



KfK 4264
Juni 1987

Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim LWR-Kernschmelzen

**Abschlußbericht des
SASCHA-Programmes**

H. Albrecht
Institut für Radiochemie
Projekt Nukleare Sicherheit

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

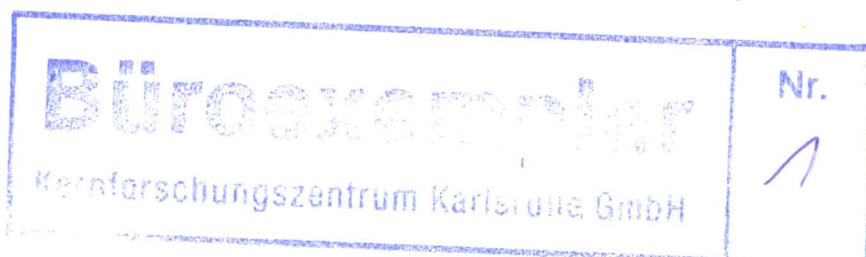
Institut für Radiochemie
Projekt Nukleare Sicherheit

KfK 4264

Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim LWR-Kernschmelzen
Abschlußbericht des SASCHA-Programmes

H. Albrecht

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe



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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Zur Untersuchung der Spaltprodukt-Freisetzung und Aerosol-Bildung unter LWR-Kernschmelzbedingungen wurden an der Schmelzanlage SASCHA Out-of-pile Versuche durchgeführt, bei denen neben der Temperatur vor allem die Zusammensetzung der Kernschmelze und die Atmosphäre als wichtige Parameter angesehen wurden. Die Ergebnisse beziehen sich auf folgende Einzelaspekte:

- Verhalten von Jod und Cäsium während und nach der Freisetzung
- Bildungsmöglichkeit von AgJ in der Gasphase
- Größenverteilung und chemische Zusammensetzung der Aerosolpartikeln
- Einfluß der Zircaloy-Oxidation auf die Freisetzung
- Freisetzungsraten für 20 Elemente bei 2400°C
- Freisetzung während der Schmelze/Beton-Wechselwirkung
- Abschätzung von Integralwerten für die Freisetzung von Radioaktivität, Nachwärme und Aerosolmasse aus einem DWR-Primärsystem.

Summary

Release of Fission and Activation Products During LWR Coremelting - Final Report of the SASCHA Program

Out-of-pile experiments were carried out in the SASCHA facility to investigate fission product release and aerosol formation under LWR core melting conditions. Besides fuel temperature, chemical composition of the core melt and test atmosphere were considered as important parameters. The results include the following aspects:

- Behavior of iodine and cesium during and after release from the fuel
- Potential of AgI formation in the gas phase
- Size distribution and chemical composition of aerosol particles
- Influence of the degree of Zircaloy oxidation on the release
- Fractional release rate coefficients of 20 elements for 2400°C
- Release during melt/concrete interaction
- Estimates of integral values for the release of radioactivity, decay heat, and aerosol mass from a PWR primary system.

Inhaltsverzeichnis

	Zusammenfassung / Summary	Seite
	Einleitung	1
1	Ablauf eines Kernschmelzenunfalls	3
2	Beschreibung der Experimente	6
2.1	Schmelzanlage SASCHA	7
2.2	Schmelzgut	8
2.3	Versuchsdurchführung	10
2.4	Bestimmung von Freisetzungsraten	11
3	Freisetzung der leichtflüchtigen Elemente J, Cs und Cd	13
3.1	Randbedingungen der Versuche	13
3.2	Freisetzungsscharakteristik	14
3.3	Zur chemischen Form des Jods bei der Freisetzung aus dem Brennstoff	15
3.4	Ergebnisse zum Transport- und Ablagerungsverhalten von Jod und Cäsium in einer Wasserdampf-Atmosphäre bei 150 - 300°C	17
3.5	Ablagerungsversuche mit einem beheizten Stahlabsaugsystem (300 - 800°C)	
3.6	Untersuchung der chemischen Form des Jods und anderer Spaltprodukte in den Aerosolpartikeln	22
3.7	Löslichkeitsversuche zum Nachweis der Bildung von AgJ	23
3.8	Diskussion der Bildungsmöglichkeiten von AgJ unter realistischen Randbedingungen	25
4	Freisetzungsmessungen weiterer Elemente	28
4.1	Freisetzung von Te, Sb, Ag, Ba und Sr	28
4.2	Freisetzung von Mo, Ru, Zr, Ce, Nd, U und Np	33
4.3	Freisetzung von Cr, Mn, Fe, Co und Sn	35
4.4	Freisetzung von Ag, In und Cd aus DWR-Steuerstäben	38
5	Zusammenstellung der ermittelten Freisetzungsraten und Vergleich mit anderen experimentellen Daten	41

6	Untersuchung der Spaltprodukt-Freisetzung während der Schmelze/Beton-Wechselwirkung	44
7	Anwendung der Ergebnisse	47
7.1	Berechnung der integralen Aktivitäts- und Nachwärme-Freisetzung aus dem Kern	47
7.2	Berechnung der gebildeten Aerosolmasse	51
7.3	Diskussion des Realitätsgrades der Ergebnisse	54
	Danksagung	56
	Literatur	57
	Verzeichnis der Abbildungen	61
	Abbildungen	63

Anhang

"Radioactivity Emission from the Chernobyl Accident in Comparison with the Results of the SASCHA Program" by H. Albrecht
Reprint from Radiochimica Acta, Vol. 41 (1987)

Einleitung

Um die möglichen Auswirkungen schwerer Unfälle in Kernkraftwerken zu untersuchen, werden in den USA seit etwa 15 Jahren sog. Reaktorsicherheits- und Risiko-Studien durchgeführt. Sie befassen sich besonders mit der Eintrittshäufigkeit und dem Schadensumfang von solchen Unfällen, die wegen ihrer geringen Wahrscheinlichkeit in den für das Genehmigungsverfahren vorgeschriebenen Störfallanalysen nicht berücksichtigt werden. In der Bundesrepublik wurden ähnliche Studien zwar erst später in Angriff genommen, doch schon im Jahr 1971 wurde vom damaligen Bundesministerium für Bildung und Wissenschaft (BMBW) ein Forschungsprogramm KERNSCHMELZEN initiiert, mit dem der Ablauf von Unfällen mit total versagender Notkühlung untersucht werden sollte, unabhängig von deren Eintrittswahrscheinlichkeit. Die Schwerpunkte dieses Programms, an dessen Durchführung auch das Projekt Nukleare Sicherheit (PNS) des KfK beteiligt war, lassen sich wie folgt umreißen:

- o Systematische Analyse der möglichen Unfall-Abläufe, die zum Schmelzen eines LWR-Kerns führen können,
- o Verständnis der physikalischen und chemischen Einzelphänomene anhand von Experimenten mit möglichst realistischen Randbedingungen,
- o Entwicklung von Rechencodes, die auf der Basis der Experimente den Ablauf von Einzelvorgängen theoretisch beschreiben und diese damit berechenbar machen,
- o Anwendung der Erkenntnisse über das Anlagenverhalten sowie das Freisetzungs- und Transportverhalten der radioaktiven Stoffe zur Ermittlung von sog. Freisetzungs-Quelltermen, d. h. zur Bestimmung des Zeitverlaufs und der nuklidspezifischen Zusammensetzung von Unfall-bedingten Emissionen in die Umgebung.

Der vorliegende Bericht befaßt sich mit einem Thema, das den Ausgangspunkt für die Ermittlung der radioaktiven Quellterme bildet, nämlich der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten aus hoch erhitzten Brennstäben und aus einer Kernschmelze. Das Arbeitsprogramm für dieses 1972 begonnene experimentelle Vorhaben basiert auf zwei Literaturstudien über die bis dahin in den USA durchgeführten In-pile- und Out-of-pile-Schmelzversuche /1/.

Der Aufbau einer Schmelzanlage und die Entwicklung einer geeigneten Versuchstechnik /2/ dauerten etwa 5 Jahre, so daß ab 1977 über erste Ergebnisse der Freisetzung von Spaltprodukten berichtet werden konnte /3/. Die ersten Versuchsserien erfolgten mit Schmelzproben von 30 g Gewicht und hauptsächlich mit Luft oder Schutzgas als Versuchsatmosphäre. Wesentlich realistischere Versuche unter 2 bar Wasserdampf und mit 200 - 250 g Schmelzgut waren ab 1980 nach einer Erweiterung der Schmelzanlage möglich. Die Ergebnisse dieser Versuche und ihre Extrapolation auf einen LWR-Kern bilden den Hauptinhalt der nachfolgenden Kapitel.

Um zunächst jedoch die Randbedingungen für die Spaltprodukt-Freisetzung während eines Kernschmelzenunfalls zu erläutern, wird im Kapitel 1 am Beispiel eines Druckwasserreaktors dargestellt, welche Vorstellungen man sich heute vom Ablauf eines solchen Unfalls macht. In Kapitel 2 werden Zielsetzung und Durchführung der Versuche erläutert, und anschließend werden die wesentlichen Meßergebnisse zusammengestellt (Kapitel 3,4 und 6). Die Kapitel 5 und 7 schließlich beschäftigen sich mit der Anwendung und Interpretation der Ergebnisse, z. B. der Berechnung von Freisetzungskoeffizienten, dem Vergleich dieser Werte mit den Aussagen anderer Experimentatoren, der Berechnung von Integralwerten für die Freisetzung von Aktivität, Nachwärme und Aerosolmasse beim Niederdruckpfad eines Kernschmelzenunfalls in einem DWR sowie der Diskussion des Realitätsgrades dieser Aussagen.

1. Ablauf eines Kernschmelzenunfalls

Unter dem Gesichtspunkt der einleitenden Ereignisse und des Zeitablaufs in den ersten Stunden gilt es zu unterscheiden, ob ein Kernschmelzen

- nach einem Kühlmittelverlust bei niedrigem Primärkreisdruck von 2 - 4 bar stattfindet - man spricht dann vom sog. Niederdruckpfad -, oder ob es
- sich aus einer Situation entwickelt, bei der für eine gewisse Zeit während des Unfalls noch ein hoher Druck im Primärkreis ansteht (Hochdruckpfad).

Als einleitendes Ereignis beim Niederdruckpfad wird zunächst ein großflächiger Bruch (totaler Abriß) einer Hauptkühlmittelleitung unterstellt, der zu einem Verlust des Kühlmittels und zu einer schnellen Druckentlastung im Primärkreis führt. Durch automatischen Abwurf der Abschaltstäbe und die nicht mehr vorhandene Moderatorwirkung des Kühlmittels schaltet der Reaktor sofort ab. Die Kettenreaktion wird somit beendet; doch der Zerfall der radioaktiven Spalt- und Aktivierungsprodukte sorgt für eine Nachwärme-Erzeugung, die in der ersten Stunde im Mittel noch 3 % der thermischen Reaktor-Leistung beträgt.

Deshalb tritt jetzt das Notkühlsystem in Aktion. Es ist so ausgelegt, daß selbst bei 75 %-igem Ausfall eine Eskalation vom Kühlmittelverlust-Störfall zum Kernschmelzen-Unfall vermieden wird. Ein solcher Unfall ist daher nur denkbar, wenn man ein komplettes Versagen der Niederdruck-Notkühlung postuliert, z. B. bei der Umschaltung von der Einspeisung aus den Flutbehältern auf den Sumpfkühl-Betrieb.

Es dauert dann etwa 20 min nach dem Blowdown, bis das im Reaktordruckbehälter befindliche Wasser anfängt zu sieden und auszudampfen. Oberhalb des absinkenden Wasserspiegels beginnt nun wegen mangelnder Wärmeabfuhr die Kernzerstörung und zugleich die mit steigender Temperatur zunehmende Spaltprodukt-Freisetzung. Zunächst erfolgt die Aufheizung aufgrund der Nachwärmeleistung. Ab einer Hüllrohrtemperatur von 1200°C kommt die stark exotherme Zircaloy/Wasserdampf-Reaktion hinzu, wodurch die Temperatur je nach Dampfzutritt um bis zu 1000°C weiter ansteigt. Dabei schmelzen die Abstandshalter und die aus Ag-In-Cd bestehenden Regelstäbe. Auch innerhalb der Brennstäbe bilden sich erste schmelzflüssige Phasen durch eutektische Reaktionen zwischen UO_2 und den innenseitig noch nicht oxidierten Zircaloy-Hüllrohren. Durch Propagation der

heißen Temperaturzone nach unten versagt die Kerntageplatte, so daß ein Teil des Kerns in die untere RDB-Kalotte stürzt. Sie ist zu diesem Zeitpunkt noch mit Wasser gefüllt. Sobald aber das Restwasser verdampft ist, heizen sich die in der RDB-Kalotte befindlichen Kerntrümmer so weit auf, daß sich ein Schmelzsee mit einer Temperatur von 2300 - 2400°C ausbildet. Während dieser Phase hat man es mit einem Freisetzungsmaximum der verschiedensten Elemente zu tun (neben den Spaltprodukten sind davon auch die Bestandteile des Brennstoffs und der Strukturmaterialien betroffen).

Der bei den genannten Temperaturen auftretenden Wärmebelastung kann die RDB-Kalotte nur kurze Zeit widerstehen. Es kommt daher zum Versagen des Druckbehälters, zum Auslaufen der Schmelze und zu deren Wechselwirkung mit dem Beton in der Kaverne des Sicherheitsbehälters /4/. Die Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten geht dabei gemäß der inzwischen eingetretenen Konzentrationsabnahme und der absinkenden Temperatur der Schmelze zurück. Wichtig ist aber auch die Freisetzung von Wasserdampf und CO₂ aus dem Beton, sowie die Entstehung von H₂ und CO durch Oxidation der in der Kernschmelze enthaltenen metallischen Bestandteile (vorwiegend Zircaloy und Stahl). Diese Gase führen nämlich zu einer Erhöhung des Druckes im Sicherheitsbehälter. Ein weiterer Druckanstieg entsteht, wenn die Schmelze nach Zerstörung des inneren Betonzylinders vom Sumpfwasser überflutet wird (vgl. Abbildung 1) und dieses ebenfalls zu sieden beginnt. Durch diesen Vorgang, der etwa 8 - 15 Stunden nach dem Blowdown zu erwarten ist, kommt es zu einem langfristigen Druckanstieg im Sicherheitsbehälter. Mit größeren Leckagen muß bei funktionierendem Gebäudeabschluß jedoch erst nach ca. 5 Tagen gerechnet werden, wenn der Druck einen Wert von 9 bar erreicht hat.

Die aus dem heißen Brennstoff bzw. der Kernschmelze abgedampften Produkte haben in der Zwischenzeit durch Kondensation und Koagulation ein Aerosolsystem gebildet, welches beim Transport durch das Primärsystem und der Ausbreitung im Sicherheitsbehälter zahlreichen Abscheidemechanismen unterliegt. Dabei spielen vor allem die Sedimentation, die Diffusiophorese, die Agglomeration infolge der Brownschen Bewegung und der Schwerkraft, sowie die Kondensation von Wasserdampf an den Aerosolpartikeln eine wichtige Rolle. Alle diese Prozesse führen dazu, daß im Verlauf der genannten 5 Tage die Konzentration der luftgetragenen aerosolförmigen Freisetzungserzeugnisse ständig abnimmt. Die Freisetzung radioaktiver Partikel in die Umgebung des KKW's wird dadurch nicht nur verzögert, sondern um mehrere Größenordnungen reduziert. Zur analytischen Beschreibung des Aerosolverhaltens wurde der NAUA-Code /5/ entwickelt, dessen

Aussagen durch das DEMONA-Programm /4, 6/ inzwischen auch experimentell belegt wurden.

Nachfolgend werden nun noch die einleitenden Ereignisse beim Hochdruckpfad beschrieben. Hierbei geht man von einem totalen Ausfall der Stromversorgung aus. Auch in diesem Fall wird der Reaktor automatisch abgeschaltet, und die aktiven Sicherheitssysteme werden von Dieselgeneratoren mit Notstrom versorgt. Erst wenn man annimmt, daß auch diese mehrfach vorhandene Notstromversorgung total ausfällt, kann es zum Kernschmelzen kommen. Dann ist nämlich wegen Ausfalls der Speisewasserpumpen auf der Sekundärseite keine ausreichende Wärmeabfuhr über die Wärmetauscher möglich. Die Folge davon ist sekundärseitig ein Ausdampfen der Dampferzeuger und primärseitig ein Anstieg von Druck und Temperatur. Durch wiederholtes Öffnen des Druckhalterventils ergibt sich neben einer Druckentlastung um einige bar zwar auch eine gewisse Wärmeabfuhr; doch man verliert dabei so viel primäres Kühlmittel, daß der Wasserstand im RDB kontinuierlich absinkt. Schließlich setzt bei vollem Innendruck das Kernschmelzen ein.

In der weiteren Folge kommt es auch hier zum thermischen Versagen des Druckbehälters. Es ist anzunehmen, daß bei der gleichzeitig stattfindenden Druckentlastung nicht nur ein Teil des Kerns nach unten abstürzt, sondern auch der innere Betonzylinder des biologischen Schildes (s. o.) zerstört wird. Außerdem wird die Druckentlastung vom Ansprechen der Druckspeicher begleitet, wodurch die Kernfragmente und die Schmelze sofort geflutet werden.

Von diesem Zeitpunkt an sind die Verhältnisse ähnlich wie beim Niederdruckpfad nach der Flutung der Schmelze durch das Sumpfwasser. Das heißt: auch beim Hochdruckpfad hat man es dann längerfristig mit der Schmelze/Beton-Wechselwirkung zu tun, mit der Bildung von Wasserdampf, Wasserstoff, CO und CO₂, wie oben beschrieben.

2. Beschreibung der Experimente

Ausgehend von dem im vorigen Abschnitt beschriebenen Szenario eines Kernschmelzenunfalls wurde ein Versuchsprogramm durchgeführt, das folgende Zielsetzung aufwies:

1. Quantitative Bestimmung der Freisetzung der wichtigsten Spalt- und Aktivierungsprodukte aus hoch erhitzten Brennstäben und aus einer Kernschmelze;
2. Untersuchung der physikalischen und chemischen Eigenschaften der gebildeten Aerosole, von denen das Transport- und Ablagerungsverhalten der radioaktiven Stoffe im Primärkreis und im Sicherheitsbehälter abhängt;
3. Aussagen zur Spaltprodukt-Freisetzung während der Schmelze/Beton-Wechselwirkung;
4. Extrapolation der Versuchsdaten auf die integrale Freisetzung von Aktivität, Nachwärme und Aerosolmasse aus dem Brennstoff bzw. aus der Schmelze.

Ein wesentlicher Aspekt bei der Planung der Versuche bestand darin, die Randbedingungen für die Freisetzung so realistisch wie möglich zu wählen. Das bedeutete zunächst, daß Brennstoffproben mit einem hohen Abbrand (mindestens 20 GWd/t) und mit Zircaloy-Hülle zu verwenden waren. Vom Einsatz real bestrahlter Brennstoffproben wurde jedoch abgesehen, weil dann die Experimente nur in einer Heißen Zelle durchführbar gewesen wären. Zur Vereinfachung der Arbeitsbedingungen wurde daher sog. Fissium verwendet, ein künstliches Gemisch aus UO_2 und inaktiven bzw. schwach aktiven Spaltprodukten. Ferner sollte die Schmelze eine realistische Zusammensetzung aufweisen, d. h. sie sollte neben den geschmolzenen Brennstäben auch Anteile aus Stahl, Inconel und Regelstabmaterial enthalten. Als entscheidender Parameter für den Ablauf der thermodynamischen und chemischen Vorgänge war außerdem die Versuchs-Atmosphäre anzusehen, weswegen die Verwendung von Wasserdampf als unverzichtbar erschien.

Diese Überlegungen bildeten die Grundlage für die Konzeption und den Bau der beiden Anlagen SASCHA (Schmelzanlage für Proben mit schwacher Aktivität) und FIFA (Fissium Fabrikations Anlage), auf die im folgenden Abschnitt näher eingegangen wird.

2.1 Schmelzanlage SASCHA

Die Abbildungen 2 und 2 a zeigen ein Foto sowie eine Prinzipskizze der experimentellen Anordnung, die aus folgenden 3 Hauptkomponenten besteht:

- Hochfrequenzspule zur induktiven Aufheizung der Schmelzproben
- Ofenkessel als Behälter für die Hochfrequenzspule und den Schmelztiegel
- Transportstrecke mit Geräten zur Sammlung von Aerosolpartikeln und gasförmigem Jod sowie zur Überwachung der Hauptkenngrößen des Transportgases.

Der Hochfrequenzgenerator arbeitet bei einer Frequenz von 40 kHz, seine maximale Betriebsleistung beträgt 250 kW (brutto). Die Zuführungen zur einwindigen Hochfrequenzspule und die Spule selbst werden durch einen thermostatisierten Druckwasserkreislauf (130°C/10 bar) gekühlt. Die Leistungsregelung geschieht über einen stufenlos regelbaren Primärtransformator.

Im Inneren der Spule wird die Schmelztiegelanordnung montiert (vgl. Abbildung 2 b); sie besteht aus einem äußeren Schutztiegel aus Aluminiumoxid und einem inneren Schmelztiegel aus Thoriumoxid oder Zirkonoxid; der Zwischenraum ist zur Wärmeisolation mit ThO₂- bzw. ZrO₂-Gries gefüllt. Er enthält außerdem einen zylindrischen Suszeptor aus Wolfram, damit durch die Induktionsheizung ein möglichst gleichmäßiges Temperaturfeld im Schmelztiegel erzeugt wird. Der Ofenkessel ist doppelwandig ausgeführt und mittels eines Ölkreislaufes bis 145°C thermostatisierbar. Dies ist erforderlich, um bei einem Druck von 2 bar Versuche mit einer leicht überhitzten Wasserdampfatmosfera durchführen zu können. Im Deckel des Ofenkessels befindet sich zentral ein Fenster für die Messung der Schmelzguttemperatur mit einem außerhalb montierten Pyrometer. Dieses arbeitet als Quotientenpyrometer bei den Wellenlängen 500 nm und 580 nm, wodurch auch bei Streuung oder Schwächung der Strahlung durch Aerosolpartikeln eine recht genaue Temperaturbestimmung möglich ist (ca. ± 2 %).

Die Transportstrecke beginnt mit einem 4-Liter-Glaskolben, in den die aus dem Schmelzgut verdampften und wenige Zentimeter oberhalb rekondensierten Produkte eintreten. Diese Aerosolpartikeln werden mit dem Gasstrom (Wasserdampf, Luft oder Argon) über ein etwa 50 cm langes Glasrohr und einen Kugelhahn zu den Meßfiltern transportiert. Es handelt sich dabei um Glasfaserfilter der Fa. Sartorius von 100 mm Durchmesser. Sie werden zusammen mit einer gleich großen Edelstrahlfrütte als Stütze in quadratischen Edelstahlrahmen eingespannt und in eine automatische Filterwechselmaschine eingebaut. Das

Prinzip der Filterwechselmaschine hat gewisse Ähnlichkeiten mit dem eines Dia-Projektors, dessen Strahlengang hier dem Transportweg des Aerosolstromes entspricht. In einem gasdichten, beheizbaren Edelstahlgehäuse befinden sich 2 Filtermagazine, ein Vorratsmagazin für bis zu 50 frische, unbeladene Filter und ein Abstellmagazin für die beladenen Filter. Zwischen beiden befindet sich die Beaufschlagungsposition, in der die Filter für eine vorwählbare Zeit (12 sec bis 1000 sec) gasdicht eingeklemmt werden. Der Filtertransport in und zwischen den Magazinen erfolgt durch pneumatisch arbeitende Vorrichtungen und dauert ca. 0,2 sec für einen Filterwechsel. Stromabwärts hinter der Filterwechselmaschine folgen dann ein Manometer, ein Glasfaser-Kontrollfilter, ein Durchflußmesser und ein Jodfilter; letzteres besteht aus einem Stahlgehäuse mit einer Füllung aus silbernitratimprägniertem Silikagel (AC 6120) /7/. Außerhalb der Handschuhbox sind ferner ein Kondensator für den Wasserdampf, eine Pumpe und ein Überwachungsgerät für den H₂-Anteil im Abgas installiert.

Parallel zur Filterwechselmaschine kann durch Umschalten eines Ventils der Aerosolstrom durch ein Aerosolmeßgerät geleitet werden. Bei Schmelzversuchen unter Luft kommt eine Aerosolzentrifuge nach Stöber zum Einsatz, die sich durch ein besonders hohes Auflösungsvermögen der Partikelgröße auszeichnet. Für Versuche mit Wasserdampf von 130°C ist dieses Gerät jedoch nicht geeignet. Deshalb werden in diesem Fall zwei sog. Kaskadenimpaktoren verwendet, mit denen Aerosolproben bei zwei verschiedenen Temperaturstufen eines Versuches genommen werden können. Eine ausführliche Beschreibung der Aerosolmessungen und der entsprechenden Ergebnisse findet sich in dem Bericht KfK-3856 /8/; im vorliegenden Bericht wird daher auf diesen Teil der SASCHA-Versuche nicht näher eingegangen.

2.2 Schmelzgut

Das Schmelzgut besteht aus 200 - 250 g Corium, einer repräsentativen Mischung der Werkstoffe im Kern eines Druckwasserreaktors (vgl. Tabelle 1).

Tabelle 1: Zusammensetzung des Coriums (in % der Schmelzgutmasse)

UO ₂	35 - 40 %	(Brennstoff mit Spaltprodukten)
Stahl	40 - 50 %	(Strukturmaterial)
Zircaloy	15 - 20 %	(Hüllrohrmaterial)
Ag-In-Cd	ca. 2 %	(Steuerstabmaterial)
Inconel	ca. 3 %	(Abstandshalter)

Der Brennstoff ist ein synthetisches Abbrandgemisch, das als Fissium /9/ bezeichnet wird und das neben dem UO_2 bis zu 14 repräsentative Spaltproduktkomponenten enthält. Dabei sind alle wichtigen Spaltelemente selbst vorhanden oder durch homologe Elemente vertreten. Ihre chemische Form entspricht weitgehend derjenigen von Spaltprodukten in real bestrahltem Brennstoff, ihre Konzentration richtet sich nach dem vorgegebenen Abbrand, vgl. Tabelle 2.

Tabelle 2: Fissiumzusammensetzung für eine 100 g Charge und einen vorgegebenen Abbrand von 44 000 MWd/t Uran

Fissium I		Fissium II	
Komponente	Masse (mg) ^{a)}	Komponente	Masse (mg) ^{a)}
CsJ+Cs ₂ CO ₃	71,3+404,8	Ru	502,0
Mo	394,8	Nd ₂ O ₃	1111,1
Se	5,9	CeO ₂	405,8
Sb	2,5 ^{b)}	BaO	339,3
Cd	13,2	ZrO ₂	570,0
Te	69,6		
Sn	7,0		
Ag	7,4		

- a) Die angegebenen Massen werden mit UO_2 auf 100 Gramm aufgefüllt. Im Fissium I sind zusätzlich alle Komponenten des Fissium II enthalten, das Fissium II enthält (neben UO_2) jedoch insgesamt nur 5 Komponenten.
- b) Um eine bessere Verteilung des Sb im Brennstoff zu erreichen, wurde dieser Wert ab Versuch S-250 auf 15 mg erhöht.

Wie die Tabelle 2 zeigt, werden zwei unterschiedliche Fissium-Formen verwendet. In beiden Fällen werden aus der Pulvermischung von 100 g in einer Stempelpresse zunächst jeweils 18 Pellets à 5 g hergestellt. Die verbleibenden 10 g des Pulvers werden in 5 flache Plastikdosen abgefüllt. Durch nachfolgende Gamma-Spektrometrie der 5 Proben läßt sich sowohl die Homogenität der Pulvermischung als auch die Gesamtaktivität der 18 Pellets bestimmen, und zwar einfacher und wesentlich genauer, als wenn die Pellets selbst ausgemessen würden.

Die Fissium-I-Pellets werden direkt nach dem Preßvorgang zu je 6 Stück in rohrförmige Zircaloy-Kapseln von 7,2 cm Länge eingefüllt. Die Fissium II-Pellets werden dagegen zusätzlich für 2 h bei 1500°C unter 1 bar Argon gesintert. Da diese Pellets nur schwerflüchtige Spaltproduktzusätze enthalten, bleibt die Abdampfung während des Sinterns vernachlässigbar. Das läßt sich durch einen Aktivitätsvergleich von gesinterten und ungesinterten Fissium-II-Pellets und auch durch Wischttests im Innenraum des Sinterofens nachweisen.

Die verwendeten Zircaloy-Kapseln bestehen aus Original-DWR-Hüllrohren mit einem eingeschweißten Zircaloy-Boden. Die nachträglich aufgesetzten und mit den Kapseln verschweißten Deckel besitzen in der Mitte eine von innen angebohrte Spitze (vgl. Abb. 2 b), die sich unmittelbar vor einem Freisetzungsvorversuch mit einer Zange abtrennen läßt. Dadurch wird eine Druckausgleichsöffnung von 1,5 mm \varnothing freigelegt, die dazu dient, ein Platzen der Brennstoffkapseln während der Aufheizung zu vermeiden.

Zur Erleichterung der Elementanalyse nach den Freisetzungsvorversuchen sind die Fissiumkomponenten durch radioaktive Tracer markiert. Je nach der für die quantitative Analyse notwendigen Aktivität und den Besonderheiten der γ -Spektren (Linienintensitäten und Linienkoinzidenzen verschiedener Nuklide) sind das pro Versuch zwischen einem und sechs Nuklide.

Die Herstellung der Tracernuklide erfolgt entweder durch Aktivierung mit thermischen Neutronen oder, wie z. B. bei J-126, durch eine (n, 2n)-Reaktion mit schnellen Neutronen, die am Karlsruher Isochronzyklotron durch Beschuß eines Beryllium-Targets mit 52 MeV-Deuteronn erzeugt werden können.

2.3 Versuchsdurchführung

Nach der Einbringung des Schmelzgutes werden der Ofenkessel und das Transportsystem mit der gewünschten Atmosphäre geflutet, ein bestimmter Durchfluß eingestellt und die Leistung des Hochfrequenzgenerators hochgeregelt. Die wichtigsten experimentellen Parameter sind in Tabelle 3 zusammengefaßt.

Tabelle 3: Versuchsparmeter

Schmelzgutmasse	200 g bis 250 g
simulierter Abbrand	44 000 MWd/t Uran
Atmosphäre	Wasserdampf, Luft, Argon, Wasserdampf + Argon Wasserdampf + Wasserstoff
Gasdurchsatz	30 l/min
Druck	2 bar
Temperaturanstieg	50 bis 300°C/min

Mit einer vorgegebenen Temperaturanstiegsgeschwindigkeit wird das Schmelzgut hochgeheizt und je nach gewünschter Höchsttemperatur für Zeiten zwischen 5 Minuten und 1 Stunde auf konstantem Niveau gehalten. Die Filterwechselmaschine wird normalerweise automatisch betrieben mit einer Beaufschlagungsdauer von ein bis zwei Minuten für jeden Filter. Dadurch kann der zeit- und temperaturabhängige Freisetzungverlauf für alle Elemente bestimmt werden, die im Schmelzgut als radioaktive Tracer vorliegen.

2.4 Bestimmung von Freisetzungsraten

Nach jedem Freisetzungsversuch werden alle Teile der Transportstrecke und die beaufschlagten Filter ausgebaut. Die Nuklid-Aktivitäten der Niederschläge werden mit einem Ge(Li)-Detektor und einem Vielkanalanalysator mit 4096 Kanälen gemessen und anschließend mittels eines Computer-Programms ausgewertet. Die gesamte freigesetzte Aktivität A_S eines Nuklides ergibt sich dann zu

$$A_S = A_G + A_T + \Sigma A_F \quad (1)$$

wobei A_G = Aktivität auf der Innenseite des Glaskolbens
 A_T = Aktivität auf den Rohrteilen der Transportstrecke (Glasrohre, Ventil, Stahlrohre ...)
 A_F = Aktivität auf einem einzelnen Filter

Die Filterwerte A_F lassen sich dabei eindeutig der Zeit und der kontinuierlich gemessenen Temperatur des Schmelzgutes zuordnen. Um nun auch die Gesamtfreisetzung A_S als Funktion der Zeit darstellen zu können, wird aus den Endwerten von A_S und A_F ein Faktor β ermittelt

$$\beta = \frac{A_S}{A_F} , \quad (2)$$

der innerhalb eines Temperaturbereichs von einigen Hundert Grad unterhalb der Maximaltemperatur als temperaturunabhängig anzusehen ist. Mit diesem Faktor β und der Ausgangsaktivität A_0 für jedes Nuklid im Schmelzgut läßt sich der Zeitverlauf der relativen Freisetzung beschreiben durch

$$\frac{A_S(t)}{A_0} (\%) = \frac{100 \cdot \beta}{A_0} \cdot \Sigma A_F(t) \quad (3)$$

Die Plateaus konstanter Schmelzguttemperatur dienen vor allem auch zur möglichst genauen Bestimmung der Freisetzungsraten der einzelnen Elemente. Bei dieser Bestimmung geht man von folgender Gleichung aus

$$\frac{dA}{dt} = - k(T) \cdot A \quad (4)$$

die besagt, daß die pro Zeiteinheit freigesetzte Aktivität eines Nuklides (Elementes) durch zwei Größen bestimmt wird:

- eine element-spezifische und zugleich temperaturabhängige Größe $k(T)$, die man als Freisetzungsraten oder genauer als Freisetzungskoeffizient (fractional release rate coefficient) bezeichnet, sowie
- die zum betrachteten Zeitpunkt im Schmelzgut vorhandene Aktivität A des betreffenden Nuklides bzw. Elementes.

Die während eines längeren Zeitintervalles Δt bei konstanter Temperatur freigesetzte Aktivität ΔA ergibt sich aus (4) durch Integration zu

$$\Delta A = A_0 \cdot (1 - e^{-k(T) \cdot \Delta t}), \quad (5)$$

wobei A_0 die Aktivität zu Beginn des Zeitintervalls Δt bedeutet. Aus diesem Ausdruck folgt dann für $k(T)$:

$$k(T) = - \frac{1}{\Delta t} \ln \left(1 - \frac{\Delta A}{A} \right). \quad (6)$$

3. Freisetzung der leichtflüchtigen Spaltprodukte J, Cs und Cd

Bereits in der US Reactor Safety Study von 1975 /10/ wird für die Elemente J, Br sowie Cs, Rb unter Kernschmelzbedingungen eine Freisetzung von 80 - 100 % aus dem Brennstoff angenommen. Da eine Präzisierung dieser Aussage durch die SASCHA-Versuche von vornherein nicht zu erwarten war (allein der Unterschied von 6 Größenordnungen in der Geometrie verursacht bei der Extrapolation der Ergebnisse schon einen größeren Fehler als $\pm 10\%$), standen bei den Experimenten mit diesen Elementen folgende Fragen im Vordergrund:

- In welcher Weise hängt die Freisetzung von der chemischen Ausgangsform des Jods im Brennstoff ab und welche Rückschlüsse lassen sich ggf. auf die chemische Form während der Freisetzung ziehen?
- Welche qualitativen Merkmale zeigen J und Cs hinsichtlich Transport und Ablagerung in einer Wasserdampf-Atmosphäre bei $T \geq 120^\circ\text{C}$?
- Wie groß ist der Anteil des gasförmigen im Verhältnis zum aerosolförmigen Jod?
- Welche Aussagen lassen sich über die chemische Form des Jods in den Aerosolpartikeln machen, vor allem auch dann, wenn die Möglichkeit einer Reaktion mit dem aus den DWR-Regelstäben (Ag-In-Cd) verdampfenden Silber besteht?

Daneben wurde natürlich auch die Freisetzungs-Charakteristik ermittelt, d. h. die relative (auf das Inventar im Schmelzgut bezogene) Freisetzung als Funktion von Temperatur und Zeit.

3.1 Randbedingungen der Versuche

Bei den speziellen Versuchen zum Jod- und Cäsium-Verhalten wurden diese Elemente in folgenden chemischen Formen in das Fissium-I eingebracht: als Cs_2CO_3 und CsJ (vgl. Tabelle 2) und in einigen Fällen als HJO_3 , um auch für J eine zu CsJ alternative Ausgangsform im Brennstoff zur Verfügung zu haben.

Die Jodsäure (HJO_3) zerfällt schrittweise über das Anhydrid bis etwa 400°C in J_2 . Cs_2CO_3 zerfällt unter Abgabe von CO_2 und $1/2 \text{O}_2$ ab 610°C . CsJ ist über seinen Siedepunkt von 1280°C hinaus stabil; in einer Wasserdampf-Atmosphäre zerfällt es

nach Rechnungen mit dem SOLGASMIX Code /11/ bis 1600°C; der Stabilitätsbereich innerhalb des Brennstoffs kann jedoch davon verschieden sein.

Soweit nicht besonders vermerkt, wurden alle Versuche unter den in Tabelle 3 aufgelisteten Randbedingungen durchgeführt. Die Aktivität der verwendeten Tracer-Nuklide lag in der Regel zwischen 20 und 100 µCi. Weitere Angaben, besonders zur Herstellung der Tracer, sind der Tabelle 4 zu entnehmen.

Tabelle 4: Herstellung und Eigenschaften der im Fissium-I eingesetzten leichtflüchtigen Nuklide

Nuklid	Herstellung	Halbwertszeit	wesentliche γ -Linien (keV)
J-126	J-127 (n, 2n)	13,0 d	388,5
J-131	Te-130 ⁺ (n, γ) Te-131 → J-131	8,04 d	364,5
Cs-134	Cs-133 (n, γ)	2,06 a	795,8; 569,3; ...
Cd-115	Cd-114 ⁺ (n, γ)	44,8 d	527,9

+) Bestrahlung von TeO₂- bzw. Cd-Pulver mit natürlicher Isotopen-Zusammensetzung

3.2 Freisetzungskarakteristik

Als Beispiel für den Freisetzungsverlauf der Elemente Cd, Cs und J seien zunächst die Ergebnisse des Versuchs S-249 besprochen, vgl. Abbildung 3. Das Jod wurde in diesem Fall als CsJ eingesetzt, der Tracer J-131 lag im Brennstoff jedoch in der chemischen Umgebung des TeO₂ vor, vermutlich als elementares Jod.

Die Abbildung zeigt folgendes:

- a) Die Freisetzung von Cd erfolgt noch früher bzw. schneller als die von J und Cs. Sie ist bereits vollständig, wenn der Brennstoff nur für wenige Minuten eine Temperatur von 1700°C annimmt.

- b) Die Freisetzung von J und Cs setzt bei der hier gewählten Aufheizgeschwindigkeit von 130°C/min erst bei 1600 bis 1700°C ein und steigt dann rasch auf Werte zwischen 80 und 90 % an. Der Kurvenverlauf für beide Elemente ist dabei fast identisch. Die Freisetzung der letzten 20 % des Inventars erfolgt zunehmend langsamer.
- c) Die Freisetzungskoeffizienten nehmen deshalb aber nicht in analoger Weise ab, denn sie beziehen sich ja stets auf das noch vorhandene Restinventar eines Elementes und nicht wie die Kurvenpunkte auf das Anfangsinventar.

Für die integrale Freisetzung läßt sich aus diesem und einigen weiteren, erst später angeführten Fission-Versuchen die Feststellung treffen, daß für die Elemente J, Cs und Cd eine Freisetzung von mindestens 95 % zu erwarten ist, sofern die Brennstäbe für 15 min auf Temperaturen von 1800 - 2000°C aufgeheizt werden. Diese Aussage ist weitgehend unabhängig vom Temperaturverlauf während der Aufheizphase, und sie berücksichtigt auch die möglichen Meßfehler bei der Bestimmung der Schmelzgut-Temperatur. Ferner bestätigt sie in hinreichender Weise die oben zitierte Aussage der Reactor Safety Study, ohne daß dazu die bei einem Kernschmelzunfall auftretenden Temperaturen näher diskutiert werden müssen (diese liegen auf jeden Fall oberhalb von 2000°C).

3.3 Zur chemischen Form des Jods bei der Freisetzung aus dem Brennstoff

Bis heute gibt es erst wenige Aussagen darüber, in welcher chemischen Form das Jod bei Temperaturen von 1500 - 2000°C, die für seine Freisetzung maßgeblich sind, im Brennstoff vorliegt /12/. Insbesondere ist auch nicht bekannt, in welchem Umfang es mit dem in etwa 10fach höherer Konzentration vorhandenen Cäsium bereits im Brennstoff CsJ bildet.

Wir haben deshalb untersucht, ob sich bei verschiedenen chemischen Ausgangsformen von J und Cs im Fission bei der Aufheizung

- unterschiedliche Freisetzungsverläufe als Funktion der Temperatur ergeben, die für eine fehlende oder geringe Reaktion im Brennstoff sprechen, oder ob
- der Freisetzungsverlauf sich als unabhängig von der Ausgangsform erweist, so daß man auf eine starke chemische Reaktion unter Bildung des gleichen Endprodukts schließen kann.

Das Fissium enthielt bei diesen Versuchen das auch sonst verwendete Spaltproduktinventar (Zr, Mo, Ru, Ag, Cd, Sn, Sb, Te, Ba, Ce und Nd gemäß einem Abbrand von 44 GWd/t) sowie J und Cs in folgenden chemischen Formen:

- HJO_3 , ohne zusätzliches Cs
- Cs_2CO_3 , ohne zusätzliches J
- CsJ
- $\text{HJO}_3 + \text{Cs}_2\text{CO}_3$ mit $m_J : m_{\text{Cs}} = 1 : 3,4$.

In Abbildung 4 sind die Freisetzungskurven aus Versuchen mit den ersten drei der genannten Randbedingungen wiedergegeben. Es zeigt sich, daß beide Elemente bei 300 - 400°C höheren Temperaturen freigesetzt werden, wenn sie in Form von CsJ vorliegen, als wenn sich neben J kein Cs (Kurve A) bzw. neben Cs kein J (Kurve B) im Brennstoff befindet.

Das Ergebnis des 4. Versuches, in dem das Fissium HJO_3 und Cs_2CO_3 nebeneinander enthielt, zeigt die Abbildung 5. Hier kam es bis zu einer Temperatur von 1700°C schon zu einer 80 %igen Freisetzung beider Elemente, was fast genau den beiden Fällen A und B in Abbildung 4 entspricht.

Aus diesen Befunden lassen sich folgende Schlüsse ziehen:

- Die Freisetzungseigenschaft des elementaren Jods unterscheidet sich deutlich von der des CsJ.
- Die Anwesenheit von Cäsium neben elementarem Jod änderte dessen Freisetzungsverhalten nicht, d. h. während der insgesamt etwa 30 min dauernden Aufheizzeit bildete sich kein CsJ im Fissium.
- CsJ ist bis mindestens 1800°C eine im Brennstoff stabile Verbindung; anderenfalls wäre für beide Bestandteile bis 1800°C eine höhere Freisetzung als 20 % zu erwarten gewesen.
- Falls bereits zwischen 1800 und 2000°C ein thermischer Zerfall des CsJ eintritt, so ist es wegen des identischen Freisetzungsverlaufes beider Elemente unwahrscheinlich, daß sie im System Brennstoff/Hülle dann noch chemische Verbindungen mit anderen Partnern eingehen.

- Es ist jedoch möglich, daß ein Teil des CsJ direkt nach der Freisetzung aus dem Brennstoff thermisch zersetzt wird und erst dann wieder rekombiniert, wenn es in Bereiche mit Temperaturen unterhalb von 1500°C gelangt. Ein solches Verhalten würde den thermodynamischen Berechnungen entsprechen, die z. B. in NUREG-0772 /13/ für das System H-J-O-Cs durchgeführt wurden. Auch die in den Abschnitten 3.6 und 3.7 des vorliegenden Berichtes nachgewiesene AgJ-Bildung in der Gasphase spricht für die Annahme einer Dissoziation von CsJ bei hohen Temperaturen außerhalb des Brennstoffs.
- Ein Vergleich der in Abb. 4 dargestellten Freisetzungskurven mit den Aussagen von NUREG-0772 und den dort noch nicht berücksichtigten Versuchen von Osborne et al. /14/ lassen vermuten, daß die Kurven A und B eine unrealistisch hohe Freisetzung von Jod und Cäsium darstellen. Sogar die Kurve C liegt für Temperaturen unterhalb von 2000°C noch mindestens um einen Faktor 2 über der Kurve, die sich nach NUREG-0772 ergibt, wenn man die dort angegebene Temperatur-Abhängigkeit des Freisetzungskoeffizienten auf den Temperaturverlauf der SASCHA-Versuche anwendet. Es ist daher anzunehmen, daß das unter normalen Reaktor-Betriebsbedingungen gebildete Jod nicht über Wochen und Monate hinweg in elementarer Form verbleibt und deswegen entsprechend langsamer, d. h. erst bei höheren Temperaturen freigesetzt wird. Diese Überlegung muß jedoch nicht in gleicher Weise für die Isotope J-128, J-130, sowie J-132 bis J-135 zutreffen, die alle eine Halbwertszeit von weniger als 24 Stunden aufweisen. Wenn sie nämlich nach ihrer Entstehung noch bis zu einigen Stunden im atomaren Zustand vorliegen, so werden sie höchstwahrscheinlich mit einer anderen Temperaturabhängigkeit freigesetzt als z. B. J-131 oder J-129.

3.4 Ergebnisse zum Transport- und Ablagerungsverhalten von Jod und Cäsium in einer Wasserdampf-Atmosphäre bei 150 - 300°C

Das aus dem Brennstoff zunächst in gasförmigem Zustand freigesetzte Jod ist bei seinem Transport durch den Primärkreis zahlreichen chemischen und physikalischen Prozessen unterworfen, die das spätere Verhalten im Sicherheitsbehälter

entscheidend beeinflussen. Von Bedeutung ist z. B. die Frage, welcher Jodanteil durch Gasphasenreaktionen in leicht kondensierbare Verbindungen umgewandelt wird und dann in Form von Aerosolpartikeln ins Containment gelangt. Weiterhin möchte man wissen, in welchem Umfang sowohl die gasförmigen als auch die aerosolförmigen Jodspezies durch Reaktion oder Ablagerung im Primärkreis zurückgehalten werden können.

Versuche in der SASCHA-Anlage lassen wegen des starken Einflusses der Geometrie und der Thermohydraulik zwar keine quantitativ realistischen Antworten auf diese Fragen erwarten, dennoch lassen sich zumindest einige qualitative Aussagen ableiten, die zum Verständnis des Jodverhaltens im Primärkreis beitragen können.

Die Hauptkomponenten der Aerosol-Transportstrecke und die während der Versuche herrschende Temperaturverteilung sind der Tabelle 5 zu entnehmen. Die Tabelle 6 informiert über die chemische Form der eingesetzten J- und Cs-Verbindungen, über die Massenverhältnisse J-Cs-Ag und zeigen dann die J- bzw. Cs-Verteilung in der Transportstrecke.

Tabelle 5: Angaben zu den Komponenten der Aerosol-Transportstrecke

Komponente	Material	Länge (cm)	Oberfläche (cm ²)	Temperatur (°C)
Schmelztiegel	ZrO ₂ /ThO ₂	10	120	≤ 2250
Absaugglocke	Glas	ca. 30	1200	150 - 300
Absaugrohr	Glas	45	500	150 - 200
Rohre, Ventile	Edelstahl	40	500	150
Filterfritte	Edelstahl	0,3	28	150
Aerosolfilter	Glasfaser	-	28	150
Jodfilter *)	AC-6120	7	88 cm ³	150

*) Stahlrohr (NW40) mit einer Füllung aus amorpher AgNO₃-imprägnierter Kieselsäure

Tabelle 6: Verteilung von J und Cs in der Transportstrecke

Versuch Nr.	S-273	S-270b	S-276	S-270a
Chem. Form des J	HJO ₃	-	HJO ₃	CsJ
Chem. Form des Cs	-	Cs ₂ CO ₃	Cs ₂ CO ₃	CsJ
Ag-In-Cd	-	-	4,2 g	-
m _J : m _{Cs} a)	-	-	1 : 3,4	1 : 1
m _J : m _{Ag}	-	-	1 : 30	-
Verteilung des J (%) b)				
Glasglocke	2,5	-	14,1	18,5
Edelstahlteile	53,1	-	26,6	5,8
Glasfaserfilter	43,3	-	59,2	75,7
Jodfilter	1,1	-	0,1	< 0,1
Verteilung des Cs (%) b)				
Glasglocke	-	16,3	18,4	18,3
Edelstahlteile	-	13,6	4,4	3,6
Jodfilter	-	70,7	77,2	78,6

a) Massenverhältnisse in Mol

b) normiert auf 100 %

Die Ergebnisse der Versuche lassen sich wie folgt kommentieren:

- a) In Versuch S-273 war das sich thermisch zersetzende HJO₃ bis etwa 1600°C neben einem geringen Cadmium-Inventar die einzige Quelle für die Freisetzung von leichtflüchtigen Produkten. Weil die Chance für chemische Reaktionen mit anderen Freisetzungserzeugnissen bzw. für die Adsorption an Aerosolpartikeln während dieser Phase des Experiments noch gering war, blieb das meiste Jod nach Verlassen des Schmelztiegels zunächst in gasförmigem Zustand. Die Niederschläge auf der Glasglocke über dem Tiegel waren daher gering (insgesamt nur 2,5 %), die Rückhaltung auf den Stahloberflächen aufgrund von Chemisorption dagegen hoch (53,1 %). Der 43,3 %-Anteil auf den Glasfaserfiltern bestand hauptsächlich aus solchem Jod, das an Aerosolpartikeln adsorbiert war, die bei Temperaturen über 1600°C durch die Freisetzung aus dem Schmelzgut entstanden. Der noch verbleibende

gasförmige Anteil von 1,1 %, der auf das Jodfilter gelangte, läßt erkennen, daß schon während der kurzen Transportzeit von nur 2 sec (und einem Transportweg von nur ca. 1 m zwischen dem Tiegel und dem Jodfilter) fast alles gasförmige Jod aus der Atmosphäre der Versuchsanlage abgeschieden wurde.

- b) Im Versuch S-276 führte die Anwesenheit des Cs_2CO_3 und des Absorbermaterials im Schmelzgut zu einer wesentlich stärkeren Aerosolbildung und damit auch zu einer stärkeren Wechselwirkung des Jods mit partikelförmigem Material als in Versuch S-273. Die Folge davon war, daß die Abscheidung auf der Glasglocke und den Aerosolfiltern zunahm, während andererseits die Tendenz zur Chemisorption an den Stahloberflächen abnahm. Der gasförmige Jodanteil ging dabei noch weiter auf 0,1 % zurück.
- c) Im 3. Fall (S-270a) befand sich das meiste Jod offenbar schon frühzeitig in partikelförmigem Zustand. Die weitere Zunahme der Abscheidung auf der Glasglocke und der starke Rückgang des Jods auf den Stahlteilen sind ein Indiz dafür. Auch der 5,8 %-Wert für die Stahloberflächen ist wahrscheinlich zum Teil auf Aerosol-Ablagerungen zurückzuführen.
- d) Das Abscheidungsverhalten von Cäsium hing offenbar in viel geringerem Umfang von seiner chemischen Form im Brennstoff ab, als das bei Jod der Fall war. Besonders die Prozentwerte für die Niederschläge auf der Glasglocke und auf den Aerosolfiltern waren bei allen Versuchen sehr ähnlich. Bezüglich der Ablagerungen auf den Stahlteilen fällt der Wert von 13,6 % von Versuch S-270b aus der Reihe; dies liegt vermutlich an einer unzureichenden Dekontamination nach dem vorhergehenden Versuch. Ein Auftreten von gasförmigem Cäsium hinter den Aerosolfiltern kann ausgeschlossen werden, da sich in keinem Fall weder auf dem Jodfilter noch im Wasserdampf-Kondensat Spuren von Cäsium nachweisen ließen.

3.5 Ablagerungsversuche mit einem beheizten Stahlabsaugsystem (T = 300-800°C)

Um die Ablagerung von J und Cs auf Stahloberflächen auch bei höheren Temperaturen als 150°C zu untersuchen, wurde eine weitere Versuchsserie durchgeführt, bei der die Glasglocke (Volumen: 4 ltr) über dem Schmelztiegel durch ein etwa ebenso großes Absaugsystem aus Edelstahl ersetzt wurde. Dieses System

bestand aus 2 Schalen (vgl. Abbildung 6), die mit einem Spannring zusammengehalten und von außen mit einem punktwise angeschweißten Heizleiter auf Temperaturen bis ca. 900°C aufgeheizt werden konnte. Allerdings ließ sich keine während des ganzen Versuches konstante Temperatur einstellen, denn die Stahlglocke wurde nicht nur durch den Heizleiter, sondern mit zunehmender Aufheizung des Schmelzgutes auch durch dessen Wärmestrahlung und durch die Ankopplung an das Streufeld der Induktionsspule erhitzt. Zur Reduzierung der Wärmeabstrahlung nach außen war die obere Stahlglocke zusätzlich mit einem isolierenden Mantel aus Al₂O₃-Wolle versehen. In der Tabelle 7 sind für 2 Versuche sowohl die Temperaturen auf der Innenseite der Stahlglocke angegeben, als auch diejenigen Anteile der Gesamtfreisetzung, die als Ablagerungen auf der Stahlglocke gefunden wurden. Die Ergebnisse zeigen, daß die Ablagerungen von J und Cs im Vergleich zu denen auf einer 150 - 300°C heißen Glasglocke (vgl. Tabelle 6) um eine ganze Größenordnung geringer waren. Außerdem ist mit zunehmender Temperatur der Stahloberflächen eine weitere Reduzierung der Ablagerungen festzustellen, was sich mit dem abnehmenden Einfluß der Thermophorese auf die Abscheidung erklären läßt. Die Wasserlöslichkeit erwies sich bzgl. der J- und Cs-haltigen Niederschläge als hoch (≥ 90 %), bzgl. der Ag-haltigen Niederschläge jedoch als gering (≤ 10 %).

Tabelle 7: Ablagerungsanteile von J, Cs und Ag auf Stahloberflächen mit Temperaturen zwischen 300 und 800°C

Versuch	S-282	S-292
Atmosphäre	Ar + 5 % Wasserdampf	Wasserdampf
T _{max} (Schmelzgut, °C)	2470 ^{a)}	2000 ^{b)}
T (Stahlglocke, °C)	300 - 650	500 - 800
chem. Formen	HJO ₃ + Cs ₂ CO ₃	CsJ
Ablagerungsanteil ^{c)}		
J	0,5 (100)	0,2 (100)
Cs	1,3 (100)	0,5 (85)
Ag	7,1 (77)	0,33 (10)

a) 7 min auf T > 2350°C

b) 11 min auf T > 1800°C

c) Angaben in % vom Inventar, Zahlen in Klammern: integrale Freisetzung

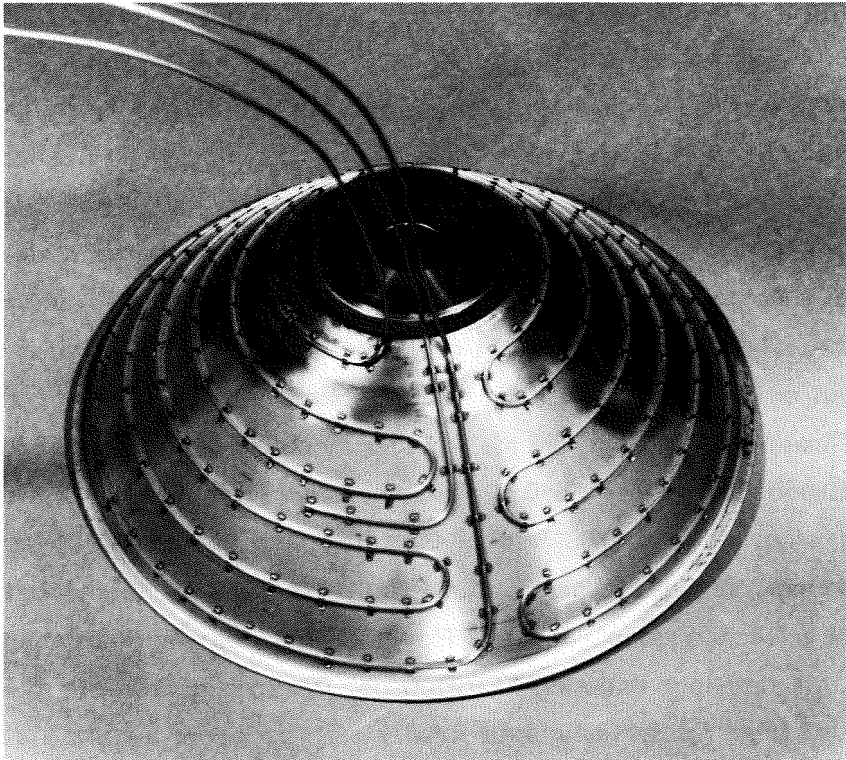


Abbildung 6: Oberteil des beheizbaren Stahlabsaugsystems

Wollte man diese Ergebnisse auf die Bedingungen im oberen Plenum des Reaktordruckbehälters übertragen, so wären dabei u. a. die Einflüsse der Thermohydraulik, der Größe und Beschaffenheit der für die Ablagerung in Frage kommenden Oberflächen sowie die tatsächlich zu erwartende Aerosoldichte zu berücksichtigen. Obwohl quantitative Untersuchungen dieser Art im Rahmen des SASCHA-Vorhabens nicht durchführbar waren, ergibt sich aus den beschriebenen Experimenten als qualitative Aussage, daß für die Elemente J und Cs nach der Freisetzung aus dem Brennstoff keine sicherheitstechnisch relevante Rückhaltung innerhalb des Reaktor-Druckbehälters zu erwarten ist.

3.6 Untersuchung der chemischen Form des Jods und anderer Spaltprodukte in den Aerosolpartikeln

Außer den Freisetzungsversuchen mit radioaktiven Tracern wurde auch ein Versuch mit inaktivem Fissium durchgeführt, um die Aerosolniederschläge auf den

Glasfaserfiltern anschließend mit Hilfe der Röntgen-Photoelektronen-Spektroskopie (XPS) zu untersuchen. Die Vorgehensweise und Ergebnisse, die in einem Bericht von H. Moers et al. /15/ ausführlich beschrieben sind, werden im folgenden kurz zusammengefaßt.

Aus 8 Filtern, die bei Schmelzgut-Temperaturen zwischen 1200 und 1900°C beaufschlagt waren, wurden jeweils kleine Stücke mit einer Fläche von ca. 1 cm² ausgestanzt und nach Montage in einem ESCALAB-5 Spektrometer (von Vacuum Generators) mit der K_α-Strahlung von Magnesium und Aluminium angeregt. Die Energieverteilung der dabei auftretenden Photoelektronen wurde mit hoher Auflösung (1,2 eV FWHM) gemessen. In einigen Fällen ging dieser Messung eine Sputterung mit Argon-Ionen voraus, um die Oberfläche der Proben zu reinigen bzw. um bei der Analyse auch tiefer liegende Aerosolschichten zu erreichen.

Es zeigte sich, daß die Aerosolpartikeln überwiegend aus folgenden Elementen bestanden: Ag, In, Cd, Cs, J, Te, O und C. Der Kohlenstoff wurde wahrscheinlich beim Präparieren und Umladen der Proben in Form von Kohlenwasserstoffen aus der Raumluft an der Oberfläche angelagert. Anhand von Parallelmessungen an hochreinen Vergleichsstandards ließ sich erkennen, daß das Jod hauptsächlich in Form von CsJ, zu einem kleineren Anteil aber auch als AgJ vorlag. Eine genaue quantitative Analyse von CsJ und AgJ war mittels XPS allerdings nicht möglich, da die gleichzeitige Anwesenheit von CsOH und metallischem Silber keine ausreichende Auflösung der Augerelektronenspektren zuließ. CsOH war die dominierende chemische Form des Cäsiums, da dieses im Fissium im Vergleich zu Jod in einer 10-fachen höheren Konzentration vorhanden war. Silber lag, abgesehen von dem AgJ-Anteil, nur in metallischer Form vor. Cadmium trat dagegen überwiegend als Hydroxid auf und Indium als Oxid. Tellur ließ sich wegen seiner niedrigen Konzentration im Schmelzgut und seiner geringen Flüchtigkeit im Vergleich zu den anderen genannten Elementen nur in 2 Aerosolproben nachweisen, und zwar in den beiden Formen Te und TeO₂. Weitere Details dieser Untersuchungen wurden in /16, 17/ publiziert.

3.7 Löslichkeitsversuche zum Nachweis der Bildung von AgJ

Die Reaktion des Silbers aus den DWR-Regelstäben mit dem Spaltjod, die zur Bildung des extrem wasserunlöslichen AgJ führt, könnte für das Jod eine sicherheitstechnisch bedeutsame Senke darstellen, wenn unter realistischen

Randbedingungen ein nennenswerter Anteil des Jods (z. B. 20 % des Inventars oder mehr) an dieser Umsetzung teilnehmen würde. Nach dem Transport in den Sicherheitsbehälter würde das AgJ 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 auch nach der Kondensation bzw. Deposition im Kontakt mit Wasser oder Wasserstoff wieder in gasförmige Verbindungen übergehen können und dann leichter aus dem Reaktorgebäude entweichen als die Aerosolpartikeln.

In einem DWR von 1300 MWel werden bei einem mittleren Abbrand von 20 GWd/t Uran ca. 15 kg Jod gebildet, während das Inventar an Silber in den Absorberstäben ca. 2 t beträgt. Für eine vollständige Bindung des Jods würden also nur etwa 1 % des Kerninventars an Silber benötigt.

Zur Untersuchung der AgJ-Bildung wurden in der SASCHA-Anlage 2 g Absorbermaterial Ag-In-Cd zusammen mit 3 Fissium-Brennstabprüflingen erhitzt, die insgesamt 340 mg Jod in Form von CsJ enthielten. Nach dem Versuch wurden zunächst die Freisetzunganteile an J, Cs, Ag und In auf den Filtern und den Oberflächen der Aerosol-Transportstrecke quantitativ analysiert (vgl. Abbildung 7). Anschließend wurde der Anteil an AgJ ermittelt, indem die Löslichkeit der Niederschläge in Wasser und in Natrium-Thiosulfat, $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$, bestimmt wurde. Der Arbeitsgang bestand dabei aus folgenden Schritten:

- 3maliges Waschen der Niederschläge auf den (hier 11) Glasfaserfiltern mit je 20 ml H_2O (dest) von 70°C,
- 3maliges Waschen der auf den Filtern verbliebenen wasserunlöslichen Niederschläge mit 20 ml einer 0,5 molaren $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ -Lösung von 50°C (das AgJ geht dabei durch Komplexbildung in Lösung),
- Ausfällen der gelösten Jod- bzw. Silberanteile in den jeweils 6 zu einem Filter gehörenden Filtraten mit AgNO_3 bei $\text{pH} < 3$,
- Gammaskopimetrische Bestimmung der Gehalte an J-126 und Ag-110m in den Filtraten,
- Umrechnung der Aktivitäten auf die entsprechenden mg-Anteile von J und Ag anhand der vom Schmelzgut her bekannten spezifischen Aktivitäten,
- Analoge Behandlung der Niederschläge auf dem Glaskolben und den Glasrohren, die den Anfang der Transportstrecke bildeten.

Im mittleren Teil der Abbildung 7 ist in den beiden mit Ag und J_{total} bezeichneten Kurven zunächst der Freisetzungsverlauf der beiden Elemente in mg dargestellt (die Punkte entsprechen den Filterwerten + einem jeweils proportionalen Anteil der Niederschläge auf den Glasteilen). Die untere Kurve entspricht der gefundenen Ausbeute an wasserunlöslichem Jod. Das Integral unter dieser Kurve, das $25 \pm 3\%$ des gesamten Jods beinhaltet, wird als AgJ-Anteil interpretiert, während der schraffierte Bereich zwischen den Kurven als CsJ anzusehen ist.

In zwei weiteren Experimenten zur AgJ-Bildung, die in /18/ ausführlich beschrieben sind, ergaben sich in einem Fall höhere, im anderen jedoch deutlich geringere Prozentwerte für den als AgJ vorliegenden Jodanteil. Zusammenfassend ist daher festzustellen:

- a) Am Auftreten von AgJ im Kernschmelzaerosol gibt es keinen Zweifel; dies wurde nicht nur indirekt durch die Löslichkeitsversuche mit H_2O und $Na_2S_2O_3$ nachgewiesen, sondern auch durch eine Analyse der Augerelektronen-Spektren, die man durch Röntgenanregung (XPS) der Aerosolproben erhielt.
- b) Für den integralen Anteil des als AgJ auftretenden Jods ließen 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 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 $1800^\circ C$), reagierten zwischen 15 und 80 % des Jods zu AgJ.

3.8 Diskussion der Bildungsmöglichkeiten von AgJ unter realistischen Randbedingungen

Die Übertragung der im vorigen Abschnitt beschriebenen Ergebnisse auf Reaktorbedingungen ist insofern mit starken Einschränkungen verbunden, als die im Reaktor zu erwartende Temperaturverteilung sowie die geometrie- und

zeitabhängige Entstehung von Schmelz- und Erstarrungsphasen im Schmelztiegel der SASCHA-Anlage nicht in realistischer Weise nachvollziehbar sind. Dazu gehört vor allem auch das Abschmelzverhalten der Steuerstäbe. Im "Realfall" wird nämlich das schmelzende Absorbermaterial größtenteils zwischen den Brennstäben herablaufen und dann unterhalb des Wasserspiegels erstarren. Der verdampfende Silberanteil, der dann für eine Gasphasenreaktion mit dem freigesetzten Jod zur Verfügung steht, ist dadurch natürlich geringer als in den SASCHA-Versuchen, wo das Silber nicht nach unten ablaufen kann (bei einem Versuch, diesen Effekt in einem speziellen Schmelztiegel wenigstens teilweise nachzuvollziehen, ergab sich die oben erwähnte AgJ-Bildung von nur 2 % /18/).

Dennoch gibt es eine Reihe von Aspekten, die bei einem Kernschmelzenunfall sogar 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 eine Kerndesintegration mit Schüttbett-Bildung ist hier der TMI-Störfall zu nennen). Das Restwasser wird nun den Hauptanteil des darin befindlichen Jods bis zu seiner vollständigen Verdampfung zurückhalten; das dadurch verzögert freigesetzte Jod trifft dann aber 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 /19/. 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.

4. Freisetzungsmessungen weiterer Elemente

Neben den bisher diskutierten Aspekten der Freisetzung von Jod, Cäsium und Cadmium werden in den folgenden Kapiteln die Freisetzungsergebnisse für 16 weitere Elemente beschrieben, die nach folgenden Kriterien ausgewählt wurden:

- Von den in ihrem chemischen Verhalten z. T. ähnlichen Spaltprodukten sollte jeweils mindestens ein Element erfaßt werden;
- die noch weitgehend unbekannte Freisetzung der Strukturmaterialien sollte gemessen werden, da diese beim Kernschmelzen den Hauptbestandteil der Aerosolmasse bilden und insofern das Transport- und Ablagerungsverhalten der freigesetzten Spaltprodukte in starkem Maße beeinflussen;
- die Brennstoff- und Transuranelemente sind sowohl wegen ihres Beitrags zur Aerosolmasse (U) als auch aus radiologischen Gründen (Np, Pu, Am, Cm) von Bedeutung; um den sicherheitstechnischen Aufwand zu begrenzen, mußten die Versuche allerdings auf den Einsatz von U und Np beschränkt bleiben;
- von den auszuwählenden Elementen sollten durch Aktivierung im Reaktor (oder ggf. im Zyklotron) geeignete Tracernuklide herstellbar sein; entscheidende Aspekte waren dabei die Aktivierungsquerschnitte, die Halbwertszeiten und die Gamma-Zerfallsenergien der entstehenden Nuklide.

4.1 Freisetzung von Te, Sb, Ag, Ba und Sr

Die in diesem Abschnitt zu diskutierenden Spaltprodukte sind als mittelflüchtig einzustufen, d. h. sie werden zwar nicht so schnell und weitgehend aus dem Brennstoff abgedampft wie J, Cs und Cd, doch auch bei ihnen ist unter Kernschmelz-Bedingungen mit Freisetzungen in einer Größenordnung von 1 - 50 % und darüber zu rechnen. Ferner hat sich gezeigt, daß besonders bei Te und Ba die Freisetzung in starkem Maße vom Wasserdampf-Angebot und damit vom Oxidationsgrad der Zircaloy-Hüllrohre abhängt. Dies wird anhand der nachfolgend beschriebenen Experimente deutlich, deren wichtigste Versuchsparameter in Tabelle 8 zusammengestellt sind.

Die 5 Versuche, in denen das Freisetzungsverhalten von Tellur ermittelt wurde, zeigten folgende Ergebnisse:

Tabelle 8: Versuchsparameter und Integralwerte für die Freisetzung der Spaltprodukte Te, Ba, Sb und Ag

Element	Versuch	Atmosphäre ^{*)}	Durchsatz (ltr/min)	T _{max} (°C)	Zeit(min) bei T _{max}	integrale FS(%)
Te	S-229	WD	10	1970	4	29,5
	S-249	WD	10	1850	14	34,6
	S-250	WD	30	2400	6	62,0
	S-281	Ar + 5 % H ₂	28 + 1,5	1900	20	3,7
	S-282	Ar + 5 % WD	28 + 1,5	2450	5	31,7
Sb	S-227	WD	10	1950	10	7,04
	S-232	WD	10	1900	17	1,84
	S-241	WD	10	2350	11	27,8
	S-250	WD	30	2400	6	30,2
	S-280	Ar + 5 % H ₂	28 + 1,5	2400	8	6,84
	S-282	Ar + 5 % WD	28 + 1,5	2450	5	18,9
Ag	S-229	WD	10	1970	4	52,5
	S-250	WD	30	2400	6	70,6
Ba	S-241	WD	10	2350	11	1,15
	S-260	WD	30	2400	14	0,11
	S-280	Ar + 5 % H ₂	28 + 1,5	2400	8	10,6
	S-283	Ar + 5 % WD	28 + 1,5	2350	7	8,65

*) in allen Fällen 2 bar; WD = Wasserdampf

Genauigkeit der Temperaturwerte: ± 100°C

relativer Fehler der integralen Freisetzung (FS): ± 10 % der Tabellenwerte

Bei Temperaturen unterhalb von 1800°C lag die Te-Freisetzung in der Größenordnung $\leq 10\%$, obwohl die Zircaloy-Hüllen durch die Oxidation und die Wechselwirkung mit geschmolzenem Stahl bzw. den Inconel-Abstandshaltern schon hinreichend geschädigt wurde, um bei anderen Elementen eine steil ansteigende Freisetzung zuzulassen (Abbildungen 3 und 8). Bei 2400°C erreichte die Tellur-Freisetzung nach 6 min einen Wert von ca. 50 %, der während der Abkühlphase noch auf über 60 % ansteigt, vgl. Abbildung 9.

Der Einfluß der Atmosphäre bzw. der Zircaloy-Oxidation wird durch Abbildung 10 deutlich: Unter Wasserdampf lag die Freisetzung etwa um den Faktor 5 höher als unter reduzierender Atmosphäre (Ar + 5 % H₂), obwohl dabei die Schmelzgut-Temperatur während der entscheidenden Versuchsphase um 200 - 400°C höher war. Bei Versuch S-282, in dem eine schwach oxidierende Atmosphäre vorlag, ergab sich ein "mittlerer" Freisetzungsverlauf zwischen den beiden zuvor betrachteten Fällen.

Damit zeigt sich, daß bei einer geringen bzw. ganz fehlenden Oxidation der Zircaloy-Hüllen die Te-Freisetzung durch eine Getterwirkung des metallischen Zircons behindert wird. Diese ist mit der Bildung von Zirkon-Telluriden (ZrTe₂, ZrTe₃) zu erklären, die das Te so lange an das Hüllrohr binden, bis sie bei zunehmendem Sauerstoffangebot zugunsten der ZrO₂-Bildung zerstört werden. Die Te-Freisetzung nimmt danach entsprechend dem relativ hohen Dampfdruck von Te/TeO₂ schnell zu, wie sich deutlich am Verlauf der Freisetzungskurve von Versuch S-249 (Abbildung 3) erkennen läßt. Dort wurde das Schmelzgut bis zu einer weitgehenden Oxidation der Hüllrohre auf 1700°C gehalten; obwohl die Temperatur dann nur um 150°C gesteigert wurde, stieg die Freisetzung innerhalb von 15 min von 10 % bis auf 35 % an.

Für die totale Oxidation der pro Versuch eingesetzten 50 g Zircaloy ist der Sauerstoffgehalt von 20 ltr. Wasserdampf (STP) erforderlich; die Oxidation setzt bei etwa 1200°C ein, führt aber je nach Aufheizgeschwindigkeit auch bei einem Dampfdurchsatz von 30 ltr/min und einem Druck von 2 bar oft erst gegen Versuchsende zu vollständig oxidierten Hüllrohren.

Wie die Abbildung 11 zeigt, kann ein geringes Wasserdampf-Angebot auch noch bei Temperaturen von 2400°C zu einer Verzögerung der Freisetzung führen. Dennoch erscheint es realistisch, für Kernschmelz-Bedingungen bis zum RDB-Versagen eine integrale Freisetzung von mindestens 30 % anzunehmen. Ein weiterer Anteil des Tellurs von 30 - 50 % wird während der nachfolgenden Wechselwirkung zwischen der Kernschmelze und dem Fundamentbeton freigesetzt (vgl. Abschnitt 6); auf diese Weise kompensieren sich die Unsicherheiten der Integralwerte vor und nach dem RDB-Versagen bis zu einem gewissen Grade.

Eine qualitativ ähnliche Abhängigkeit der Freisetzung vom Oxidationsgrad der Hüllrohre ergab sich auch für das Spaltprodukt Antimon. Die Abbildung 12 zeigt wieder die Freisetzungskurven für 2 unterschiedliche Atmosphären. Der Versuch S-280 läßt erkennen, daß unter schwach reduzierenden Bedingungen metallisches Zirkon auf Antimon einen ähnlichen Gettereffekt ausübt wie auf Tellur. In Abbildung 13 sind weitere Freisetzungskurven dargestellt, die hauptsächlich zur Bestimmung des Freisetzungskoeffizienten als Funktion der Temperatur dienen. Auf die entsprechenden Ergebnisse wird für alle untersuchten Elemente gemeinsam in Abschnitt 5 eingegangen.

Die Freisetzung des Spaltproduktes Silber ergibt sich aus den schon erwähnten Versuchen S-229 / S-250 sowie den zugehörigen Abbildungen 8 und 9. Sie zeigen, daß die relative Freisetzung von Silber im Temperaturbereich von 1800 bis 2400°C deutlich höher liegt als die von Tellur und Antimon. In radiologischer Hinsicht spielt das Spaltprodukt Silber wegen seiner geringen Spaltausbeute eine untergeordnete Rolle. Deshalb konzentrierten sich die weiteren Untersuchungen zu diesem Element auf die Freisetzung aus dem DWR-Regelstabmaterial Ag-In-Cd, vgl. Abschnitt 4.4.

Eine wesentlich größere radiologische Bedeutung kommt dagegen den Spaltprodukten Barium und Strontium zu, und zwar einerseits wegen des Isobarenpaares Ba-140/La-140 (hohe Ausbeute, sehr hohe Zerfallsenergie) und andererseits wegen der beiden Isotope Sr-89 (hohe Aktivität und Zerfallsenergie bei 50 d HWZ) und Sr-90 (hohe Ausbeute und lange HWZ von 28,5 a). Da von Sr kein geeignetes Tracernuklid für die Fissium-Proben herstellbar war, mußten die Freisetzungsergebnisse für Ba dazu dienen, entsprechende Aussagen für das homologe Element Sr abzuleiten.

In Abbildung 14 sind die Ergebnisse der beiden Versuche S-241 und S-260 zu sehen. Die integrale Freisetzung bei Versuchsende unterscheidet sich etwa um den Faktor 10, obwohl die Temperaturkurven einen sehr ähnlichen Verlauf aufweisen. Ein Unterschied bestand jedoch im Wasserdampf-Durchsatz und damit in der Oxidationsgeschwindigkeit der Zircaloy-Hüllen. Besonders auffällig ist, daß beide Freisetzungskurven in der Anfangsphase, d. h. noch vor Erreichen des Temperatur-Maximums die größte Steigung aufweisen. Das bedeutet: die Freisetzung von Ba findet im Ggs. zu derjenigen von Tellur hauptsächlich bei geringer Hüllrohr-Oxidation statt und geht mit zunehmender Oxidation selbst bei 2400°C auf Freisetzungsraten in einer Größenordnung unter 0.01 % pro min zurück.

Um diesen Befund zu erhärten, wurde ein Versuch mit geringerem Dampfdruck (S-283) und ein weiterer mit schwach reduzierender Atmosphäre (S-280) durchgeführt. Die Ergebnisse bestätigten die vermutete Tendenz; sie ließen sogar erkennen, daß bei völlig fehlendem Dampfangebot die Ba-Freisetzung bis auf 10 % ansteigen kann.

Zur Erklärung dieses Sachverhaltes ist die thermodynamische Stabilität, von BaO und ZrO₂ zu betrachten. In den Fissium-Proben liegt Barium entsprechend der Stöchiometrie in bestrahltem Brennstoff als Oxid vor. Als solches hat es unter Kernschmelz-Bedingungen einen so niedrigen Dampfdruck, daß eine sehr geringe Freisetzung (<<1 %) zu erwarten wäre. Da jedoch der Absolutwert der freien Bildungsenthalpie von ZrO₂ mit 816 kJ/mol O₂ bereits bei 1500 K höher ist als der von BaO mit 766 kJ/mol (Angaben nach P. E. Blackburn und C. E. Johnson /12/), liegt die Vermutung nahe, daß das Oxid durch metallisches Zirkon zu dem wesentlich stärker flüchtigen Ba-Metall reduziert wird. Sobald das Zircaloy aber eine hinreichend starke Oxidschicht aufweist, findet diese Reduktion nicht mehr statt und die Ba-Freisetzung geht zurück.

Ausgehend von der eben zitierten Arbeit läßt sich auch für das Spaltprodukt Strontium eine Aussage machen: hier liegt die freie Bildungsenthalpie des Oxids mit 887 kJ/mol O₂ höher als diejenige von ZrO₂, so daß in diesem Fall keine Reduktion zum metallischen Sr in Frage kommt. Damit sollte sich für Sr eine geringere Freisetzung ergeben als für Ba, zumal nach G. V. Samsonow /20/ auch der Dampfdruck von SrO deutlich geringer ist als von BaO.

Mit diesen Befunden /21/ konnte zugleich eine scheinbare Diskrepanz zu den Ergebnissen von G. W. Parker /22/ geklärt werden, der in seinen Versuchen bei geringem Wasserdampf-Durchsatz für Te stets eine sehr niedrige, für Ba dagegen eine relativ hohe Freisetzung (z. B. 6,6 %) gemessen hatte.

Bzgl. der Atmosphäre in einem LWR-Druckbehälter während eines Kernschmelzen-Unfalls sind hier noch folgende Überlegungen angebracht: Eine rein reduzierende Atmosphäre ist nur in Kernbereichen denkbar, die so weit oberhalb des Wasserspiegels liegen, daß der Wasserdampf in der dazwischen liegenden Zone quantitativ durch Oxidationsreaktionen verbraucht wird. Bevor der Wasserspiegel so weit abgesunken ist, haben diese Bereiche aber ebenfalls mit Wasserdampf in Kontakt gestanden, so daß sich auch dort eine Teiloxidation der Hüllen ausbilden konnte. Damit ist der Grenzfall einer Freisetzung aus Brennstäben mit noch völlig metallischen Hüllrohren, der in den Versuchen mit einer Ar + H₂-Atmosphäre gegeben war, für keinen Kernbereich eines LWRs als realistisch anzusehen. Er ist allenfalls bei solchen Reaktortypen denkbar, in denen eine prompt-kritische Leistungsexkursion mit einer transienten Temperaturerhöhung im msec-Bereich nicht auszuschließen ist.

4.2 Freisetzung von Mo, Ru, Zr, Ce, Nd, U und Np

Während es bei den bisher beschriebenen Untersuchungen über die leicht- und mittelflüchtigen Spaltprodukte möglich war, den Freisetzungsverlauf während eines Versuches durch mehrere Meßpunkte als Funktion der Zeit anzugeben, konnten für die nun zu behandelnden schwerflüchtigen Elemente in vielen Fällen nur integrale Ergebnisse ermittelt werden. Der Grund dafür liegt in der Tatsache, daß die in 2.1 beschriebene Filter-Wechselmaschine erst ab Versuch S-261 zur Verfügung stand. Andererseits reichte die Empfindlichkeit der bis dahin verwendeten On-line-Meßanordnung /3, 23/ für den Nachweis von geringeren Anteilen als 0,01 % der eingesetzten Tracer-Aktivitäten nicht aus, weil die aus der Tiegelwand austretenden Thorium-Folgeprodukte (z. B. Pb-212, Bi-212 und Tl-208) einen nicht eliminierbaren Untergrund an Gamma-Strahlung verursachten. Die Heizleistung der Versuchsanlage wurde daher so gesteuert, daß das Schmelzgut zwischen einer schnellen Aufheiz- und Abkühlphase für mindestens 5 min eine konstante Maximaltemperatur annahm.

Die Ergebnisse sind der Tabelle 9 sowie den Abbildungen 16 und 17 zu entnehmen. Die relative Genauigkeit der integralen Freisetzungswerte liegt bei diesen Versuchen bei etwa $\pm 30\%$. Eine zusätzliche Unsicherheit der Aussagen hängt mit den möglichen Fehlern bei den Temperaturangaben zusammen. Da sich das Schmelzgut erst dann auf einer einheitlichen Temperatur befand, als alle Bestandteile geschmolzen waren (bei 2400°C war das nach 5 - 6 min der Fall), ist es problematisch, schon vorher von einer repräsentativen Temperatur für den gesamten Tiegelinhalt zu sprechen. Für die Auswertung wurde daher stets ein Wert benutzt, der - soweit noch keine vollständige Schmelze vorlag - um 50°C niedriger war als die höchste im Tiegel registrierbare Temperatur. Da zusätzlich auch ein systematischer Fehler der Temperatur-Anzeige von ca. $\pm 30^\circ\text{C}$ zu berücksichtigen ist, erscheint es sinnvoll, als Summe aller Unsicherheiten bei den Temperaturangaben einen Wert von $\pm 100^\circ\text{C}$ anzunehmen.

Tabelle 9: Integrale Freisetzungsergebnisse für die schwerflüchtigen Spaltprodukte sowie für U und Np;

Atmosphäre: in allen Fällen 2 bar Wasserdampf

Durchsatz: S-228, S-240: 10 l/min, sonst 30 l/min

Element	Versuch	T _{max} (°C)	Zeit(min) bei T _{max}	integrale FS(%)
Zr	S-228	2400	11	0,01
Mo	S-240	2300	22	0,12
	S-261	2300	14,3	0,053
Ru	S-228	2400	11	0,0005
	S-240	2300	22	0,0002
	S-264	2450	6,5	0,0003
Ce	S-228	2400	11	< 0,004
Nd	S-240	2300	12	0,002
	S-253	2400	14	< 0,03
U	S-254	2400	10	0,22
Np	S-240	2300	22	0,015
	S-261	2300	14,3	0,012

4.3 Freisetzung von Cr, Mn, Fe, Co und Sn

Um mit der bisher verwandten Meßtechnik auch die Freisetzung einzelner Elemente der Strukturwerkstoffe Stahl und Zircaloy aus einer Kernschmelze untersuchen zu können, mußten zunächst geeignete Tracernuklide dieser Elemente hergestellt werden. Nachfolgend wird gezeigt, welche Überlegungen dabei eine Rolle spielten bzw. welche Maßnahmen für den Einsatz der einzelnen Tracer erforderlich waren.

Cr: Tracernuklid Cr-51 mit 27,7 d HWZ,

Herstellung durch Aktivierung von Stahlproben (W.St. 1.4541) mit thermischen Neutronen; Aktivitätsverhältnisse der wichtigsten gleichzeitig entstehenden Nuklide:

Cr-51 : Fe-59 : Co-60 : Mn-54 = 100 : 1,2 : 0,2 : 0,01

Mn: Tracernuklid Mn-54 mit 312 d HWZ,

Herstellung über Fe-54(n,p)Mn-54 mit therm. Neutronen (vgl. Cr);

Freisetzungsmessungen von Mn sind erst 6 - 8 Monate nach Bestrahlungsende möglich, wenn Cr-51 und Fe-59 weitgehend zerfallen sind

Fe: Tracernuklid Fe-59 mit 45,1 d HWZ,

Erzeugung durch Fe-58(n, γ)Fe-59, vgl. Cr

Co: Tracernuklide Co-60 und Co-58 mit 5,3 a bzw. 70,8 d HWZ,

Herstellung über Co-59(n, γ)Co-60, Ni-60(n,p)Co-60 und Ni-58(n,p)Co-58;

im 1. Fall werden Stahlproben aktiviert, die bis zum Versuch noch

4 - 8 Monate lagern müssen, vgl. Mn;

im 2. Fall wird Ni-Granulat aktiviert

Sn: Tracernuklide Sn-113 und Sn-117m mit 115 d bzw. 13,6 d HWZ,

Herstellung durch Aktivierung von 2 g Sn-Pulver;

(die Aktivierung von Zircaloy-Rohr, dessen Gehalt an Sn etwa 1,5 % beträgt, kommt nicht in Frage, da die erzielbare Sn-Aktivität im Vgl. zur erzeugten Zr-Aktivität zu gering ist);

bei der Aktivierung von Sn entstehen über Sn-113 und Sn-125 ferner die Nuklide In-113 und Sb-125, deren Freisetzungsverlauf in Versuch S-260 gut meßbar war, vgl. Abbildung 20.

Auf die Untersuchung der Freisetzung von Zr aus dem Hüllmaterial wurde verzichtet, weil von diesem schwerflüchtigen Element weder zur Aktivitäts-Freisetzung noch zur Aerosolbildung wesentliche Beiträge zu erwarten sind.

Tabelle 10: Integrale Freisetzung der Elemente Cr, Mn, Fe, Co und Sn aus einer Kernschmelze

Element	Versuch	T _{max} (°C)	Zeit(min) bei T _{max}	integrale FS(%)
Cr	S-240 ⁺⁾	2300	22	0,08
	S-253	2400	14	1,16
	S-270	2300	6	0,044
Mn	S-253	2400	14	17,7
	S-255	2350/2200	3/13	7,9
	S-270	2300	6	1,62
Fe	S-253	2400	14	1,64
	S-255	2350/2200	3/13	0,25
	S-259	2300	18	0,41
	S-270	2300	6	0,034
Co	S-240 ⁺⁾	2300	22	0,20
	S-253	2400	13	1,22
	S-259	2300	18	0,41
	S-270	2300	6	0,031
Sn	S-255	2350/2200	3/13	7,2
	S-260	2400	14	24,2

⁺⁾ Wasserdampf-Durchsatz: 10 l/min bei 2 bar
in allen anderen Fällen: 30 l/min bei 2 bar

Die Ergebnisse der Freisetzungsversuche sind in Tabelle 10 zusammengefaßt und in den Abbildungen 18 bis 21 als Funktion von Zeit und Temperatur dargestellt. Es zeigt sich, daß von den Stahlkomponenten die Elemente Cr, Fe und Co eine weitgehend ähnliche Abdampfcharakteristik aufweisen, während Mn jeweils um mindestens eine Größenordnung stärker freigesetzt wird. Im Fall von Cr, Fe und Co besteht vermutlich eine Abhängigkeit der Freisetzung vom Oxidationsgrad, wobei bemerkenswerterweise der Dampfdruck der Oxide bei Fe und Co höher, bei Cr jedoch geringer ist als der der Elemente. Dies läßt sich aus den jeweiligen Siedepunkten entnehmen, die in Tabelle 11 angegeben sind.

Tabelle 11: Siedepunkte der Stahlkomponenten und deren Oxide nach /20, 24/

	Siedepunkt (°C)			
	Cr	Fe	Co	Mn
Element	2672	2750	2870	1962
Oxid	3000	2512	2627	thermisch instabil
Form des Oxids	Cr ₂ O ₃	FeO	CoO	(MnO)

(Von dem hier nicht angeführten Ni ist ein ähnliches Freisetzungsverhalten zu erwarten wie von Fe; eine Oxidation von Ni ist wegen seines geringen Oxidationspotentials weitgehend auszuschließen).

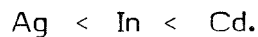
Die Prozentwerte für die integrale Freisetzung können daher je nach Zeit- und Temperaturverlauf eine unterschiedliche Rangfolge aufweisen. So wurde z. B. bei S-253 eine höhere Freisetzung von Fe als von Cr registriert, während dies bei S-270 aufgrund des geringeren Zeit/Temperatur-Integrals gerade umgekehrt war.

Die Freisetzung des Zirkaloy-Bestandteiles Sn liegt etwa in der gleichen Größenordnung wie die von Mn. Dies läßt sich mit hinreichender Sicherheit aussagen, obwohl der Sn-Tracer bei Versuchsbeginn als grobkörniges Pulver in einem Stahlrohr vorlag, also nicht als aktivierter Zirkaloy-Bestandteil. Bei Temperaturen von 2200 - 2400°C hatte sich jedoch längst eine Schmelze gebildet, in der Stahl, Zirkaloy und auch das geschmolzene Sn in realistischer Weise vermischt waren.

4.4 Freisetzung von Ag, In und Cd aus DWR-Steuerstäben

Einige Ergebnisse zur Freisetzung der 3 Steuerstabkomponenten Ag, In und Cd wurden bereits in den Abschnitten 3.3 und 3.7 dargestellt (Abbildungen 5 und 7), wo das Verhalten der leichtflüchtigen Spaltprodukte und die Möglichkeiten der AgJ-Bildung diskutiert wurden. Diese Ergebnisse sind gemeinsam mit den Befunden aus einigen weiteren Versuchen bei höherer Temperatur (Abbildung 22) in Tabelle 12 zusammengefaßt.

Als Rangfolge der Flüchtigkeit ergibt sich übereinstimmend in allen Versuchen



Bemerkenswert ist ferner, daß bei Temperaturen oberhalb von 2000°C alle drei Elemente zu mindestens 50 % freigesetzt werden. Bei einer Erhitzung sämtlicher Steuerstäbe eines DWR's der 1300 MW_{eI}-Klasse auf entsprechende Temperaturen wäre somit nach der Kondensation der Freisetzungserzeugnisse allein aus diesem Material mit einer Aerosolmasse von mindestens 1 t zu rechnen.

Beim Vergleich der Versuche S-279, S-281 und S-282 (Abbildung 23) zeigt sich auch für Silber eine gewisse Abhängigkeit der Freisetzung vom Wasserdampf-Angebot bzw. vom Oxidationsgrad der Zircaloy-Hüllrohre: Unter der schwach reduzierenden Atmosphäre von S-281 erfolgte die Freisetzung aus dem Tiegel deutlich verzögert im Vgl. zu den beiden anderen Versuchen. Maßgeblich dafür ist jedoch nicht eine unterschiedliche Abdampftrate des Silbers aus dem Regelstabmaterial, sondern die Rückhaltung (Getterung) von gasförmigem Silber an der Oberfläche der Zircaloy-Hüllen. Dies wird z. B. durch die Abbildung 24 illustriert, in der eine starke Silber-Abscheidung am oberen Ende der Hüllrohre erkennbar ist.

Ein Vergleich der Freisetzung des Silbers aus den Regelstäben mit derjenigen des Spaltprodukt-Silbers aus dem Brennstoff (vgl. Tabelle 8 sowie Abbildung 25) zeigt einige Unterschiede, die sich qualitativ sowohl mit den Konzentrationsverhältnissen als auch mit dem Aggregatzustand der Umgebung erklären lassen.

Tabelle 12: Integrale Freisetzung der Elemente Ag, In und Cd aus DWR-Steuerstäben

Element	Versuch	T _{max} (°C)	Zeit(min) bei T _{max}	integrale FS(%)
Ag	S-256	2000/2100	8,5/9	53
	S-258	2250	13	79
	S-276 a)	1900	3	44
	S-279 a)	2050	3	55
	S-281 b)	1900	20	18,5
	S-282 c)	2450	5	77
In	S-256	2000/2100	8,5/9	59
	S-258	2250	13	81
	S-276 a)	1900	3	63
	S-279 a)	2050	3	92
Cd	S-256	2000/2100	8,5/9	67
	S-258	2250	13	95
	S-276 a)	1900	3	99

- a) langsame Aufheizung mit 50°C/min
- b) Atmosphäre: Ar + 5 % H₂
- c) Atmosphäre: Ar + 5 % Wasserdampf

Als Spaltprodukte entstehen die wichtigsten Ag-Isotope mit Spaltausbeuten von 0,019 - 0,147 %; im Vgl. dazu liegen die Spaltausbeuten von Jod zwischen 0,125 % (J-127) und 2,89 % (J-131). Aufgrund der höheren Jod-Konzentration ist es somit denkbar, daß ein Teil des Silbers bereits innerhalb des Brennstoffs zu AgJ reagiert und dann in stärkerem Maße freigesetzt wird als metallisches Silber, weil es mit 1506°C einen wesentlich niedrigeren Siedepunkt aufweist (AG : 2212°C). Bei Temperaturen oberhalb von 2000°C, wo das meiste Jod freigesetzt ist, kommt dieser Effekt immer weniger zum Tragen. Dann bestehen sogar vergleichsweise günstigere Voraussetzungen für die Freisetzung des Silbers aus dem geschmolzenen Steuerstabmaterial als aus dem noch ungeschmolzenen Brennstoff.

Diese Überlegungen lassen sich zu folgenden Schlüssen zusammenfassen:

- Im Temperaturbereich von ca. 1600 - 2000°C wird Silber als Spaltprodukt aufgrund der möglichen AgJ-Bildung stärker freigesetzt als das Silber aus den Steuerstäben (vgl. auch Abbildung 26 in Abschnitt 5);
- bei Temperaturen oberhalb von 2000°C besteht eine zunehmende Tendenz zur stärkeren Freisetzung des Silbers aus den Steuerstäben, sofern nicht ein Abfließen des geschmolzenen Materials in Kernbereiche mit geringerer Temperatur (ggf. sogar ins Restwasser) erfolgt.

5. Zusammenstellung der ermittelten Freisetzungsraten und Vergleich mit anderen experimentellen Daten

Obwohl der Schmelzpunkt von reinem UO_2 bei 2800°C liegt, hatte sich bei vielen Freisetzungsvorsuchen gezeigt, daß durch eine chemische Wechselwirkung des Brennstoffs mit der Zircaloy-Hülle bereits bei Temperaturen ab 2200°C schmelzflüssige Brennstoffphasen auftreten, und daß z. B. Haltezeiten von 5 - 6 min bei 2400°C schon ausreichen, um das gesamte UO_2 im Tiegel zu schmelzen. Dieser besonders durch die Arbeiten von P. Hofmann et al. /25/ näher untersuchte Befund ist für den Ablauf von Kernschmelzen-Unfällen und für die Spaltprodukt-Freisetzung aus mehreren Gründen von Bedeutung:

- In der unteren Kalotte des Reaktordruckbehälters kann sich eine flüssige Brennstoffschmelze mit Temperaturen von 2200°C bis 2400°C ausbilden, die zum Versagen des RDB führt, bevor die Temperatur aufgrund mangelnder Nachwärme-Abfuhr weiter ansteigt. Der Wert von $T = 2400^\circ\text{C}$ bildet daher eine sinnvolle Obergrenze für eine repräsentative Kernschmelztemperatur.
- Da die Spaltprodukt-Freisetzung mit ansteigender Temperatur und, wie die amerikanischen PBF- und LOFT-Versuche gezeigt haben, besonders im Verlauf des Brennstoff-Schmelzens stark zunimmt, kommt es für die Ermittlung von Source Termen vor allem darauf an, daß im Temperaturbereich $2300 - 2400^\circ\text{C}$ möglichst genaue Freisetzungsraten bekannt sind.

Von diesen Überlegungen ausgehend wurden die im Abschnitt 4 beschriebenen SASCHA-Versuche hauptsächlich zur Bestimmung von Freisetzungsraten (bzw. Freisetzungskoeffizienten, vgl. Abschnitt 2.4) bei 2400°C durchgeführt und ausgewertet. Die Ergebnisse sind in Tabelle 13 zusammengefaßt. Sie beinhaltet einen Satz von Freisetzungskoeffizienten für nahezu alle relevanten Spalt- und Aktivierungsprodukte. Für J, Cs und Cd gilt jedoch folgende Einschränkung:

Aufgrund ihrer hohen Flüchtigkeit wurden diese Elemente bereits bei Temperaturen unterhalb von 2200°C weitgehend freigesetzt, so daß bei 2400°C keine Bestimmung der Freisetzungsraten mehr möglich war. Die Angabe $k > 0,5$ ist daher als relativ grobe Schätzung anzusehen, die auf der Extrapolation der Freisetzungsraten bei Temperaturen zwischen 1500 und 2000°C beruht.

Tabelle 13: Experimentell bestimmte Freisetzungsraten k [min^{-1}] bei 2400°C in einer Wasserdampf-atmosphäre

Element	k		Element	k
I, Cs, Cd	> 0,5	a)	Zr	10^{-5}
In	0,2	b)	U	$2 \cdot 10^{-4}$
Ag	0,14	c)	Np	10^{-5}
Te	0,071	c)	Fe	10^{-3}
Sb	0,043	c)	Cr	10^{-3}
Ba	10^{-4}	c)	Co	10^{-3}
Mo	10^{-4}		Mn	0,010
Ru	10^{-6}		Sn	0,014
Ce, Nd	10^{-5}			

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

Für die Elemente Te, Sb und Ag wurde auch die Temperaturabhängigkeit des Freisetzungskoeffizienten k im Bereich von $1900 - 2400^\circ\text{C}$ ermittelt. Die Ergebnisse sind zusammen mit den Werten für die anderen Spaltprodukte bei 2400°C in Abbildung 26 eingetragen. Diese Abbildung enthält auch zwei SASCHA-Ergebnisse für 2750°C , die in /26/ näher erläutert werden, sowie zum Vergleich eine von der US-NRC veröffentlichte Kurvenschar, die auf der Auswertung sämtlicher bis 1980 verfügbarer Freisetzungsergebnisse beruht. Wie man sieht, liegen die SASCHA-Daten für Te und Sb um einen Faktor 2 - 3 niedriger als die amerikanischen Kurven. Auch die Einzelergebnisse für Ba, Zr und Ru liegen deutlich, zum Teil sogar um mehr als 2 Größenordnungen unterhalb der US-Werte. Diese Unterschiede sind wie folgt zu kommentieren:

- Die US-Kurven beruhen teilweise auf älteren Experimenten mit Luft, Helium oder Argon als Versuchsatmosphäre oder mit Brennstoffproben ohne Zircaloy-Hüllrohr.
- Bei Erscheinen des NUREG-Reports war die in Abschnitt 4.1 erwähnte Abhängigkeit der Freisetzung vom Oxidationsgrad noch nicht bekannt; inzwischen besteht aber kein Zweifel daran, daß die US-Kurve für Ba nur für den Extremfall sehr schwach oxidierter Hüllrohre gilt, der für einen Kernschmelzen-Unfall mit langsam absinkendem Wasserspiegel jedoch nicht realistisch ist.
- Neuere Versuche von Parker /22/ und Osborne /27/ in Oak Ridge lieferten Ergebnisse, die auch wesentlich unterhalb der NUREG-Kurven liegen und damit die SASCHA-Werte weitgehend bestätigen.

Nun soll noch eine Begründung dafür angeführt werden, warum die Ermittlung der Freisetzungsraten bei den SASCHA-Versuchen weitgehend auf die Temperatur 2400°C beschränkt blieb: Sie liegt in der Verwendung von Fissium, also einem künstlich mit Spaltprodukten dotierten Brennstoff, der aufgrund seines Herstellungsverfahrens /9/ notwendigerweise gewisse Unterschiede zu Brennstoff mit einem echten Abbrand aufweist. Dies betrifft vor allem die radiale und axiale Spaltproduktverteilung, die Porosität, Korngrößenverteilung und auch die Dichte, also Eigenschaften, die die Spaltprodukt-Freisetzung bei niedrigen Temperaturen sowie während der Aufheizung bis zum Schmelzen beeinflussen können. Es ist aber offensichtlich, daß diese Eigenschaften nach dem Schmelzen entweder bedeutungslos werden (Porosität, Korngrößen) oder sich bei Fissium und echtem Brennstoff nicht mehr unterscheiden (Dichte, Spaltprodukt-Verteilung). Insofern sind realistische Freisetzungsergebnisse mit Fissium nur bei Versuchen mit weitgehendem bzw. vollständigem Brennstoffschmelzen zu erwarten, d. h. bei Temperaturen im Bereich 2300 - 2500°C.

Eine Interpretation der SASCHA-Ergebnisse mit analytischen Freisetzungsmodellen wurde u. a. in den Arbeiten von W. Breitung /28/, R. A. Lorenz /29/, C. D. Andriessie /30/ und J. L. Kelly et al. /31, 32/ durchgeführt, wobei sich besonders mit dem in /32/ benutzten Mass Transfer Model eine gute Übereinstimmung erzielen ließ.

6. Untersuchung der Spaltprodukt-Freisetzung während der Schmelze/Beton-Wechselwirkung

Wie bereits in der Einleitung geschildert wurde, ergießt sich eine im Reaktor-Druckbehälter gebildete Kernschmelze nach dessen Versagen auf die Betonstrukturen der Reaktorkaverne, wo sie in wenigen Minuten um mehrere Hundert Grad abkühlt. Die Wechselwirkung mit dem kalten Beton ist in der Anfangsphase sehr heftig: sie wird von einer starken Aerosol-Bildung, verspritzendem Schmelzgut und der Freisetzung von Gasen (H_2O , H_2 , CO , CO_2) begleitet, wobei natürlich auch Spaltprodukte aus der Schmelze abgedampft bzw. mitgerissen werden. Damit ergeben sich folgende Fragen:

- Werden die in der Schmelze verbliebenen leicht- und mittelflüchtigen Spaltprodukte jetzt vollständig freigesetzt?
- Kann der Kontakt der Schmelze mit dem Beton und der Luft des Sicherheitsbehälters dazu führen, daß ein Teil der schwerflüchtigen Spaltprodukte durch Oxidbildung in leichter flüchtige Produkte umgewandelt wird?

Da eine quantitative Beantwortung dieser Fragen nur unter realistischen geometrischen Randbedingungen möglich ist, wurde versucht, durch 2 Experimente mit Betontiegeln wenigstens einige qualitative Aussagen zu erhalten. Die Tiegel wurden gemäß der Spezifikation Bn 250 aus Portlandzement PZ 35, Kieszuschlägen mit einer Körnung bis zu 8 mm, einem Wasseranteil von 7 Gew.% sowie einer Lage Gittergewebe aus Glasfaser hergestellt. Zur Kontrolle des vertikalen Wärmeflusses wurden in den unteren Teil außerdem 2 Thermolemente eingebettet. Höhe und Durchmesser (vgl. Abbildung 27) wurden so gewählt, daß der Betontiegel zusammen mit einem äußeren Aluminiumoxid-Schutztiiegel noch in die größte für die SASCHA-Anlage verfügbare Induktionsspule (ID = 129 mm) hineinpaßte.

Das Schmelzgut bestand aus 3 Brennstab-Prüflingen, 120 g Stahl, 7 g Inconel und 2 g Regelstabmaterial Ag-In-Cd. Es befand sich in einem zusätzlichen Innentiegel aus ZrO_2 , dem zur Verringerung des Wärmeübergangs 3 UO_2 -Pellets unterlegt waren. Die Aufheizung erfolgte unter 1 bar Luft sehr schnell (mit 300 - 400 °C/min) bis auf eine Temperatur von ca. 2500°C. Dabei wurde die thermische Belastung des Innentiegels durch das inzwischen geschmolzene Corium so groß, daß die Schmelze den Boden durchbrach und in den noch relativ kalten

Betontiegel eindrang. Um ein schnelles Abkühlen zu vermeiden, wurde die Schmelze bis kurz vor Erreichen des unteren Thermoelementes noch weitere 8 min induktiv beheizt. Während des Aufschmelzvorganges bildete sich ein intensiver Aerosolstrom von Freisetzungprodukten, der in Zeitintervallen von 1 min auf den Filtern der Filterwechselmaschine gesammelt wurde.

Die Abbildung 28 zeigt zunächst einen Längsschnitt durch den Betontiegel des Versuchs S-277. Man sieht, daß der aufgeschmolzene Beton bis über den Tiegelrand aufquoll. Der oxidische Teil der Kernschmelze vermischte sich mit der Betonschmelze (Bildmitte), wodurch der metallische Teil nun die größere Dichte aufwies. Da der Stahl aufgrund der besseren Ankopplung an das Induktionsfeld außerdem am heißesten war, bildete er die vorderste Schmelzfront.

Die Ergebnisse der beiden Versuche S-267 und S-277 sind den Abbildungen 29 - 31 sowie der Tabelle 14 zu entnehmen.

Tabelle 14: Vergleich der Freisetzungsraten (in % min) bei verschiedenen Randbedingungen

Element	Schmelze/Beton in Luft (max. Rate)	Corium in Luft bei 2400°C	Corium in Wasserdampf bei 2400°C
Te	13,5	7,0	7,1
Ag	15,7	12,0	14,0
Sb	1,1	3,0	4,3
Mo	0,015	0,01	0,01
Ru	0,0014	0,002	< 0,0001

Die wichtigsten Befunde lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- a) Das Jod, von dem während der schnellen Aufheizphase noch ca. 20 % im Brennstoff verblieben war, wurde während der Beton-Wechselwirkung so gut wie vollständig freigesetzt. Ein analoges Verhalten ist auch von den Elementen Kr, Xe, Br, Rb, Cs und Cd zu erwarten.

- b) Die beiden Elemente Te und Ag wurden unter den vorliegenden Bedingungen fast ausschließlich während der Schmelze/Beton-Reaktion freigesetzt, und zwar Te zu 40 % und Ag zu ca. 60 %. Die Konsequenz daraus ist: Sollte die Freisetzung dieser Elemente vor dem RDB-Versagen infolge einer Getterung durch metallisches Zircaloy verhindert bzw. verzögert werden, so wird sie nach dem RDB-Versagen um so höher ausfallen. Diese Aussage, die bzgl. Te auch in dem US Code VANESA verwendet wird, erfuhren durch Experimente bei den Sandia Laboratories eine weitere Bestätigung /33/.
- c) Die Freisetzungsraten der Elemente Te, Ag, Sb und Mo lagen in der Anfangsphase der Reaktion mit dem Beton (bei Schmelzguttemperaturen um 2400°C) in der gleichen Größenordnung wie die maximalen Freisetzungsraten im RDB, vgl. Spalte 4 in Tabelle 14).
- d) Die Freisetzungsrate von Ru lag dagegen um über eine Größenordnung höher als die entsprechende Rate im RDB. Nach der heftigen Reaktion zu Beginn der Wechselwirkung nahm sie auch nicht so schnell ab wie bei Te und Sb. Es ist daher denkbar, daß ein geringer Anteil des metallischen Ru zu dem leichter flüchtigen RuO₂ oxidiert wurde, während bei Mo kein Anzeichen für eine entsprechende Oxidation zu MoO₂ festzustellen war. Insgesamt lassen die niedrigen Integralwerte für die Freisetzung beider Elemente (Ru: 0,009 %, Mo: 0,08 %) nur geringe Beiträge zur aerosolförmigen Radioaktivität im Sicherheitsbehälter erwarten.
- e) Eine quantitative Analyse der Filterniederschläge des Corium/Beton-Aerosols mittels ICP ergab, daß diese zu 30 - 40 % aus SiO₂ bestanden, sowie zu je 6 - 12 % aus MnO₂, Al₂O₃, FeO und UO₂.

7. Anwendung der Ergebnisse

7.1 Berechnung der integralen Aktivitäts- und Nachwärme-Freisetzung aus dem Kern

Im folgenden wird am Beispiel des Niederdruckpfades eines Kernschmelzenunfalls zunächst beschrieben, wie man mit Hilfe der experimentell bestimmten Freisetzungsraten die integrale Aktivitätsfreisetzung aus dem Kern berechnen kann. Dabei wird von einer mittleren Temperatur ausgegangen, die sich auf die nicht mehr vom Kühlwasser bedeckten Teile des Kerns bezieht. Wie die Abbildung 32 zeigt, erreicht diese Temperatur etwa 100 min nach Störfalleintritt (Blowdown) ein erstes Maximum von 2200°C. Während der ersten Aufheizphase treten durch das Schmelzen der Abstandshalter und der Regelstäbe sowie aufgrund der Brennstoff/Hüllrohr-Wechselwirkung schon ab 1300°C Schmelzphasen auf, die sich in einer Art Stop-and-Go Prozeß auf die Kerntirageplatte zubewegen. Das heißt: die flüssigen Phasen laufen innerhalb oder außerhalb der Stabhüllen nach unten, erstarren zwischenzeitlich und schmelzen wieder auf, wenn der Wasserspiegel weiter fällt. Bei Erreichen der Temperatur 2200°C sind ca. 80 % des Kerns geschmolzen /34/. Zu diesem Zeitpunkt ist mit dem Versagen der Kerntirageplatte und dem Absturz des Kernmaterials in die untere RDB-Kalotte zu rechnen, vgl. auch Abschnitt 1. Innerhalb von 30 - 40 min verdampft auch das dort befindliche Restwasser, so daß sich das vorübergehend abgekühlte Kernmaterial erneut aufheizt, bis schließlich bei ca. 2400°C der Druckbehälter versagt.

Zur Berechnung der integralen Freisetzung wurden die beiden Aufheizphasen durch 2 Zeitintervalle von je 15 min Dauer bei 2200 und 2400°C ersetzt. Aus Abbildung 32 wird deutlich, daß durch dieses Vorgehen die Gesamtfreisetzung eher über- als unterschätzt wird. Das gilt besonders auch deshalb, weil die beiden Intervalle auf die gesamte Kernmasse bezogen werden.

Anhand der in Abschnitt 2.4 angegebenen Gleichungen läßt sich die integrale Aktivitäts-Freisetzung für jedes Element (Nuklid) berechnen nach

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

wobei k_{2200} und k_{2400} die für 2200 und 2400°C gültigen elementspezifischen Freisetzungsraten bedeuten. Die Werte für k_{2400} sind der Tabelle 13 zu entnehmen und diejenigen für k_{2200} den Arrhenius-Geraden in /32/ (Anhang).

Tabelle 15 zeigt das Ergebnis einer Rechnung für die Aktivitätsfreisetzung, die sich aus der Betrachtung 12 verschiedener Gruppen von Spaltprodukten und Aktivierungsprodukten des Brennstoffs ergibt.

Tabelle 15: Aktivitätsfreisetzung bis zum RDB-Versagen

Elemente	Inventar ^{a)}		Freisetzung ^{b)}		Anteil d. gesamten Freisetzung (%)
	Aktivität (Ci)		rel.(%)	abs. (Ci)	
Kr, Xe	3.97	E8	100	3.97 E8	
J, Br	6.96	E8 c)	100	6.96 E8	
Cs, Rb	9.76	E7	100	9.76 E7	99.8
Te	2.54	E8	80	2.03 E8	
Sb	4.40	E7	53	2.33 E7	
Sr, Ba	5.58	E8	0.2	1.12 E6	
Mo, Tc	3.44	E8	0.2	6.88 E5	
Ru, Rd, Pd	5.45	E8	0.002	1.09 E4	
Y, Zr, Nb	12.87	E8	0.02	2.57 E5	0.2
La, Ce, Pr, ...	14.09	E8	0.02	2.81 E5	
U	1.19	E8	0.4	4.76 E5	
Np, Pu, Am, ...	19.69	E8	0.02	3.94 E5	
Summe	77.166	E8		14.20 E8	100

- a) nach dem ORIGEN-2 Code /35/ für 101,6 t Uran und 10/20/30 MWd/t Abbrand für je 1/3 des Kerns, Aktivitätswerte 2 h nach Reaktor-Abschaltung
- b) berechnet für 2 Zeitintervalle von je 15 min bei 2200 und 2400°C
- c) davon J-131: 9.89 E7 Ci

Aus der letzten Zeile der Tabelle geht hervor, daß nach 2 Stunden insgesamt 18,4 % des radioaktiven Inventars aus dem Kern freigesetzt werden; der weitaus größte Anteil davon, nämlich bei 18,3 %, entfällt auf die 8 leichtflüchtigen Elemente der ersten 5 Gruppen der Tabelle. (Die Aktivitätsfreisetzung aus den aktivierten Strukturmaterialien wurde hier ganz vernachlässigt, da der entsprechende Beitrag höchstens in der Größenordnung von $1 \cdot 10^5$ Ci liegt.)

Tabelle 16 zeigt einen Vergleich von Tabelle 15 mit den Aussagen der amerikanischen Sicherheitsstudie WASH-1400 /10/.

Tabelle 16: Vergleich der berechneten Integralwerte mit WASH-1400

Element	Freisetzung bis zum RDB-Versagen (%)	
	WASH-1400	PNS *)
Kr, Xe	90	100
J, (Br)	100	100
Cs, (Rb)	81	100
Te, (Se)	15	80
Sb	15	53
Sr, Ba	10	0,2
Mo, Tc	3	0,2
Ru, Rh, Pd	3	0,002
Y, Zr, Nb	0,3	0,02
La, Ce, Pr, ...	0,3	0,02
Np, Pu, Am, ...	0,3	0,02

*) berechnet für 2 Zeitintervalle von je 15 min Dauer bei 2200 und 2400°C

Wie diese Tabelle zeigt, sind die Unterschiede bei den leichtflüchtigen Elementen relativ gering, abgesehen von den Aussagen für Tellur, die sich aber mit der Abhängigkeit der Freisetzung vom Oxidationsgrad erklären lassen. Bei den mittel- und schwerflüchtigen Elementen liegen die amerikanischen Aussagen um mindestens eine Größenordnung höher. Das ist vor allem auf die in WASH-1400 benutzte (aber inzwischen revidierte /36/) Annahme zurückzuführen, daß die Kerntemperatur vor dem RDB-Versagen bis auf Werte $\geq 2800^\circ\text{C}$ ansteigt.

Freigesetzte Nachwärmeleistung: Analog zu Tabelle 15 wurde auch berechnet, in welchem Umfang die Freisetzung der Spaltprodukte bzw. der Aktivierungsprodukte des Brennstoffs mit dem Austrag von Nachwärmequellen verbunden ist.

Tabelle 17: Freisetzung von Nachwärmequellen bis zum RDB-Versagen

Elemente	Inventar *)		Freisetzung		Anteil d. gesamten Freisetzung (%)
	Nachwärme (W)		rel. (%)	abs. (W)	
Kr, Xe	1.42	E6	100	1.42 E6	
J, Br	7.40	E6	100	7.40 E6	
Cs, Rb	1.46	E6	100	1.46 E6	99.9
Te	1.11	E6	80	8.88 E5	
Sb	4.94	E5	53	2.62 E5	
Sr, Ba	2.92	E6	0.2	5.84 E3	
Mo, Tc	7.54	E5	0.2	1.51 E3	
Ru, Rd, Pd	1.61	E6	0.002	3.22 E1	
Y, Zr, Nb	7.24	E6	0.02	1.45 E3	0.1
La, Ce, Pr, ...	8.60	E6	0.02	1.72 E3	
U	2.71	E5	0.4	1.08 E3	
Np, Pu, Am, ...	4.86	E6	0.02	9.72 E2	
Summe	38.14	E6		11.44 E6	100

*) Berechnung analog zu Tabelle 15 für $t = 2$ h nach Reaktor-Abschaltung

Aus der letzten Zeile ist zu entnehmen, daß mit den Spaltprodukten eine integrale Wärmeleistung von etwas über 10 MW aus dem Brennstoff freigesetzt wird, das sind 30 % der radioaktiven Zerfallswärme ($\beta + \gamma$) zum Zeitpunkt 2 Stunden nach Reaktor-Abschaltung. 2/3 dieser Leistung entfallen dabei auf die Jod-Isotope, und zwar hauptsächlich auf J-132, J-133, J-134 und J-135. Insgesamt kommt die Freisetzung der Nachwärmequellen wie diejenige der Aktivität fast ausschließlich durch die leichtflüchtigen Elemente zustande (letzte Spalte der Tabelle).

7.2 Berechnung der gebildeten Aerosolmasse

Sobald die Freisetzungserzeugnisse den hoch erhitzten Kernbereich verlassen, bilden sich durch Kondensation und nachfolgende Koagulation Aerosolpartikeln, die dann im Wasserdampfstrom zum Leck im Primärsystem und schließlich in den Sicherheitsbehälter transportiert werden. Die Ermittlung des Sourceterms, d. h. der in die Umgebung gelangenden Radioaktivität, erfordert nun eine möglichst genaue Beschreibung des Transport- und Ablagerungsverhaltens der Aerosolpartikeln innerhalb des Reaktorgebäudes. Eine wesentliche Eingangsgröße dafür bildet die Gesamtmasse des Aerosolsystems, das sowohl aus den radioaktiven Spalt- und Aktivierungsprodukten als auch aus einer Vielzahl von stabilen bzw. sehr langlebigen Freisetzungserzeugnissen aus der Schmelze besteht.

Zur Bestimmung der Aerosolmasse ist zunächst das in die Kernschmelze eingehende Masseninventar des Kerns zu betrachten. Es setzt sich gemäß Tabelle 18 aus folgenden Werkstoffen zusammen:

Tabelle 18: Zusammensetzung der Kernschmelze eines DWR vom Typ Biblis B mit 1300 MWel

Brennstoff (UO ₂)	115	t
Zircaloy (zu 50 % oxidiert)	35	t
Stahl	30	t
Inconel	1,7	t
Regelstäbe (Ag-In-Cd)	2,3	t

Zur Freisetzungsberechnung wird die Annahme verwendet, daß sich die Kernschmelze für 15 min auf einer Temperatur von 2400°C befindet. Das in Abbildung 32 dargestellte erste Temperaturintervall von 15 min bei 2200°C wird nur für den Massenbeitrag der leichtflüchtigen Spaltprodukte berücksichtigt, denn die aus den Regelstäben und den Abstandshaltern gebildete Schmelze wird größtenteils bis zur unteren Gitterplatte herablaufen und wieder erstarren, bevor dieses Material eine Temperatur von 2200°C annehmen kann. Ebenso wird auch der geschmolzene Stahl erst nach dem Kernabsturz und der Restwasserverdampfung wesentlich zur Freisetzung und Aerosolbildung beitragen.

Analog zur Berechnung der freigesetzten Aktivität ergibt sich die relative Massenfreisetzung gemäß

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

wobei m das Inventar der einzelnen Elemente bedeutet (vgl. Tabelle 18).

Das Ergebnis der Rechnung ist in Tabelle 19 wiedergegeben. Bei Berücksichtigung der chemischen Form der Freisetzungserzeugnisse ergibt sich eine Partikelmasse von ca. 3,5 t. Aus den im nächsten Abschnitt erläuterten Gründen stellt dieser Wert sicherlich eine Obergrenze dar. Um auch eine Aussage über eine Untergrenze und damit über den möglichen Schwankungsbereich anzugeben, kann man folgende Plausibilitätsbetrachtung durchführen:

Als realistisch erscheint zunächst der Massen-Beitrag des sehr flüchtigen Elements Cadmium (131 kg) sowie derjenige der 6 Spaltelemente im unteren Teil der Tabelle 19 (zusammen 256 kg). Wenn man weiterhin annimmt, daß von den Elementen Mn, Sn, Ag und In, deren Siedepunkte sämtlich unter 2300°C liegen, nur 10 % freigesetzt werden, so ergeben sich insgesamt bereits 713 kg, ohne daß z. B. ein Beitrag von UO₂, Fe oder Cr berücksichtigt wurde. Ein unterer Grenzwert für die Aerosolmasse liegt somit bei mindestens 700 kg.

Tabelle 19: Zusammensetzung und Masse des bis zum RDB-Versagen gebildeten Aerosols (lineare Extrapolation der SASCHA-Ergebnisse)

Element	Inventar		Freisetzung	
	Masse (kg)		relativ (%)	absolut (kg)*)
U	101 600		0.3	345
Fe	21 300		1.5	411
Cr	5 750		1.5	126
Ni	4 000		1.5	60
Mn	450		14	87
Zr	30 350		0.015	6
Sn	350		19	84
Ag	1 850		88	1 628
In	350		95	332
Cd	115		100	131
Se	3		81	2
Rb	22		100	22
Cd	5		100	6
Te	37		80	30
I	18		100	18
Cs	178		100	178
	166 000			3 464

*) Es wird angenommen, daß die Freisetzungsprodukte zu 100 % in den folgenden Oxidformen vorliegen: UO_2 , FeO , Cr_2O_3 , Mn_3O_4 , ZrO_2 , SnO_2 und CdO

7.3 Diskussion des Realitätsgrades der Ergebnisse

Es gibt sicher eine Reihe von Unsicherheitsfaktoren, die außer den üblichen Meßfehlern in die berechneten Integralwerte für die freigesetzte Aktivität, Nachwärmeleistung und Aerosolmasse eingehen. Besonders zu nennen ist dabei der Einfluß der Extrapolation der Ergebnisse aus den Laborexperimenten mit ca. 200 g Schmelzgut auf einen Reaktorkern mit einer Masse von nahezu 200 t. Daneben spielen aber auch folgende Einflüsse eine Rolle:

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

Da es vermutlich aussichtslos ist, diese Punkte in realistischer Weise zu berücksichtigen, soll nun versucht werden, die mögliche Fehlerbreite der Integralwerte mit einigen einfachen Überlegungen abzuschätzen. Im vorigen Abschnitt wurden bereits obere und untere Grenzwerte für die Aerosolmasse angegeben; wenn man daraus eine wahrscheinliche Masse von 1600 kg ableitet, so kann dieser Wert vermutlich bis auf einen Faktor 2 nach oben und unten als realistisch angesehen werden.

Für die Aktivitäts- und Nachwärmefreisetzung erhält man - wie im folgenden gezeigt wird - eine Unsicherheit von nur etwa $\pm 10\%$. Dazu betrachten wir zunächst die leichtflüchtigen Spaltprodukte: Sie werden hauptsächlich im ersten der beiden Zeitintervalle von 15 min Dauer bei 2200°C freigesetzt, genau genommen sogar schon bei deutlich niedrigeren Temperaturen. Unter diesen Bedingungen sind die Brennstäbe noch weitgehend ungeschmolzen, und deshalb spielt es für das Oberflächen/Volumen-Verhältnis keine wesentliche Rolle, ob die Freisetzung aus 30 000 Stäben von 4 m Länge oder aus 3 Stäben von 7 m Länge erfolgt wie bei den SASCHA-Versuchen. Für das integrale Ergebnis hat auch eine inhomogene Temperaturverteilung im Kern (axial und radial) oder die physikalische Struktur eines Brennstoffs mit simuliertem Abbrand keine entscheidende Bedeutung. Der Dampfdruck dieser Elemente ist nämlich so hoch, daß sie spätestens dann in der angegebenen Weise freigesetzt werden, wenn der Brennstoff schmilzt und die für einen echten Abbrand typischen Festkörpereigenschaften ohnehin verloren gehen.

Eine wesentliche Überschätzung der Freisetzung der leichtflüchtigen Spaltprodukte kommt daher nur in Frage, wenn bei einem Kernschmelzenunfall größere Teile des Kerns gar nicht am Abschmelzprozeß teilnehmen. Diesen Fall sollte man jedoch ausschließen, wenn man das Ziel verfolgt, eine "Einhüllende" für die Freisetzung zu ermitteln, die für möglichst viele Varianten eines Kernschmelzenunfalls gilt. Genauso wenig besteht aber auch die Gefahr einer generellen Unterschätzung der Freisetzung, denn die in den Tabellen 15 und 17 angegebenen Werte liegen ja bereits bei oder nahe bei 100 %.

Bei den mittel- und schwerflüchtigen Elementen, z. B. Ba, Ru, Ce, Pu, erfolgt die Freisetzung vorwiegend bei den höchsten Temperaturen, d. h. aus der flüssigen Schmelze. Diese hat bei den SASCHA-Versuchen ein großes Oberflächen/Volumen-Verhältnis, wodurch sich eher eine zu hohe als eine zu geringe Freisetzung ergibt. Der Spaltproduktaustritt wird außerdem dadurch begünstigt, daß die induktive Schmelzgutheizung im Schmelztiegel stets für eine starke Durchmischung der Schmelze sorgt. Schließlich ist auch die Annahme, daß sich der gesamte Kern für 15 min auf einem Temperaturniveau von 2400°C befindet, in starkem Maße konservativ, denn der Temperaturverlauf in der 2. Aufheizphase (vgl. Abbildung 32) weicht ja deutlich von der benutzten Rechteckfunktion ab.

Unterstellt man aber trotz dieser konservativen Berechnungsmethode für die Freisetzung aller mittel- und schwerflüchtigen Elemente einen Unsicherheitsfaktor von ± 5 , so ergibt sich ein Schwankungsbereich von $6,5 \text{ E}5$ bis $1,6 \text{ E}7 \text{ Ci}$ für die Aktivitätsfreisetzung dieser Elemente bzw. von $2,5 \text{ E}3$ bis $6,3 \text{ E}4 \text{ Watt}$ für die Nachwärmefreisetzung. Selbst die oberen Grenzwerte dieser Bereiche betragen nur etwa 1/100 der Beiträge der leichtflüchtigen Elemente zu den entsprechenden Integralwerten. Da die Gesamtbeiträge der leichtflüchtigen Elemente aber kaum einen Fehler von über $\pm 10 \%$ aufweisen können, ergibt sich, daß auch die Integralwerte bis auf ca. $\pm 10 \%$ genau sein müssen.

Danksagung

Die Durchführung des beschriebenen Versuchsprogrammes wäre ohne ein gut eingespieltes Team von Kollegen und Mitarbeitern nicht möglich gewesen. Mein Dank gilt daher in erster Linie den Herren H. Wild, K. H. Simon, V. Prech, Dr. Matschoß und Dr. Krause, sowie Fräulein K. Nolte. Viele gute Ideen und die Vermittlung eines regen Erfahrungsaustausches mit verwandten Experimenten verdanke ich Herrn Morris F. Osborne vom ORNL, der für 2 Jahre (1975 - 1977) von der US-NRC als Mitarbeiter an unserem Vorhaben delegiert war.

Die Konstruktion und Errichtung der Schmelzanlage SASCHA sowie die Abwicklung aller damit verbundenen Genehmigungsfragen lag in den Händen von Herrn Perinic und seinen Mitarbeitern B. Stuka, A. Mack, B. Kammerer und H. Knauß. Ihnen gilt mein Dank ebenso wie für ihre Mitarbeit bei der Planung und Realisierung der Fissium-Anlage FIFA. Für die technische Weiterentwicklung der Fissium-Produktion und die langjährige regelmäßige Lieferung der Brennstoffprüflinge bin ich den Herren J. Schreibmaier, H. Ziegler, E. Damm und T. Eberle sehr zu Dank verpflichtet.

Schließlich möchte ich mich auch bedanken für die intensive Förderung des Vorhabens durch die PNS-Projektleitung (Dr. M. Fischer, Dr. H. Rininsland und Dr. J. P. Hosemann) sowie die wohlwollende Unterstützung durch die Herren Prof. W. Seelmann-Eggebert und Prof. H. J. Ache vom Institut für Radiochemie und Herrn W. P. Schmidt von der Hauptabteilung Ingenieurtechnik.

Literatur

- / 1/ H. Albrecht, C. Keller, D. Perinic, Th. Schmidt:
Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Kernschmelzen, Projekt Nukleare Sicherheit, 2. Halbjahresbericht 1972, KfK 1787 (1973) p 59 - 65

- / 2/ H. Albrecht et al.: PNS-Halbjahresberichte 1973 - 1976, KfK 1859 (1973), KfK 1908 (1974), KfK 2050 (1974), KfK 2130 (1975), KfK 2195 (1975), KfK 2262 (1976), KfK 2375 (1976), KfK 2435 (1977)

- / 3/ H. Albrecht et al.: PNS-Halbjahresbericht 1977/1, KfK 2500 (1977) p 429ff

- / 4/ H. Albrecht, H. Alsmeyer, M. Reimann, W. Schöck:
Recent Results on Sequences and Consequences of Severe Reactor Accidents, Nuclear Europe, Vol. VI, No. 11, November 1986, p 22 - 24

- / 5/ H. Bunz, M. Koyro, W. Schöck:
NAUA Mod-4, A Code for Calculating Aerosol Behavior in LWR Core-melt Accidents, KfK 3554 (1983)

- / 6/ W. Schöck et al.: Results of the DEMONA-Program, 4. International ENS/ANS Conference ENC 4, Geneva, June 1 - 6, 1986, Transactions Vol. 3, p 219ff

- / 7/ J. Wilhelm, H. Schüttelkopf:
Inorganic Adsorber Material for Off-gas Cleaning in Fuel Reprocessing Plants, Conf. 720 823, Oak Ridge, Aug. 28 - 31, 1972

- / 8/ H. Albrecht, H. Wild:
Untersuchung der in der Kernschmelzanlage SASCHA erzeugten Aerosole, KfK 3856 (1985)

- / 9/ J. Schreibermaier, V. Matschoß, H. Albrecht, A. Mack:
Herstellung von Kernbrennstoff mit simuliertem Abbrand (Fission) an der Anlage FIFIA, KfK 2991 (1980)

- /10/ US-NRC: Reactor Safety Study, WASH-1400 (1975)
- /11/ T. M. Besmann: SOLGASMIX-PV,
A Computer Program to Calculate Equilibrium Relationships in Complex
Chemical Systems, ORNL/TM-5775 (1977)
- /12/ P. E. Blackburn, C. E. Johnson:
Light Water Reactor Fission Product Data Assessment, ANL-82-42 (1982)
- /13/ US-NRC: Technical Bases for Estimating Fission Product Behavior During
LWR Accidents, NUREG-0772 (1981)
- /14/ M. F. Osborne, J. L. Collins, R. A. Lorenz, R. V. Strain:
Fission Product Release and Fuel Behavior in Tests of LWR Fuel under
Accident Conditions, International Symposium on Source Term Evaluation for
Accident Conditions, Columbus, Ohio, October 28 - November 1, 1985
- /15/ H. Moers et al.: XPS Study of Iodine Released in Core Melting Experiments,
Surface and Interface Analysis Vol. 7, No. 1 (1985) p 22
- /16/ H. Moers et al.: XPS and EPXMA Investigation and Chemical Speciation of
Aerosol Samples Formed in LWR Core Melting Experiments, KfK 3950 (1985)
- /17/ H. Moers, H. Klewe-Nebenius, H. J. Ache: X-Ray Photoelectron-Spectroscopy
and Electron Probe X-Ray Microanalysis Investigation and Chemical
Speciation of Aerosol Samples formed in Light Water Reactor Coremelting
Experiments, Nuclear Technology Vol. 76 (Jan. 1987) p 51
- /18/ H. Albrecht, K. Nolte, K. H. Simon, H. Wild:
Untersuchung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim
Kernschmelzen, PNS-Jahresbericht 1984 (KfK 3550) p 4300 - 27ff
- /19/ H. Hassmann: Abschlußbericht des Förderungsvorhabens BMI SR-300
"Bewertung einiger Maßnahmen zur Reduktion der Unfallfolgen der Frei-
setzungskategorie II, KWU Erlangen, März 1984

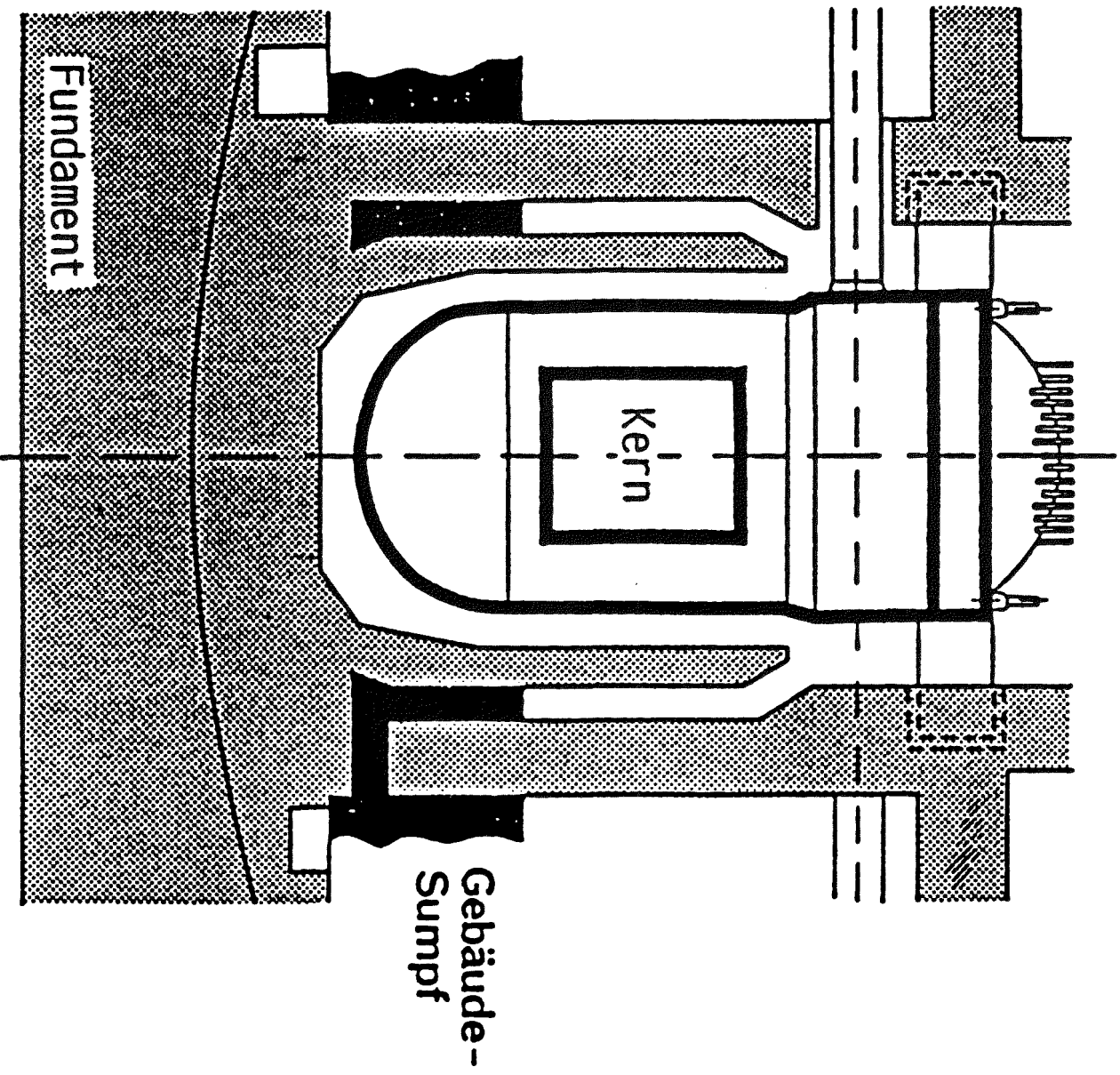
- /20/ V. G. Samsonow (Ed.): The Oxide Handbook, 2. Edition,
IFI/Plenum, New York - Washington - London, 1982
- /21/ H. Albrecht, H. Wild:
Behavior of I, Cs, Te, Ba, Ag, In, and Cd during Release from Overheated
PWR Cores, Proc. Internat. Meeting on Light Water Reactor Severe Accident
Evaluation, Cambridge, Mass., August 28 - September 1, 1983, American
Nuclear Soc., 1983, p 4.2/1 - 4.2/6
- /22/ G. W. Parker, G. E. Creek, A. L. Sutton, Jr.:
Influence of Variable Physical Process Assumptions on Core Melt Aerosol
Release, Proc. of the Internat. Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety,
Vol. 2, 1983, American Nuclear Society, Chicago, IL, p 1078 - 1089
- /23/ H. Albrecht, V. Matschoß, H. Wild:
Release of Fission and Activation Products During LWR Core Meltdown,
ENS/ANS Meeting on Nuclear Power Reactor Safety, October 16 - 19, 1978,
Brussels, Belgium, Proceedings Vol. 3, p 2304ff
- /24/ Handbook of Chemistry and Physics, 67. Ed. 1986, CRC Press
- /25/ P. Hofmann et al.: Mechanisches und chemisches Verhalten von Zircaloy-
Hüllrohren und UO₂-Brennstoff bei hohen Temperaturen,
PNS-Jahresbericht 1985, KfK 4000 (1986) p 4200 - 56ff
- /26/ H. Albrecht, K. Nolte, V. Prech, K. H. Simon, H. Wild:
Untersuchung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim
Kernschmelzen, PNS-Jahresbericht 1982, KfK 3350 (1983) p 4300 - 20ff
- /27/ M. F. Osborne, J. L. Collins, R. A. Lorenz:
Highlights Report for Fission Product Release Tests of Simulated LWR Fuel
ORNL/NRC/LTR-85/1 (1985)
- /28/ W. Breitung: Zur analytischen Beschreibung der in den SASCHA-Experi-
menten gemessenen Spaltprodukt-Freisetzung, PNS-Halbjahresbericht 1978/1,
KfK 2700 (1978) p 4300 - 86ff

- /29/ C. D. Andriessse, R. H. J. Tanke:
Dominant Factors in the Release of Fission Products from Overheated
Urania, Nuclear Technology Vol. 65 (1984) 415
- /30/ R. A. Lorenz: The Vaporization of Structural Materials in Severe Accidents,
Chicago 1982, vgl. /22/
- /31/ J. L. Kelly, A. B. Reynolds, M. E. McGown:
Temperature Dependence of Fission Product Release Rates,
Nucl. Sci. Eng. 88 (1984) 184
- /32/ A. B. Reynolds, J. L. Kelly, S. T. Kim:
Role of Surface Vaporization in Low-volatility Fission Product Release
Experiments, Nucl. Technology Vol. 74 (1986) 76
- /33/ D. R. Bradley, J. E. Brockmann:
Analysis of Molten Fuel Concrete Interactions and Fission Product Release
from Ex-vessel Core Debris, 13. Water Reactor Safety Research Information
Meeting, Gaithersburg, Md, October 22 - 25, 1985, Proceedings, Vol. 6,
p 77 - 94
- /34/ K. Hassmann, J. P. Hosemann, M. Peehs:
Spaltproduktfreisetzung beim Kernschmelzen, Verlag TÜV Rheinland, 1987
- /35/ A. G. Croff:
ORIGEN-2: A versatile Computer Code for Calculating the Nuclide
Compositions and Characteristics of Nuclear Materials,
Nuclear Technology Vol. 62 (1983) 335 - 352
- /36/ M. Silberberg, J. A. Mitchell, R. O. Meyer, C. P. Ryder:
Reassessment of the Technical Bases for Estimating Source Terms,
NUREG-0956, July 1986

Verzeichnis der Abbildungen

- 1 Reaktordruckbehälter und Betonstruktur
- 2 Schmelzanlage SASCHA (Foto)
- 2a Schmelzanlage SASCHA mit Filterstrecke (Schema)
- 2b Anordnung von Tiegel und Schmelzgut sowie Glasabsaugsystem
- 3 Freisetzung von Cd, J, Cs und Te in Wasserdampf
- 4 Freisetzung von J und Cs aus Fissium, das verschiedene Verbindungen dieser Elemente enthält
- 5 Freisetzung von Cd, J, Cs, In und Ag aus Fissium mit HJO_3 und Cs_2CO_3 und aus 4,2 g Regelstabmaterial (Ag-In-Cd)
- 6 Oberteil des beheizbaren Stahlabsaugsystems (Foto, im Textteil)
- 7 Freisetzung von J, Cs, In und Ag mit CsJ als Ausgangsverbindung im Fissium sowie Umfang und Verlauf der AgJ-Bildung
- 8 Freisetzung von Jod, Cäsium und Tellur
- 9 Freisetzung von Silber, Tellur und Antimon
- 10 Abhängigkeit der Tellur-Freisetzung von der Zusammensetzung der Atmosphäre
- 11 Tellur-Freisetzung bei hohem und geringem Wasserdampfangebot
- 12 Abhängigkeit der Antimon-Freisetzung vom Wasserdampfangebot
- 13 Freisetzung von Antimon bei Versuchen mit unterschiedlicher Maximaltemperatur
- 14 Freisetzung von Barium bei unterschiedlichem Wasserdampfangebot
- 15 Abhängigkeit der Barium-Freisetzung von der Zusammensetzung der Atmosphäre
- 16 Freisetzung von Molybdän und Neptunium
- 17 Freisetzung von Ruthen
- 18 Freisetzung von Mangan, Eisen, Cobalt und Chrom
- 19 Freisetzung von Mangan, Zinn und Eisen
- 20 Freisetzung von Indium, Antimon und Zinn
- 21 Freisetzung der Stahlkomponenten Mn, Cr, Fe und Co
- 22 Freisetzung von Silber aus dem Material der DWR-Steuerstäbe (Ag-In-Cd)
- 23 Abhängigkeit der Freisetzung von Silber aus Ag-In-Cd von der Zusammensetzung der Atmosphäre
- 24 Silber-Ausscheidungen am oberen, etwas kühleren Ende der Zircaloy-Hüllrohre

- 25 Vergleich der Freisetzung von Silber als Spaltprodukt und als Steuerstab-Bestandteil
- 26 Vergleich der Freisetzungskoeffizienten mit denen aus NUREG-0772
- 27 Tiegelanordnung für Freisetzungsversuche während der Schmelze/Beton-Wechselwirkung
- 28 Längsschnitt durch einen Tiegel mit einer Corium/Beton-Schmelze
- 29 Freisetzung von Te, Sb und Ru während der Schmelze/Beton-Wechselwirkung in Luft
- 30 Verlauf der Freisetzungsraten einzelner Elemente und der integralen Masse als Funktion der Zeit
- 31 Freisetzung von J, Ag, Te und Mo während der Schmelze/Beton-Wechselwirkung in Luft
- 32 Mittlere Temperatur des nicht vom Kühlwasser bedeckten Kernmaterials, Definition von 2 Intervallen für die Freisetzungsrechnungen



Reaktordruckbehälter und Betonstruktur

Abbildung 1

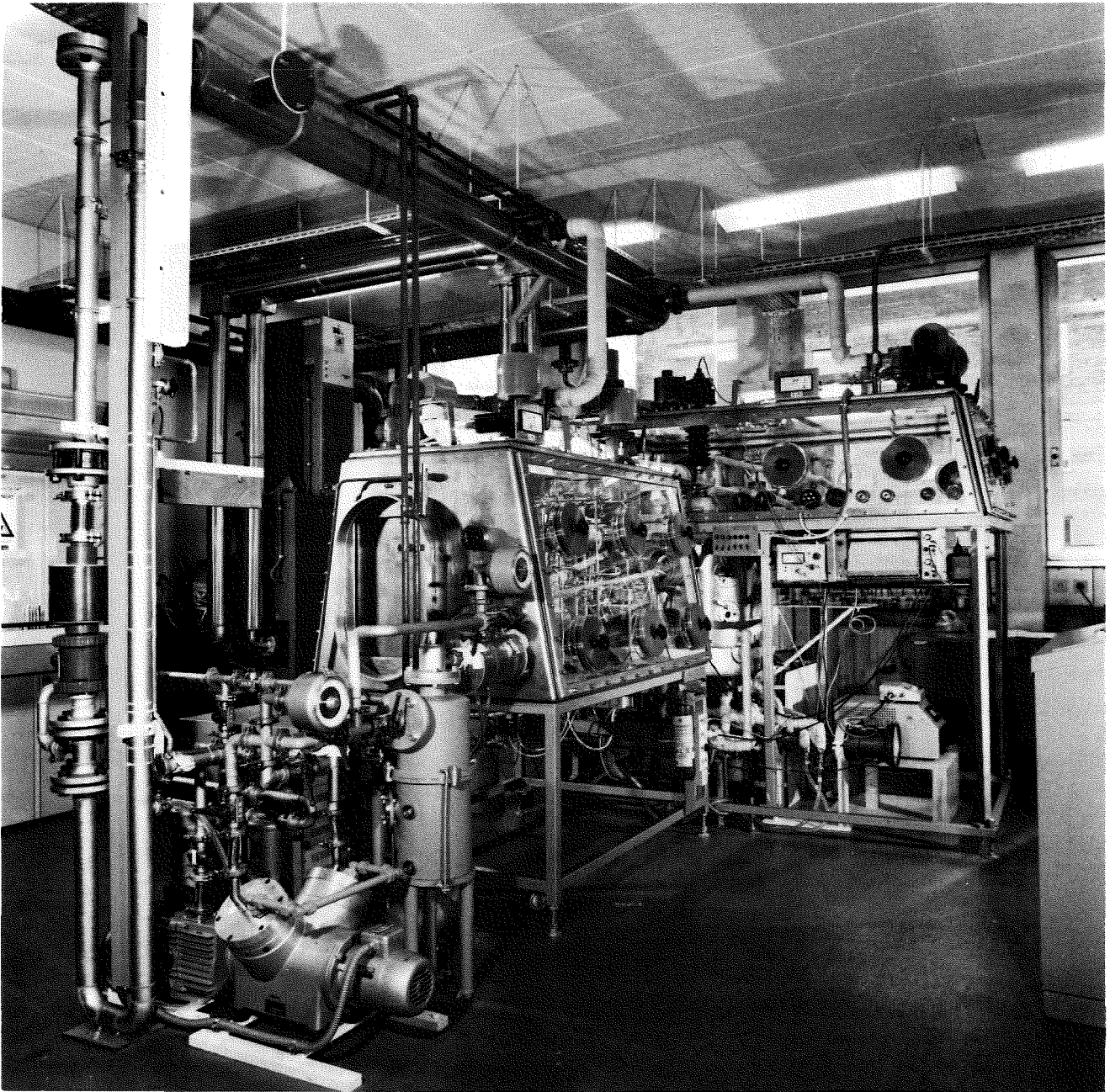


Abbildung 2: Gesamtansicht der Schmelzanlage für Proben mit schwacher Aktivität (SASCHA)

im Vordergrund: Pumpstand, Kondensator, H₂-Überwachung

in der Mitte: Handschbox mit Transport- und Filterstrecke

im Hintergrund: eine auf das Oberteil des Ofenkessels
montierte zweite Handschuhbox, die zum
Beladen und Reinigen des Ofens dient

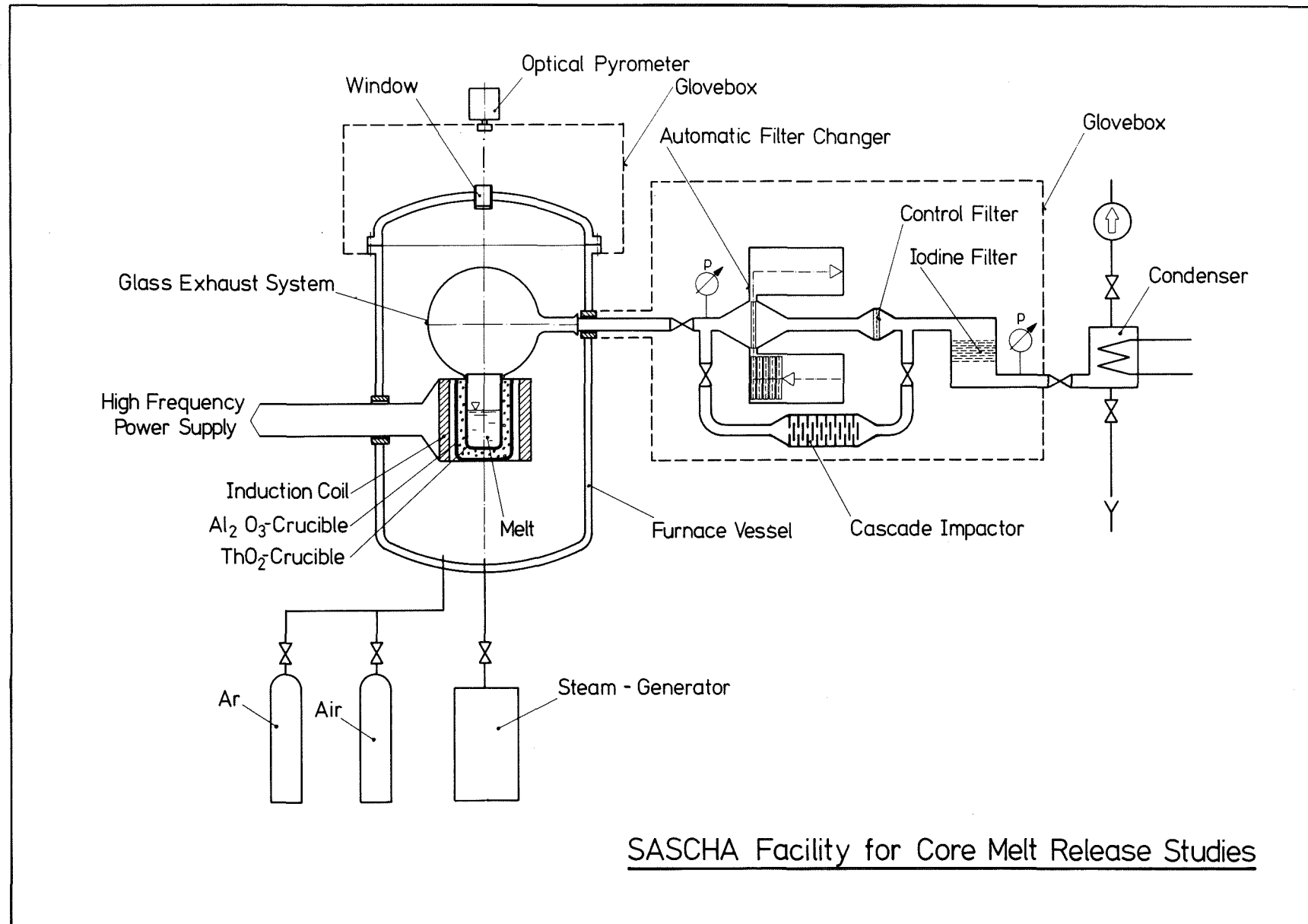
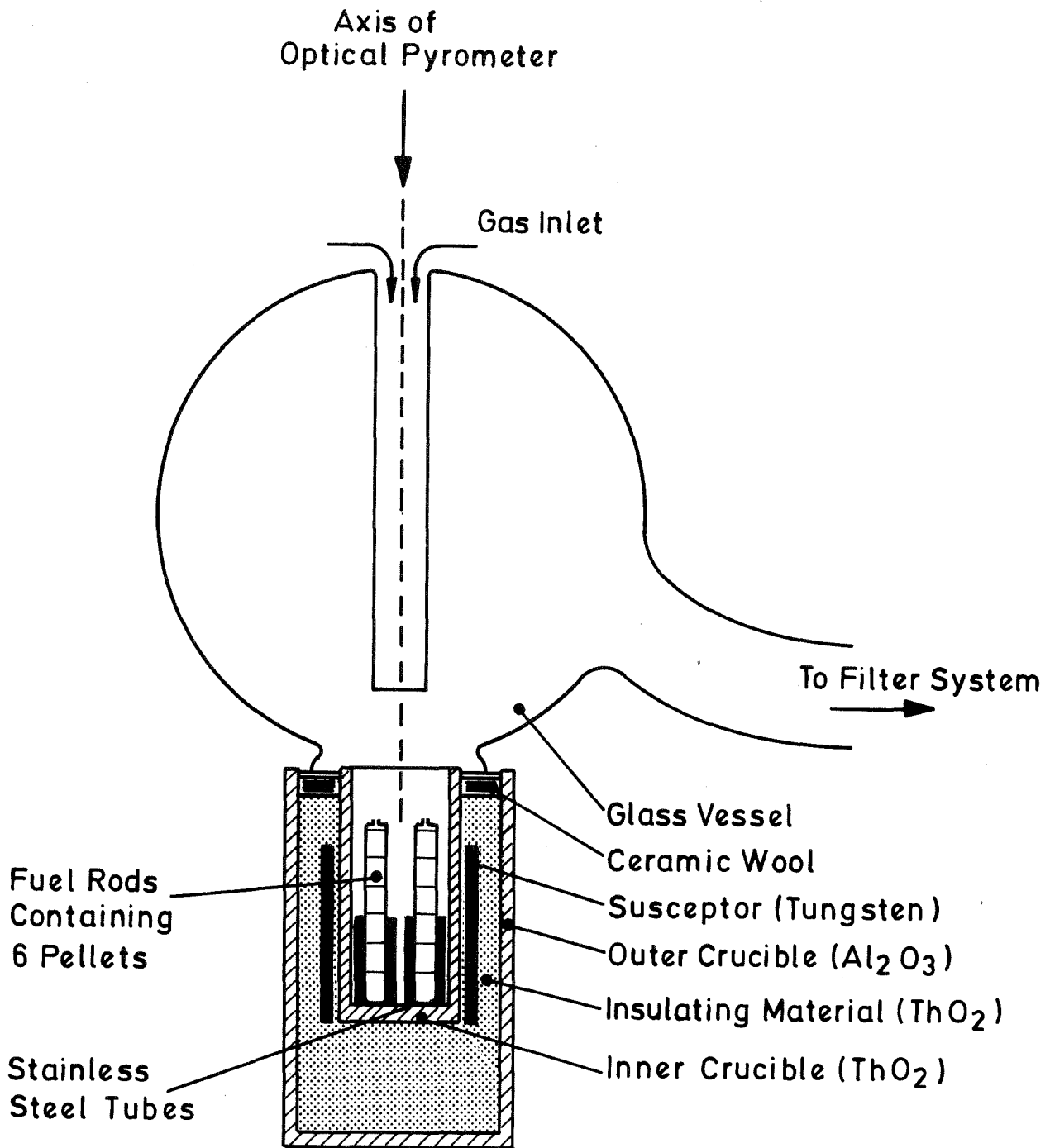
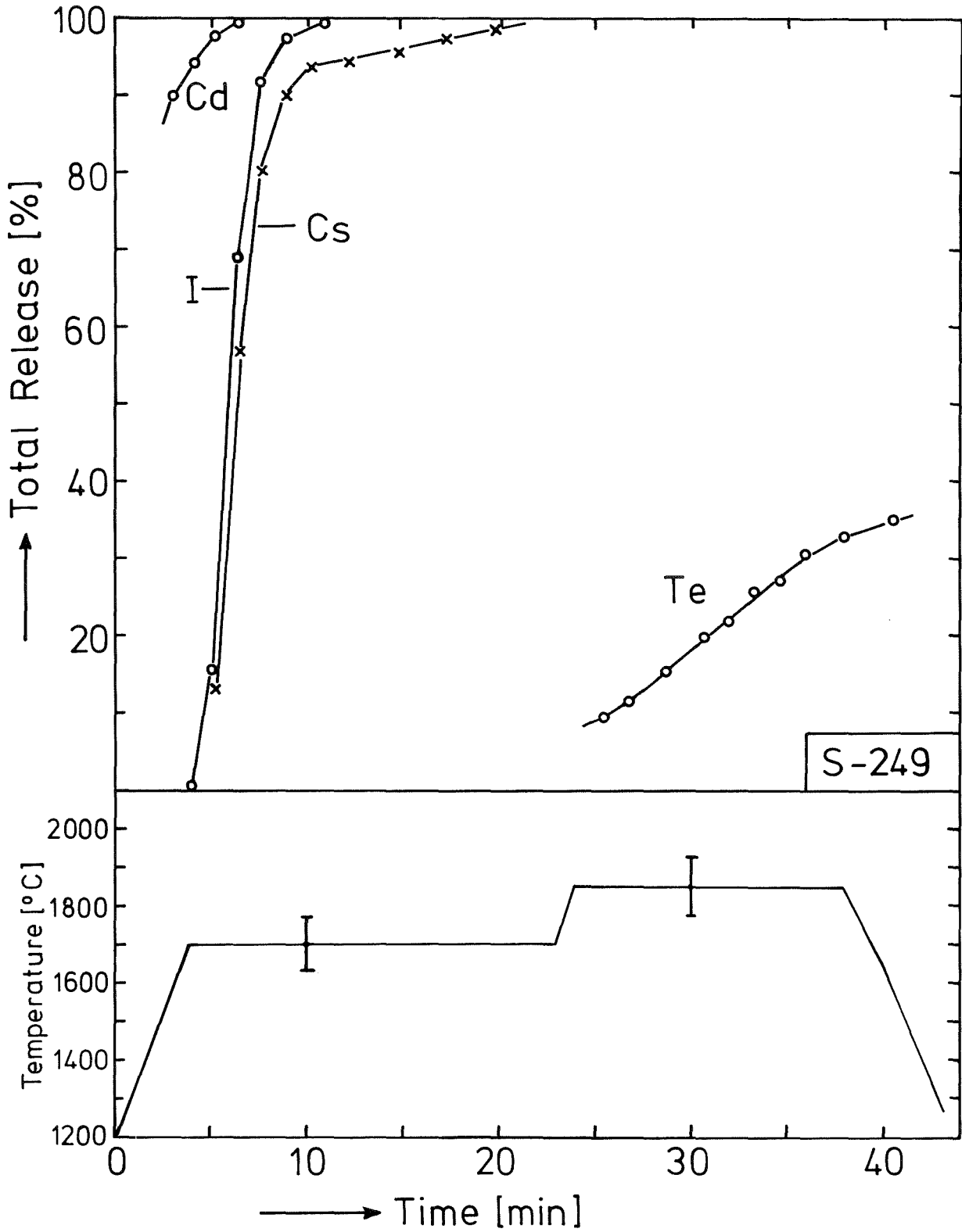


Abbildung 2a



Crucible Arrangement and Glass Exhaust System

Abbildung 2b

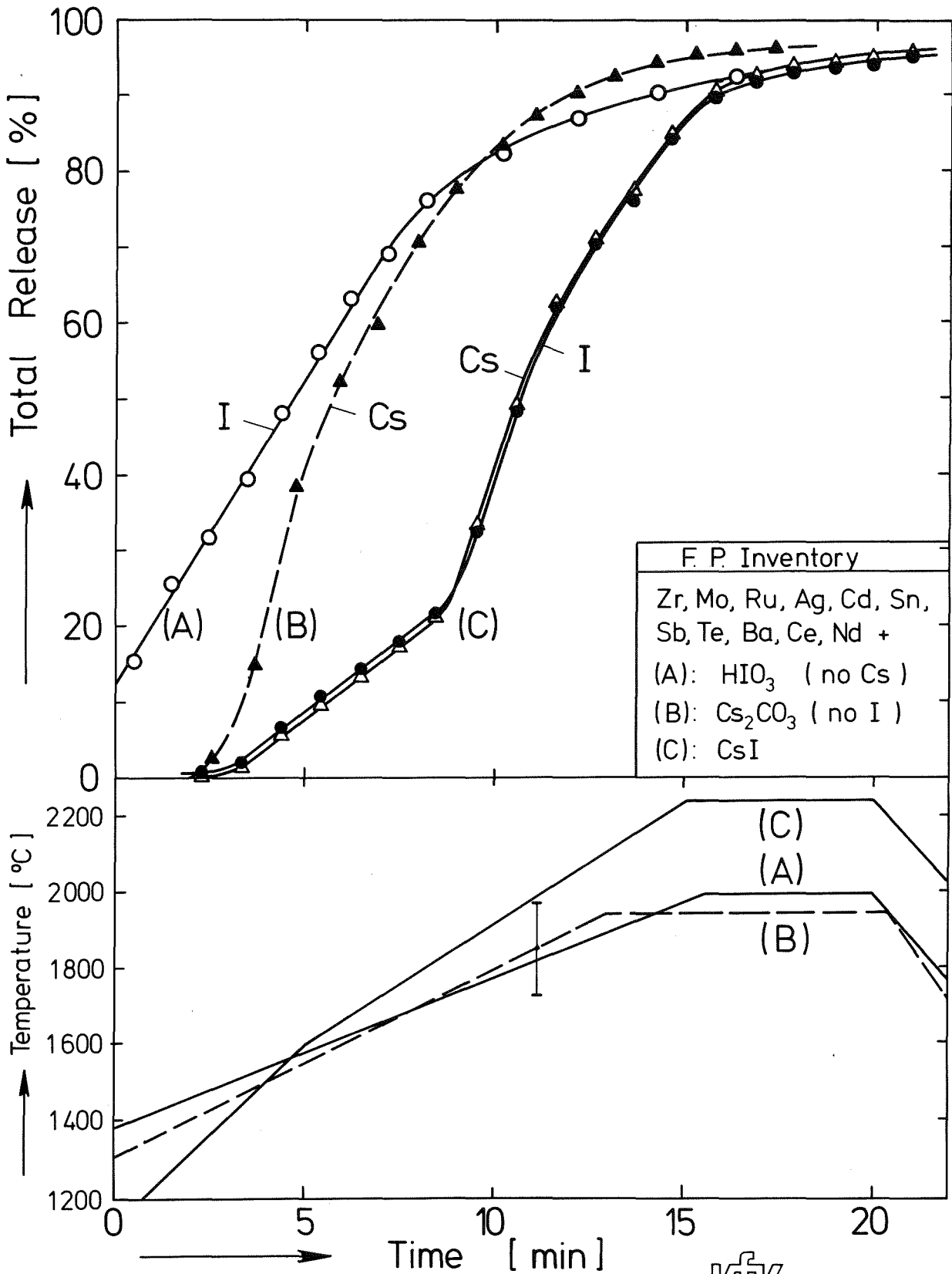


S-249



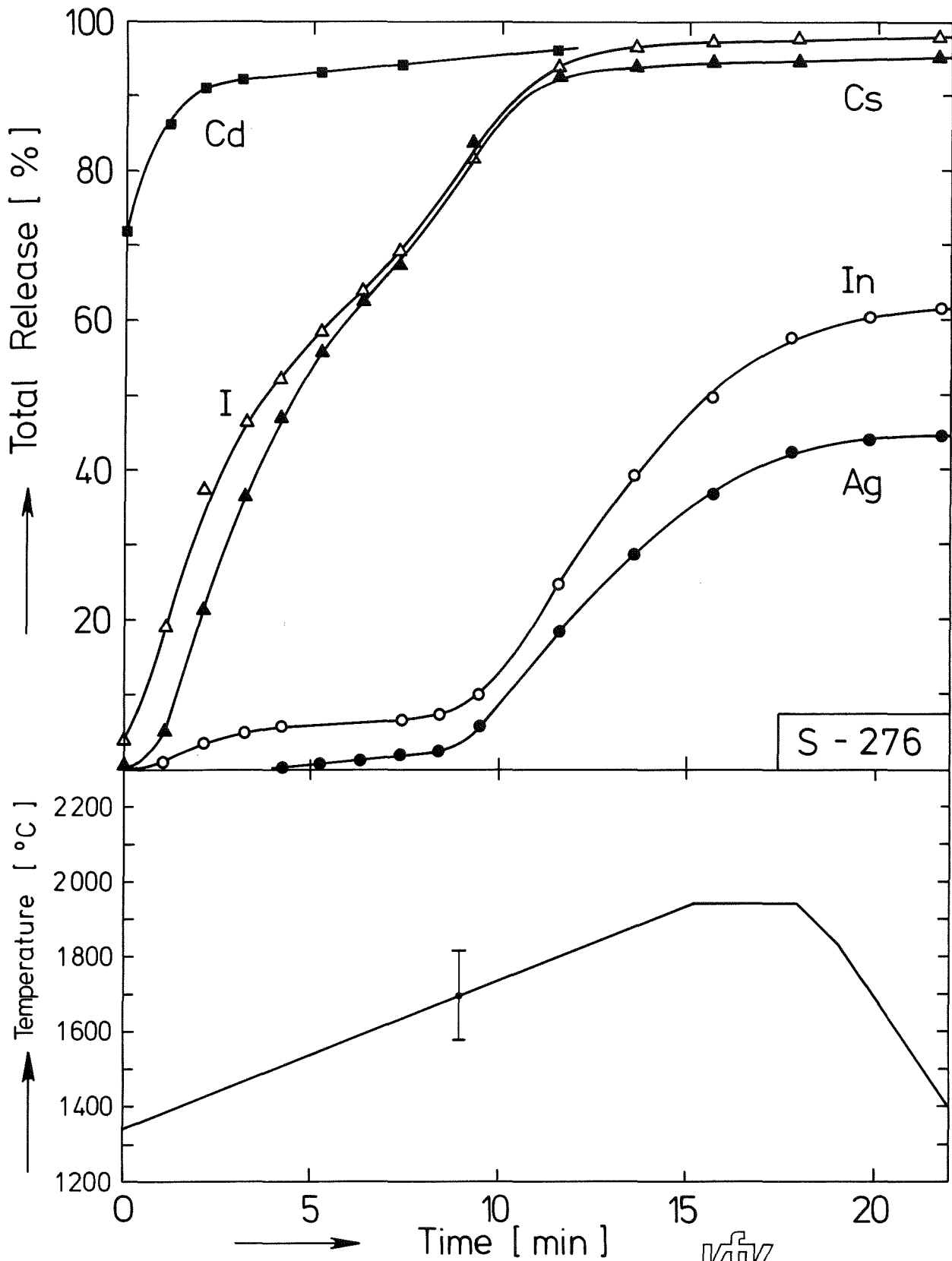
Release of Cd, I, Cs, and Te in Steam (2 bar)

Abbildung 3

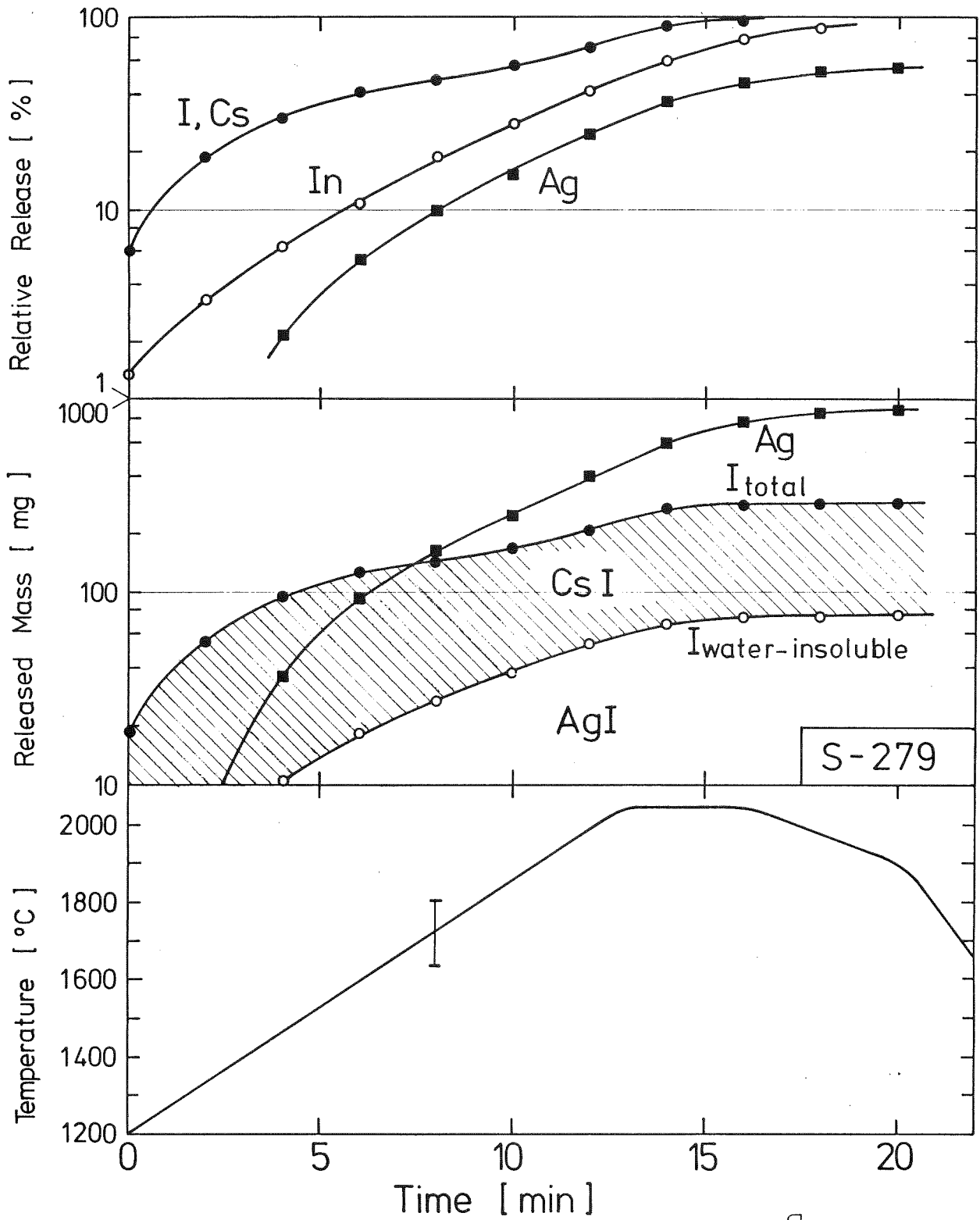


Release of I and Cs from Fission Containing varying Compounds of these Elements

Abbildung 4

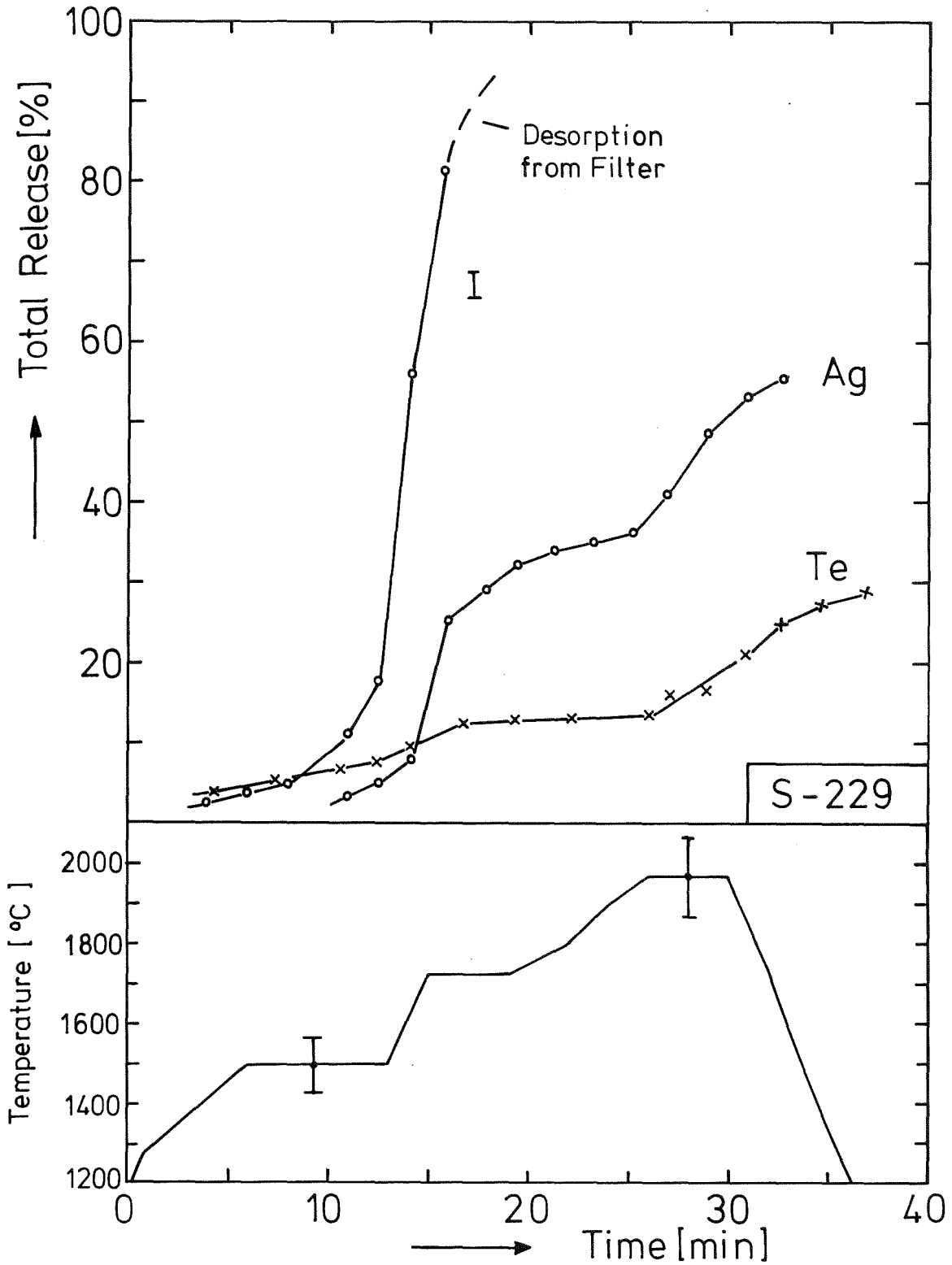


Release from Corium containing Control Rod Material (Ag-In-Cd), Initial Forms of I and Cs: HIO_3 and Cs_2CO_3

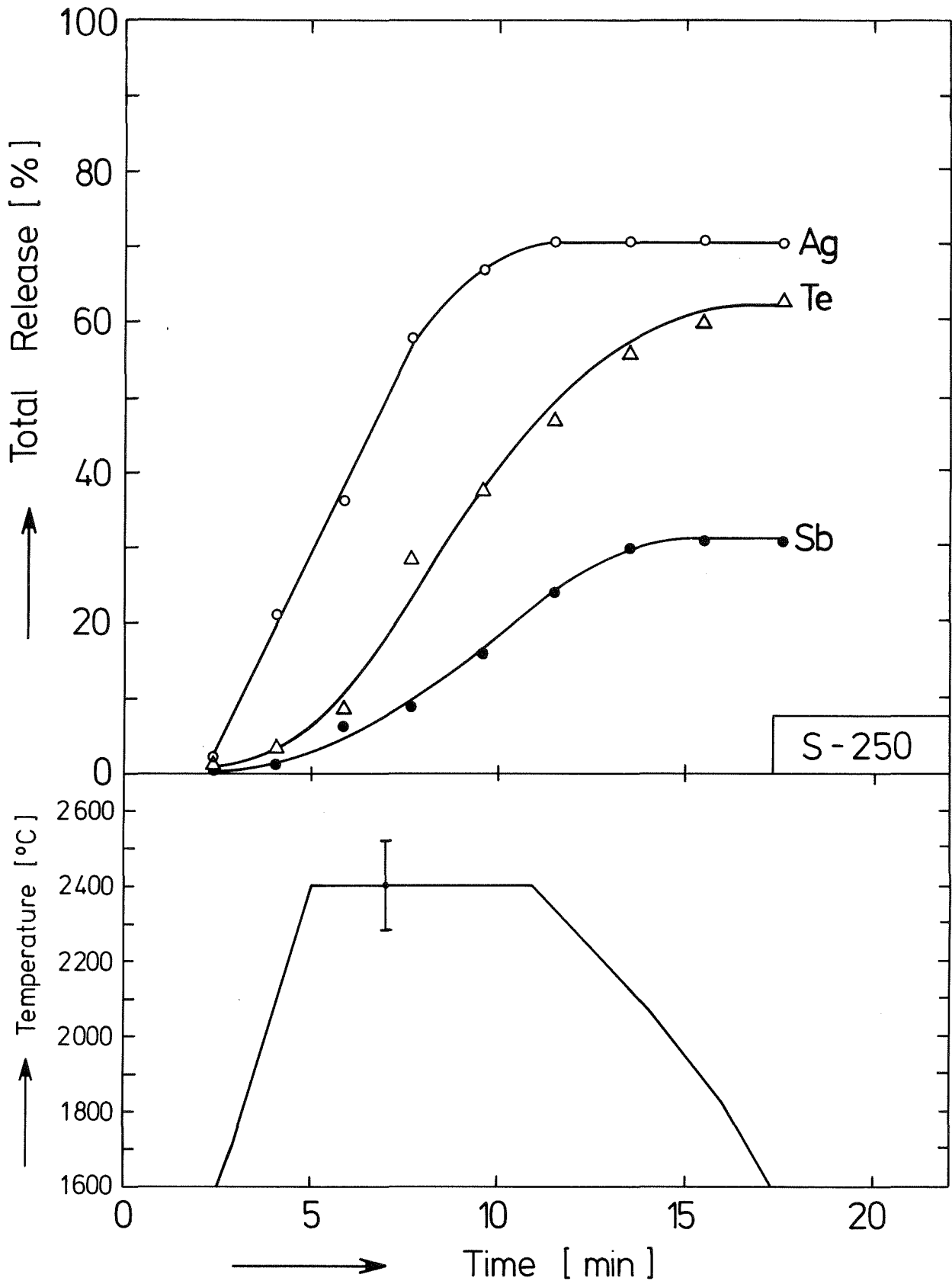


Release of Cs, I, Ag, and In in Steam (2 bar);
Formation of AgI from initially present CsI

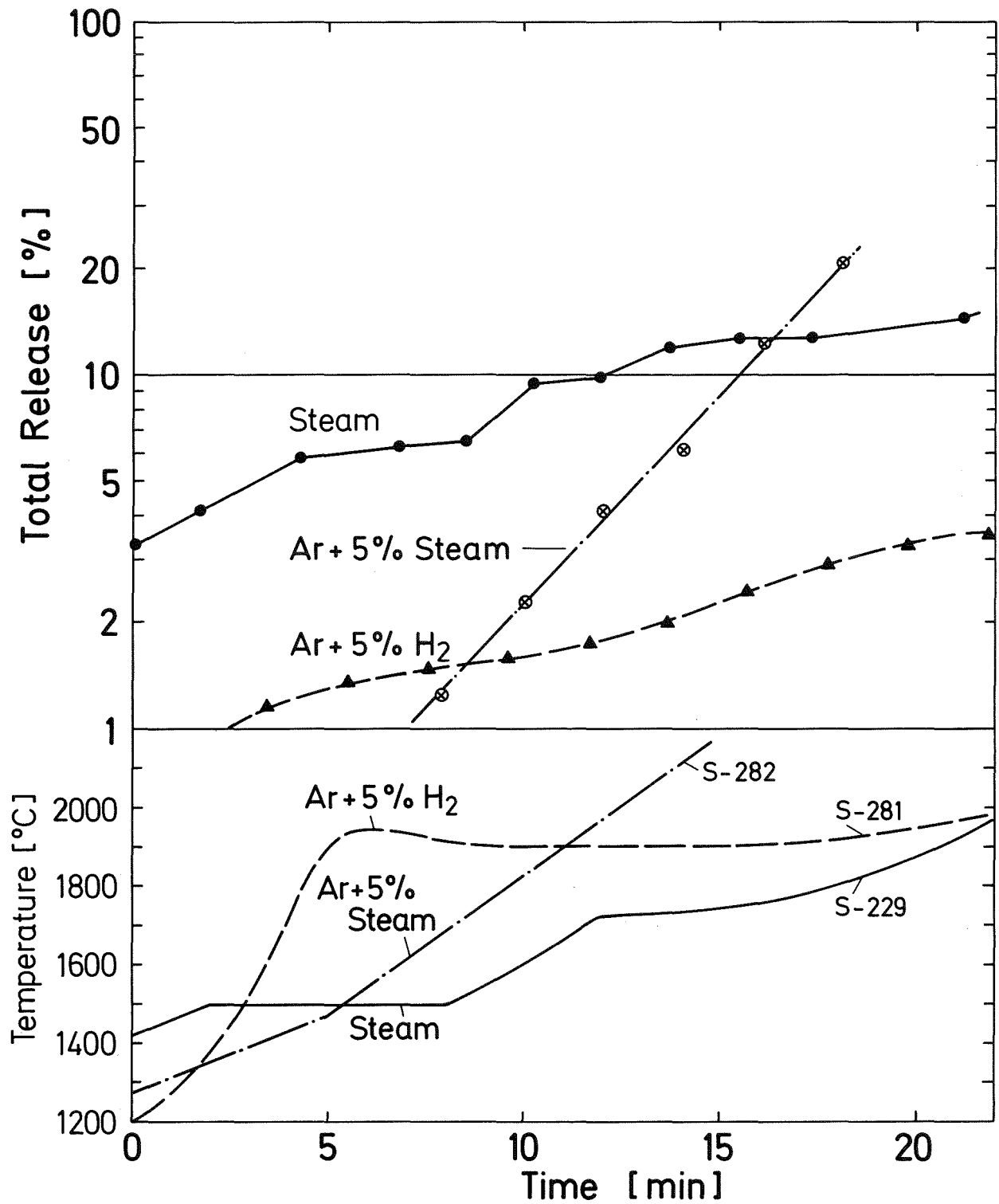
Abbildung 7



Release of Iodine, Silver, and Tellurium in Steam (2 bar)

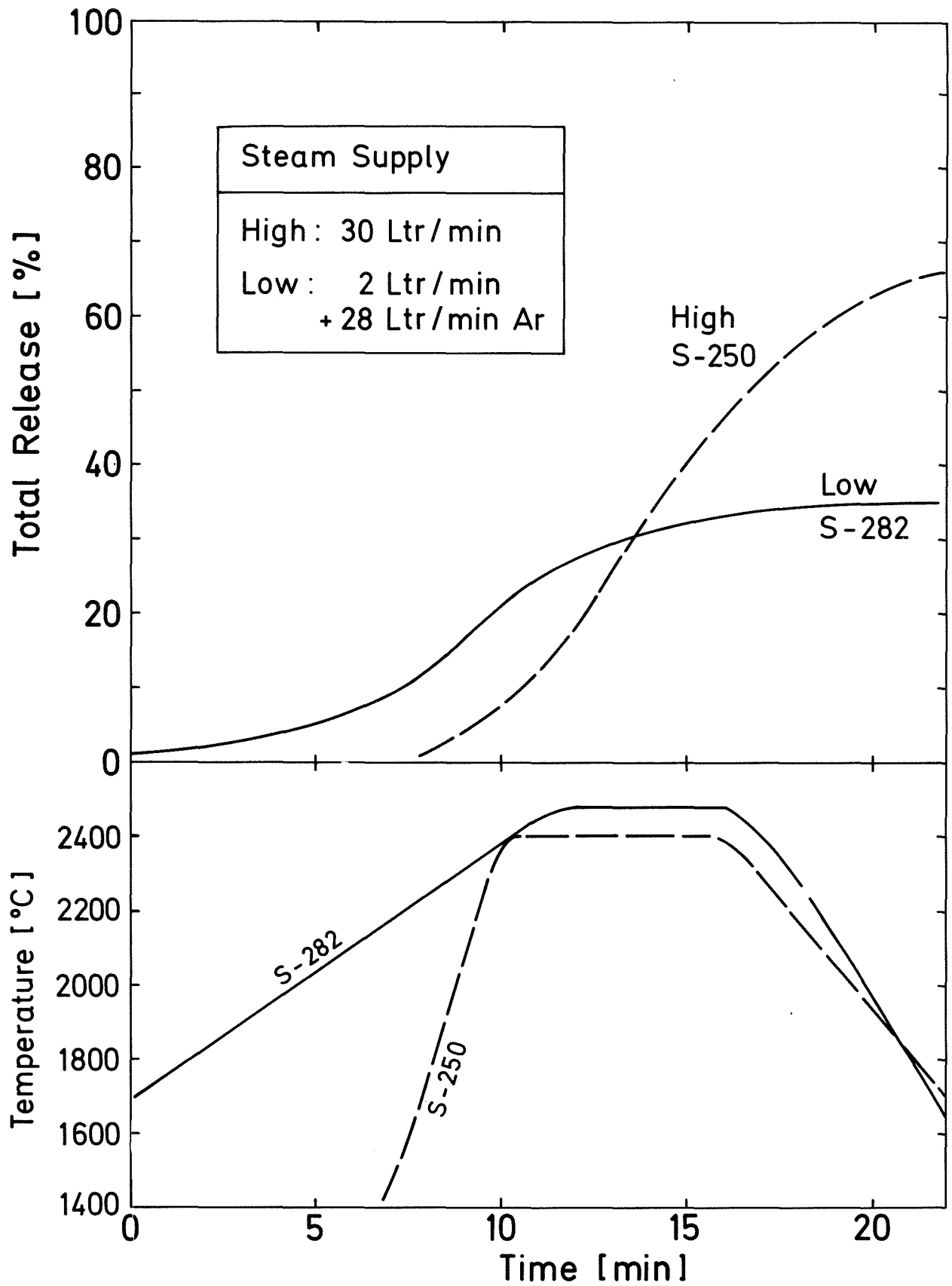


Release of Ag, Te, and Sb in Steam (2 bar)



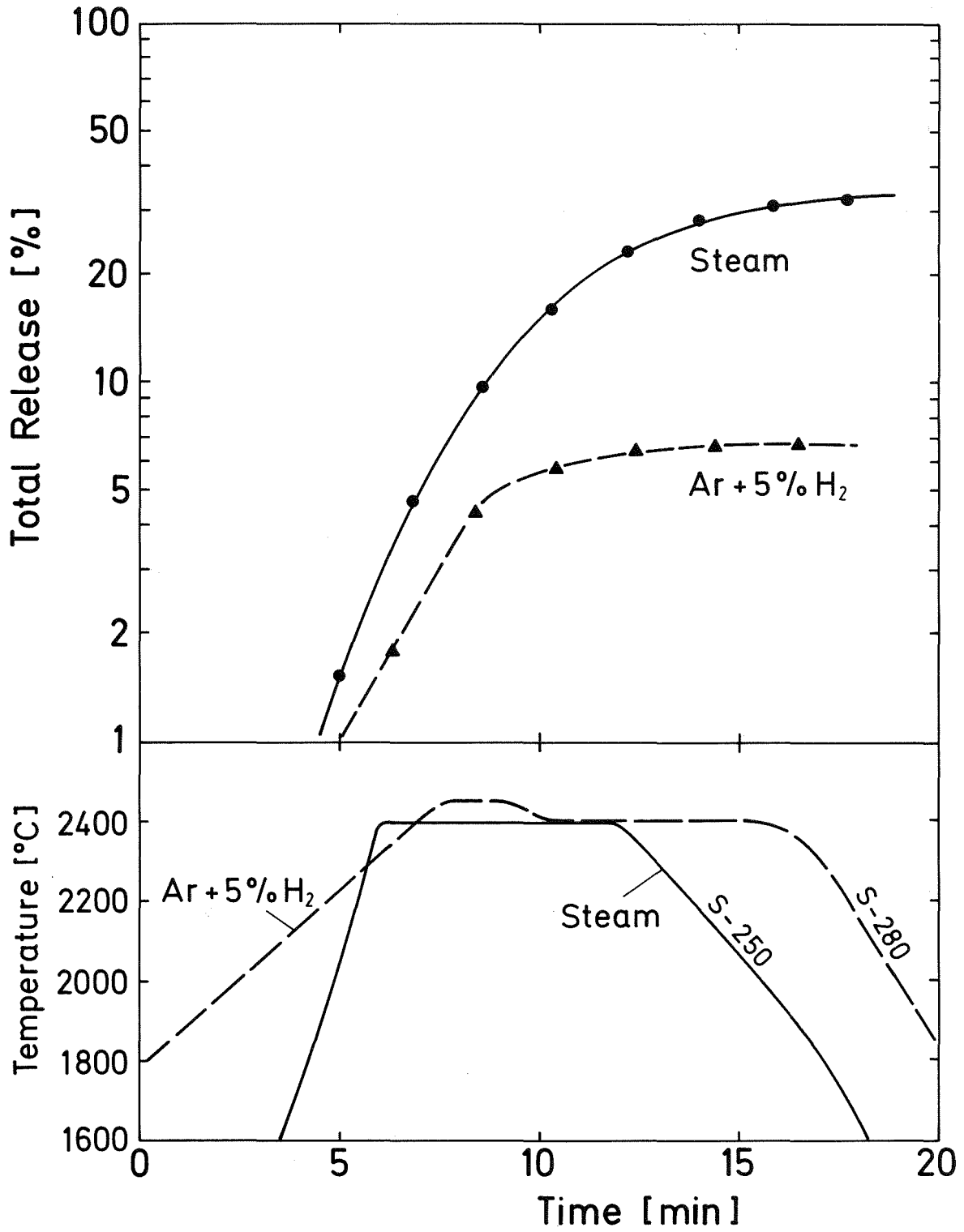
Dependence of Te Release on Steam Supply

Abbildung 10



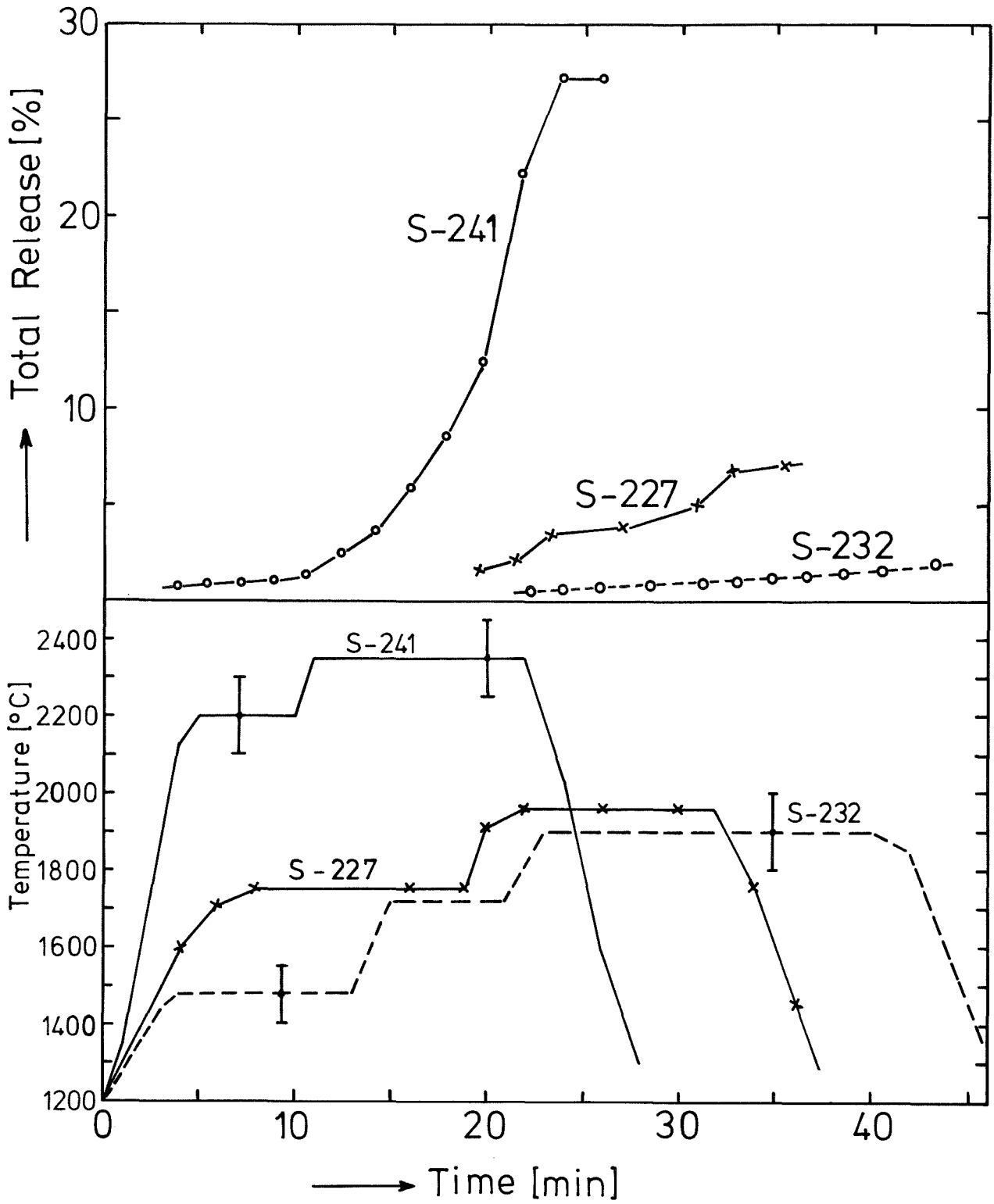
Te Release Tests with High and Low Steam Supply

Abbildung 11



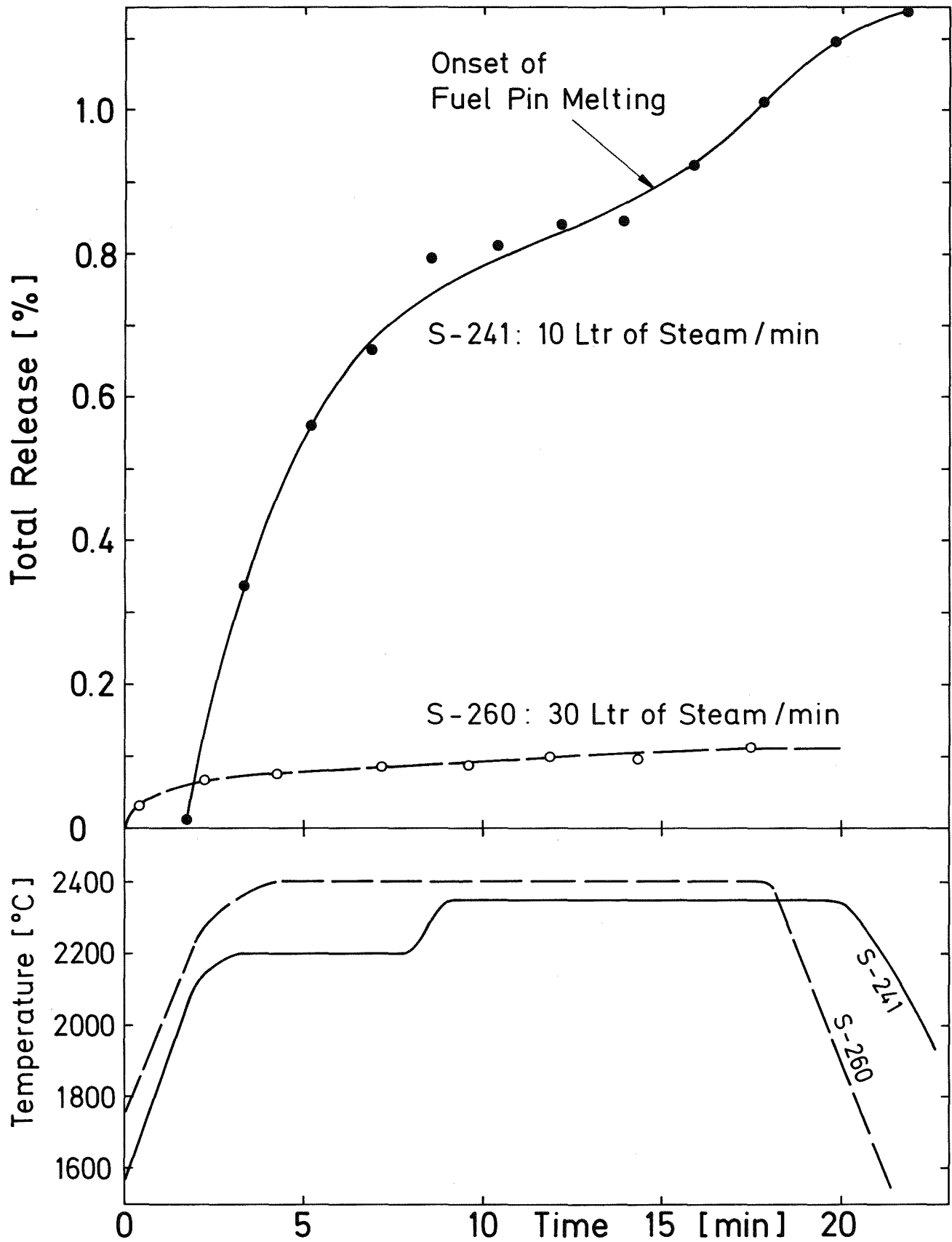
Dependence of Sb Release on Steam Supply

Abbildung 12

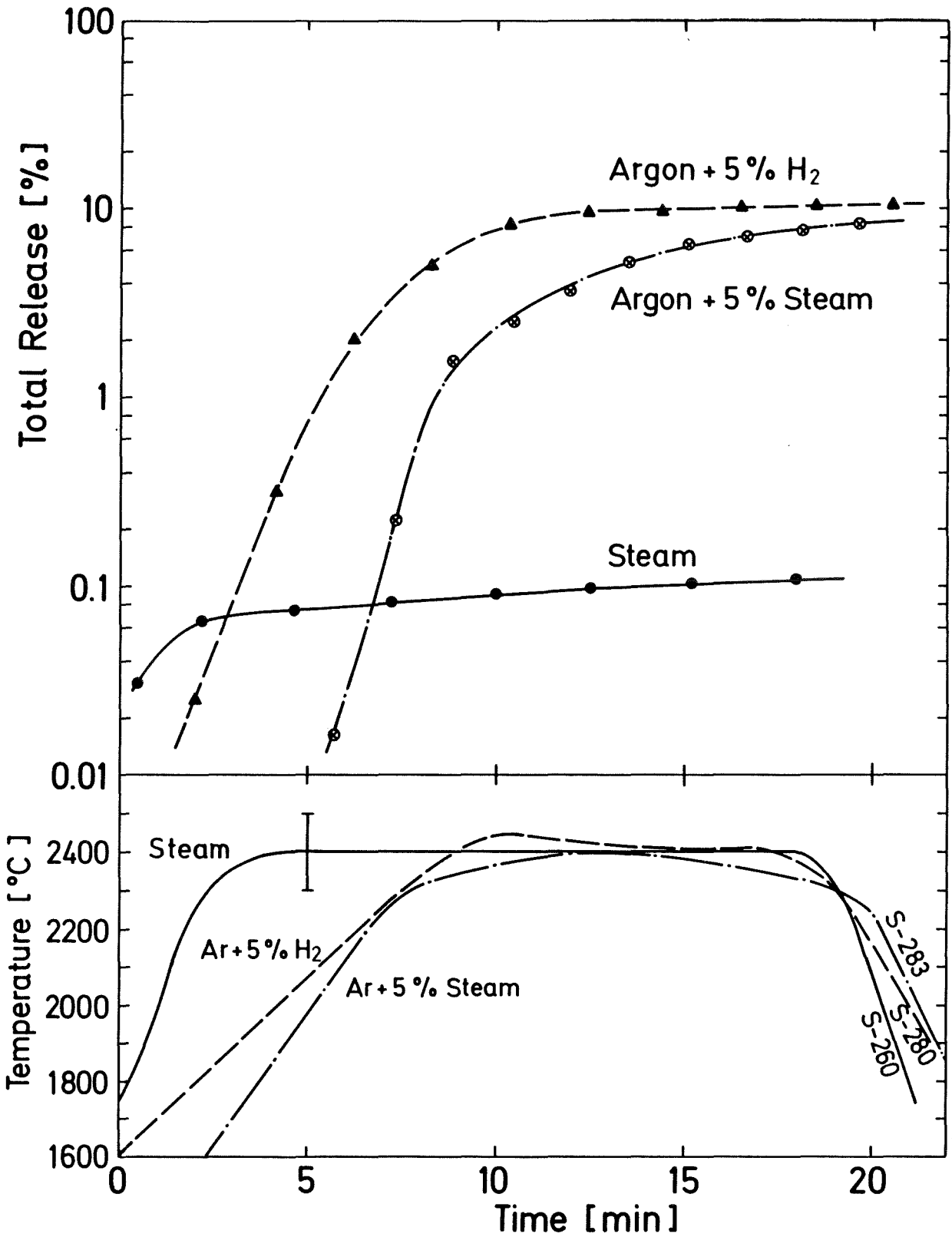


Release of Antimony in Steam (2 bar)

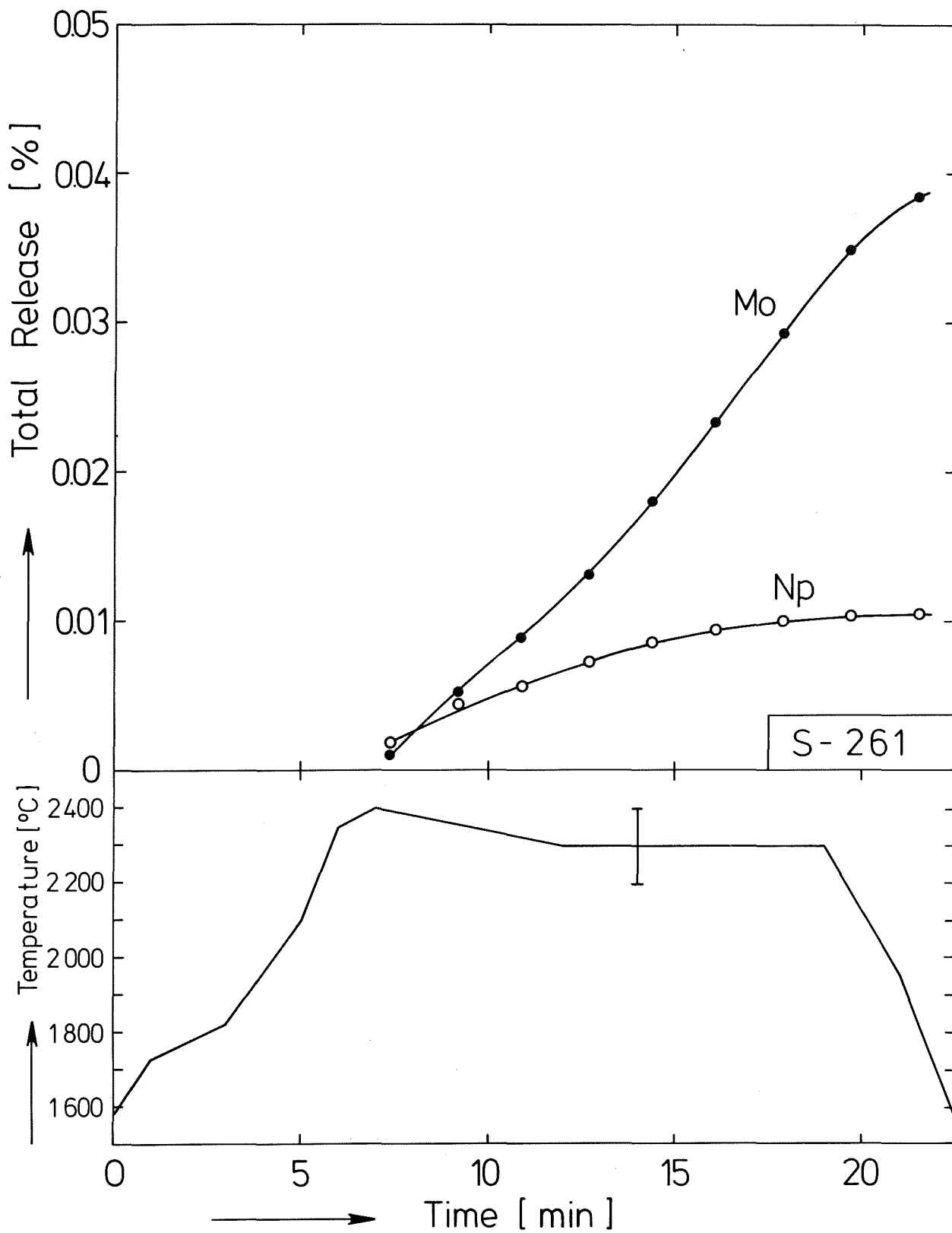
Abbildung 13



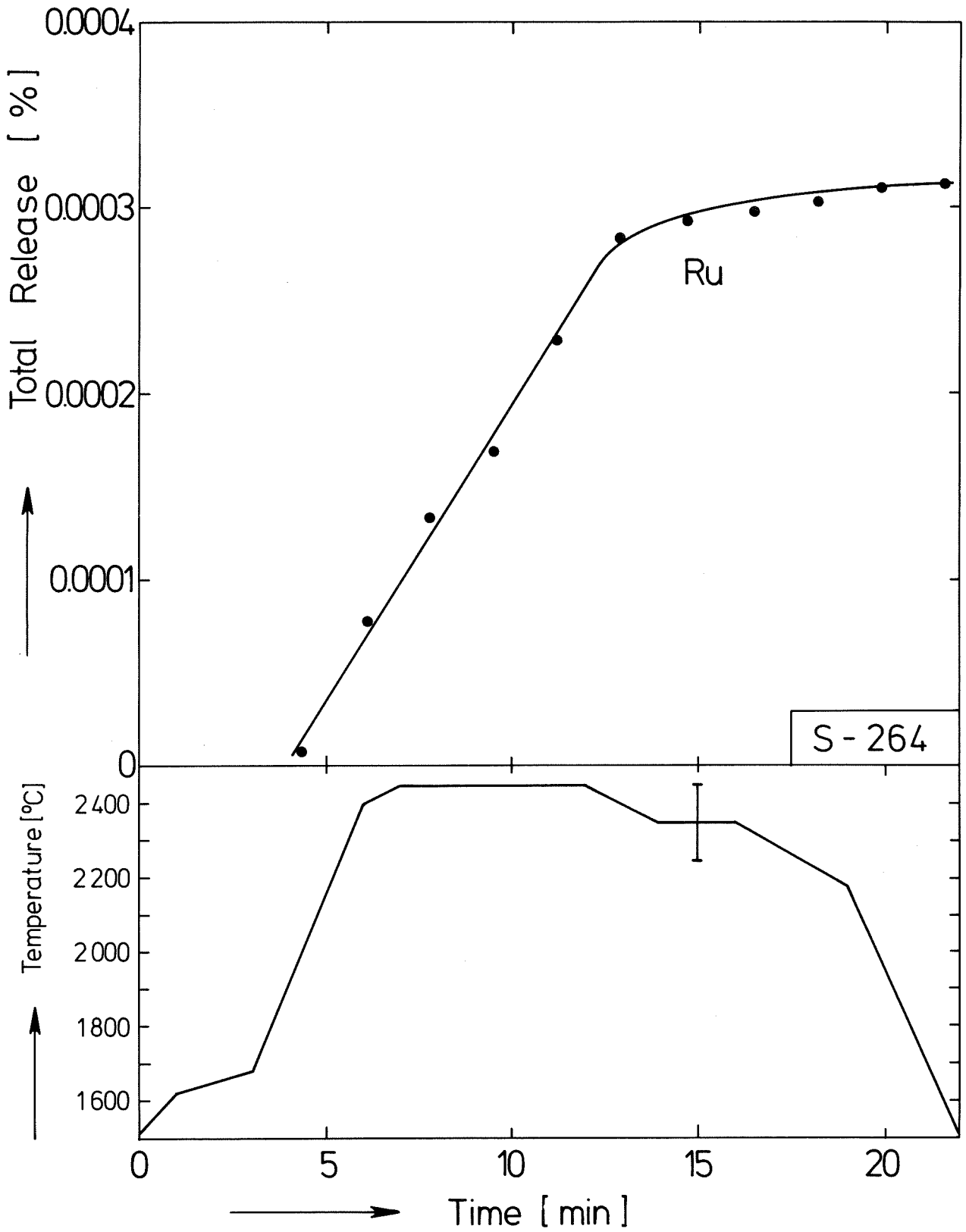
Release of Barium in Steam (2 bar)



Dependence of Ba Release on Steam Supply

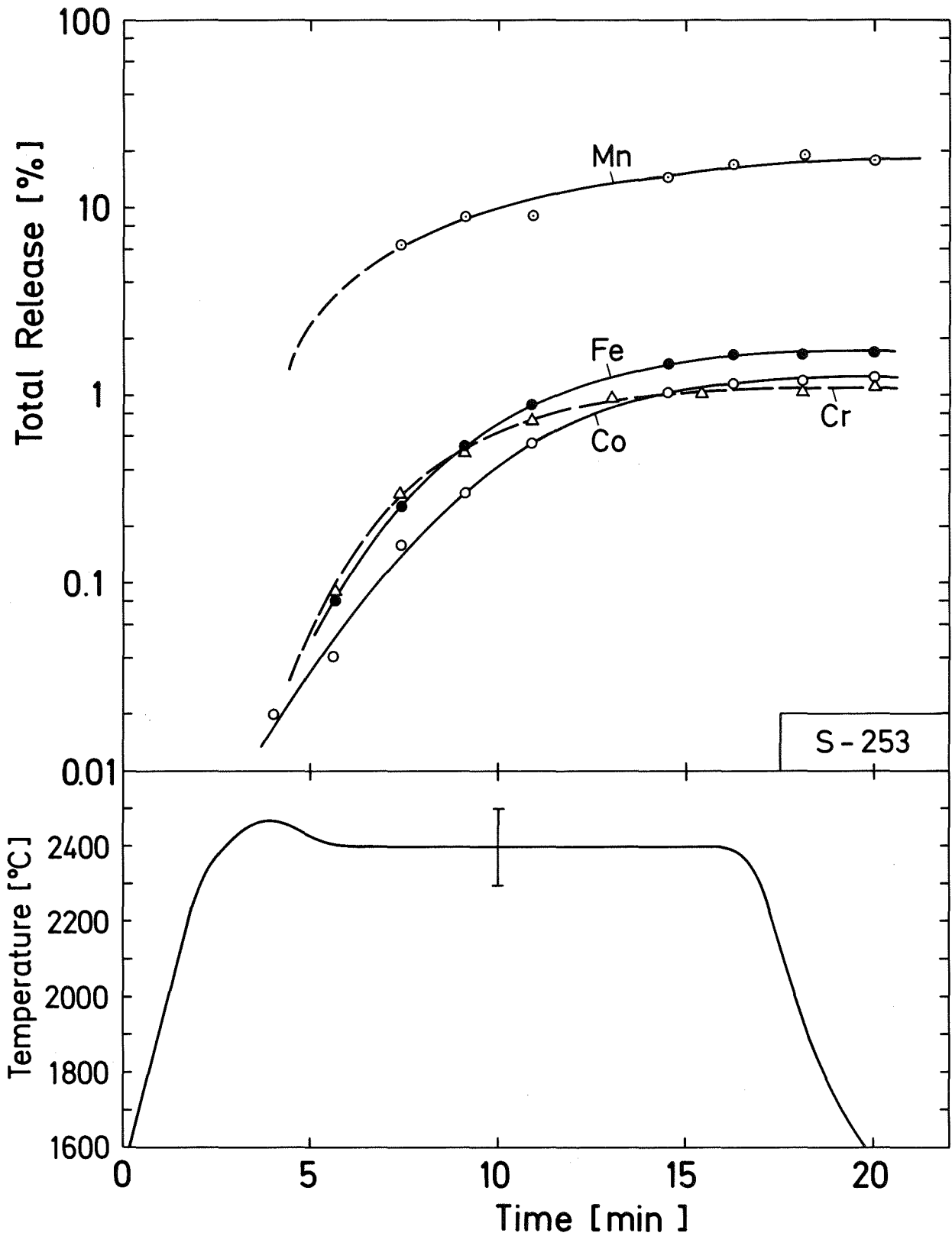


Release of Mo and Np in Steam (2 bar)

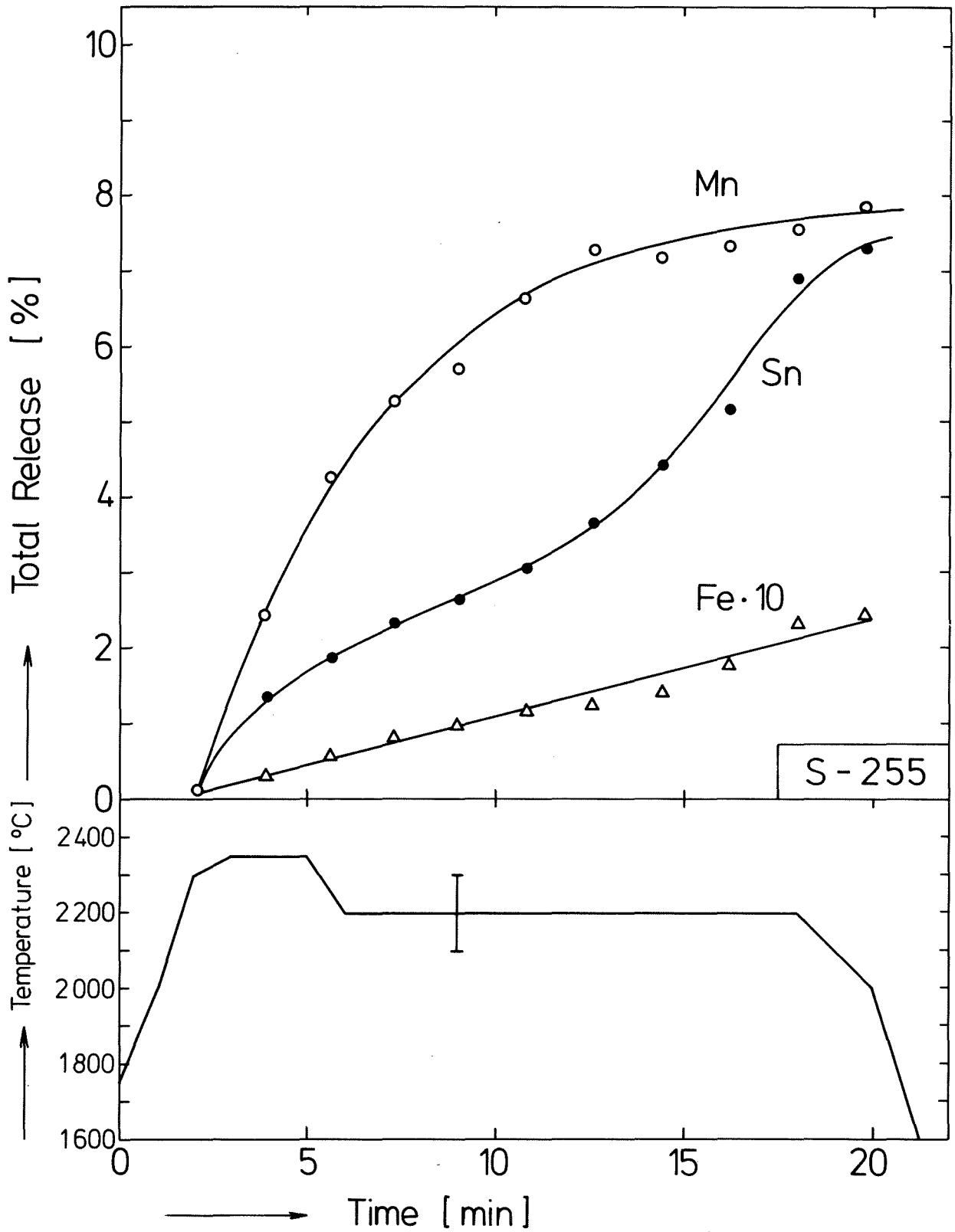


Release of Ruthenium in Steam (2 bar)

Abbildung 17

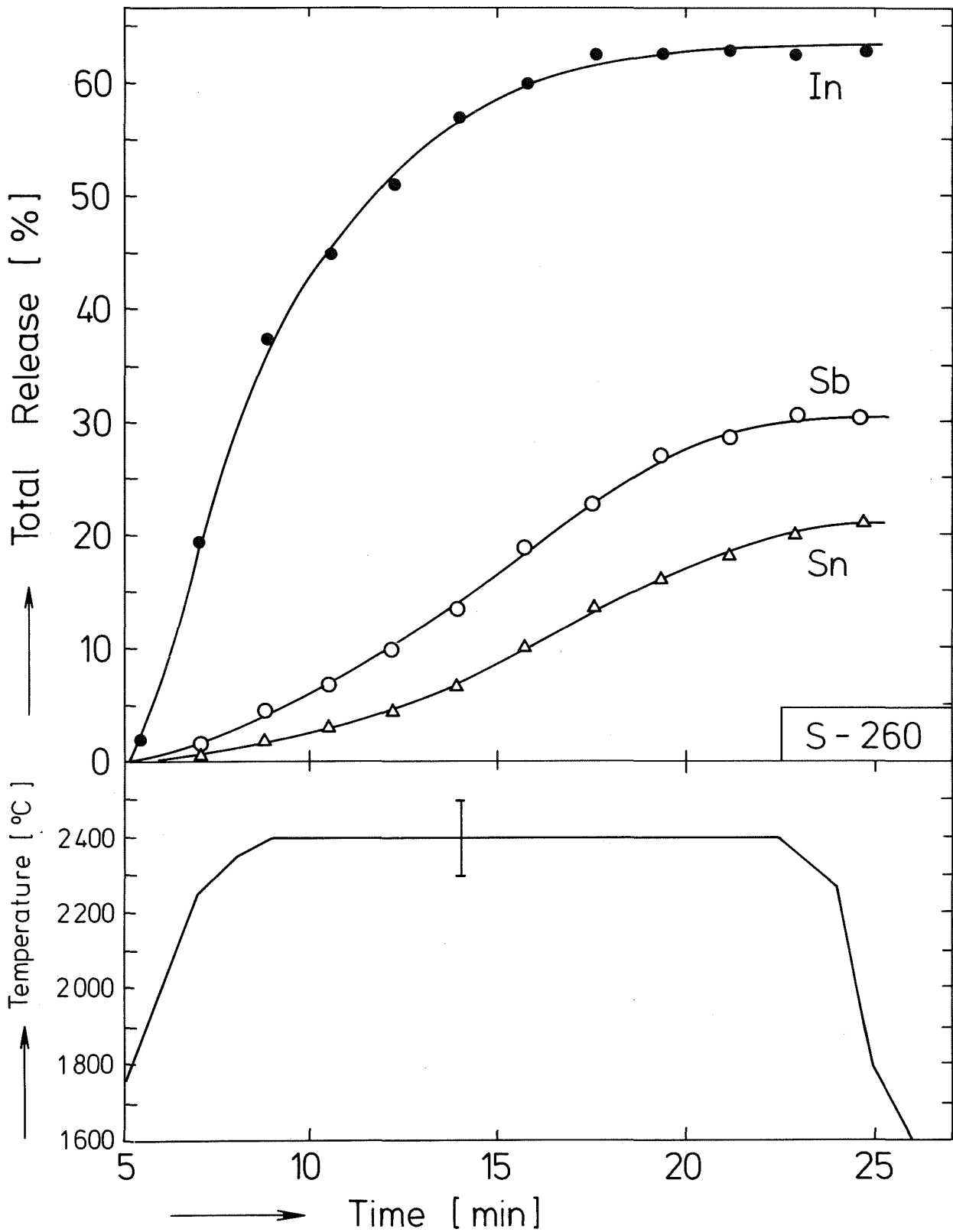


Release of Mn, Fe, Co and Cr in Steam (2 bar)

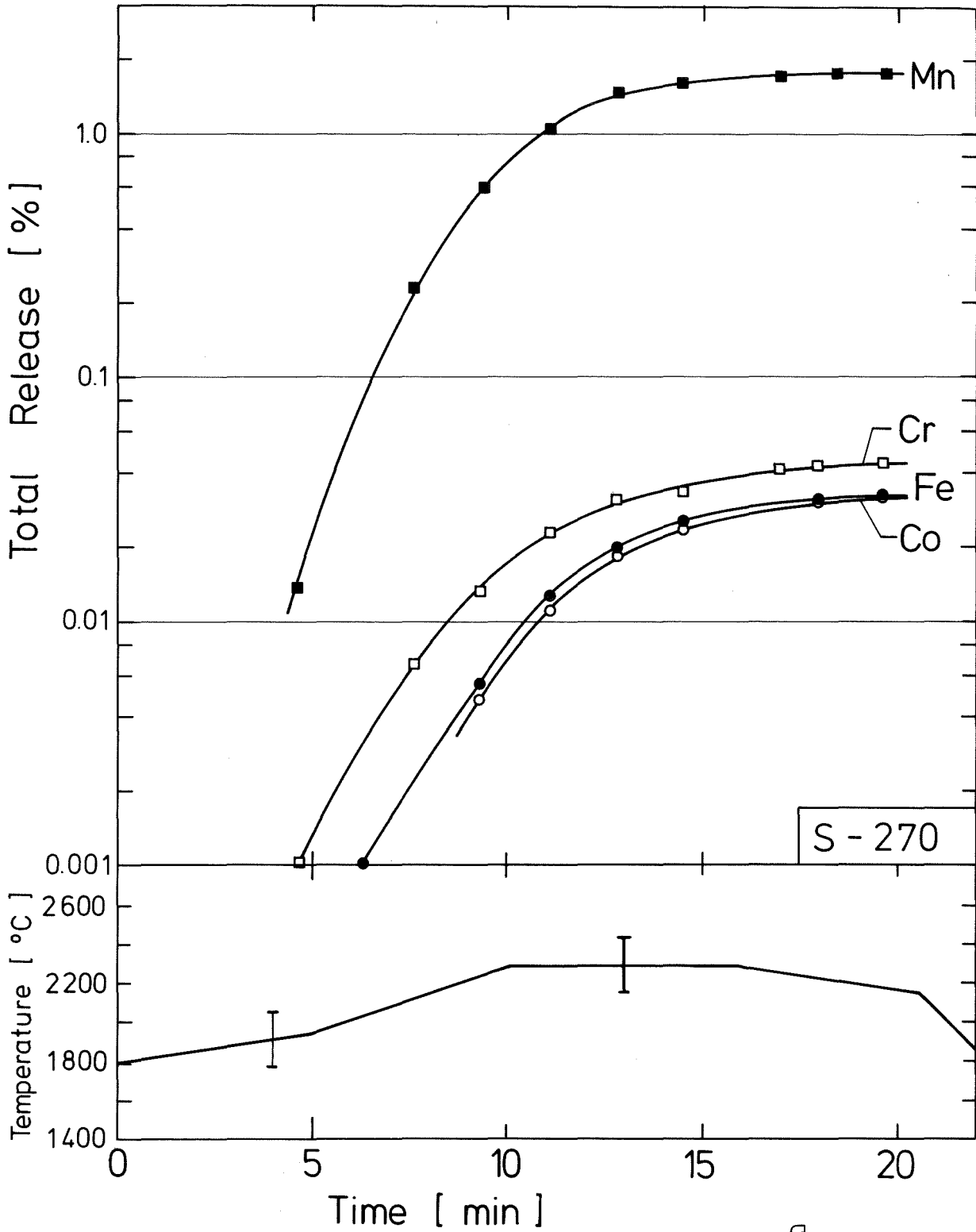


Release of Mn, Sn, and Fe in Steam (2 bar)

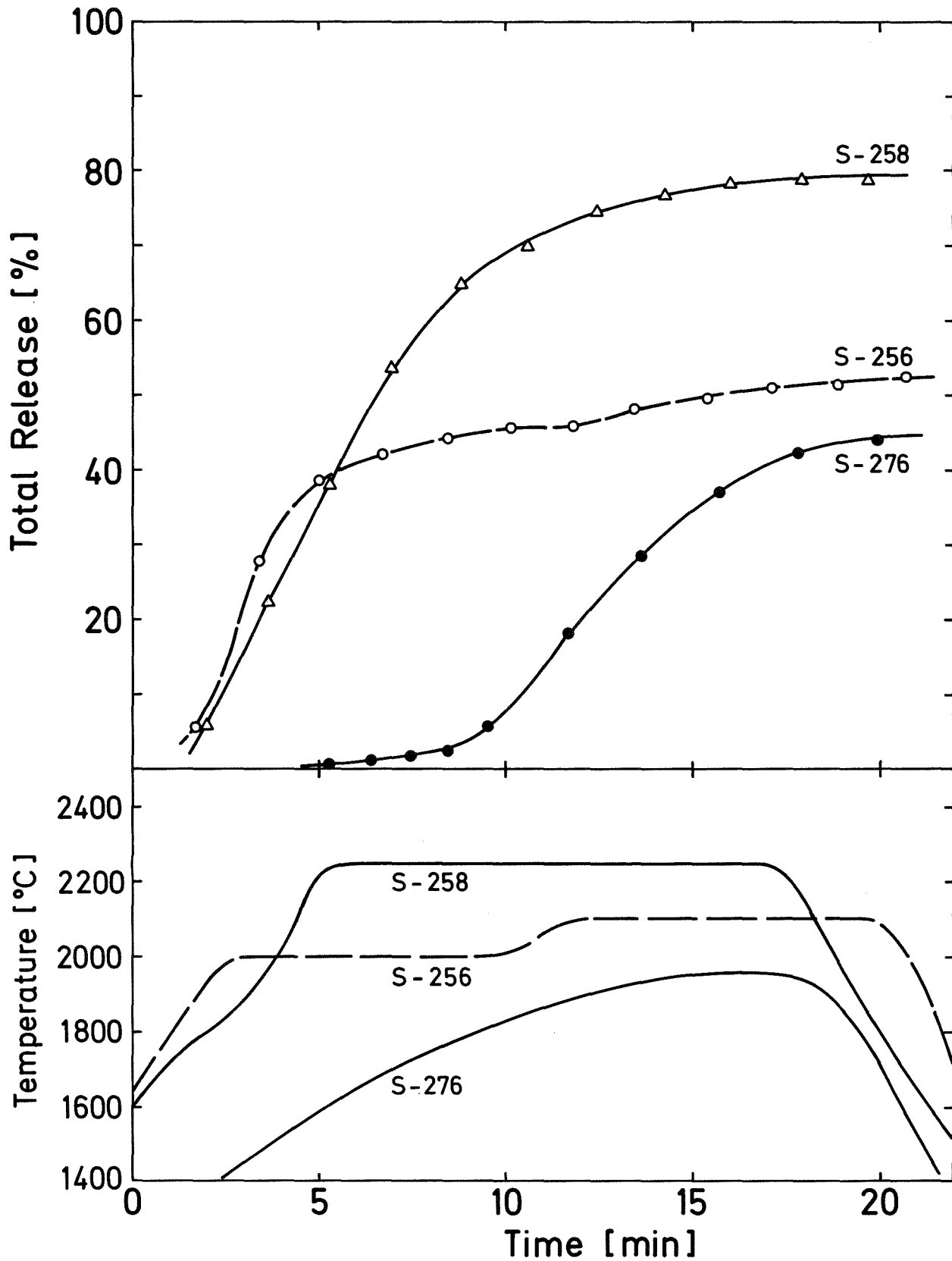
Abbildung 19



Release of In, Sb, and Sn in Steam (2 bar)

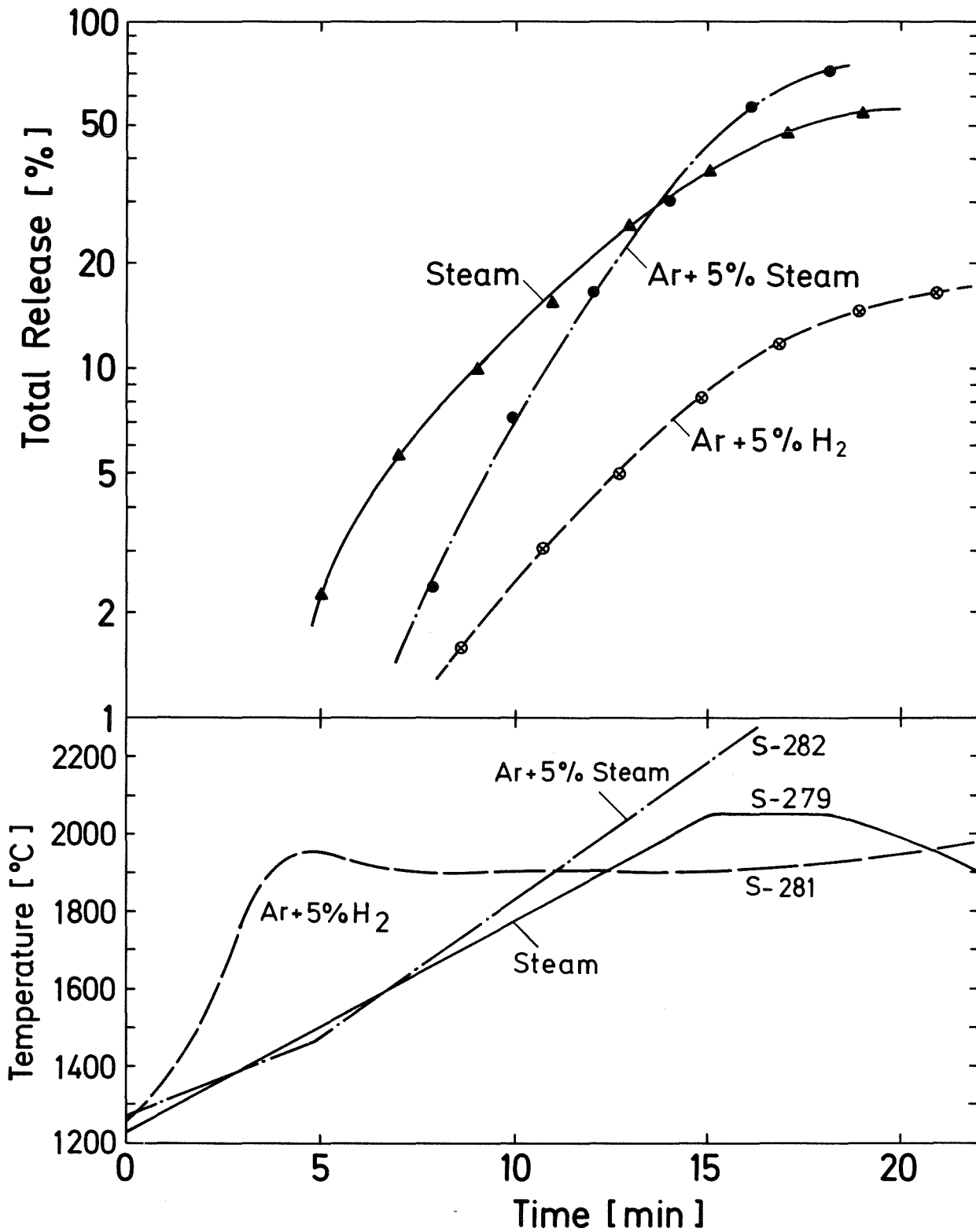


Release of Steel Components in Steam (2 bar)



Release of Control Rod Silver in Steam (2 bar)

Abbildung 22



Dependence of Ag Release on Steam Supply

Abbildung 23

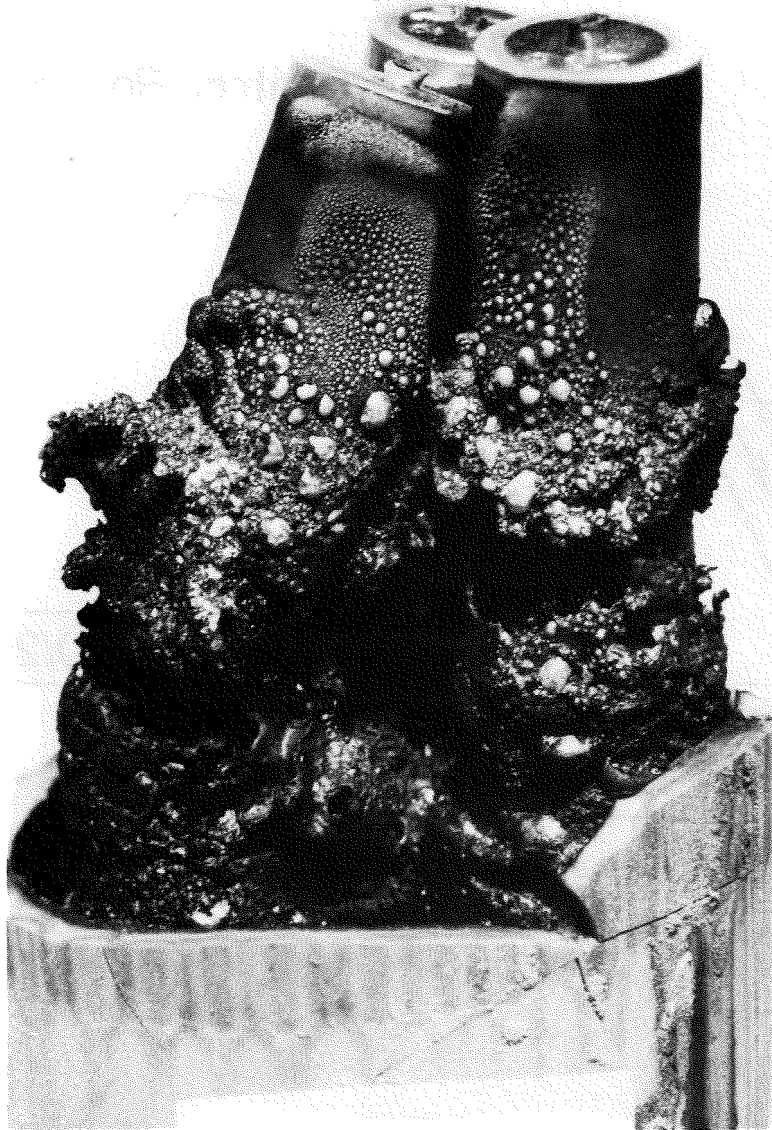
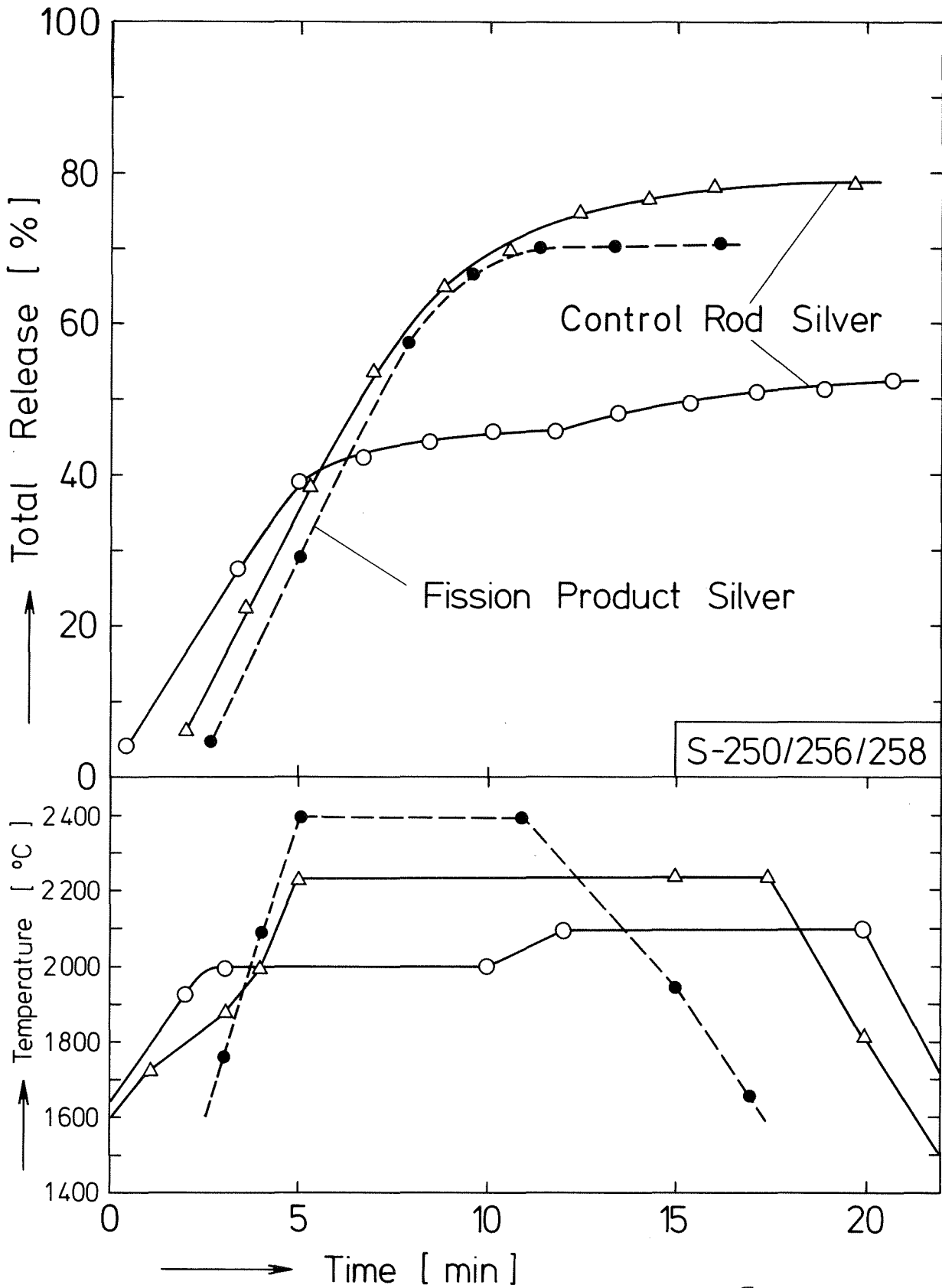


Abbildung 24

Droplets of absorber rod silver on the cladding
of fuel rods heated to 2000 °C



Comparison of Silver Release Curves in Steam (2 bar)

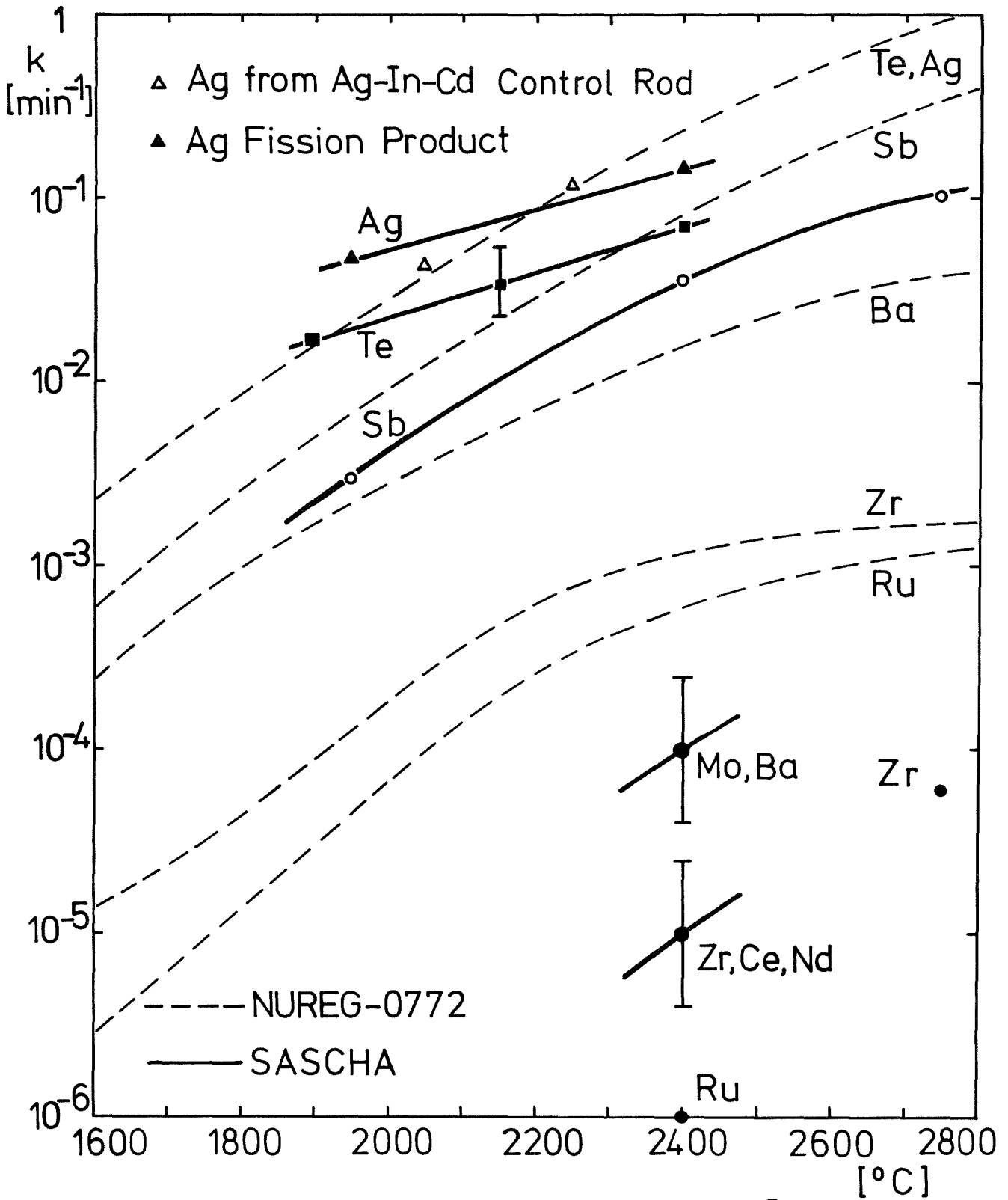
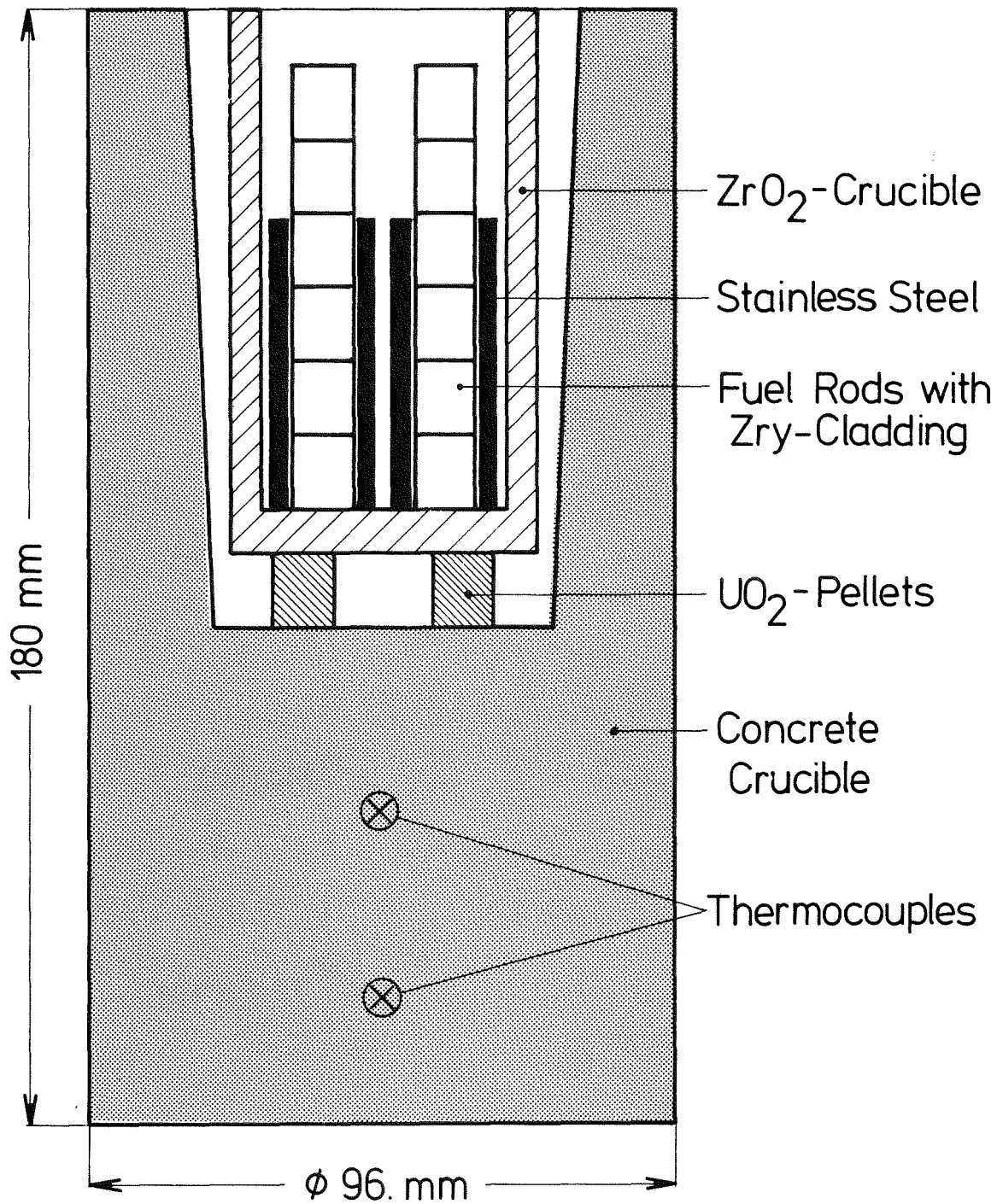
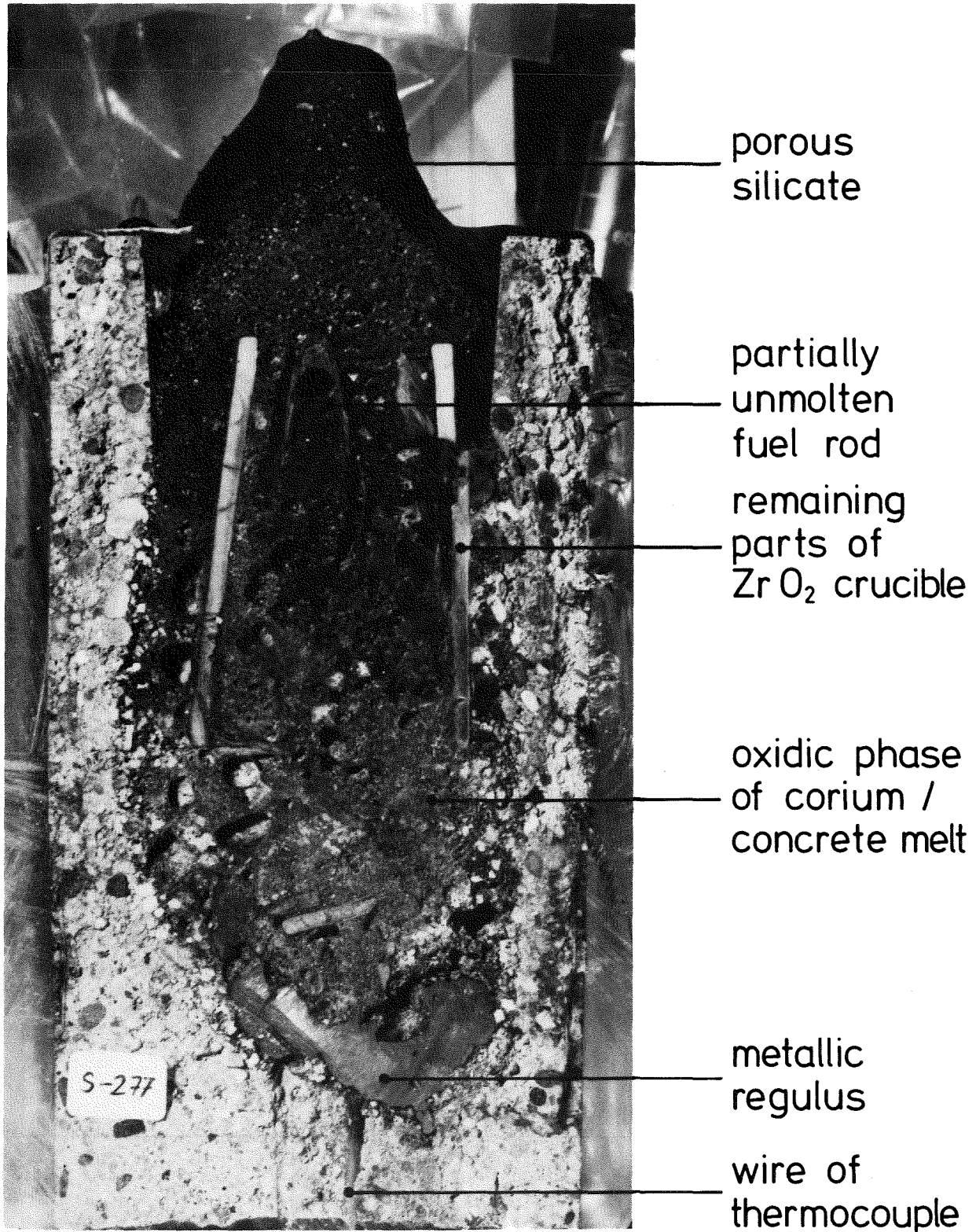


Abbildung 26

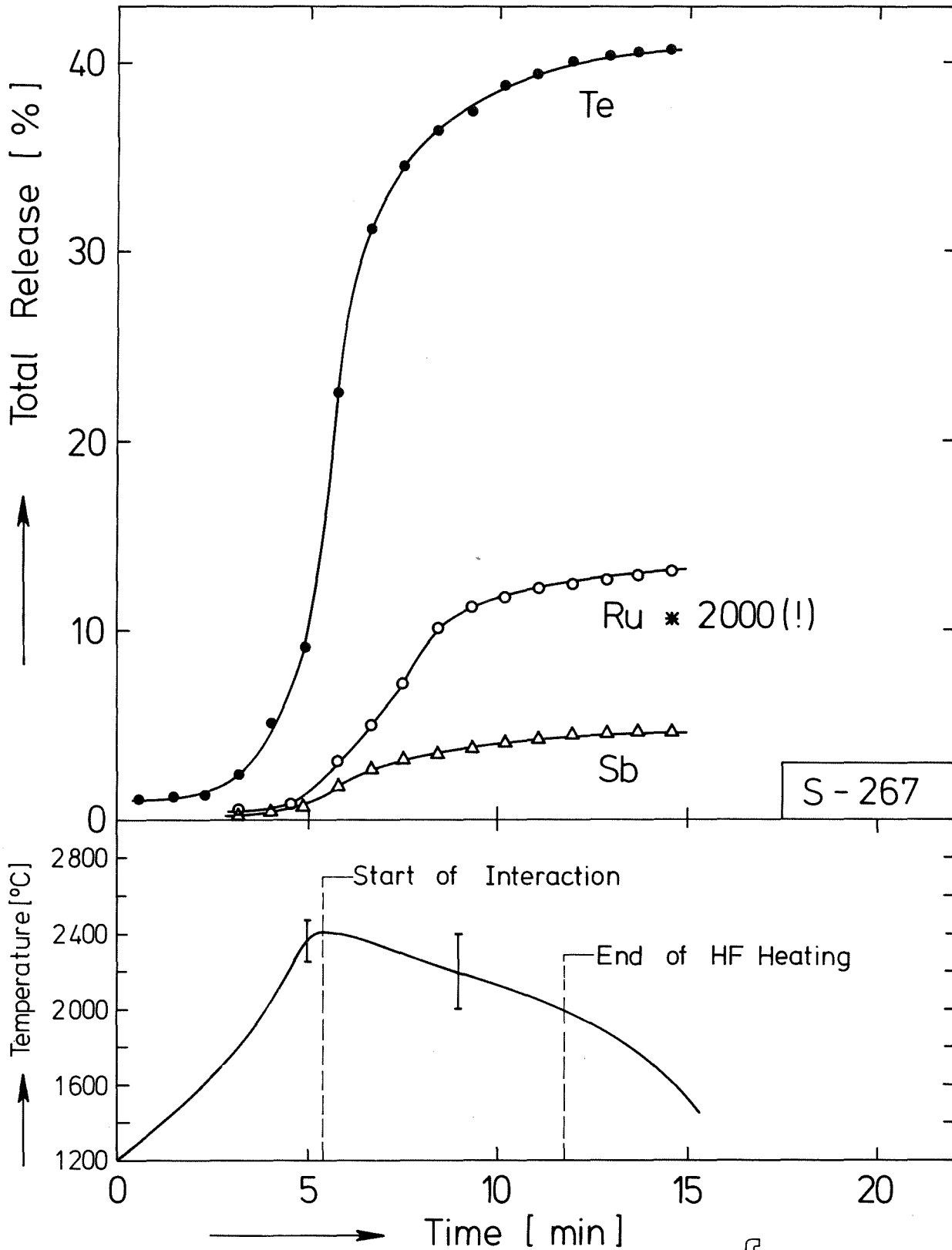
Comparison of Release Rates k in Steam [min^{-1}]



Arrangement for Fission Product Release Tests During
Melt / Concrete Interaction

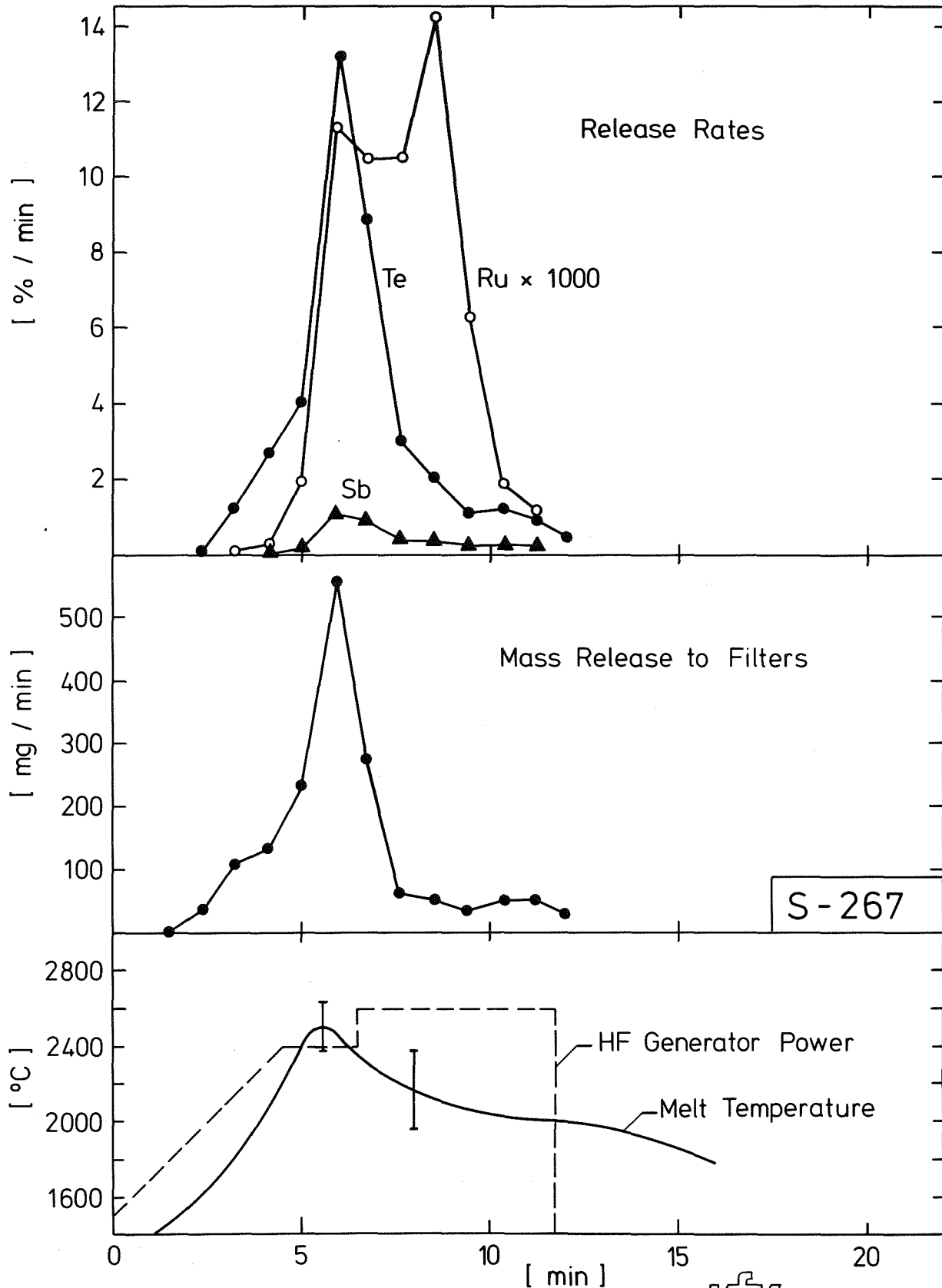


Section through concrete crucible of Test S - 277



Release of Te, Sb, and Ru during Melt / Concrete Interaction in Air

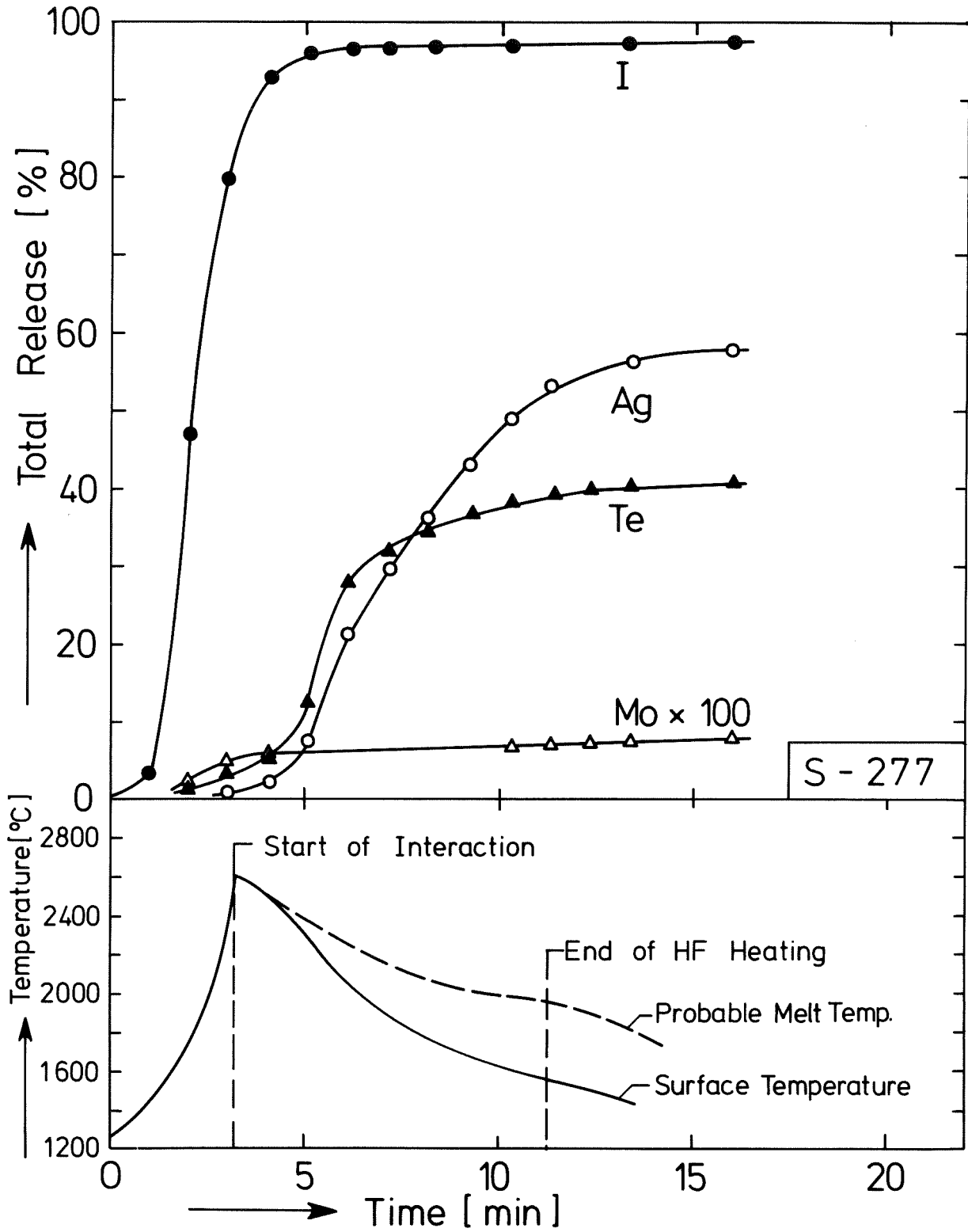
Abbildung 29



S-267

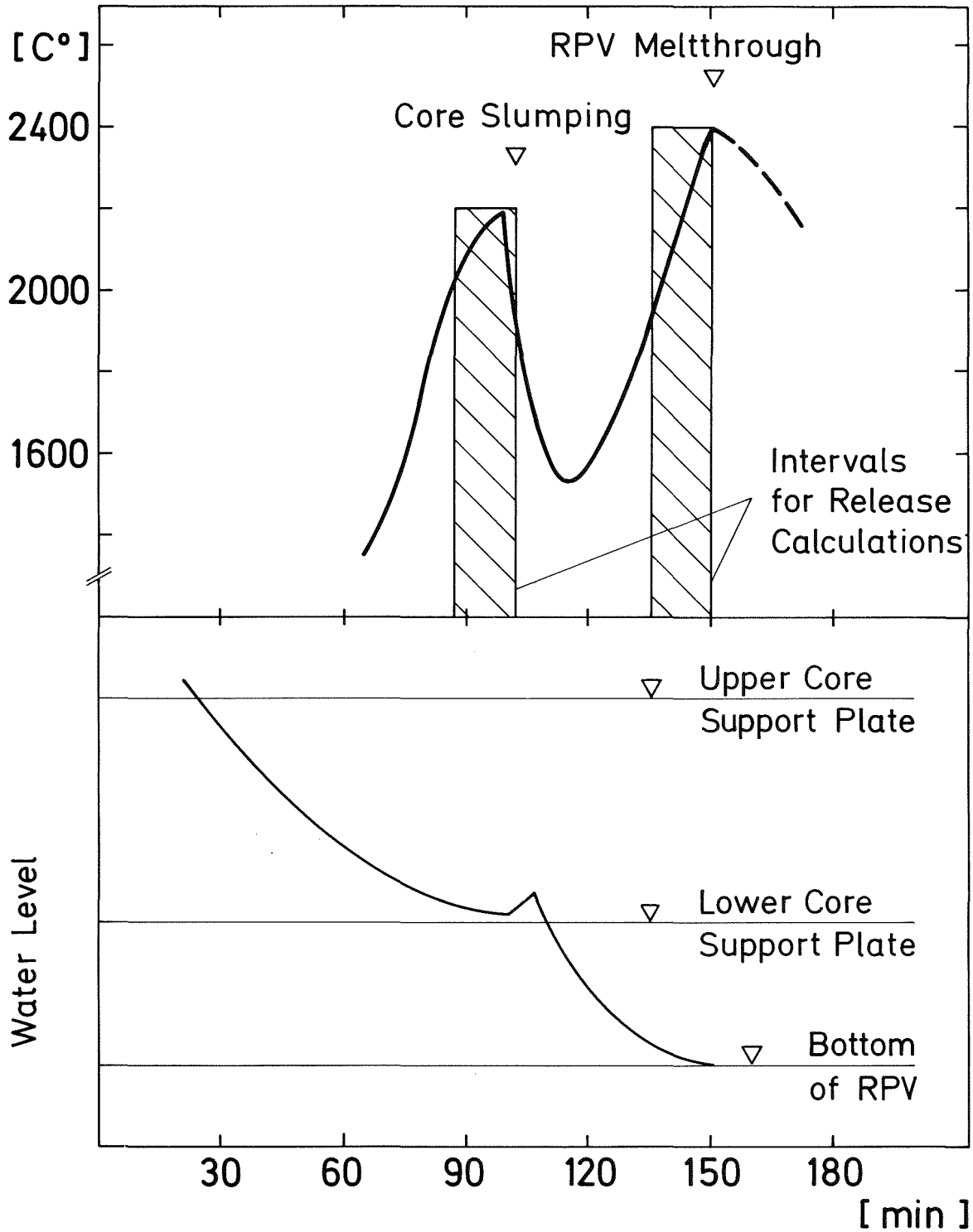
KfK
PNS / IRCH

Release Characteristics during Melt / Concrete - Interaction



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

Abbildung 31



Average Temperature of uncovered Core Material,
Definition of Release Intervals

Beitrag zu einem Chernobyl-Sonderheft von Radiochimica Acta (Bd. 41, 1987)

Radioactivity Emission from the Chernobyl Accident in Comparison with the Results of the SASCHA Program

By H. ALBRECHT, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für Radiochemie, Projekt Nukleare Sicherheit, Postfach 3640, D 75 Karlsruhe, FRG

(Received December 1, 1986)

Chernobyl accident / Core melt accident / SASCHA program / Fission product release / Radiological consequences

Abstract

After a brief description of the Chernobyl accident and the radioactive emission from the destroyed reactor, it is shown that the fission product release pattern can be characterized by assuming two different release mechanisms: (a) fuel dispersion caused by the prompt critical power excursion and (b) vaporization at temperatures below 2000°C. The release fractions are considerably different from those expected for a core melt accident as investigated by the KfK SASCHA program. However, the main radiological risk results in both cases from the release of a few highly volatile elements.

1. Introduction

The Chernobyl accident which occurred on April 26, 1986, 1:23 h, can be characterized as a prompt critical power excursion with a peak power being 2–3 orders of magnitude above nominal full power. The period of the excursion was estimated to be a few seconds, the transient energy release into the fuel may have exceeded 300 cal/g fuel [1]. Starting from the steady state temperature level, the sudden energy release may have caused fuel temperatures of 3000°C and higher, i. e. parts of the core may have reached melt conditions, probably combined with some fuel vaporization.

By the associated pressure build-up the cladding tubes were ruptured and finely fragmented hot fuel was ejected into the coolant channels. Violent fuel/coolant interactions then caused a strong overpressurization of the fuel channels with the consequence of massive core disruption and subsequent demolition of the reactor building. From that moment on, a direct connection between the core region and the environment was available through which core material including fuel particles and fission products were ejected [2].

In the following, the elemental composition of the radioactive emission during and after the accident will be described. Then it is shown, that two different release mechanisms can be identified. The activity release is compared to that expected for a LWR core melt accident which was investigated by the SASCHA program [3]. Through initiating events as well as sequences and consequences of core melt accidents are expected to be very different from the Chernobyl accident, we will come to the conclusion that the main radiological risk will always result from the release of a few highly volatile elements, among which iodine and cesium range in the first place.

2. Radioactive source term

From Soviet informations, the following picture can be derived: Major activity release took place during the first 10 days of the accident, i. e. from April 26 to May 5. It was stopped by covering the destroyed reactor with boron, dolomite, sand etc. via helicopters. Due to thermal buoyancy and chimney effects a substantial fraction of the aerosol and gas release was transported into high atmospheric regions (1500 m and even higher). The source term which was calculated by the Soviets [1] is summarized in Table 1.

Table 1. Activity release of the main radionuclides, calculated for May 6 from radiometric measurements; evaluation error $\pm 50\%$

Radionuclides	Percentage of activity released by May 6, 1986 (%)
Xe-133	possibly up to 100
Kr-85/85m	possibly up to 100
I-131	20
Te-132	15
Cs-134/137	10/13
Mo-99	2.3
Zr-95	3.2
Ru-103/106	2.9
Ba-140	5.6
Sr-89/90	4.0
Np-239	3.2
Pu-238/39/40/41/42	3.0
Cm-242	3.0

The radioactive fallout in the European territory of the USSR was estimated to be approximately 50 MCi or 3.5% of the radioactive core inventory on May 6. These numbers do not include the inert gases (Kr, Xe) and the amount of radioactivity transported across the borders of the USSR; both contributions to the overall source term can be assumed to be in the same order of magnitude as the 50 MCi mentioned above.

3. Release mechanisms

The composition of the source term can be understood by assuming two different release mechanisms:

- Fuel dispersion as a consequence of the nuclear excursion and the subsequent explosion.
Release due to this mechanism occurred as a large puff during the first phase of the accident and also during the following days when the finely dispersed fuel being

scattered over the core region and the reactor building was blown out by a flow of hot air and graphite combustion products.

b) Evaporation due to increased fuel temperature.

According to Soviet estimates, the temperature decreased very shortly after the excursion to values below 2000°C; the evaporation release was almost stopped on May 6, when the core region was completely covered as described above.

The fuel dispersion was reported to involve 3.5–4% of the fuel inventory, i. e. about 7 metric tons. The emitted small fuel particles contained fission products and transuranium elements with concentrations corresponding to the fuel burn-up. As can be seen from Table 1, the percentages of all low volatile elements (Mo, Ba, Sr, Ru, Zr, Ce, Np, Pu, Cm, . . .) correspond more or less with the percentage of the dispersed fuel. It can be concluded, therefore, that fuel dispersion was the principal release mechanism for the low volatile elements.

The highly volatile fission products like I and Cs were additionally released by vaporization from less heavily damaged parts of the core. From the SASCHA program (and other related programs as well it is known) that at fuel temperatures below 2000°C fission product release is mainly restricted to the highly volatile elements such as Kr, Xe, I, Cs, and Te. The incomplete release of these elements fits well with the Soviet statement that no major core melting occurred during the accident. In the case of severe fuel melting, temperatures higher than 2000°C would have been reached and the integral release fraction of I, Cs, and Te would have been higher by a factor of 2–3. (When the transport of fission products across the Soviet borders is considered, an integral release of these elements in the range 20–50% appears to be realistic.)

With respect to the release fractions of Kr and Xe (“possibly up to 100%”), it should be mentioned that the release behavior of these elements was found to be very similar to that of I and Cs [4, 5], i. e. their release rate coefficients are almost identical in the temperature range 1400–2000°C. Thus, either the release percentages of Kr and Xe have been overestimated or those of I and Cs have been underestimated in Table 1.

4. Comparison with the results of the SASCHA program

A transient overpower accident caused by prompt criticality can be excluded for western LWRs. Therefore, the most severe accident to be considered here is a core melt accident which is expected to occur after a loss of coolant accident, if all emergency cooling systems would fail and the fuel would melt due to missing decay heat removal. There are several reasons (Table 2) why the release pattern of the Chernobyl accident can hardly be identical with that of a core melt accident as investigated by the SASCHA program.

Table 2. Significant parameters influencing fission product release

Parameter	Chernobyl accident	Core melt accident
Initiating event	Reactivity excursion + loss of coolant	Loss of coolant
Fuel behavior	Dispersion	Melting
Temperature	a) $\approx 3000^\circ\text{C}$ (< 3 sec) b) $< 2000^\circ\text{C}$	2000 – 2500°C
Atmosphere	Air, steam, CO, CO ₂ , H ₂ , CH ₄	Steam/H ₂

When the results of the SASCHA program (Table 3 in [3]) are compared with the activity released from the Chernobyl reactor (Table 1), the following statements can be made:

1. The percentages of the highly volatile elements I, Cs, Te released from the Chernobyl reactor are higher by a factor of 3–6 than those of the low volatile elements. The corresponding factor is > 100 in the case of the SASCHA data. As discussed in the preceding paragraph, the main reason for this difference is the release mechanism (fuel dispersion) and not the volatility. The vaporization release of the elements Mo, Zr, Ru, Ba, . . . is estimated to be well below 1% in all cases.
2. The dispersed low volatile elements were normally constituents of large aerosol particles which were deposited at closer distances to the source than the highly volatile elements. The latter – when being released by evaporation – were transported by smaller aerosol particles and over longer distances. It is very likely, therefore, that the material transported across the Soviet borders contained larger concentrations of the highly volatile elements; i. e. the factor mentioned above would be closer to 10 if the integral activity release could be determined sufficiently well.
3. The radiological source term of a core melt accident is expected to be several orders of magnitude smaller than the release fractions compiled in Table 3 and than the Chernobyl release, because the containment buildings of western LWR's will not be destroyed during the initiating events (the “blow down”) of the accident. (Further questions related to containment loads, aerosol behavior, leakages etc. are discussed elsewhere, e. g. in [6].)
4. The low volatile fission products and transuranium elements will contribute very little to the integral activity release in the case of a core melt accident. These elements were also found to be of secondary importance for the radiological impact of the Chernobyl accident, at least outside the USSR. Therefore, the main conclusion derived from the SASCHA program is valid also for the experience gained from Chernobyl: by far the greatest radiological risk is connected with the release of a few highly volatile elements among which iodine and cesium range in the first place.

1. USSR State Committee on the Utilization of Atomic Energy, Information compiled for the IAEA Experts' Meeting, Aug. 25–29, 1986, Draft Report.
2. ALBRECHT, H., KUCZERA, B.: Source Term Implications of Chernobyl, Conference-by-Computer entitled "Chernobyl: Where do we go from here?", organized by McGraw-Hill's Nuclear Publications, Sept. 29–Oct. 17, 1986.
3. ALBRECHT, H.: "Results of the SASCHA Program on Fission Product Release under Core Melting Conditions", this edition of Radiocimica Acta.
4. LORENZ, R. A., *et al.*: "Fission Product Release from Highly Irradiated LWR Fuel Heated to 1300–1600°C in Steam", ORNL/NUREG/TM-346, 1980.
5. OSBORNE, M. F., *et al.*: "Fission Product Release and Fuel Behavior in Tests of LWR Fuel under Accident Conditions", Int. Symposium on Source Term Evaluation for Accident Conditions, Columbus, Ohio, Oct. 28–Nov. 1, 1985.
6. ALBRECHT, H., *et al.*: "Recent Results on Sequences and Consequences of Severe Reactor Accidents", Nuclear Europe, Vol. VI, No. 11, 1986.