichen jahreszeitlichen Schwankungen unterliegen.

Bei den übrigen Ergebnissen (von Verzeherverboten betroffene Flächen, Spätschäden) zeigte sich, daß das WASH-1400-Modell Zahlenwerte liefert, die das FOODMARC-Modell für Freisetzungen im August berechnet und die i.a. über den für Februar ermittelten Werten liegen. Dies ist am Beispiel der Häufigkeitsverteilungen (CCFDs) der durch Einschränkungen beim Verzehr von Milch im 1. Jahr nach der Freisetzung betroffenen Flächen in Abb. 3 dargestellt. Der Einfluß der Verzeherverbote verringert die saisonale Variation der Spätschäden, wie anhand der CCFDs in Abb. 4 gezeigt wird.

Im Verlauf der Untersuchungen stellte sich weiterhin heraus, daß die bisherigen Kriterien für Verzeherverbote zu restriktiv sind: die Spätschäden erhöhen sich nur unwesentlich, wenn man auf die bisher implementierten Interventionsgrenzwerte für landwirtschaftliche Produkte in den auf das 1. Jahr folgenden Jahren verzichtet.

#### Abschätzung der Aktivitätskonzentrationen und Strahlenexpositionen nach einer störfallbedingten Freisetzung von Radionukliden in Fließgewässer

Die Entwicklung eines Modells zur Abschätzung der Aktivitätskonzentrationen und Strahlenexpositionen nach einer störfallbedingten Freisetzung von Radionukliden in Fließgewässer erfolgt in drei Schritten:

1. Schritt: konstante Freisetzung, konstante hydrologische Bedingungen
2. Schritt: konstante Freisetzung, variable hydrologische Bedingungen
3. Schritt: zeitabhängige Freisetzung, variable hydrologische Bedingungen.

Im Berichtszeitraum wurden Arbeiten im Rahmen des 1. Schrittes geleistet. Dazu wurden das Flußmodell des vorhandenen KIRMES-Codes u.a. auf folgende Weise ertüchtigt:

- Erweiterung der Radionuklidliste
- Neumodellierung der Wechselwirkung von Flußwasser, Schwebstoff und Sediment
- Einbringung neuerer Parameter zu diesen Wechselwirkungsprozessen
- Erweiterung der berücksichtigten Expositionspfade
- Ersatz der älteren Dosisfaktoren durch Daten des Bundesgesundheitsamtes, die auf den ICRP-30-Empfehlungen beruhen.

Neben der Kooperation mit Kollegen von anderen deutschen Forschungsinstitutionen (Bundesanstalt für Gewässerkunde, Bundesgesundheitsamt) erwies sich auch die Zusammenarbeit mit belgischen und niederländischen Kollegen als sehr hilfreich. Diese ergab sich im Rahmen eines Vertrages mit der EG, der die Abschätzung der Strahlenexposition durch Radionuklide in der Maas zum Inhalt hat.

#### Modellierung von Schutz- und Gegenmaßnahmen

Die Arbeiten zum Teilmodell der administrativen Maßnahmen wurden sowohl hinsichtlich der grundsätzlichen Modelleigenschaften als auch der Parameter und Datensätze fortgesetzt. Gemäß der Vereinbarung, die Zustimmung der Innenbehörden der Bundesländer zum endgültigen Modell anzustreben, wurden die einzelnen Entwicklungsschritte fortlaufend mit den genannten Behörden beraten. Dabei hat es sich gezeigt, daß die Beantwortung grundsätzlicher Fragen, wie die Abhängigkeit der Schutz- und Gegenmaßnahmen von den Freisetzungsmarkmalen, der Art und des Charakters einzelner Maßnahmen (prophylaktisch oder auf Messungen beruhend), der Art der Gebietsgrenzen etc. so stark von den endgültigen, im Berichtszeitraum nicht vorliegenden Quelltermen abhängt, daß eine Entscheidung zum gegenwärtigen Zeitpunkt nicht möglich ist.

Ähnliches gilt für die Prüfung der Frage, ob die modellierten Maßnahmen im erforderlichen Umfang auch durchgeführt werden können. Die zu dieser Prüfung benötigten Rechenprogramme wurden erstellt, jedoch kann die Validierung des Modells in bezug auf die Bestimmbarkeit der als bekannt vorausgesetzten



Charakteristika der Quellterme sowie hinsichtlich der Kapazitätsgrenzen der medizinischen Versorgung, der Personen- und Flächendekontamination und der Transportmittel erst durchgeführt werden, wenn die Quellterme vorliegen.

Als Basis für die Modellierung der Anlaufphase von Maßnahmen wurden die Stellungnahmen von 5 Innenbehörden zu 4 Unfallszenarien eingeholt und ausgewertet. Die Stellungnahmen umfassen Angaben zu Alarmen, Zeiten, Maßnahmen (einschließlich Jodprophylaxe) sowie zu den Einflüssen verschiedenartiger Anfangs- und Randbedingungen (z.B. Tageszeit, Wettersituation, Verkehrsbedingungen). Da aus der Vielfalt der möglichen Bedingungen nur eine beschränkte, relevante Anzahl im Modell berücksichtigt werden kann, deren Auswahl von der Schwere und dem Zeitverlauf der Freisetzungen abhängt, muß auch hier die Entscheidung bis zum Vorliegen endgültiger Quellterme zurückgestellt werden.

Die Modellierung von Evakuierungsmaßnahmen wird in Kooperation mit dem TÜV Rheinland (Institut für Unfallforschung) durchgeführt. In einer gemeinsamen Analyse wurde Einigkeit darüber erzielt, daß einem vereinfachten Modell gegenüber detaillierten Rechnungen zur Exposition während der Fahrt sowohl aus Rechenzeit- als auch aus Kostengründen (aufwendige Datenerfassung) der Vorzug zu geben ist. Der Endbericht zu den Grundlagen eines vereinfachten Modells liegt seit kurzem vor.

#### Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen

Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen für Unfallfolgenabschätzungen dienen dazu, die Zuverlässigkeit der Modellergebnisse zu bewerten und zu quantifizieren. Während in der ersten Generation von Risikostudien oft in der ersten Generation von Risikostudien oft mangels besseren Wissens konservative Schätzwerte für die Modellparameter verwendet wurden, ist es nun aufgrund neuerer wissenschaftlicher Kenntnisse möglich, mit verbesserten Modellen und Datensätzen zu realistischeren Unfallfolgenabschätzungen zu gelangen.

Innerhalb des Projekts "CEC-MARIA" war die Aufgabenstellung vorgegeben,

- Unsicherheitsanalysen für europäische Unfallfolgenmodelle wie UFOMOD (KfK) und MARC (NRPB, UK) durchzuführen;

- sich dabei geeigneter Methoden zu bedienen, die in verschiedenen Institutionen entwickelt wurden und werden (z.B. GRS);
- angemessene methodische Hilfsmittel zur Problemlösung bereitzustellen und ggf. zunächst auf Teilmodelle anzuwenden (z.B. atmosphärisches Ausbreitungsmodell von UFOMOD und FOODMARC).

Unsicherheitsuntersuchungen für Modellvorhersagen bedienen sich systematischer mathematisch-statistischer Methoden, um Vertrauensbereiche zu quantifizieren, in denen unsicherheitsbehaftete Modellresultate realistisch erwartet werden können. Um Ursachen und Ausmaß der Unsicherheiten von Modellparametern bestimmen zu können, müssen Aspekte der Modellentwicklung, der Systemanalyse, der Datensammlung und Simulation berücksichtigt werden.

Die probabilistische Unfallfolgenabschätzung basiert im wesentlichen auf der Fortpflanzung von Unsicherheiten durch die physikalischen Modelle, die durch zufallsbehaftete Umgebungsbedingungen verursacht werden (z.B. Windgeschwindigkeit, Windrichtung). Die physikalischen Modelle enthalten Parameter, die zwar deterministisch bestimmbar sind, deren konkreter Zahlenwert im Einzelfall jedoch nicht genau bekannt ist (z.B. Ablagerungsgeschwindigkeiten).

Da Unfallfolgenmodelle komplexer Natur und rechenzeitintensiv sind,

- bestimmt man in Sensitivitäts-Studien die wesentlichen Parameter,
- ersetzt das umfangreiche physikalische Modell (den Rechen-Code) durch eine geeignete von den sensitiven Parametern gebildete analytische Funktion (Response-Surface-Function),
- pflanzt die Unsicherheit der sensitiven Eingabeparameter durch diese Response-Funktionen fort zu den Ausgabe-(Ziel-)größen (z.B. Aktivitätskonzentrationen, Strahlendosen, gesundheitliche Schäden). Als Endergebnis werden die komplementäre kumulative Verteilungsfunktion der Zielgrößen mit zugehörigen Vertrauensintervallen versehen.

Im Berichtszeitraum wurde ein Methodenüberblick für Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen erstellt. Weiterhin wurden in einer Sensitivitätsvoranalyse, die ohne die Berücksichtigung statistischer Verteilungsfunktionen auskommt, die wesentlichen, d.h. sensitiven, Parameter des atmosphärischen Ausbreitungsmodells von UFOMOD ermittelt:

- freigesetzte thermische Energie,
- trockene Ablagerungsgeschwindigkeiten für Jod und Aerosole,
- Washout-Koeffizienten für Jod und Aerosole bei verschiedenen Regenraten,
- horizontale und vertikale Ausbreitungsparameter bei verschiedenen Diffusionskategorien.

Dabei lagen 39 konstituierende Modellparameter zugrunde. Zielgröße war die Aktivitätskonzentrationen unter der Fahnenachse (in der Wolke, in 1 m Höhe und auf der Bodenoberfläche) nach einer dreistündigen Freisetzung der Kategorie FK2. Für die Sensitivitätsanalyse wurden die Rechenergebnisse von 2 repräsentativen Nukliden (I-131, Cs-137) und 4 Entfernungsbereiche (0.2-0.5, 0.8-1.2, 8-12, 80-120 km) ausgewählt. Ein typisches Ergebnis der Untersuchungen zeigt Tab. 2, in der die 14 wichtigsten Modellparameter entsprechend ihrer Rangreihenfolge angegeben sind.

RELEASE CATEGORY : FK2  
 DISTANCE : 8.0 - 12.0 KM  
 NUCLIDE : CAESIUM  
 CONCENTRATION CLASS : PLUME

MEANING	PHYS. SYMBOL	VARIABLE
HORIZONTAL DISPERSION DC=E	SIGY(E)	X(18)
HORIZONTAL DISPERSION DC=D	SIGY(D)	X(17)
HORIZONTAL DISPERSION DC=F	SIGY(F)	X(19)
HORIZONTAL DISPERSION DC=C	SIGY(C)	X(16)
HORIZONTAL DISPERSION DC=B	SIGY(B)	X(15)
HORIZONTAL DISPERSION DC=A	SIGY(A)	X(14)
DRY DEPOSITION VELOCITY AEROSOLS	VD(AE)	X(33)
QUANTITY TO DESCRIBE ERRORR IN WIND SPEED	R	X( 2)
WASHOUT COEFFICIENT AEROSOLS 0-1MM/S	LAMB(AE,0-1)	X(35)
WASHOUT COEFFICIENT AEROSOLS 1-3MM/S	LAMB(AE,1-3)	X(37)
WASHOUT COEFFICIENT AEROSOLS >3MM/S	LAMB(AE,>3)	X(39)
MIXING HEIGHT DC=D	HM(D)	X(11)
THERMAL ENERGY	Q	X( 1)
VERTICAL DISPERSION DC=E	SIGZ(E)	X(24)

TABLE 2 LIST OF 14 MOST IMPORTANT VARIABLES

Im Rahmen der Zusammenarbeit mit der GRS (E. Hofer) wurden eine Vielzahl von UFOMOD-Rechenläufen durchgeführt und die Ergebnisse für vertiefte Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen zur Verfügung gestellt. Die Auswertung bei der GRS mit den dort entwickelten Methoden und Rechenprogrammen ist derzeit im Gange.

Alle bislang erzielten Ergebnisse wurden in zwei internen Berichten dokumentiert und werden im Laufe des Jahres 1985 als KfK-Bericht (in Zusammenarbeit mit der GRS) veröffentlicht.

### Ergebnisdarstellung

Die zunehmende Anwendung von Risikoabschätzungen für kerntechnische Anlagen zur Entscheidungsfindung macht es notwendig, auch Zwischenergebnisse von Unfallfolgenrechnungen ausführlich zu analysieren. Neben den Strahlendosen, die in früheren Untersuchungen behandelt wurden, sind die zu erwartenden Aktivitätskonzentrationen eine wichtige Bezugsgröße vor allem zur Beurteilung der Wirksamkeit und Durchführbarkeit technischer, administrativer und medizinischer Schutz- und Gegenmaßnahmen. Aus diesem Grund wurde eine modifizierte Version des Unfallfolgenmodells UFOMOD erstellt, die es erlaubt, Häufigkeitsverteilungen von Aktivitätskonzentrationen auszuweisen. In Verbindung mit zugehörigen Plotprogrammen ist eine Vielzahl von graphischen und numerischen Darstellungen zur Veranschaulichung des Zusammenhangs von Häufigkeit, Aktivitätskonzentration, betroffene Flächen und dort lebende Anzahl von Personen möglich. In beispielhaften Untersuchungen wurden die Ergebnisse von Unfallfolgenrechnungen für die Freisetzungskategorie FK2 der "Deutschen Risikostudie Kernkraftwerke" für die Radionuklide I-131 und Cs-137 analysiert und dokumentiert.

Die Ergebnisse einer häufigkeitsbewerteten Unfallfolgenrechnung sind vollständig in Häufigkeitsverteilungen enthalten. Die Abb. 5 zeigt die Klassenhäufigkeitsverteilungen der I-131 und Cs-137-Konzentrationen auf der Bodenoberfläche im Entfernungsbereich 8 km bis 12 km, wobei eine Freisetzung der Kategorie FK2 vorausgesetzt ist. Die verschiedenen Konzentrationswerte und die zugehörigen Häufigkeiten sind durch die Zahl der betrachteten Wetterabläufe (460) und die azimutale Verteilung in der Aktivitätsfahne bestimmt. Die

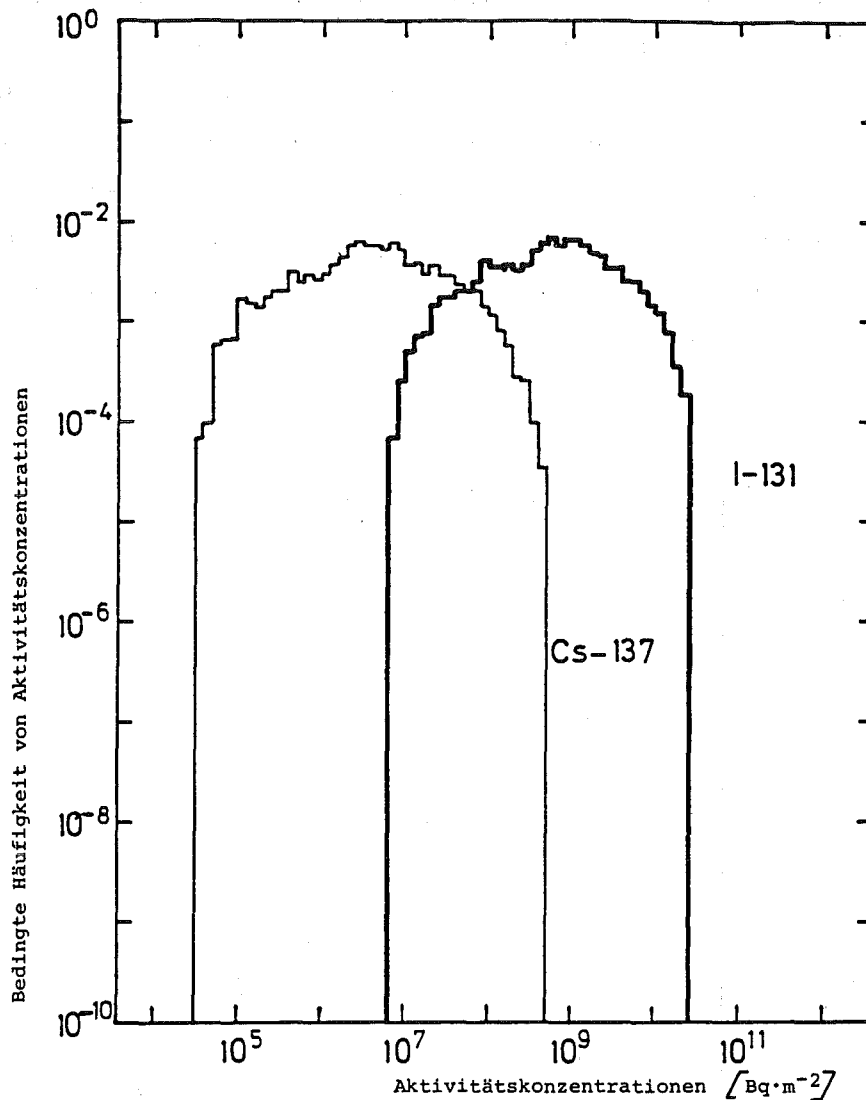


Abb.5 Klassenhäufigkeitsverteilungen der Aktivitätskonzentrationen auf der Bodenoberfläche im Entfernungsbereich 8 km bis 12 km (FK 2 vorausgesetzt).

Tatsache, daß die Konzentrationswerte auf einen Wertebereich von etwa 4 Dekaden beschränkt sind, erklärt sich aus der Modellierung des Gauß'schen Ausbreitungsmodells. Im UFOMOD-Rechenprogramm wird das azimutale Konzentrationsprofil durch eine 7-stufige Funktion mit einem dynamischen Bereich von etwa einem Faktor 17 zwischen Fahnenachse und Fahnenrand angenähert. In Verbindung mit den  $\sigma$ -Werten der verschiedenen Diffusionskategorien resultiert daraus der zu kleinen Zahlenwerten hin beschränkte Wertebereich der Aktivitätskonzentration.

Aus den CCFD's für alle betrachteten Entfernungsbereiche können charakteristische Größen abgeleitet werden. Die Abb. 6 zeigt die 95%-Fraktile der I-131 und Cs-137-Aktivitätskonzentrationen auf der Bodenoberfläche als Funktion der Entfernung. Wegen der gegenüber Aerosolen größeren Ablagerungsgeschwindigkeit von elementarem Jod reduziert sich die Jodkonzentration in der Aktivitätsfahne schneller als für Aerosole. Darum wird in größeren Entfernungen vergleichsweise weniger abgelagert, was zu einem schnelleren Abklingen der I-131-Kurve führt.

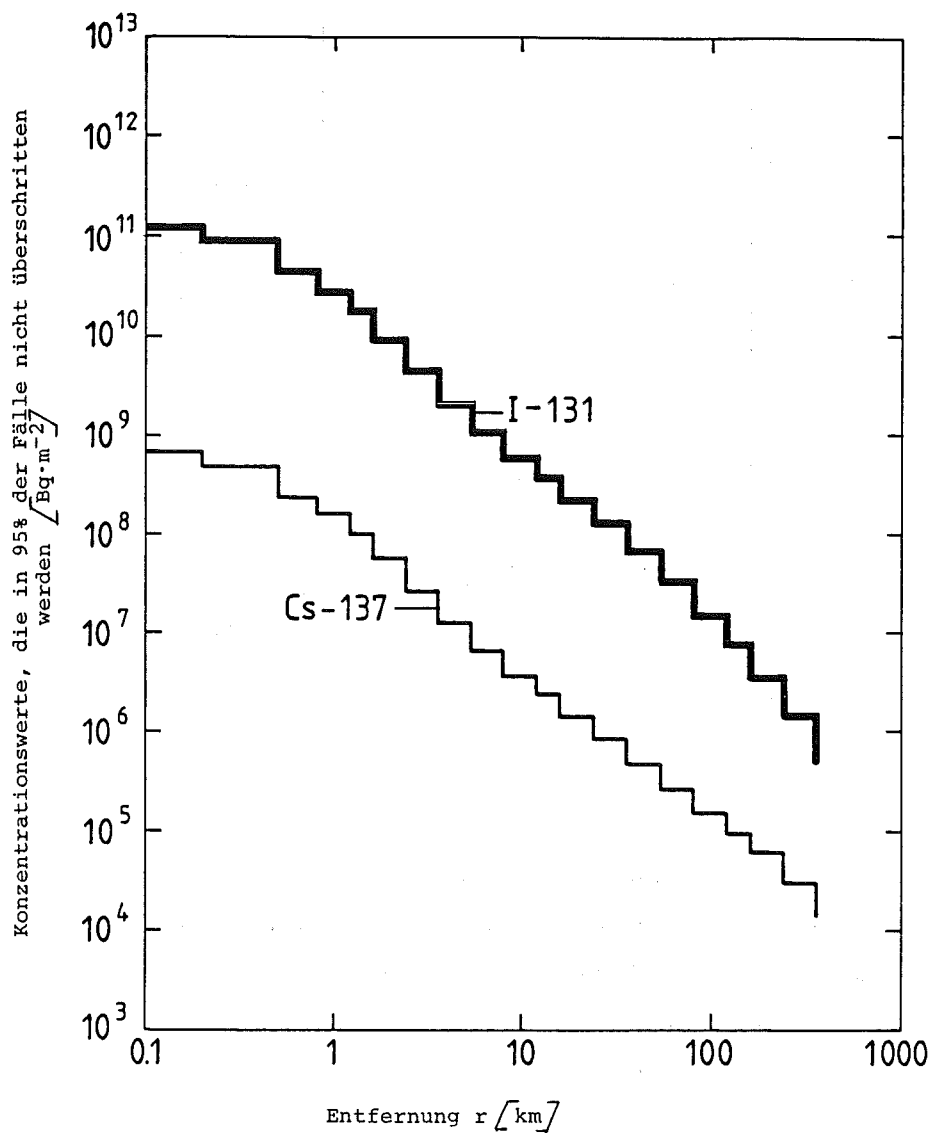


Abb. 6 95%-Perzentilen der Häufigkeitsverteilungen der Aktivitätskonzentrationen auf der Bodenoberfläche (FK2)

Die häufigkeitsbewertete Darstellung auch von Teilergebnissen (Aktivitätskonzentrationen, Strahlendosen) der Unfallfolgenabschätzungen machte es notwendig, eine Reihe von Spezialversionen des Unfallfolgenmodells, ergänzende Auswerteprogramme sowie Plotprogramme zur graphischen Dokumentation der verschiedenen Ergebnisse zu erstellen. Alle Modifikationen wurden in einer ausführlichen Anleitung zum Programmsystem UFOMOD/B4 beschrieben.

### Veröffentlichungen

A. Bayer

Risikoabschätzungen für Kernkraftwerke mit verschiedenen Reaktoren unter besonderer Berücksichtigung des Unfallfolgenmodells  
Vortragsreihe 'Risk/Benefit Analysen', Institut für Energietechnik, Eidgenössische-Technische-Hochschule, Zürich, 9.2.1984

K. Burkart

Applications of accident offsite consequence modelling to emergency planning and response in Germany  
Workshop on Reactor Accident Offsite Consequence Modelling Assessment and Application, Tokai Research Establishment, JAERI, April 16-18, 1984

A. Bayer

Strahlenbelastung nach Unfällen in kerntechnischen Anlagen dargestellt am Beispiel zweier Freisetzungskategorien für Kernkraftwerke mit Druckwasserreaktor.  
Radioaktive Stoffe und ionisierende Strahlung. Quellen, Wirkung, Wertung, Bonn, 27.-28. September 1983. Deutsches Atomforum 1984, S. 191-209

A. Bayer

The radiological impact on the Rhine-Meuse region from normal operation of nuclear facilities

A. Kaul et al. (Hrsg.), Radiation-Risk-Protection. 6th Internat. Congress, Berlin, May 7-12, 1984. Internat. Radiation Protection Association. Org. by the Fachverband für Strahlenschutz e.V. Köln: Verlag TÜV Rheinland, 1984, Vol. I, S. 246-49

J. Ehrhardt, A. Bayer

Probabilistic assessment of organ doses after accidental releases from nuclear power plants.

A. Kaul et al. (Hrsg.), Radiation-Risk-Protection. 6th Internat. Congress, Berlin, May 7-12, 1984. Internat. Radiation Protection Association. Org. by the Fachverband für Strahlenschutz e.V. Köln: Verlag TÜV Rheinland, 1984, Vol. I, S. 279-82

J. Ehrhardt, U. Zöllner

Häufigkeitsbewertete Aktivitätskonzentrationen nach unfallbedingten Radionuklidfreisetzungen

KfK-Bericht 3770 (August 1984)

A. Bayer, J. Braun, K. Burkart, J. Ehrhardt, F. Fischer, O. Graf, E. Meder, J. Päsler, C. Steinhauer, U. Zöllner

Untersuchungen zu speziellen Fragestellungen aus dem Themenbereich "Risikostudien für kerntechnische Anlagen".

In: Projekt Nukleare Sicherheit. Jahresbericht 1983. KfK-3450 (Juni 1984) S. 4800/31-4800/42



06.03.03/17A Methodologie der Ermittlung der radiologischen Folgen der bei  
PNS 4833 Reaktorunfällen freigesetzten Radioaktivität  
( P. Wittek, HS; J.-P. Hosemann, PNS)

Im Rahmen des von der Europäischen Gemeinschaft geförderten Forschungsvorhabens "Methodology for evaluating the radiological consequences of radioactive effluents released in accidents" werden die im PNS-Jahresbericht 1983 (KfK 3450) aufgelisteten Projekte bilateral vom NRPB (National Radiological Protection Board, U. K.) und vom KfK (HS und INR) bearbeitet. Im folgenden wird über einige neuere Ergebnisse berichtet.

## 1. Atmosphärische Ausbreitung unter Berücksichtigung der Topographie

### 1.1 Topographische Klassifizierung der Standorte kerntechnischer Anlagen

Ein Gebiet erscheint um so komplexer, je dichter Höhenzüge und Täler aufeinanderfolgen. Eine objektive Charakterisierung des Grades der orographischen Komplexität eines Geländes ist notwendig, um meteorologische Größen wie Windrichtungsfluktuation oder Ausbreitungsparameter ( $\sigma_y$ ,  $\sigma_z$ ) zuordnen zu können. Dies wird erreicht durch a) die Definition eines Geländevariationskoeffizienten oder b) die Beschreibung der Orographie mittels kumulativer Häufigkeitsverteilung der Steigungswinkel.

Der Geländevariationskoeffizient wird gebildet, indem die Varianz der Höhendifferenzen zwischen den Aufpunkten (im Beispiel 14 400 Aufpunkte) und dem Standort ins Verhältnis gesetzt wird zu einer charakteristischen Länge. Die charakteristische Länge ergibt sich aus dem lichten Abstand zwischen den Bergmassiven in definierten Höhen. Für die Methode b) werden die Steigungswinkel zwischen den Höhen von 252 Punkten im Gelände innerhalb einer Zone mit 30 km Radius und dem Standort ermittelt. Als Kennzahl gilt der Winkel, bei dem das 75. Perzentil erreicht bzw. überschritten wird. In Abb. 1 werden die Ergebnisse beider Methoden in Form einer Rangordnung nach Komplexität des Geländes gegenübergestellt. Die Komplexität nimmt mit wachsender Rangnummer ab. Demnach sind die Standorte Borken und Mülheim-Kärlich als gebirgig, die Standorte Krümmel bis Esenshamm als flach einzustufen.

Rangordnung nach abnehmender Komplexität des Geländes

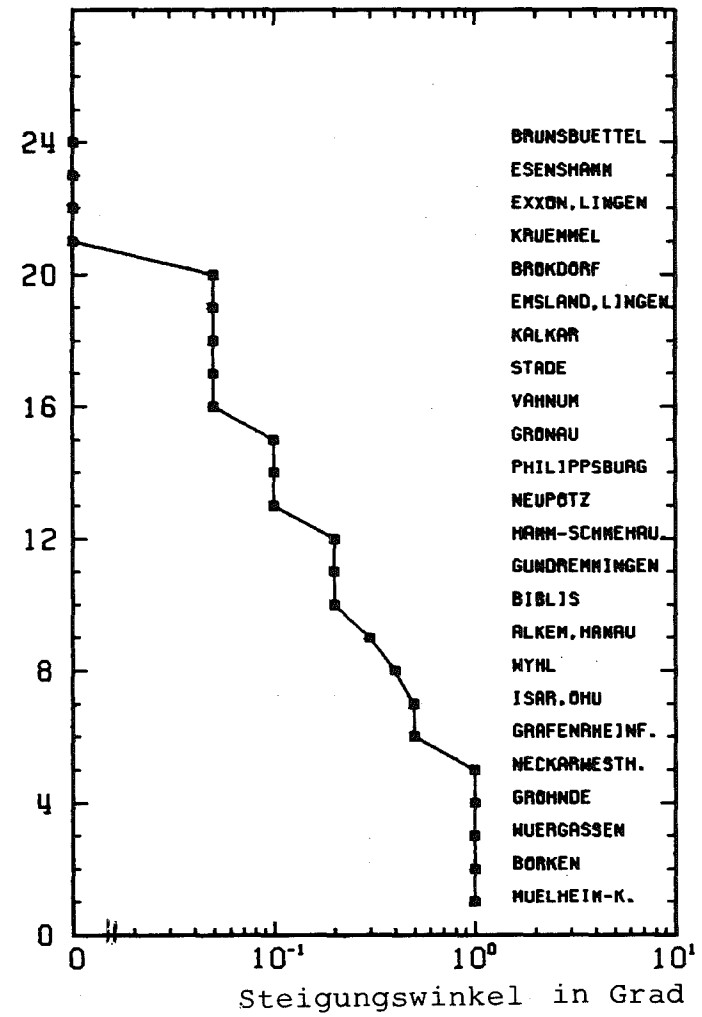
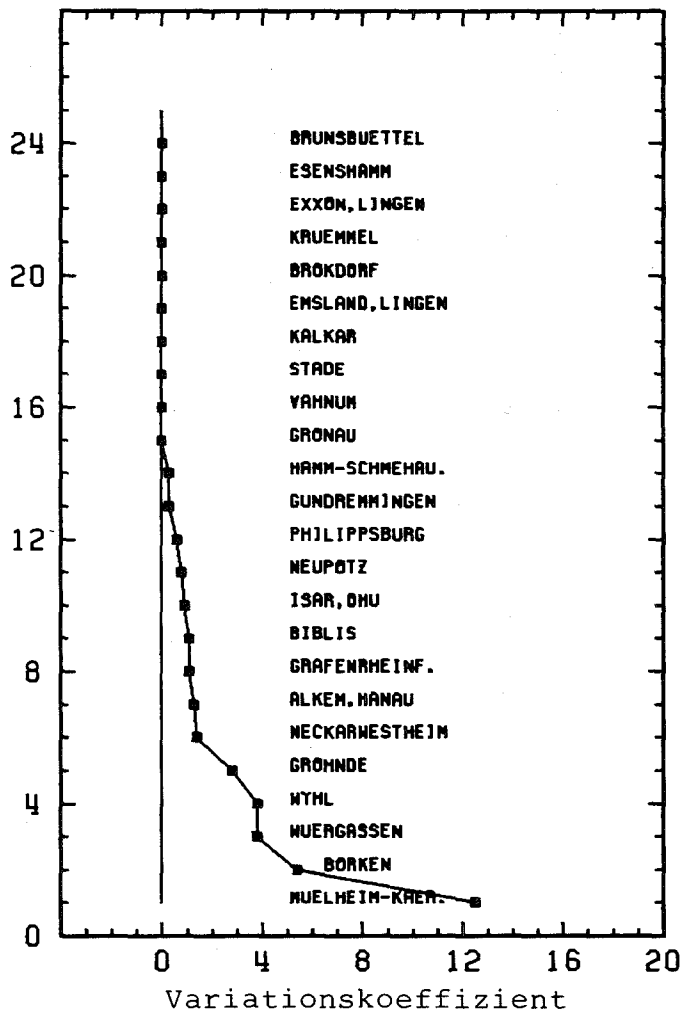


Abb. 1 : Standortklassifizierung mittels Variationskoeffizient und Steigungswinkel

Unterschiede der Rangfolge resultieren daraus, daß die Varianzmethode durch die 14 400 Aufpunkte das gesamte Gelände gleichmäßig bewertet, während die Steigungswinkelmethode die nächste Umgebung des Standortes stärker gewichtet, da die Zahl der Geländepunkte in Standortnähe größer als in Standortferne gewählt wurde. Die Methode b) liefert trotz der wesentlich geringeren Zahl der Aufpunkte eine ähnliche Rangordnung wie a), d. h. auch bei unvollständigen Daten über ein Gelände läßt sich eine solche Klassifizierung vornehmen.

## 1.2 Rechnungen mit dem Unfallfolgenmodell UFOMOD

Die Orographie wird in einfachen Ausbreitungsmodellen berücksichtigt, indem die ursprüngliche effektive Fahnenhöhe  $H_{\text{eff}}$  durch die Geländehöhe korrigiert wird ("Schrotschußmethode"). Grundsätzlich wird der Abstand zwischen Erdoberfläche und Fahnenachse verringert. So wird  $H_{\text{eff}}$  bei stabiler Schichtung um die Geländehöhe reduziert. Falls die Reliefhöhe  $H_{\text{eff}}$  übersteigt, bleibt die Fahnenachse in 1 m Höhe über den Hindernissen. Labile oder neutrale Schichtung bewirkt eine Verminderung von  $H_{\text{eff}}$  um die halbe Geländehöhe, jedoch höchstens um die halbe ursprüngliche Fahnenhöhe.

Mit der um die Höhenkorrektur erweiterten Version des Unfallfolgenmodells UFOMOD/B4 /1/ wurde für zwei Freisetzungskategorien (FK1 und FK2) und für jeweils einen Standort aus den vier Standortregionen der Deutschen Risikostudie die Zahl der Fröhschäden ermittelt. Es gelten dabei u. a. folgende Einschränkungen:

- Die Aktivitätsfahne breitet sich geradlinig aus.
- Die Ausbreitungsgeschwindigkeit wird durch orographische Hindernisse nicht beeinflußt.
- Die Fahne überwindet grundsätzlich jedes Hindernis.
- Die Orographie hat auf die Form der Fahne keinen Einfluß.
- Die erhöhte Turbulenz durch die Geländerauhigkeit wird nicht berücksichtigt.

Unterschiedliche Zahlen der Fröhschäden ergaben sich nur bei stabiler Schichtung. In Tab. 1 sind die Ergebnisse bei jeweils einer vorgegebenen Ausbreitungsrichtung aufgeführt. Bei FK1 (Kernschmelzen mit Dampfexplosion) treten ohne Höhenkorrektur keine Fröhschäden auf. Dagegen wird die kritische Schwellendosis für Fröhschäden von 1 Sv bei Berücksichtigung des Geländes

überschritten. Bei FK2 (Kernschmelzen mit großem Leck im Sicherheitsbehälter) ergeben sich Erhöhungen der Anzahl der Frühschäden bis zu einem Faktor 3. Frühschäden werden nun auch in größeren Entfernungen als 20 km berechnet. Ob auf Grund dieser Berechnungsweise ohne Berücksichtigung der erhöhten Turbulenz und dadurch bewirkter Verdünnung der Aktivitätsfahne Frühschäden auch jenseits von 30 km Entfernung auftreten, ließ sich mangels entsprechender Höhendaten nicht prüfen.

Standort- region	Terrain, Kurzbe- schreibung	Variations- koeffizient	Höhen- korrektur	Zahl der Frühschäden	
				FK1	FK2
Oberrheinische Tiefebene	durch Berg- ketten begrenzte Ebene	0,6	nein	0	256
			ja	7	365
Süddeutsche Hochebene	hügelig, wellenförmig, schwach ausge- prägtes Fluß- tal	1,1	nein	0	687
			ja	1	1 110
Norddeutsche Tiefebene	gleichförmig ansteigendes Gelände, be- grenzt durch einen Höhenzug	0,3	nein	0	117
			ja	1	160
Tallage	gebirgig	12,5	nein	0	0,6
			ja	8	2

Tab. 1: Anzahl errechneter Frühschäden mit und ohne Höhenkorrektur für ausgewählte Wetterabläufe mit stabiler Schichtung

## 2. Auswahlverfahren zur repräsentativen Abbildung des Wettergeschehens

Unter einem Wetterablauf versteht man in der Risikostudie die zeitliche Abfolge der stündlich gemessenen meteorologischen Parameter. Die repräsentative Auswahl von Wetterabläufen ist von besonderer Bedeutung für eine realistische Abschätzung der Schadensfolgen hypothetischer Reaktorunfälle. Ein Wetterablauf wird durch seine Startzeit eindeutig festgelegt. Bei dem bisher verwendeten Auswahlverfahren wurde die Startzeit jeweils zyklisch verschoben, wobei aus dem vorhandenen Wetterdatenkollektiv 115 Wetterabläufe ausgewählt wurden. Der Nachteil dieser Methode liegt darin, daß Wetterabläufe mit besonders hoher Schadensfolge möglicherweise unberücksichtigt bleiben, daß ihnen aber andererseits, sofern sie doch berücksichtigt werden, eine unangemessen hohe Eintrittswahrscheinlichkeit (nämlich jeweils 0,87 %) zugeordnet wird.

Amerikanische Untersuchungen mit dem CRAC2-Modell (aus dem Modell CRAC der amerikanischen Risikostudie, WASH-1400, hervorgegangen) haben gezeigt, daß sich dieses Problem durch Auswahl der Wetterabläufe auf der Basis von Wetterklassen (Weather-Bin-Technik) lösen läßt. Die Anwendung von Auswahl schemata, die von NRPB vorgeschlagen wurden, auf die deutsche Risikostudie zeigt jedoch, daß eine Verbesserung nicht generell erwartet werden kann. Die Erarbeitung eines eigenen Schemas erscheint daher notwendig.

### Veröffentlichungen

/1/ Wittek, P., Hübschmann, W., Vogt, S.

Influence of the atmospheric dispersion model modifications on the results of the German reactor risk study.

5th Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe, September 9-13, 1984

06.03.03/19A Untersuchung der Kühlturm- und Gebäudeeinflüsse auf die  
PNS 4835 Anfangsbedingungen bei der atmosphärischen Ausbreitung von  
Spaltprodukten  
(G. Koutsouvelis, W. Fiebig; EKS)

### 1. Durchgeführte Arbeiten

Sachdienliche Recherchen bezüglich Literatur und geeigneter Rechenprogramme.

### 2. Erzielte Ergebnisse

Die Ausbreitung von in die bodennahe Atmosphäre eingeleiteten luftgetragenen Stoffen kann beeinflusst werden, wenn in der Nähe der Emissionsstelle ein Einzelgebäude (oder eine Gebäudegruppe) anwesend ist. Die Ursache dafür ist das komplizierte Luftströmungsfeld in der Nähe von Bauwerken, das durch die Form dieser Strömungshindernisse und die Bedingungen stromaufwärts bestimmt wird.

Weil erheblicher Gebäudeeinfluß auf die Stoffausbreitung höhenbegrenzt ist, kann er durch ein genügend großes Verhältnis der Höhe der Freisetzungsstelle über Grund zu der Gebäudehöhe vermieden werden ("high level releases"). Das ist der Fall z.B. bei Freisetzungen aus Schornsteinen konventioneller Kraftwerke. Im Gegensatz dazu kann bei unfallbedingten Freisetzungen das oben genannte Höhenverhältnis innerhalb eines Bereiches liegen, wobei der Gebäudeeinfluß nicht vernachlässigbar ist ("low level releases").

Zur Berücksichtigung des Gebäudeeffektes werden in der Literatur mehrere einfache Modelle vorgeschlagen. Diese Modelle haben einen gemeinsamen Ursprung, nämlich das konventionelle Gauß'sche Ausbreitungsmodell ("Abgasfahnenmodell"), sie behandeln den Gebäudeeffekt alle in gleicher Weise und unterscheiden sich lediglich in manchen Einzelheiten.

Nach dem Gauß'schen Modell wird die oft interessierende Konzentration  $c$  an der Bodenoberfläche (Ebene  $z=0$ ) unterhalb der Fahnenachse ( $y=0$ ) und unter der Voraussetzung totaler Reflexion am Boden durch folgenden Ausdruck beschrieben

$$c(x,0,0;h_a) = \frac{Q}{\pi \bar{u} \sigma_y \sigma_z} \exp\left(-\frac{h_a^2}{2 \sigma_z^2}\right) \quad (1)$$

Darin bedeuten  $x$  die Richtung der Lufthauptströmung,  $h_a$  die aerodynamische Emissionshöhe (= Quellhöhe  $h_s$  über Grund + eventueller Fahnenüberhöhung  $\Delta h$ ),  $Q$  die Quellstärke,  $\bar{u}$  eine mittlere Windgeschwindigkeit und  $\sigma_y(x)$  und  $\sigma_z(x)$  die Ausbreitungskoeffizienten jeweils in  $y$ - und  $z$ -Richtung.

Im Fall von Emissionen, die einerseits in Bodennähe stattfinden, andererseits passiv sind (d.h. Emissionen mit vernachlässigbaren Werten für Austrittsimpuls und Auftrieb), also für

$$h_a \ll \sigma_z \sqrt{2}$$

folgt aus Gl.(1)

$$c(x,0,0;h_a) \approx \frac{Q}{\pi \bar{u} \sigma_y \sigma_z} \quad (2)$$

Die Gültigkeit der Formeln nach Gl.(1), bzw. Gl.(2) setzt ableitungsgemäß unter anderem voraus, daß die Quelle punktförmig ist (und konstant emittiert), das Strömungsfeld gerade, parallele Stromlinien aufweist, die Geschwindigkeitsgradienten mäßig sind und die Verteilungen von Turbulenzenergie und Längenscales aus einer über lange Entfernungen unveränderten Oberflächenbeschaffenheit resultieren.

In der Nähe von Gebäuden wird das Strömungsfeld kompliziert und damit die Abweichung der dort herrschenden Verhältnisse von den oben erwähnten Voraussetzungen erheblich. Untersuchungen bezüglich der Konzentrationsverteilung unter solchen Umständen können in einem Windkanal mit einer simulierten atmosphärischen Grenzschicht durchgeführt werden (Ref. 6).

Mehrere Ausbreitungsexperimente in Windkanälen dienten der Untersuchung des Gebäudeeinflusses auf die Dispersion. Die ersten Experimente dieser Art wurden von Halitsky durchgeführt (Ref. 5). Das benutzte Gebäude war würfelförmig, die Emission erfolgte aus dem Gebäudedach, die Emissionsgeschwindigkeit war kleiner als die mittlere Windgeschwindigkeit in dieser Höhe, und die Hauptstromrichtung

war senkrecht zur Stirnfläche A des Gebäudes. Für die Konzentration am Boden in unmittelbarer Gebäudenähe wurde folgender Ausdruck empfohlen

$$c = \frac{Q}{k A \bar{u}} \quad (3)$$

mit k als einem konstanten Faktor. Diese Formel basiert auf den Voraussetzungen, daß die Fahnenquerschnittsfläche gleich mit der Gebäude Stirnfläche ist und die Konzentration in der "Kavität" im Gebäudelee homogen verteilt ist.

Aus dem Vergleich der Gl.(2) mit Gl.(3) und mit der Annahme, daß der Fahnenquerschnitt etwa gleich  $(\pi \sigma_y \sigma_z)$  ist, ergibt sich, daß der Faktor k etwa gleich 1 sein soll, was auch experimentell und für Abstände 3h bis 4h (h = Würfelhöhe) im Gebäudelee bestätigt wurde (Ref. 7).

Eine erhebliche Änderung, und zwar eine starke Reduktion des k-Faktors und damit eine entsprechende c-Erhöhung findet statt, wenn der Wind nicht senkrecht zur Gebäude Stirnfläche gerichtet ist, sondern, wenn er sich um  $45^\circ$  dreht. Für diesen Fall wurden die k-Werte 0.17 (Ref.8) und 0.25 (Ref. 7) ermittelt. Die Ursache dafür sind die Wirbel, die an den scharfen Gebäudekanten entstehen und eine Verengung des Gebäudewindschattens bewirken.

Die oben erwähnten Ergebnisse gelten unter den Bedingungen, daß der Gebäudeeinfluß von einem kubischen Einzelgebäude bewirkt wird, die Emission entweder am Gebäudedach oder in der Kavität stattfindet, die obere Grenze für das Verhältnis der Emissionsgeschwindigkeit zur mittleren Windgeschwindigkeit bei 1.2 liegt, die Entfernungen im Gebäudelee den Wert 4h nicht überschreiten (Ref. 1).

Für Konzentrationen in größeren Entfernungen im Gebäudewindschatten wird folgender Ausdruck empfohlen (Ref. 2,3)

$$c(x,0,0;h_a) = \frac{Q}{\bar{u}(\pi \sigma_y \sigma_z + k'A)} \quad (4)$$

mit  $0.5 \leq k' \leq 2$ .

In Gebäudenähe kann angenommen werden (Ref. 4)



$$k' = \frac{\pi \sigma_y \sigma_z}{A} = 0.5$$

womit aus Gl.(4) die Gl.(3) folgt.

Weit vom Gebäude entfernt wird

$$k'A \ll \pi \sigma_y \sigma_z$$

und Gl.(4) geht in Gl.(2) über. Einige Verfeinerungen des oben beschriebenen Konzepts findet man in der Literatur (z.B. Ref. 2).

Eine weitere Möglichkeit zur Berücksichtigung des Gebäudeeffektes stellt die Methode der sog. virtuellen Quelle dar. Hierbei können gemessene Konzentrationen mit Gl.(1) verglichen werden, so daß eine effektive (oder virtuelle) Quellhöhe und -entfernung bestimmt werden kann (Ref. 7,2).

Wie bereits erwähnt wurde, gelten die obigen Formeln im Zusammenhang mit einem kubischen Einzelgebäude. In praktischen Anwendungen ist es aber erforderlich, Konzentrationen um kompliziert geformte Gebäude oder Gebäudegruppen abschätzen zu können, und es entsteht die Frage nach der Übertragbarkeit der oben dargestellten Ergebnisse auf solche Fälle. Im Zusammenhang z.B. mit Gl.(3) könnte dies möglich sein, wenn neben der mittleren Windgeschwindigkeit und der Windrichtung in einer Referenzhöhe auch die Querschnittsfläche und Länge der Kavität bestimmt werden können.

Außer den oben erwähnten einfachen Modellen können zur Behandlung des Einflusses von Bauwerken auch kompliziertere, 3-dimensionale Ausbreitungsmodelle eingesetzt werden. Damit werden zwar die physikalischen Phänomene realistischer modelliert, aber der Rechenaufwand ist entsprechend hoch.

### 3. Referenzen

1. Builtjes, P.J.H.  
Atm. Pollution 1980, 91
2. Fackrell, J.E.  
Atm. Env. 18(1984), 89

3. Gifford, F.A.jr.  
Nuclear Safety 2(1960), 56
4. Halitsky, J.  
Atm. Env. 11(1977), 577
5. Meroney, R.N.  
Turbulent diffusion near buildings.  
in: E. Plate (Ed.), Engineering meteorology, Elsevier 1982, Chapter 11
6. Robins, A.G.  
J. of Ind. Aerodynamics, 4(1979), 71
7. Robins, A.G. and I.P. Castro  
Atm. Env. 11(1977), 291/299
8. Vincent, J.H.  
Atm. Env. 11(1977), 765

Veröffentlichungen  
des Projekts Nukleare Sicherheit  
1984



Alsmeyer, H.; Reimann, M.; Hosemann, J.P.

Preliminary results on the KfK molten core/concrete experimental BETA facility.

12. Water Reactor Safety Research Information Meeting, Gaithersburg, Md., October 22-26, 1984

Borgwaldt, H.; Gulden, W.; Meyder, R.; Neitzel, H.J.; Raff, S.;

Sengpiel, W.; Bisanz, R.; Ehnis, L.; Lang, U; Schmidt, F.

The code-system SSYST, present status and current development.

Technical Committee/Workshop on the IAEA Programme in the Use of Computer Codes for Safety Analysis, Varna, BG, May 28 - June 1, 1984

Braun, W.; Hassmann, K.; Hennies, H.H.; Hosemann, J.P.

The reactor containment of German pressurized water reactors of standard design.

Internat. Conf. on Containment Design, Toronto, Canada, June 17-20, 1984

Fiege, A.

Status and results of the KfK/PNS SFD research program.

Severe Fuel Damage Program Status Meeting, Sandia National Laboratories, Albuquerque, April 9-11, 1984

Gulden, W.

The KfK/PNS research program on PWR steel containment behavior under accident conditions.

2nd Workshop on Containment Integrity, Washington, D.C., June 13-15, 1984

Haschke, D.; Hosemann, J.P.; Schöck, W.; Ruhmann, H.

Review of DEMONA-results.

Topical Meeting on Fission Product Behaviour and Source Term Research, Snowbird, Utah, July 15-19, 1984

Hassmann, K.; Hosemann, J.P.

Consequences of degraded core accidents.

7th Conf. on Structural Mechanics in Reactor Technology (SMIRT-7), Chicago, Ill., August 22-26, 1983

Nuclear Engineering and Design, 80 (1984) S. 285-99

Hassmann, K.; Hosemann, J.P.

Influence of containment failure mode on the fission product source term.

Annual Meeting on the American Nuclear Society, New Orleans, La.,

June 3-7, 1984

Hassmann, K.; Hosemann, J.P.

Current results of radioactive source term analyses for melt down sequences in KWU-type PWR's.

5th Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe,

September 9-13, 1984

Hosemann, J.P.

The KfK/PNS perspective on fission product behavior and source term research.

Topical Meeting on Fission Product Behaviour and Source Term Research, Snowbird, Utah, July 15-19, 1984

Hosemann, J.P.

Remarks on methods of evaluation of aerosol sources related to PWR core meltdown accidents.

Specialists' Meeting on Nuclear Aerosols in Reactor Safety, Karlsruhe,

September 4-6, 1984

Hosemann, J.P.; Hennies, H.H.; Hassmann, K.

German results on consequences of LWR severe accidents.

Intern. Conf. of the American Nuclear Society and the European Nuclear Society, Washington, D.C., November 11-16, 1984

Pickman, D.O.; Fiege, A.

Fuel behaviour under DBA conditions. Invited paper.

5th Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe,  
September 9-13, 1984

Projektleitung Nukleare Sicherheit; (Hrsg.)

Projekt Nukleare Sicherheit

Tätigkeitsbericht 1. Halbjahr 1984

KfK-3500 (November 1984)

Projektleitung Nukleare Sicherheit; (Hrsg.)

Projekt Nukleare Sicherheit

Jahresbericht 1983

KfK-3450 (Juni 1984)

Rininsland, H.

German research program on severe fuel damage, core melt, and source term.

Seminar über Reaktorsicherheitsforschung,

Kairo, ET, 21.-23. Mai 1984

Nuclear Safety Reactor Research Meeting,

Tokyo, J, October 8-11, 1984

Rininsland, H.

Stand der Reaktorsicherheitsforschung im Projekt Nukleare Sicherheit.

Votr.: Sitzung des PNS-Projektrates, Karlsruhe, 27. Nov. 1984

Schöck, W.; Bunz, H.; Schikarski, W.; Hosemann, J.P.; Haschke, D.;

Kanzleiter, T.F.; Schröter, T.; Fischer, M.; Hassmann, K.; Peehs, M.;

Ruhmann, H.

The DEMONA project, objectives, results, and significance to LWR safety.

5th Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe,

September 9-13, 1984

Bayer, A.

The radiological impact on the Rhine-Meuse region from normal operation of nuclear facilities.

Kaul, A. et al. (Hrsg.)

Radiation-Risk-Protection. 6th Internat. Congress, Berlin, May 7-12, 1984. Internat. Radiation Protection Association.

Org. by the Fachverband für Strahlenschutz e.V.

Köln: Verlag TÜV Rheinland, 1984 Vol. I, S. 246-49

Bayer, A.

Risikoabschätzung für Kernkraftwerke mit verschiedenen Reaktoren unter besonderer Berücksichtigung des Unfallfolgenmodells.

Vortragsreihe 'Risk/Benefit Analysen', Institut für Energietechnik, Eidgenössische Technische Hochschule, Zürich, CH, 9. Febr. 1984

Burkart, K.

Applications of accident offsite consequence modelling to emergency planning and response in Germany.

Workshop on Reactor Accident Offsite Consequence Modelling Assessment and Application, Tokai Research Establishment, JAERI, J, April 16-18, 1984

Ehrhardt, J.; Bayer, A.

Probabilistic assessment of organ doses after accidental releases from nuclear power plants.

Kaul, A. et al. (Hrsg.)

Radiation-Risk-Protection. 6th Internat. Congress, Berlin, May 7-12, 1984. Internat. Radiation Protection Association.

Org. by the Fachverband für Strahlenschutz e.V.

Köln: Verlag TÜV Rheinland, 1984 Vol. I, S. 279-82

Ehrhardt, J.; Zoeller, U.

Häufigkeitsbewertete Aktivitätskonzentrationen nach unfallbedingten Radionuklidfreisetzungen.

KfK-3770 (August 1984)



Hofmann, P.; Kerwin-Peck, D.  
UO<sub>2</sub>/Zircaloy-4 chemical interactions from 1000 to 1700°C under isothermal and transient temperature conditions.  
Journal of Nuclear Materials, 124 (1984), S. 80-105

Hofmann, P.; Kerwin-Peck, D.; Nikolopoulos, P.  
Explanation of the UO<sub>2</sub>/Zircaloy-4 reaction layer sequence in terms of the total interfacial energy of the system.  
Journal of Nuclear Materials, 124 (1984), S. 114-19

Hofmann, P.; Spino, J.  
Stress corrosion cracking of Zircaloy-4 cladding at elevated temperatures and its relevance to transient LWR fuel rod behaviour.  
Journal of Nuclear Materials, 125 (1984), S. 85-95

Hofmann, P.; Neitzel, H.J.  
External and internal reaction of zircaloy tubing with oxygen and UO<sub>2</sub> and its modeling.  
5th Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe, September 9-13, 1984

Leistikow, S.; Schanz, G.  
High temperature oxidation of Zircaloy-4 cladding tubes in steam (600-1600°C).  
Proc. of the 9th Internat. Congress on Metallic Corrosion, Toronto, Canada, June 3-7, 1984, Vol. 3, S. 282-87  
Toronto: Nat. Research Council Canada 1984

Schanz, G.; Leistikow, S.; Adelheim, Ch.  
Zur konkurrierenden Sauerstoff- und Wasserstoffaufnahme des Zircaloy-4 bei hohen Temperaturen.  
Hirschfeld, D. (Hrsg.)  
Gase in Metallen: Vortragstexte der Tagung der Deutschen Gesellschaft für Metallkunde und der Gesellschaft Deutscher Metallhütten- und Bergleute, Darmstadt, 28.-30. März 1984, Oberursel, 1984. - S. 413-26

Schanz, G.; Uetsuka, H.; Leistikow, S.

Investigations of Zircaloy-4 cladding oxidation under steam starvation and hydrogen blanketing conditions.

5th Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe, September 9-13, 1984

Skokan, A.

High-temperature phase relations in the U-Zr-O system.

5th Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe, September 9-13, 1984

Uetsuka, H.

Oxidation of Zircaloy-4 under limited steam supply at 1000 and 1300°C.

KfK-3848 (Dezember 1984)

Alsmeyer, H.

Core-concrete interaction: status of BETA experimental program.

5th Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe, September 9-13, 1984

Alsmeyer, H.

Status of BETA program and experimental results.

Core Melt Information Exchange Meeting, Obrigheim, September 17-19, 1984

Erbacher, F.J.; Neitzel, H.J.; Wiehr, K.

Brennelementverhalten beim Kühlmittelverluststörfall eines Druckwasserreaktors - Ergebnisse des REBEKA-Programmes.

KfK-Nachrichten, 16 (1984) S. 79-86

Erbacher, F.J.; Wiehr, K.

Premature quenching by ballooned and burst fuel rod claddings in a LOCA.

Internat. Post-Dryout Heat Transfer Workshop, Salt Lake City, Utah, April 2-4, 1984

Erbacher, F.J.

Interaction between fuel cladding ballooning and thermohydraulics in a LOCA.

5th Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe, September 9-13, 1984

Erbacher, F.J.; Ihle, P.; Rust, K.; Wiehr, K.

Temperature and quenching behavior of undeformed, ballooned and burst fuel rods in a LOCA.

5th Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe, September 9-13, 1984

Ihle, P.; Rust, K.

FEBA - flooding experiments with blocked arrays.

Data report 1, test series I through IV.

KfK-3658 (März 1984)

Ihle, P.; Rust, K.

FEBA - flooding experiments with blocked arrays.

Data report 2, test series V through VIII.

KfK-3659 (März 1984)

Ihle, P.

Heat transfer in rod bundles with severe clad deformations.

2nd Internat. Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal-Hydraulics, Santa Barbara, Calif., January 11-14, 1983

KfK-3607B (April 1984)

Nuclear Science and Engineering, 88 (1984), S. 206-19

Ihle, P.

Vergleich des thermischen Verhaltens verschiedener Brennstabsimulatoren unter DWR-Notkühlbedingungen.

Commission of the European Communities. 7th Project Review Meeting in Area A on LOCA-ECCS (Loss of Coolant Accident - Emergency Core Cooling Systems), Risø, DK, June 13-15, 1984

Ihle, P.; Rust, K.; Erbacher, F.J.

Grid spacer effects in reflooding experiments using rod bundles of different fuel-rod simulator design.

Internat. Workshop on Fundamental Aspects on Post-Dryout Heat Transfer, Salt Lake City, Utah, April 1-4, 1984

Ihle, P.; Rust, K.; Erbacher, F.J.

Quenching of rod-bundles with fuel rod simulators of different design.

Internat. Workshop on Fundamental Aspects on Post-Dryout Heat Transfer, Salt Lake City, Utah, April 1-4, 1984

Ihle, P.; Rust, K.; Erbacher, F.J.

Dispersed flow reflood heat transfer in rod bundles of different fuel rod simulator design.

Internat. Workshop on Fundamental Aspects on Post-Dryout Heat Transfer, Salt Lake City, Utah, April 1-4, 1984

John, H.; Reimann, J.; Eisele, G.; Ohlmer, E.; Schulze, W.

Test of a mass flow rate measuring spool piece involving drag body, gamma densitometer, local flow turbines and full flow turbines in transient two-phase flow.

Symp. Mass Flow Measurement, ASME Winter Annual Meeting, New Orleans, La., December 9-13, 1984

Müller, U.; Krebs, L.; Rust, K.; (Hrsg.)

Beiträge zu thermo- und fluiddynamischen Problemen in der Kerntechnik.

KfK-3630 (Februar 1984)

Nishida, M.

Fuel rod simulator effects in flooding experiments. Single rod tests.

KfK-3786B (September 1984)

Reimann, J.; Khan, M.

Flow through a small break at the bottom of a large pipe with stratified flow.

2nd Internat. Topical Conf. on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics,  
Santa Barbara, Calif., January 11-14, 1983

Nuclear Science and Engineering, 88 (1984) S. 297-310

Reimann, J.

Vergleich von kritischen Massenstrom-Modellen im Hinblick auf die Strömung durch Lecks.

Munz, D. (Hrsg.)

Leck-vor-Bruch-Verhalten druckbeaufschlagter Komponenten.

Düsseldorf: VDI 1984 S. 63-95

(Fortschrittsberichte der VDI-Zeitschriften. Reihe 18, Nr. 14)

Reimann, J.

Berechnung von Leckraten.

Vortragsveranstaltung

Leck-vor-Bruch-Verhalten druckbeaufschlagter Komponenten, Karlsruhe,

15. Mai 1984

Reimann, J.; Seeger, W.

Pressure drop of air-water and steam-water flow in a dividing T-junction.

European Two-Phase Group Meeting 1984, Roma, I, June 19-21, 1984

Reimann, M.

Core-melt/concrete interaction: status of the WECHSL code development and BETA test results.

Nuclear Power: a Global Reality;

Internat. Conf., Washington, D.C., November 11-16, 1984

Transactions of the American Nuclear Society, 47 (1984) S. 312-13

Reimann, M.; Alsmeyer, H.

Core melt-concrete interaction: status of the WECHSL code development and present results.

6th Information Exchange Meeting on Debris Coolability,

Los Angeles, Calif., November 7-9, 1984

Schulenberg, T.; Müller, U.

A refined model für the coolability of core debris with flow entry from the bottom.

5th Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe, September 9-13, 1984

Smoglie, C.; Reimann, J.

Two-phase flow through a small horizontal branch in a pipe with stratified flow.

Jahrestagung Kerntechnik 84, Frankfurt, 22.-24. Mai 1984

Kerntechnische Ges.e.V. Deutsches Atomforum e.V.

Eggenstein-Leopoldshafen: Fachinformationszentrum Energie, Physik, Mathematik 1984 S. 73-76

Wiehr, K.; Erbacher, F.J.

Temperatur- und Wiederbenetzungsverhalten von Brennstäben beim Kühlmittelverluststörfall: Vorzeitiges Wiederbenetzen durch geborstene Hüllrohre.

Jahrestagung Kerntechnik 84. Frankfurt, 22.-24. Mai 1984.

Kerntechnische Ges.e.V. Deutsches Atomforum e.V.

Eggenstein-Leopoldshafen: Fachinformationszentrum Energie, Physik, Mathematik 1984 S. 69-72

Benner, J.

Fluid-Struktur-Wechselwirkung der Kerneinbauten eines Druckwasserreaktors beim Blowdown - Numerische Simulation mit einem Homogenisierungsmodell.

KfK-3707 (März 1984)

Dissertation, Universität Karlsruhe 1984

Benner, J.

Fortgeschrittene Berechnungsverfahren zum Blowdownverhalten eines Druckwasserreaktors.

KfK-Nachrichten, 16 (1984) S. 73-78

Geiss, M.; Bu, Y.B.; Mattheck, C.; Pudewills, A.

Lösung strukturmechanischer Probleme mit Hilfe von Finite-Element-Computerprogrammen.

KfK-Nachrichten, 15 (1983) S. 299-304

Göller, B.; Krieg, R.; Messemer, G.; Wolf, E.

Das mechanische Verhalten von Druckwasserreaktor-Sicherheitsbehältern bei schweren Unfällen.

KfK-Nachrichten, 15 (1983) S. 311-18

Göller, B.; Krieg, R.; Messemer, G.; Wolf, E.

Mechanisches Verhalten von DWR-Sicherheitsbehältern bei schweren Unfällen. Jahrestagung Kerntechnik 84. Frankfurt, 22.-24. Mai 1984.

Kerntechnische Ges.e.V. Deutsches Atomforum e.V.

Eggenstein-Leopoldshafen: Fachinformationszentrum Energie, Physik, Mathematik 1984 S. 183-86

Göller, B.; Krieg, R.; Messemer, G.

Behaviour of spherical PWR-containments close to reinforced sections under excessive internal pressure.

2nd Workshop on Containment Integrity, Washington, D.C., June 13-15, 1984

Göller, G.; Hailfinger, G.; Krieg, R.

Thermal stresses in PWR-containments under loss of coolant accidents.

2nd Workshop on Containment Integrity, Washington, D.C., June 13-15, 1984

Ludwig, A.

Halbanalytisches Berechnungsverfahren zum dynamischen Verhalten dünnwandiger Zylinderschalen.

KfK-Nachrichten 16 (1984) S. 66-72

Albrecht, H.; Wild, H.

Review of the main results of the SASCHA program on fission product release under core melting conditions.

Internat. Meeting on Fission Product Behavior and Source Term Research, Snowbird, Utah, July 15-19, 1984

Alken, W.; Bella, H.; Rüdinger, V.; Wilhelm, J.G.

Development of a HEPA-filter with high structural strength and high resistance to the effects of humidity and acid.

18th DOE Nuclear Air Cleaning Conf., Baltimore, Md., Aug. 13-16, 1984

Bunz, H.; Schöck, W.

Direct measurements of diffusio-phoretic deposition of particles at elevated temperatures.

1st Internat. Aerosol Conf., Minneapolis, Minn., September 17-21, 1984

Bunz, H.; Schöck, W.; Taubenberger, R.

Spatial distribution of an aerosol in a large structured building.

1st Internat. Aerosol Conf., Minneapolis, Minn., September 17-21, 1984

Bunz, H.; Schöck, W.

Comparison of aerosol behaviour measured during DEMONA experiments to NAUA code predictions.

Specialists' Meeting on Nuclear Aerosol in Reactor Safety, Karlsruhe, September 4-6, 1984

Deuber, H.

Die physikalisch-chemischen  $^{131}\text{I}$ -Komponenten in der Abluft eines Siedewasserreaktors (SWR 5).

KfK-3666 (Februar 1984)

Deuber, H.

Abscheidung von elementarem  $^{131}\text{I}$  an Aktivkohlen unter Störfallbedingungen.

KfK-3776 (September 1984)

Deuber, H.

Abscheidung von elementarem  $^{131}\text{I}$  an Aktivkohlen unter extremen Bedingungen.

KfK-3796 (November 1984)

Deuber, H.; Dillmann, H.G.; Gerlach, K.

Retention of gaseous radioiodine with sorbents under accident conditions.

5th Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe, September 9-13, 1984



Deuber, H.

Auftreten von Radioiodkomponenten in der Abluft von Kernkraftwerken.  
Informationstagung des LAF II 'Filter für kerntechnische Anlagen'.  
Karlsruhe, 29. Oktober 1984

Deuber, H.; Gerlach, K.

Abscheidung von Radioiodkomponenten durch Iodfilter von Kernkraftwerken.  
Informationstagung des LAF II 'Filter für kerntechnische Anlagen',  
Karlsruhe, 29. Oktober 1984

Dillmann, H.G.; Pasler, H.

A filter concept to control airborne particulate releases due to severe  
reactor accidents and implementation using stainless steel fiber filters.  
18th DOE Nuclear Air Cleaning Conf., Baltimore, Md., Aug. 13-16, 1984

Dillmann, H.G.; Pasler, H.

A containment-venting filter concept and its implementation by use of  
stainless-steel fiber filters.  
5th Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe,  
September 9-13, 1984

Dillmann, H.G.; Pasler, H.

Ein Filter-Konzept für extreme Beanspruchungen und seine Realisierung mit  
Edelstahlfaserfiltern.  
Informationstagung des LAF II 'Filter für kerntechnische Anlagen',  
Karlsruhe, 29. Oktober 1984

Ensinger, U.; Rüdinger, V.; Wilhelm, J.G.

A procedure to test HEPA-filter efficiency under simulated accident  
conditions of high temperature and high humidity.  
18th DOE Nuclear Air Cleaning Conf., Baltimore, Md., Aug. 13-16, 1984

Hartig, S.H.; Wurz, D.E.; Arnitz, Th.; Rüdinger V.

Comparison and verification to two computer programs used to analyze  
ventilation systems under accident conditions.  
18th DOE Nuclear Air Cleaning Conf., Baltimore, Md., Aug. 13-16, 1984

Jordan, S.; Lindner, W.

Aerosols released from solvent fire accidents in reprocessing plants.  
Specialists' Meeting on Nuclear Aerosols in Reactor Safety, Karlsruhe,  
September 4-6, 1984

Ricketts, C.J.; Rüdinger, V.; Wilhelm, J.G.

HEPA-filter response to high differential pressures and flow rates.  
5th Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe,  
September 9-13, 1984

Rüdinger, V.; Ricketts, C.J.; Wilhelm, J.G.

Limits of HEPA-filter application under high-humidity conditions.  
18th DOE Nuclear Air Cleaning Conf., Baltimore, Md., Aug. 13-16, 1984

Rüdinger, V.; Arnitz, Th.; Ricketts, C.J.; Wilhelm, J.G.

BORA - a facility for experimental investigation of air cleaning during  
accident situations.

18th DOE Nuclear Air Cleaning Conf., Baltimore, Md., Aug. 13-16, 1984

Rüdinger, V.; Wilhelm, J.G.

Confinement of airborne particulate radioactivity in the case on an  
accident.

5th Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe,  
September 9-13, 1984

Hagen, S.; Kapulla, H.; Malauschek, H.; Peck, S.O.; Wallenfels, K.P.

Temperature escalation in PWR fuel rod simulator bundles due to the  
zircaloy/steam reaction: test ESBU-2A. Test results report.

KfK-3509 (Juli 1984)

Fenyi, S.; Beedgen, R.; Nagel, K.

Stochastische Simulation an Hardware-Fehlerbäumen zur Untersuchung der  
Zuverlässigkeit von Systemen.

Breitenecker, F.; Kleinert, W. (Hrsg.)

Simulationstechnik.

2. Symp. Simulationstechnik, Wien, A, September 25-27, 1984, Proc.  
Berlin (u.a.): Springer 1984 S. 102-06

(Informatik-Fachberichte; 85)

Nagel, K.; Furrer, J.

Berechnung der Aerosolfreisetzung durch das Auflöserabgas.

Atomwirtschaft-Atomtechnik, 29 (1984) S. 235-37

Nagel, K.; Furrer, J.

Trägheitsabscheidung am Beispiel eines Fangrillen-Abscheiders.

Chemie-Ingenieur-Technik, 56 (1984) S. 543-46

Nagel, K.; Furrer, J.

Released iodine under different operation conditions.

Internat. Topical Meeting on Fuel Reprocessing and Waste Management,

Jackson Hole, Wyo., August 26-29, 1984

Nagel, K.; Furrer, J.

Calculating released amounts of aerosols.

18th Conf. on Nuclear Airborne Waste Management and Air Cleaning,

Baltimore, Md., August 13-16, 1984

Weber, G.

Methods of fault tree analysis and their limits.

The Institute of Physics, Conf. on Reliability Aspects, Brunel University,

Egham, GB, Sept. 11-12, 1984

KfK-3824 (Dember 1984)

Wenzelburger, H.; Zinterhof, P.

Stochastische Kurzzeit- und Langzeitmodelle für die Freisetzung von

radioaktivem Jod in der Abgasreinigungsstrecke PASSAT.

KfK-3787 (September 1984)

Wenzelburger, H.

Einige konkrete analytische Markoff-Erneuerungsmodelle für die langfristige Freisetzung von radioaktivem Jod in der Abgasreinigungsstrecke einer Wiederaufarbeitungsanlage.

13. Jahrestagung der Deutschen Gesellschaft für Operations Research

(DGOR '84), St. Gallen, CH, Sept. 12-14, 1984

Wenzelburger, H.

A stochastic model für the release of radioactive iodine in the dissolver offgas cleaning unit PASSAT.

Internat. Topical Meeting on Fuel Reprocessing and Waste Management, Jackson Hole, Wyo., August 26-29, 1984

Bohn, H.; Luxenburger, H.J.; Schüttelkopf, H.

Radiochemical determination of Tc-99 and release of Tc-99 from nuclear facilities.

Internat. Seminar on the Behaviour of Technetium in the Environment, Cadarache, F, October 23-26, 1984

Godoy, J.M.; Schüttelkopf, H.; Pimpl, M.

The measurements of Pu-241 in environmental samples and in gaseous and liquid effluents.

5th Internat. Conf. on Nuclear Methods in Environmental and Energy Research, Mayaguez, Puerto Rico, April 2-6, 1984

Luxenburger, H.J.; Schüttelkopf, H.; Bohn, B.

Schnelle radiochemische Analysenmethode zur Bestimmung von Tc-99 in Umwelt, Abwasser und Abluft.

KfK-3784 (August 1984)

Luxenburger, H.J.; Schüttelkopf, H.

Vorkommen und Verhalten von Tc in der Umwelt (Literaturstudie)

KfK-3418 (August 1984)

Luxenburger, H.J.; Schüttelkopf, H.; Bohn, B.

Die Emission von Tc-99 aus kerntechnischen Anlagen.

KfK-3795 (November 1984)

Luxenburger, H.J.; Schüttelkopf, H.

A fast radiochemical procedure to measure Tc-99 in environmental samples and gaseous and liquid effluents.

5th Internat. Conf. on Nuclear Methods in Environmental and Energy Research, Mayaguez, Puerto Rico, April 2-6, 1984

Pimpl, M.; Schüttelkopf, H.

Das Verhalten von Aktiniden in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe.

Kaul, A. et al. (Hrsg).

Radiation-Risk-Protection.

6th Internat. Congress, Berlin, May 7-12, 1984.

Internat. Radiation Protection Association.

Org. by the Fachverband für Strahlenschutz e.V.

Köln: Verlag TÜV Rheinland, 1984 Vol. II, S. 886-89

Pimpl, M.; Schüttelkopf, H.

A fast radiochemical procedure to measure neptunium, plutonium, americium and curium in environmental samples for application in environmental monitoring and in radioecology research.

5th Internat. Conf. on Nuclear Methods in Environmental and Energy

Research, Mayaguez, Puerto Rico, April 2-6, 1984

Pimpl, M.; Schmidt, W.

Uptake of plutonium, americium, curium and neptunium in plants cultivated under greenhouse conditions.

Meeting of the UIR Workgroup on Soil-to-Plant Transfer Factors, Cadarache, F, April 16-17, 1984

Pimpl, M.; Schmidt, W.; Schüttelkopf, H.

Investigation of the soil-to-plant transfer behaviour of Pu, Am, Cm, and Np by aid of a very fast and sensitive radiochemical procedure.

5th Symp. on Nuclear Chemistry, Radiochemistry, and Radiation Chemistry, Guanajuato, MEX, December 4-7, 1984

Pimpl, M.; Schmidt, W.; Schüttelkopf, H.

Messung des Boden/Pflanzen-Transfers von Pu, Am, Cm und Np in einem Gewächshaus für radioökologische Studien.

Strahlung und Radionuklide in der Umwelt:

Tagung der Arbeitsgemeinschaft der Großforschungseinrichtungen, Bonn, 8.-9. November 1984

Strack, S.; Müller, A.

Studies of the microbiological influence on the behavior of iodine-125 in humus soil.

Bonnyns-van Gelder, E. (Hrsg.)

Role of Microorganisms on the Behaviour of Radionuclides in Aquatic and Terrestrial Systems and their Transfer to Man: Proc. of a Workshop,

Bruxelles, B. April 25-27, 1984

Luxembourg: Commission of the European Communities, 1984. - S. 207-16



