

KfK 4577  
August 1990

# **Freisetzung von Spaltstoff und Spaltprodukten aus bewegten und siedenden Natriumlachen**

**Ch. Adelhelm, H. Sauter  
Institut für Material- und Festkörperforschung  
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik  
Projekt Nukleare Sicherheitsforschung**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



**KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE**

**Institut für Material- und Festkörperforschung  
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik**

**Projekt Nukleare Sicherheitsforschung**

**KfK 4577**

**Freisetzung von Spaltstoff und Spaltprodukten aus bewegten und siedenden  
Natriumlachen**

**Ch. Adelhelm und H. Sauter**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe**

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

## **Freisetzung von Spaltstoff und Spaltprodukten aus bewegten und siedenden Natriumlachen**

### **Zusammenfassung**

Das KfK-NALA Programm befaßt sich mit dem sekundären radiologischen Quellterm bei einem hypothetischen kernzerlegenden Unfall eines metallgekühlten Reaktors. Während zu Beginn der Untersuchungen das SNR 300-Containment die Randbedingungen vorgab, wurde bei späteren Experimentserien möglichst die gesamte denkbare Szenarienvielfalt unabhängig von der Auslegung spezieller Containments untersucht. D.h. es sollte nicht so sehr versucht werden, aus der Streubreite der radioaktiven Freisetzungen "den wahren Wert" zu ermitteln, als vielmehr die Abhängigkeit der Freisetzung- bzw. Rückhaltewerte von den wesentlichen Parametern eines Unfallszenarios kennenzulernen.

In diesem Sinne wird in der jüngsten Serie NALA IIIa, b und c der Einfluß von Natriumsieden, von aufsteigenden Gasblasen im Pool und von Natrium-Betonwechselwirkungen untersucht. Ein wiederkehrendes, wesentliches, sowohl früher als auch hier in NALA IIIa wiedergefundenes Ergebnis ist das ausgeprägte Zeitverhalten von Partikelfreisetzungen aus dem Pool: Während der ersten Aufheizphase und der ersten Verweilzeit auf einem vorgegebenen Temperaturplateau wird der kleinste RF-Wert bestimmt; späterhin wird dieser Term stets größer gefunden.

Weiterhin bemerkenswert ist der verhältnismäßig starke Einfluß der Art der Oberflächenanströmung sowie der Einfluß der quellenahen Strömungshindernisse zum Fortgasstrom auf die Partikelfreisetzung aus der Pooloberfläche. Die Beobachtungen hierzu werden, auch frühere Ergebnisse einbeziehend, in Kapitel 8 zusammenfassend diskutiert.

Die hier in den Tabellen angegebenen RF-Faktoren sollen relativ Auskunft geben zum Einfluß des Siedevorgangs und des Einleitens von Gasblasen in den Pool. Die spezielle, zu diesem Zweck zeitauflösend gewählte Anordnung des Experiments gestattet jedoch keinen direkten Vergleich mit früheren NALA-RF-Werten, was die absoluten Zahlenwerte betrifft. Hierzu dienen die Experimente der Serie IIIb, die - nicht zeitauflösend - den Siedefall in einer containmentähnlichen Geometrie untersuchten und deren Ergebnisse demnächst veröffentlicht werden.

## Release of Fuel and Fission Products from Stirred and Boiling Sodium Pools

### Abstract

The NALA-program at KfK is concerned with the radiological secondary source term in an LMFBR accident scenario with tank failure. Whereas at the early beginning of the program the SNR 300 containment was giving the parameters for the experimental starting conditions, later series of experiments are trying to cover the full scope of hypothetical accident conditions in different containments. Thus, the main concern now is not to investigate the most probable or realistic RF-values for different fission products and fuel, but to uncover the most essential parameters which influence the RF-values and to describe the way they do it.

By that means, the last NALA-series, named NALA IIIa, b, and c, investigates the influence of boiling, of small gas bubbles rising through the pool, of sodium-concrete interaction and of gas impurities as well as of the type of gas convection above the pool surface. One major result of several parts of the NALA program in common is, that every release of particles from the pool to the surrounding shows a pronounced time behaviour: Rapid heat-up to a predestinated temperature of the pool and the first time at that temperature level yields the smallest RF-values; later on those values increase with time under all conditions investigated.

The second main result is the relatively strong influence of the type of gas flow over the pool surface and the off-gas stream given by the geometry in the neighbourhood of the pool. The worst case is a gas flow parallel to the pool surface leaving the pool without any obstacles. A modest release will yield from natural turbulent flow due to thermal convection and/or from turbulent forced convection. Major decontamination of the released aerosol system occurs when the convection hits obstacles or when an off-gas-stream passes a pipe. A further decontamination effect is associated with condensating sodium vapour when being mixed with cold gas or when hitting the walls near the pool. In these cases, a puristic RF-value describing the real surface release cannot be obtained by the experiment and will probably be of no importance in an accident scenario. The more realistic RF-value yielding from the experiment describes the release from a cross section above the pool as the location of the "source". The most prominent example for that case is a boiling rest of sodium in a relatively high container, where the partial steam pressure of sodium overcomes the gas pressure and a sodium "rain" will act as a scrubbing mechanism.

The figures for RF-values presented here in the tables refer to the NALA IIIa-series, where boiling and rising bubbles influence have been studied. Nearly most experiments were performed in several sequences, where the probe dishes had been replaced with the rest of the apparatus remaining unchanged. As a consequence, every following run has the same pool at its beginning as the preceding one at its ending. As it can be read, particle release usually restarts with a new heat up phase but decleans very rapidly, not reaching the amount of the preceding heat up phase. Boiling itself leads to less release than the cool down phase, which is interpreted as a scrubbing effect. Gas bubbles have no influence on the release. These findings are in accord with all experiments, partly not published due to incompleteness of the datasets. This behaviour is not found in the case of iodine release, where NaI is assumed to evaporate as a gas. When the figures themselves rather than their trend is considered, it must be taken into account, that the bulk of the primarily evaporated sodium condensates at the walls and reenters the pool so that a direct comparison to NALA II-results cannot be drawn. Therefore, experiments of the series NALA IIIb have been performed with a boiling pool in a more containment-like setup with results to be published soon.

| Inhalt:  | Seite  |
|--|--------|
| 1. Zweck und Ziel der Versuche .....   | 1      |
| 2. Überlegungen zum Versuchsaufbau .....   | 1      |
| 3. Beschreibung des Versuchsaufbaus .....  | 2      |
| 4. Durchführung der Experimente .....  | 4      |
| 4.1 Vorbereitung einer Versuchsreihe .....   | 4      |
| 4.2 Ablauf einer typischen Versuchsreihe .....   | 5      |
| 4.3 Beendigung einer Versuchsserie .....   | 6      |
| 5. Behandlung der Analysenproben .....   | 6      |
| 6. Bestimmung von Natrium, Strontium, Cer, Tellur, Uran und<br>Jod in den Analysenproben ..... | 7      |
| 6.1 Natrium .....  | 7      |
| 6.2 Strontium .....  | 8      |
| 6.3 Cer und Tellur .....   | 8      |
| 6.4 Uran .....   | 9      |
| 6.5 Jod .....  | 9      |
| 7. Diskussion der Ergebnisse .....   | 10     |
| 7.1 Natriumfreisetzung .....   | 10     |
| 7.2 Verhalten der Atmosphäre im Aufbau .....   | 11     |
| 8. Verhalten der Beimischungen .....   | 12     |
| 8.1 Zum Vorgehen bei der Beschreibung .....  | 12     |
| 8.2 Deskription der Meßwerte .....   | 13     |
| 8.3 Wertung und Wichtung der Ergebnisse .....  | 14     |
| 8.4 Bedeutung der Ergebnisse für Anwendungen auf Störfälle .....                               | 16     |
| 8.5 Zusammenfassung der Ergebnisse .....   | 18     |
| 9. Schlußfolgerung .....   | 19     |
| <br>Literatur .....  | <br>19 |
| Tabellen 1-8 .....   | 20     |
| Abbildungen 1 und 2 .....  | 28     |



## 1. Zweck und Ziel der Versuche

In den Versuchen der Reihe NALA III soll die  $\text{UO}_2$  - und Spaltproduktfreisetzung (Cs, I, Sr, Ce, Te) aus Natriumlachen untersucht werden, die entweder siedend oder Vorgänge durchlaufen, wie sie bei Natrium-Betonreaktionen vorkommen. Diese Versuche schließen sich an die Reihen NALA I und II /1,2/ an, bei denen in unterschiedlichen Geometrien und Beimischungskonzentrationen die Freisetzung aus heißen, aber ruhenden Natriumlachen bestimmt wurde.

Die Notwendigkeit zur Durchführung dieser Untersuchungen ergibt sich einerseits aus Überlegungen zur Nichtverfügbarkeit der Bodenkühleinrichtung im inneren Containment des SNR 300 nach einem hypothetischen kernzerlegenden Unfall und andererseits aus Containmentüberlegungen zum EFR ohne inertes inneres Containment.

## 2. Überlegungen zum Versuchsaufbau

Da aus den vorausgegangenen Experimenten bekannt war, daß ein beachtlicher Teil der Freisetzung von Beimischungen aus Natrium bereits zu Anfang des Experimentes erfolgt und trotz steigender Konzentration - für die einzelnen Stoffe unterschiedlich - später abnimmt, sollte die Apparatur ein möglichst zügiges Aufheizen des Natriums bis zur Siedetemperatur gestatten. Ein externer Brenner mit hoher Heizdichte, wie in NALA II verwendet, hätte aus Sicherheitsgründen starkwandiges Behältermaterial erfordert und zu aufwendigen Dichtungen geführt. Bei elektrischer Beheizung läßt sich wegen der Begrenzung in der Betriebstemperatur der Heizdrähte keine sehr hohe Heizdichte erzielen. Soll in kurzer Zeit Siedetemperatur erreicht werden, muß ein großes Oberflächen/Volumenverhältnis bei geringer Wandstärke gewählt werden.

Unter dieser Prämisse wurde entschieden, den NALA II-Kessel ( $2,2 \text{ m}^3$ ) nur als inertes Sicherheitscontainment zu verwenden und darin eine Apparatur im Labormaßstab aus dünnwandigem Material druckgleich mit dem Kessel aufzubauen. Ein weiterer Aspekt bei der Auslegung des Versuchsgefäßes ist die recht erhebliche Freisetzung von Natrium aus dem Lachengefäß in die umgebende Anordnung und deren spätere Entsorgung. Auch hierzu ist erstrebenswert, möglichst rasch zum Siedepunkt zu gelangen, aber auch nach Experimentende diesen rasch zu verlassen, um die für das Ergebnis unwichtigen Natriumablagerungen so gering wie möglich zu halten. Weiterhin wächst der

Entsorgungsaufwand beträchtlich mit der Größe der Anordnung. Da bei der Fragestellung von NALA III nicht das Aerosolverhalten, sondern nur die Freisetzung von Beimischungen aus der Lache im Vordergrund des Interesses steht, wurde zunächst eine Anordnung gewählt, bei der nur mit Hilfe von geführter Naturkonvektion ein Transportgasstrom erzeugt wird, bei gleichzeitiger Abscheidung von mitgeführten Partikeln in eine während des Experiments austauschbare Vorlage.

Somit ist eine weitgehende Zeitauflösung bei der Bestimmung des Freisetzungsverhaltens möglich. Im Kauf genommen wurde dabei, daß die Oberflächenanströmung der Lache weder den Bedingungen von NALA I noch von NALA II oder den Gloveboxexperimenten entspricht. Vielmehr wurde der Palette von NALA-Geometrien eine weitere hinzugefügt, wie sie in einem Unfallszenario ebenfalls denkbar ist.

### **3. Beschreibung des Versuchsaufbaus**

Im einzelnen besteht die Vorrichtung (Abb. 1) aus dem Lachengefäß, einem Krümmer und einem Drehteller. Das Lachengefäß ist ein einseitig geschlossenes Rohrstück von 8,3 cm Durchmesser und 33 cm Länge, das zu 2/3 mit Natrium gefüllt wird und das die Beimischungen enthält, die den Brennstoff und die Spaltprodukte simulieren. Längs der Natriumfüllung ist eine Thermoelementmeßsäule angeordnet, die über vier Meßstellen verfügt und so justiert ist, daß bald nach Experimentbeginn eine Meßstelle knapp aus der Natriumoberfläche herausragt und somit als Siededetektor fungiert.

Oberhalb der Natriumlache beginnt ein längs aufgesägter und mit einem Trennblech zusammen erneut verschweißter Krümmer, der durch geeignete ungleiche Isolierung, Heizung bzw. Kühlung eine geführte Naturzirkulation des eingeschlossenen Gases bewirken läßt. Das über der Natriumoberfläche stark aufgeheizte Gas steigt auf und wird durch das trichterförmig zur Seite gebogene Trennblech in die obere Krümmerhälfte geleitet. Nach Überschreiten des Krümmerscheitels ist die obere Wandhälfte nicht mehr isoliert bzw. wird im unteren Drittel durch einen Hilfgasstrom gekühlt. Eine schlitzförmige Verengung leitet den aerosolbeladenen Gasstrom direkt auf das jeweilige, in Position stehende Sedimentationsprobenahmeschälchen, das auch die am Trennblech entlanglaufenden kondensierten Natriumtropfen auffängt. Durch einen parallel verlaufenden Düsenschlitz gelangt der Gasstrom um 180° umgelenkt in das untere Halbrohr des Krümmers, wo eine Wandbeheizung in

Verbindung mit Isolation für Auftrieb sorgt. Die jeweilig für eine Naturzirkulation wichtigen Wandstellen werden durch Thermoelemente überwacht, die im Bereich des Krümmerscheitels auch als Indikation für Natriumschwallbildung infolge von Siedeverzügen dienen. Die Sedimentationsprobeschale kann während des Experiments vermöge eines Drehgestells, eines Gestänges und zweier Durchführungen als Funktion der Zeit ausgetauscht werden (Vorrat des Drehtellers : 6 Schalen). Bei Experimentende, nach Abkühlen und Öffnen des Versuchstandes unter nur geringer Belüftung der erstarrten Natriumoberfläche, kann auch der komplette Schalenset erneuert werden, ohne die gesamte Anordnung zu demontieren.

Mit diesem Aufbau wurden die reinen Siedeexperimente durchgeführt, und zwar üblicherweise in drei Läufen, d.h. drei zeitauflösenden Experimenten mit jeweils der gleichen - um das freigesetzte Material erleichterten - Quelle.

Des Weiteren wurden Proben aus dem Gasraum über der siedenden Natriumlache in Probebehältern, Impaktoren und auf Filtern genommen. Ziel der Probenahme war die Bestimmung der Konzentration der Beimischungen im Gasraum oberhalb der Lache, der Natriummassenkonzentration sowie gegebenenfalls der Größenverteilung der Natriumtröpfchen. Das zur Probenahme entnommene Gasvolumen wurde aus dem Kessel in den Aufbau nachgespeist. Es sollte sich als schwierig erweisen, angesichts der recht hohen Konzentration an Natrium verlässliche Messungen zu erzielen : Zu enge Rohrleitungen verstopfen sofort ; bei größeren kann bereits an den Wänden abgeschiedenes Natrium an andere Stellen gelangen (speziell in Abhängigkeit der Isolierung, der Erwärmung durch den Aufbau und / oder der Begleitheizung). Da mehrere Versuchsläufe auch hier geplant waren, sollten die Verbindungen in kurzer Zeit von Hand lösbar und erneuerbar sein, um übermäßige Reaktionen des Natriums mit der Luft bei geöffnetem Kessel zu vermeiden. Dabei wurden Dichtungen durch Natrium, hohe Temperatur vom Aufbau und - bei verstopfenden Einlaßöffnungen - Unterdruck undicht. Es mußte mit relativ großen Gasgeschwindigkeiten gearbeitet werden, so daß eine Probenahme nur wenige Sekunden (10 bis 30) dauerte. Dies machte die Volumenbestimmung ungenau. Letztlich kann nicht ausgeschlossen werden, daß bei einzelnen Probenahmen flüssiges Natrium als Siedespritzer mit angesaugt worden ist. Eine entsprechende Streuung der Meßergebnisse deutet darauf hin. Aufgegeben werden mußte der Versuch, eine aussagekräftige Partikelgrößenverteilung zu gewinnen, da - anders als in den NALA II-Experimenten - der Na-Dampfanteil im Gas bei siedendem Natrium beträchtlich ist und im Impaktor beliebig verteilt wird. Ein Beheizen des Impaktors über ca. 500°C hinaus wäre sinnlos, da bis zum Abkühlen und Ausbau

eine ebenfalls beliebige zeit - und temperaturfeldabhängige Massenverteilung zu finden wäre. Eine weitere Serie von Läufen diene dem Ziel, einerseits den Durchmischungseffekt, den aufsteigende Gasblasen im heißen Natriumpool haben (z.B. aus einer Natrium-Betonreaktion) zu studieren und andererseits einen Beitrag zur Aufklärung des Freisetzungsmechanismus von festen, ungelösten Partikeln aus Flüssigkeitsoberflächen in den Gasraum zu erhalten. Hierzu wurde ein Tauchrohr installiert, das im Pool knapp über dem Boden endete und von außerhalb des Kessels mit einem Argongasstrom beaufschlagt werden konnte. Das eingespeiste Volumen wurde dem Aufbau an anderer Stelle über Abscheidebehälter und Filter entnommen und ebenfalls zur Probenahme auf Natrium und Beimengungskonzentration herangezogen.

Abschließend sei noch darauf hingewiesen, daß mit der gleichen Quelle wie in Abb. 1 - aber mit einem containmentartigem angeschlossenen Behälter die Versuchsserie NALA III-b durchgeführt wurde, um u. a. Massenkonzentration und Größenverteilung bei Anwesenheit einer siedenden Lache bestimmen zu können. Die dabei gewonnenen Na-Verdunstungsraten im Siedefall mit genau dieser Quelle werden auch bei den Auswertungen dieser Versuche zitiert, da ein nicht unerheblicher Teil des primär verdampften und aus der Quelle freigesetzten Natriums im Aufbau kondensiert und in den Pool zurückläuft. Dabei werden die an den Wänden abgeschiedenen Partikeln, offenbar kaum oder wenig abgewaschen und mitgerissen. In der Diskussion der Experimentergebnisse ist dieser Sachverhalt von Bedeutung und der Vortrag der Verdunstungsraten nach III-b teilweise erforderlich.

#### **4. Durchführung der Experimente**

##### **4.1 Vorbereitung einer Versuchsreihe**

Nach Abwiegen der Beimischungen (typisch 10 bis 20 g) und Putzen des Natriums in einer inertisierten Glovebox wurden die pulvrigen Beimischungen nach der in NALA II bewährten Methode in Mulden gegeben, die zuvor mit dem Handschuh in passend geschnittene Natriumplatten gedrückt wurden. Durch Aufpressen einer zweiten Natriumplatte wurden diese Mulden anschließend pulverdicht verschlossen. Die so entstandenen Natrium-"sandwiches" wurden in das Rohrende gegeben, das später den Pool bilden sollte.

Unterdessen war im NALA-Kessel der restliche Versuchsaufbau montiert worden und wurde mit einem Argongasstrom gespült. Zuletzt wurde das Pool-Rohrende

in Plastik verpackt aus der Glovebox ausgeschleust und an den Aufbau unter Entfernung der Verpackung unter ausströmendem Argon angeflanscht. Besondere Sorgfalt erforderte dabei das Einführen der Thermoelementsäule sowie, bei den entsprechenden Versuchen, des Gaseinleitungsrohres zwischen die Natrium "sandwiches". Anschließend wurde die Heizung nebst Thermoelementüberwachung angeschlossen, die Edelstahl-folienisolierung vervollständigt und das Probeschalenwechselgestänge montiert. Danach wurde der Kessel geschlossen, Druckausgleich zwischen Aufbau und Kessel über eine Leitungsschleife hergestellt und der Kessel evakuiert.

#### 4.2 Ablauf einer typischen Versuchsreihe

Nach Inbetriebnahme der peripheren Gasüberwachungsgeräte (O<sub>2</sub>- und Na-Aerosolkontrolle des Kesselgases) wurde der Kessel - und damit auch der Versuchsaufbau im Inneren - mit Argon bis zu einem geringen Innenüberdruck gefüllt ; dieser Wert wurde durch eine automatische Ventilschaltung während aller Temperaturänderungen im Kesselinneren sowie Probegasentnahmen konstant gehalten.

Nach letzten Funktionstests vor allem der Probenahmevorrichtungen erfolgte das Aufheizen des Pools mit zunächst geringer Leistung bis zum allmählichen Einschmelzen des Natriums. Danach wurde die Leistung zügig in Stufen erhöht, um in ca. 90 min den Siedepunkt des Natriums zu erreichen. Nach Siedebeginn wurde das Drehkarussell weitertransportiert, um das zweite Sedimentations-Probeschälchen in die Sammelposition zu bringen. Dieser Wechsel erfolgte während des Siedens noch weitere vier Mal, typischerweise alle 5 bis 10 min. Danach war das 6. und letzte Schälchen in Sammelposition, und die Leistung wurde zurückgenommen ; zunächst in kleinen Schritten zur Schonung des Heizdrahtes, dann völlig, so daß der Abkühlvorgang bis zum Erstarren des Natriums ca. 6 Stunden dauerte.

Von diesem Standardablauf wurde bei den Versuchen mit Gasblaseneinleitung insofern abgewichen, als erstens eine Temperatur knapp unterhalb des Siedepunktes eingestellt wurde und zweitens jeweils Probenschalenwechsel so vorgenommen wurden, daß abwechselnd „mit“ und „ohne“ Gasblaseneinleitung die Schälchen beaufschlagt wurden. Zusätzlich wurden auch Gasproben aus dem Aufbau genommen, und zwar verschiedentlich am Scheitelpunkt des Krümmers und direkt (wenige cm) oberhalb der Natriumoberfläche. Nach völligem Abkühlen der Anlage (am nächsten Tag) wurde der Kessel durch Entfernen der

Bodenkalotte geöffnet und belüftet. Während der Versuchsaufbau weiterhin mit Argon gespült wurde, wurden das Drehkarussell geöffnet und die beladenen Probeschälchen entnommen, in einen Exsikkator gegeben und durch frische ersetzt. So vorhanden, wurden auch die Gasprobenvorrichtungen im Kesselinneren (Impaktoren, Vorabscheider) und außen (Glasfaserfilter) ausgetauscht. Nach Montage von Drehgestell und Bodenkalotte wurde erneut evakuiert und der nächste Schritt der Versuchsserie (insgesamt zwei bis vier Schritte) wie oben begonnen.

#### 4.3 Beendigung einer Versuchsserie

Nach Ende einer Serie wurde das Versuchsgefäß zerlegt und unter provisorischer Inertisierung noch nicht weiterbehandelbarer Teile des Aufbaus unter Plastikfolie im Argonspülgasstrom stückweise entsorgt. Dies erfolgte durch Inspektion der Teile, gegebenenfalls Skizzieren der Ablagerungen, teilweises Wiegen zum späteren Kontrollieren der wiedergefundenen Na-Massen und Abschaben von Proben. Schließlich wurden die Teile bei wenig Beaufschlagung sofort mit Wasser behandelt oder ansonsten verpackt und zwischengelagert. Abwaschlösung und Proben wurden sichergestellt. Somit wurde nach und nach der gesamte Aufbau von anhaftendem Material befreit und beprobt. Zum Studium von 'memory'-Effekten wurden wichtige Teile auch mehrfach abgewaschen und beprobt. Auch der ehemalige Pool wurde oberflächlich und in mehreren Tiefen durch Abnehmen kleiner Na-Mengen beprobt. Es war nicht immer möglich, die eingefrorene Thermoelementsäule zu bergen, so daß hier das Zerlegen häufig erschwert war.

#### 5. Behandlung der Analysenproben

Zur Analyse der Natriumkondensate, die an den verschiedenen Stellen des Natriumdampfstromes gewonnen werden (siehe Abb. 1), müssen die Proben hydrolysiert werden. Je nach Kondensatmenge werden verschiedene Techniken angewandt. Geringe Natriummengen, wie z. B. in den Probenahmebehältern oder deren Zuleitungen, werden vorsichtig mit Wasser versetzt und die alkalische Flüssigkeit in Meßkolben überführt. Größere Natriummengen, wie z. B. in den Sedimentationsschalen, lassen sich am besten im befeuchteten Inertgasstrom (z.B. Argon) anfänglich zersetzen. Die so oberflächlich gebildete Hydroxidschicht

ermöglicht es, die kontrollierte Zersetzung mit Wasser an Luft durchzuführen. Im Einzelfall lassen sich jedoch heftigere Reaktionen mit Flammbildung nicht immer ausschließen. Dies kann bei der Jodwiederfindung von Bedeutung sein.

Die frühzeitige Hydrolyse im Inertgasstrom verhindert die Karbonatbildung. Strontium kann als wasserunlösliches Karbonat an den Wänden der Probenahmebehältnisse haften bleiben oder sich als unlöslicher Niederschlag in der Probenlösung absetzen. Auch  $\text{UO}_2$ -Partikeln zeigen ähnliche Tendenzen, an den Probenahmebehältnissen haften zu bleiben.

Diese dadurch hervorgerufenen Minderbefunde liegen im Bereich von 10% relativ und sind nur bedeutend im Hinblick auf „memory“-Effekte (siehe Kapitel über Versuchsdurchführung).

Aus den durch Hydrolyse gewonnenen alkalischen Lösungen setzen sich oft Niederschläge ab, die laut qualitativer Analyse des Roentgenfluoreszenzspektrums von den möglichen zugemischten Stoffen wie Strontium, Cer, Tellur, Uran und Jod teilweise Strontium und Tellur enthalten.

Durch Ansäuern wird Strontium wieder gelöst. Da das zu bestimmende Jod in Form von Jodid in alkalischer Lösung durch Luftsauerstoff nicht wie im sauren Medium zu Jod oxidiert wird, wird ein Teil der alkalischen Probelösung vor dem Ansäuern für die Jodbestimmung reserviert.

Die weitere Behandlung des alkalischen Restes ist wie folgt :

In verschiedenen Abnahmen wird der Natriumgehalt titrimetrisch bestimmt, diese neutralisierten Abnahmen wieder mit der verbleibenden alkalischen Lösung in einem nächstgrößeren Meßkolben vereinigt, bis zum Neutralpunkt neutralisiert und mit einer definierten Säuremenge angesäuert. Aus diesen Lösungen werden Strontium, Cer, Tellur und Uran analysiert. Manchmal blieben auch in diesen angesäuerten Lösungen noch unlösliche Niederschläge zurück. Diese wurden abfiltriert, und wenn sie die zu analysierenden Elemente, meistens Tellur, enthielten, nochmals separat mit konzentrierten Säuregemischen wie Salz-Salpetersäure gelöst und separat analysiert.

## 6. Bestimmung von Natrium, Strontium, Cer, Tellur, Uran und Jod in den Analysenproben.

### 6.1 Natrium

Um Rückhaltefaktoren der beigemischten, simulierten Spaltprodukte berechnen zu können, muß die Natriummenge des Aerosols zugrunde gelegt werden. Den Natriumgehalt kann man spektrometrisch oder bei großen Mengen, wie im

vorliegenden Fall, über die Titration der Hydroxidionen bestimmen, die bei der Hydrolyse von Natrium mit Wasser entstehen. Es ist nicht ausgeschlossen, daß die Hydroxidionen mit Ionen der simulierten Beimischungen reagieren und sich so der Bestimmung entziehen. In den Aerosolen ist jedoch der Natriumanteil im allgemeinen wesentlich größer als der Anteil der Beimischungen, sodaß die Natriumminderbefunde gering sind.

Zur Bestimmung des Natriumgehaltes auf den Glasfaserfiltern der Impaktoren wurden die Filter mit daraufhaftendem Natrium im Titrationsgefäß hydrolysiert. Nicht nur Natrium liefert bei der Hydrolyse Hydroxidionen, sondern auch Glas kann im Wasser unter Bildung von Hydroxidionen hydrolysieren und somit einen geringen Natriumanteil vortäuschen. Deshalb ist es unbedingt erforderlich, vom Glasfaserfilter einen Blindwert zu ermitteln.

Ein Teil des alkalischen Hydrolysats wird mit eingestellter Säure unter Einsatz eines Mikroprozessor-gesteuerten Gerätes titriert. Der Äquivalenzpunkt, der den gesamten Natriumanteil anzeigt, ist aufgrund der unvermeidbaren Kohlendioxid-Präsenz (durch Kohlendioxid-haltiges Wasser) in den pH-Bereich 4,0 - 4,5 verschoben.

## 6.2 Strontium

Strontium kann mit verschiedenen atomspektrometrischen Methoden, wie Atomabsorptionsspektrometrie (AAS) oder Atomemissionsspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP - OES) analysiert werden. Der Einfluß der Natrium-Matrix macht sich bei der AAS-Messung stärker bemerkbar als bei der ICP - Messung. Deshalb muß bei der AAS-Messung in den Kalibrierlösungen der vorhandene Natriumanteil simuliert werden. Strontiumionen können nur im sauren Medium in Lösung gehalten werden.

## 6.3 Cer und Tellur

Cer und Tellur kann in den Probelösungen nur mittels ICP - OES bestimmt werden. Ein Einfluß der Natrium-Matrix auf die Emissionssignale wurde nicht beobachtet. Manchmal wurde selbst in sauren Lösungen noch ein grauer Niederschlag beobachtet, in dem mittels qualitativer Roentgenfluoreszenzanalyse hauptsächlich Tellur nachgewiesen wurde. Da es sich wahrscheinlich um



metallisches Tellur handelt, muß der Niederschlag mit oxidierenden Säuregemischen, wie Salpeter-Schwefelsäure, gelöst werden.

#### 6.4 Uran

Die empfindlichste Nachweismethode auf Uran ist die Fluorometrie. Zur Bestimmung wird ein Aliquot der neutralisierten Lösung bis zur Trockne eingedampft und im Achatmörser homogenisiert. Von dem entstandenen NaCl-Pulver mit Spuren der Beimengungen wird pro Analyse jeweils 150 mg abgewogen und mit 3 LiF-Tabletten in ein Platinschälchen gegeben. Anschließend erfolgt das Aufschmelzen mit Temperaturhaltepunkt des Ofens bei ca. 600°C, um ein Umeinanderspritzen der einsetzenden Schmelze in benachbarte Probeschälchen zu unterdrücken. Bei 1000°C wird 10 min verweilt und dann langsam im Ofen bis 600°C, anschließend bei offener Ofenklappe schneller abgekühlt, um die Bildung von Narben und Rissen in der erstarrenden Oberfläche zu verhindern ; letzteres würde zu Fluoreszenzanregung aus der Tiefe der Probe führen und damit zu einer Überbestimmung von Uran. Wie in /1/ untersucht, können einige im Experimentieraufbau verwendete Materialien das Fluoreszenzsignal geringfügig schwächen, was im Ergebnis jedoch unbedeutend ist. Wichtig ist die Überwachung der Stabilität der Meßanordnung, was durch mehrfaches Ausmessen der Proben und Kalibrier-schmelzen in wechselnder Reihenfolge geschieht.

#### 6.5 Jod

Der Jodanteil wird photometrisch aus der alkalischen Lösung ermittelt. Ein Aliquot der alkalischen Lösung wird vorsichtig in der Kälte mit Salzsäure neutralisiert und angesäuert. Eine Erhitzung während der Neutralisation muß unbedingt vermieden werden, da sich Jodwasserstoffsäure verflüchtigen oder an der Luft zu Jod oxidieren kann. In einem Scheidetrichter wird mit Wasserstoffperoxid Jod freigesetzt, das in überschichtetem Toluol extrahiert und anschließend photometriert wird. Zur Kalibrierung durchläuft eine bekannte Jodmenge denselben Analysengang.

## 7. Diskussion der Ergebnisse

### 7.1 Natriumfreisetzung

Wenn die aus früheren Experimenten gewonnene Verdunstungsformel für Natrium auf die in NALA IIIa vorliegende Oberfläche angewendet wird, erhält man überschlägig eine Na-Verdunstungsrate von 10 g/min. Ein Blick in die Tabellen 1 und 2 zeigt jedoch, daß die in den Probeschälchen aufgefangene Natriummenge pro Zeiteinheit der Exponierung stark schwankt und bis zu mehreren Größenordnungen kleiner ist. Allerdings findet sich im übrigen experimentellen Aufbau beim Zerlegen nach drei Läufen etwa die gleiche Menge Natrium abgelagert wie in allen Probeschälchen gemeinsam. Selbst diese Summe ist jedoch noch um einen Faktor 2 bis 5 kleiner als die entsprechende Menge, die während eines Experiments der Reihe NALA IIIb außerhalb des Pools aufgefunden wird (wobei diese Menge in etwa den Berechnungen nach der Verdunstungsformel entspricht).

Hieraus, sowie auch nach dem Bild der Ablagerungen in der zerlegten Apparatur, ist zu entnehmen, daß die überwiegende Menge des aus der Pooloberfläche austretenden Natriums kondensiert, als Tröpfchen zur Wand in Poolnähe gelangt (oder dort kondensiert) und in den Pool zurückläuft. Ein weiterer Teil dürfte nach dem Umlenkbogen an die Wand gelangen und von dort aus in die Probeschälchen laufen. Der letzte Vorgang verschlechtert etwas die angestrebte Zeitauflösung der RF-Werte mittels zeitabhängigem Austauschen der Probeschälchen, da stets etwas Na-Flüssigkeit, die in früheren Zeiten zur Wand gelangt ist, in ein Schälchen ablaufen kann. In bezug auf die Aerosolprobensammlung ist das Trennvermögen zu  $\pm 10\%$  ermittelt worden, d.h. jedes Schälchen erhält 5% von seinen beiden Nachbarn und gibt beiden Nachbarn bei Exponierung jeweils 5% Masse ab. Dies bedeutet, daß jeder Zeitwert zu 10% mit seinem Vorgänger und seinem Nachfolger (der letzte wieder mit dem ersten) „vermischt“ ist.

Einen Sonderfall der Natriumfreisetzung stellt ein Siedeverzug dar. In der ersten Realisierung des Versuchsaufbaus stand für die elektrische Poolbeheizung nur ein einziger Heizleiter zur Verfügung. Siedeverzüge geschahen häufig, wie an den Anzeigen der Thermoelemente im und oberhalb des Pools abzulesen war. Gelegentlich war auch visuell durch plötzliche Dunkelrotfärbung des Umlenk Bogens ein heftigerer Siedeverzug zu beobachten. In Tabelle 1, zweiter Lauf, vierter Zeitschritt, ist der größte beobachtete Siedeverzug enthalten mit ca. 200 g Na als Übertrittsmasse. In allen anderen Fällen wird vermutet, daß die

hochgeschleuderte Na-Masse ohne bedeutenden Übertritt in den Pool zurücklief. Während bei dieser ersten Heizversion nur durch mäßiges Heizen ein Sieden ohne heftige Siedeverzüge angestrebt werden konnte, wurden in allen späteren Aufbauten zwei getrennt regelbare Heizleiter verwendet. Durch stärkeres Beheizen des oberen Teils des Pools und der Wand oberhalb, bei ähnlicher Heizleistung im unteren Teil wie zuvor, wurden Siedeverzüge, jedenfalls solche detektierbaren Ausmaßes, vermieden.

## 7.2 Verhalten der Atmosphäre im Aufbau

Zunächst war vermutet worden, der Gasraum oberhalb des siedenden Pools verhalte sich recht ähnlich wie bei den vorausgegangenen NALA-Experimenten : Im deutlich kälteren und durch verstärkte Naturkonvention stets umgewälzten Argongasstrom kondensiere der Natriumdampf rasch, gäbe die Kondensationswärme an das Argon ab und bewege sich fortan als Tröpfchen im ca. 400 °C heißen Argongasstrom. Bis auf Siedespritzer und Wandkondensation in Poolnähe war dies bei den ersten Versuchen der Fall. Anders verhielt sich das System bei dem Versuch, Proben aus dem Gasstrom direkt oberhalb der siedenden Natriumoberfläche zu entnehmen. Der Aufbau hierzu bedingte, den Nachfüll-Gaszustrom in das Gefäß auf den Entnahmegasstrom in Probebehälter, Impaktoren und Filter zeitlich und der Menge nach abzustimmen, um Druckunterschiede im Aufbau bzw. zwischen Aufbau und Kessel zu vermeiden. Infolge der Temperaturunterschiede zwischen Gas und Aufbau sowie Änderungen im Staudruck der Probenahmeverrichtungen gelang dies nur begrenzt, zeitweilig bewirkten die Druckänderungen stärkere Änderungen im Siedeverhalten des Natriums, vermutlich verstärkt durch gleichzeitiges Abziehen des Argons in die Probenahme.

Insgesamt entstand zeitweise ein System, wie es noch ausgeprägter von den „Heatpipes“, dem Eierkocher oder dem Dampfkochtopf her bekannt ist : beim Fehlen flüssigkeitsfremder Gasmoleküle, also hier Überwiegen der Natriumdampfmoleküle gegenüber dem diffusionshemmenden Argon, setzt ein lebhafter Wärmeübertrag zu allen erreichbaren, bisher kälteren Flächen des Systems ein. Die so gewonnenen „Proben“ aus dem Gasraum oberhalb des Pools weisen maximal Na-Konzentrationen von bis zu 10 g/l auf, wobei die Volumenangabe auf Normalliter Argon außerhalb des Kessels beruht. Natriumdampf selbst wird mit 0,3 g/l Dichte bei 883 °C in der Literatur

angegeben. Später wurde die Probenahmestelle von der Pooloberfläche fortverlegt und der Druckausgleich Apparat-Kessel verbessert, so daß jedenfalls größere Druckschwankungen im Aufbau vermieden werden konnten. Die so bestimmten Natriummassenkonzentrationen lagen um 2 bis 4 g/l mit immer noch starken Schwankungen (Tabelle 3). Eine Rückwirkung der Probenahme auf das Siedeverhalten kann nicht ganz ausgeschlossen werden, obwohl auch andere Meßfehler zu diskutieren sind. Speziell der Verbleib von Natrium in Teilen der Probenahme, die anderen Gasvolumenmessungen zugerechnet werden, führt zu Schwankungen bei an sich richtigem Mittelwert der zeitlich aufeinanderfolgenden Bestimmungen.

## 8. Verhalten der Beimischungen

### 8.1 Zum Vorgehen bei der Beschreibung

Das Verhalten der in den Natriumpool zugegebenen Stoffe (vgl. Kap. 4) wird wie in den vorausgegangenen NALA-Experimenten durch den Rückhaltefaktor RF beschrieben. RF ist definiert als das Verhältnis :

$$RF_X = \frac{\text{Konzentration der Beimengung X im Pool}}{\text{Konzentration der Beimengung X im freigesetzten Natrium}}$$

Dabei kann, wenn es sich um Probenahme wie hier handelt, RF von der Zeit und dem Ort abhängen , indem statt „des freigesetzten Natriums“ die Menge der „untersuchten Probe aus dem freigesetzten Natrium“ verstanden wird. Falls die primäre Freisetzung von Beimengungen räumlich/zeitlich homogen erfolgt, wie dies z. B. bei NaI der Fall zu sein scheint, wird RF den Destillationsgesetzen gehorchen, also mit den jeweiligen reduzierten Partial-Dampfdrücken assoziiert sein. Abweichungen hiervon im Meßergebnis können beobachtet werden, wenn der Versuchsaufbau „Mehrfachdestillation“ nach Art einer Verstärker- oder Trennkolonnen zuläßt und/oder ein unterschiedliches Haftverhalten des Natriums und der Beimengungen an den Wänden vorliegt. Bei allen übrigen Beimengungen sind sowohl die Partialdampfdrücke weitaus zu klein, um die beobachteten Freisetzungen im Sinne einer Destillation zu erklären, noch deckt sich das aus früheren Experimenten bekannte Zeitverhalten mit einer solchen Annahme. Es existiert auch weiter kein gesicherter Mechanismus zur Freisetzung von Partikeln aus verdampfenden Flüssigkeiten, nach dessen Parametern ein Experiment wie dieses ausgewertet werden könnte. Es hat sich daher bewährt und entspricht im Sinne der Anwendung dieser Ergebnisse dem konservativen

Prinzip, so vorzugehen, als würden Natrium und die jeweilige Beimengung unabhängig voneinander freigesetzt, transportiert und als gemeinsame Probemenge an einem bestimmten Ort zu einem bekannten Zeitintervall abgeschieden. Anhand der erzielten Werte können dann mögliche Wechselwirkungen diskutiert werden.

## 8.2 Deskription der Meßwerte

Abweichend von allen übrigen Beimengungen zeigt, wie in den vorausgegangenen Experimenten auch im Falle siedenden und bewegten Natriums das Jod ein zeitlich gleichbleibendes Freisetzungsverhalten. Die aus den Probeschälchen bestimmten RF-Werte liegen bei 10 bis 15 (mit Einzelwerten von 4,5 bis 100 schwankend). Sie bleiben über alle Läufe hinweg etwa gleich mit leicht ansteigender Tendenz gemäß der ansteigenden Konzentration im Pool. Im Abwasch des Aufbaus gibt es beachtliche Mengen, die noch zu diskutieren sein werden ; eine Stelle besonders hoher Anreicherung fand sich am Probenansaugrohr.

Bei allen übrigen Beimengungen (bei Ce nicht immer belegbar, da Werte teilweise unterhalb der Nachweisgrenze) tritt bei Betrachtung der RF-Werte aus den Probenahmeschälchen ein charakteristisches Zeitverhalten zutage (siehe Tab. 4 und 5). Die stärkste relative Freisetzung jeder Beimengung, also der kleinste RF, wird für die Zeit des allerersten Aufheizens beim ersten Lauf gemessen. Danach steigen die RF, um beim Abkühlvorgang nochmals zu fallen. Beim nächsten Lauf erhält man (wenn nicht bereits jenseits der Nachweisgrenze) eine höhere Konzentration beim abermaligen Aufheizvorgang als während des vorausgegangenen Siedens, aber geringer als beim ersten Male. In der Folge steigt der RF auf noch höhere Werte als beim ersten Lauf, um beim Abkühlvorgang nochmals etwas zu fallen. Bei einem dritten Lauf ist, wenn überhaupt noch meßbare Konzentrationen vorliegen, ein analoger Gang mit schwächerer Ausprägung zu erkennen. Das vorgenannte Zeitverhalten wird noch durch weitere, nicht in Tabellenform gebrachte Meßergebnisse deutlich gestützt. (Es handelt sich um Versuche, die aus anderen Gründen keine vollständigen Ergebnisreihen ergaben ; vgl. Kap. 4 und 5). Während der Anstieg des RF mit der Zeit in Einklang mit früheren Experimenten ist, findet sich für die während der Abkühlung wieder kleineren RF-Werte kein Analogon. Sicher liefert die aufgeführte 10%-Vermischung bei der Aerosoldeposition bei benachbarten

Probeschälchen (das letzte steht wieder neben dem ersten) einen Beitrag, der zu einer vollständigen Erklärung jedoch nicht ganz ausreicht. Da keine Basis für die Annahme eines weiteren Artefakts gegeben ist, wird dieses Phänomen noch weiter zu diskutieren sein.

Im Falle der Experimente mit Blaseneinleitung (Tab. 8) ist der Zeitverlauf der RF-Werte prinzipiell ebenso, nur scheint der Unterschied zwischen der Hochtemperaturphase (20° bis 50° unterhalb des Siedepunktes) und dem Aufheizen/Abkühlen schwächer ausgeprägt, der Anstieg zu den folgenden Läufen dagegen deutlicher (nahezu alle Werte außerhalb des Nachweisbereichs, daher nicht in Tabellenform). Es ist zu erkennen, daß während der Hochtemperaturphase der RF nicht mit dem Vorgang „Blasen einleiten : ja/nein“ korreliert, speziell nicht systematisch kleiner wird bei oder nach Gasblaseneinleitung.

Bei früheren NALA-Experimenten wurde bereits versucht, RF-Werte aus Gasraumproben zu bestimmen ; stets lagen die Konzentrationen außerhalb der Nachweisgrenzen. Aus heutiger Sicht wurden die Proben zu spät entnommen und das stark bevorzugte Ablagerungsverhalten der Beimengungen gegenüber dem Natrium im Ansaugbereich nicht berücksichtigt. Dies wurde erst bei Glovebox-Experimenten gefunden und bei dieser Arbeit - mit weit schärferer Zeit- und Ortsdefinition - eingebracht. In der Tat zeigen sich hier deutliche Unterschiede zwischen den Siede- und den Blasenexperimenten. Im letzten Fall sind die RF-Werte mit den Schälchen sowie früheren NALA-Werten konsistent (Tab. 7b), während die Siede-RF-Werte (Tab. 7a) in der Größenordnung der Anfangswerte beim ersten Lauf liegen. Bei weiteren Läufen werden auch hier Werte nahe oder jenseits der Nachweisgrenze gefunden. Allerdings sollte das im Kapitel „Verhalten der Atmosphäre im Aufbau“ Gesagte zur Rückwirkung der Probenahme auf das Siedeverhalten keinesfalls unberücksichtigt bleiben, da die beobachtete Schwankung der Natriumfreisetzung allein schon den RF beeinflusst, wahrscheinlich aber auch die Freisetzung der Beimengungen selbst nicht ungestört bleibt.

### 8.3 Wertung und Wichtung der Ergebnisse

Bei Jod darf vermutet werden, daß die Freisetzung gemäß früher bereits diskutierten Berechnungsmöglichkeiten (Rayleigh-Gleichung) gut beschrieben

wird. Die eher etwas zu großen RF-Werte aus den Schälchen werden mit den früheren NALA-Werten konsistent, wenn der im Aufbau haftengebliebene Anteil Jod unter Berücksichtigung des in den Pool zurückgelaufenen Natriums mit berücksichtigt wird. Für einen direkten Vergleich fehlt jedoch die Information, wieviel Jod mit dem zurücklaufenden Natrium dennoch in den Pool zurückgelangt. Entscheidend als Aussage dieses Experiments sind der Zeitverlauf sowie ein neuer RF für Jod, der unter den hier vorliegenden, durch konvektiven Transport gekennzeichneten Bedingungen bestimmt wird, aber nicht die primäre Freisetzung aus der lachenoberflächennahen Grenzschicht beschreibt. Diese letzte Aussage gilt ebenso für die übrigen Beimengungen. Bei diesen muß jedoch im übrigen Vergleich der jeweils sehr kleine RF in der ersten Aufheizphase, der wieder niedrigere beim Abkühlen, sowie der gesamte Zeitverlauf gewürdigt werden. Wie in /2/ beschrieben, wurden bereits früher zeitauflösende Experimente bei ca. 550 °C Lachentemperatur und Zeitschritten von ca. 2 Stunden-Intervallen durchgeführt. Bedingt durch die gegenüber hier großen Intervalle hätte eine eventuell vorhandengewesene Besonderheit der Aufheiz- und Abkühlphasen nicht bemerkt werden können, wie sie hier zum ersten Male deutlich wird. Das generelle Anwachsen der RF's mit der Zeit wird jedoch konsistent weiter bestätigt und zusätzlich durch die identische Wiederkehr von Lauf zu Lauf und während eines Laufes bekräftigt.

Für die Einstufung des ersten RF-Wertes ist anzumerken, daß nur ca. 0,5% des Poolinventars als aufgefangene Natrium-Masse und vermutlich höchstens 2,5% primär freigesetzter Masse involviert sind ; dabei ist zu vermuten, daß es zumindest zu Beginn der Aufheizphase noch nicht zur Wandkondensation mit Rücklauf in den Pool kommt, da das Gas selbst noch recht kalt ist. Bei früheren RF-Angaben (auch den 2-Stunden-Werten oben) lagen jeweils 10% des Poolinventars als freigesetzte Natriummasse zugrunde. Dies entspräche hier etwa einem gesamten Lauf - mit der gleichen Unsicherheit wie oben betreffs des Rücklaufs von Beimengungen mit dem kondensierenden Natrium. Vergleicht man die gewichteten Mittelwerte der Schälchenwerte der ersten Läufe mit den früheren Werten, so ergibt sich kein wesentlicher Unterschied. Werden die Ablagerungen im Aufbau hinzugenommen, wird der RF deutlich kleiner. Setzt man alles primär verdunstete Natrium so in Rechnung, als habe der Rücklauf nichts von den Beimengungen zurücktransportiert, wird ein RF erhalten, der leicht unter früheren Messungen läge. Daraus ist der Schluß zu ziehen, daß im Siedefall die primäre Freisetzung wohl insgesamt etwas höher ausfällt, die Beimengungen aber nicht sehr gut transportiert werden. Es läßt sich sogar die

Hypothese vertreten, daß ein nicht unerheblicher Teil primär freigesetzter Beimengungen durch herabfallende Tröpfchen bereits aus dem Gasraum in den Pool zurücktransportiert wird, wenn die Massenkonzentration dazu ausreichend groß ist. Dies wird gestützt durch die niedrigen RF-Werte aus den Gasproben im Siedefall (bzw. weniger niedrig knapp unterhalb des Siedepunktes) und des erneuten Absinkens der RF's beim Abkühlvorgang.

Als Besonderheit sei noch hervorgehoben, daß der einzige, mit einem bemerkbaren Massenübertrag verbundene Siedeverzug gegen Ende des zweiten Laufs eines Experiments nichts zur Veränderung der RF-Werte zu diesem Zeitpunkt beitrug (allerdings nur mit Sr-Untersuchung in diesem Versuch).

#### 8.4 Bedeutung der Ergebnisse für Anwendungen auf Störfälle

Wie bereits in den allerersten NALA-Experimenten mit aufgeprägter Anströmung der Natriumoberfläche beschrieben wird <sup>\*/1/</sup>, wird bei paralleler Anströmung der kleinste RF bestimmt. Dies ist wiederum in Einklang mit den hier gefundenen kleinen RF-Werten bei Absaugung aus dem Gasraum in Lachennähe. Für die Störfallanalyse bedeutet dies, daß ein Versagen derart, daß eine starke Gasströmung mit horizontalen, nahezu bündig mit der Natriumoberfläche abschließenden Austritt vorläge, den schlimmsten Fall darstellen würde - vor allem bei rapidem Aufheizen bis zum Sieden in der ersten Versagensphase. Bei den NALA III-Experimenten wird typischerweise von 550 °C bis zum Sieden in 25 Minuten aufgeheizt ! Nur beim Zusammentreffen aller dieser ungünstigen Bedingungen sind die jeweils gefundenen sehr niedrigen RF-Werte für die - recht hohe - Anfangsfreisetzung von Belang.

Umgekehrt wird eine später hinzutretende Gasströmung - längere Zeit (ein bis zwei Stunden) nach Abschluß der Aufheizphase - kaum noch auf primär freigesetzte Partikeln treffen, wenn nicht neue Fragmentierung im Pool zu einer Erneuerung der Quelle beiträgt. In diesem Fall hat selbst Sieden und/oder Blasenbildung kaum Bedeutung, und bisher angegebene RF-Werte zur Partikelrückhaltung wären zu konservativ. Ebenfalls die Auswirkung mildernden Einfluß hat das Vorhandensein von Strukturen im Gasraum, die ein direktes Abströmen von der Oberfläche ohne Verweilzeit oder Wechselwirkung mit Oberflächen verhindern. Bereits in unmittelbarer Nähe der Quelle findet bei verzögertem Abströmen sowie benachbarter Oberflächenkondensation eine



beachtliche Dekontamination des radiologischen belasteten Aerosol-Quellstromes statt, die bei Eintritt von Natriumsieden sogar noch an Bedeutung gewinnt und den an sich kleineren primären Rückhaltefaktoren entgegenwirkt.

Zu berücksichtigen ist dabei stets, daß eine Partikelfreisetzung, auch wenn sie aufgrund der aufgeführten ungünstigen Bedingungen zunächst hoch angesetzt werden müßte, so nicht anhält, sondern deutlich abnimmt im Laufe der Zeit, auch bei gleichbleibender Natriumverdunstung. Dies trifft selbstverständlich nicht für Beimengungen zu, die über einen Gasphasenwandel freigesetzt werden.

Zur Verdeutlichung seien die bisher untersuchten Anordnungen nochmals einander gegenübergestellt (Abb. 2) und zwar, um rein auf den Einfluß der Lachenoberflächen-Anströmung und des Fortgasstromes hinzuweisen, jeweils unabhängig vom tatsächlichen experimentellen Aufbau in den gleichen Abmessungen gezeichnet. Symbolisierte Schälchen bezeichnen Depositions-probenahmestellen, solche mit Filtersymbol zusätzlich aus dem Gasstrom abgeschiedene Proben. Eine Symboluhr bezeichnet zeitauflösende Versuche.

- Aufbau A entspricht einem Teil der NALA I-Aufbauten. Fortgasstrang und Endabscheider wurden gemeinsam analysiert : sehr kleiner RF !
- Aufbau B entspricht einem weiteren Teil der NALA I-Serie ; Analysen wie oben, jedoch RF wie bei der NALA II-Serie.
- Aufbau C aus der Serie NALA Ib war erstmals zeitauflösend ; zunächst nur im Endabscheider. Als dort fast keine Beimischungen auffindbar waren, weil in Positionen (1) und (2) nachweislich bereits abgeschieden, Zeitauflösung im gesamten Absaugsystem. RF in Position (1) sehr klein, bei gemeinsamer Veranschlagung von Positionen (1), (2) und (3) Werte anfänglich wie bei NALA II, später wesentlich größer.
- Aufbau D entspricht der hier beschriebenen Serie NALA IIIa ; RF-Werte aus Position (1) extrem klein, aus (2) klein, aus (3) und (4) unterschiedlich, z. T. extrem klein, in Position (5) (sechsfach zeitauflösend) wie in den Tabellen angegeben.
- Aufbau E entspricht sowohl der Serie NALA II als auch der Serie "Siedeexperimente im containmentähnlichen Aufbau" NALA IIIb (Doku-

mentation in Vorbereitung). Depositionsproben aus unterschiedlichen Höhen und Neigungen zeigen etwas kleinere RF-Werte in Quellnähe am Boden. Die RF-Werte an der Wand steigen ein wenig mit der Höhe an, Gasproben ergeben zumeist Analysenwerte an der Nachweisgrenze.

### 8.5 Zusammenfassung der Ergebnisse

- Als Dampf freigesetzte Spaltprodukte (I, Cs) lassen sich den Destillationsgesetzen folgend berechnen. Für sie gelten die folgenden Feststellungen nicht.
- Wichtigster Parameter bei der Freisetzung von partikelförmigen Spaltprodukten und Brennstoff ist die Zeit. Fast die gesamte Freisetzung erfolgt zu Beginn einer Aufheizphase, eine entschieden geringere bei einer wiederholten Aufheizung der gleichen Poolmischung.
- Wichtigster geometrisch bedingter Parameter ist die Richtung der An- und Abströmung über der Lachenoberfläche. Der schlimmste Fall ist die völlig plan zur Oberfläche streichende, ungehindert abfließende Strömung.
- Jegliche Störung oder Behinderung der abfließenden Strömung führt zu erheblicher quellnaher selektiver Abscheidung von brennstoff- und spaltproduktartigen Partikeln gegenüber dem Natrium-Aerosol, das bessere Transporteigenschaften zeigt.
- Schnellste Freisetzung erfolgt bei rapider Aufheizung bis unterhalb des Siedepunktes bei Vermeidung von Natriumdampfsättigung im Gasraum (rasche Partikelbildung in einem relativ kühlen Gasstrom). Hoher Natrium-Partialdruck, z. B. beim Sieden, führt zu Tröpfchenbildung und Rückführung freigesetzter Partikeln in den Pool oder zu Wandkondensation und Partikelabscheidung dort, so daß relativ weniger Spaltprodukt- und Brennstoffpartikeln forttransportiert werden.
- Schnelle Freisetzung zeigt in der Folge auch einen schnellen Rückgang, so daß die insgesamt freigesetzte Menge gegenüber langsameren Abläufen, nicht um den entsprechenden Faktor, sondern geringer erhöht ist. Auch die quellnahe selektive Abscheidung wirkt stärker mit, da die Umgebung der rapiden Aufheizung weniger rasch folgt. Die effektiv vom Quellort entweichende Menge an Spaltprodukten und Brennstoff ist hierbei am stärksten von der Strömungsgeometrie abhängig.

## 9. Schlußfolgerung

Für die ursprünglich für den SNR 300 angenommene Störfallsituation eines versagten Kernes im Corecatcher mit größtenteils intaktem inertem Containment gelten uneingeschränkt die RF-Werte aus den NALA II- und ähnlichen Versuchen. Bei anderen Containmentversionen muß im Einzelfall untersucht werden, welche Strömungsverhältnisse im Falle eines Kernversagens möglich sind. Die entsprechenden RF-Werte können dann auch wesentlich kleiner ausfallen. Ob dies in Anbetracht der gefundenen quellnahen selektiven Abscheidung für die radiologische Belastung relevant wird, hängt von den geometrischen Strukturen des Containments wesentlich ab ; häufig dürfte der ganz "puristisch primäre" Quellterm bereits unweit der Lachenoberfläche durch einen "realistischen primären" Quellterm zu ersetzen sein, wenn naturkonvektionsnahe Strömungsverhältnisse vorherrschen. Dieser entspricht dann wiederum in der Größenordnung dem oben genannten Satz von RF-Werten.

## Literatur

- /1/ W. Schütz  
UO<sub>2</sub>- und Spaltproduktfreisetzung aus Natriumlachen, KfK 3010, Nov. 1980.
- /2/ H. Sauter, W. Schütz  
Aerosol- und Aktivitätsfreisetzung aus kontaminierten Natriumlachen in Inertgasatmosphäre, KfK 3504, Juli 1983.

Natrium-Freisetzung in die Probeschälchen bei Siedeexperimenten NALA III a

| Vorgang                         | erster Lauf      |        | zweiter Lauf     |            | dritter Lauf     |        |
|---------------------------------|------------------|--------|------------------|------------|------------------|--------|
|                                 | $\Delta t$ (min) | Na (g) | $\Delta t$ (min) | Na (g)     | $\Delta t$ (min) | Na (g) |
| Aufheizen                       | -                | 4,56   | -                | 1,0        | -                | 38,1   |
| Sieden                          | 15               | 2,44   | 5                | 1,9        | 24               | 31,5   |
|                                 | 5                | 0,31   | 5                | 0,83       | 8                | 13,1   |
|                                 | 2                | 0,07   | 10               | 202,5 *(S) | 8                | 14,7   |
|                                 | 1                | 0,20   | 5                | 19,1       | 10               | 20,0   |
| Abkühlen                        | -                | 2,61   | -                | 8,81       | -                | 16,5   |
| Gesamte Siededauer<br>~ 100 min | 25               |        | 25               |            | 50               |        |

Gesamtfreisetzung aus dem Pool: 640 g; davon waren ca. 200 g bei \*(S) durch Siedeverzug

Nach den NALA III-b-Versuchen berechnete primär verdampfte Natriummenge: 1.300 g

Tab. 1

Natrium-Freisetzung in die Probeschälchen bei Siedexperimenten NALA III a

| Vorgang                        | erster Lauf      |        | zweiter Lauf     |        | dritter Lauf     |        |
|--------------------------------|------------------|--------|------------------|--------|------------------|--------|
|                                | $\Delta t$ (min) | Na (g) | $\Delta t$ (min) | Na (g) | $\Delta t$ (min) | Na (g) |
| Aufheizen                      | -                | 7,5    | -                | 52     | -                | 21     |
| dto und Sieden                 | 10               | 26,1   | 10               | 11     | 5                | 7,6    |
| Sieden                         | 10               | 22,3   | 10               | 11     | 5                | 5,4    |
|                                | 10               | 31,0   | 10               | 12     | 5                | 6,0    |
| dto, mehr Leistung             | 10               | 98,0   | 10               | 17     | 5                | 5,4    |
| Abkühlen                       | -                | 39,2   | -                | 22     | -                | 16     |
| Siedezeit gesamt:<br>~ 160 min | 60               |        | 70               |        | 30               |        |

Gesamtfreisetzung aus dem Pool: 420 g

Nach den NALA III-b-Versuchen berechnete primär verdampfte Natriummenge: 2.050 g

Tab. 2

**Natriummassenkonzentration im Gasraum  
oberhalb der siedenden Natriumlache (in g/l)**

| Vorgang   | 1. Lauf | 2. Lauf | 3. Lauf | 4. Lauf |
|-----------|---------|---------|---------|---------|
| Aufheizen | 0,055   | -       | 0,24    | -       |
| Sieden    | 9,9     | 4,9     | 7,0     | 1,94    |
|           | 0,54    | 3,0     | 0,93    | 2,2     |

Als Meßfehler sind bei großen Werten Ansaugen von Natrium als Spritzer oder aus dem zuvor benutzten Rohrstück möglich, bei niedrigen Werten gegen Laufende ist an Undichtigkeiten bei Unterdruck wegen verstopfter Filter zu denken. Nach den Bildern der demontierten Stücke sind die Messungen mit Wert um 2 bis 4 g/l mutmaßlich ungestört.

**Tab. 3**

**Rückhaltefaktoren aus den Siedeeperimenten NALA III a  
- RF Sr -**

| Vorgang   | 1. Lauf   | 2. Lauf  | 3. Lauf     |
|-----------|-----------|----------|-------------|
| Aufheizen | 13        | 260      | - 2)        |
| Sieden    | > 1700 1) | 410      | - 2)        |
|           | 1300 1)   | 680      | - 2)        |
|           | - 2)      | 3.900 *) | - 2)        |
|           | - 2)      | 23.600   | > 10.000 1) |
| Abkühlen  | 31        | 4.200    | - 2)        |

RF-Werte aus den Probeschälchen; Einwaage SrO-Pulver;  
Konzentration im Pool gerechnet als Sr 0,96 %

1) Nachgewiesene Sr-Spuren an der Nachweisgrenze

2) kein Sr-Signal > Untergrund

\*) Mit Na-Anteilen aus Siedeverzug

**Tab. 4**

**Rückhaltefaktoren aus den Siedeeexperimenten NALA III a**  
**- RF U -**

| Vorgang             | 1. Lauf          | 2. Lauf  | 3. Lauf |
|---------------------|------------------|----------|---------|
| Aufheizen           | 1.920            | 2)       | 2)      |
| dto. und Sieden     | 20.000           | 2)       | -       |
| Sieden              | 20.000<br>30.000 | 2)<br>2) | -<br>-  |
| dto., mehr Leistung | 28.000           | 20.000   |         |
| Abkühlen            | 1.600            | 2)       |         |

**Tab. 5**

RF-Werte aus den Probeschalschen; Einwaage als UO<sub>2</sub>-Pulver 20 µm Konzentration im Pool gerechnet als U 0,338%

2) kein U-Signal > Untergrund



Rückhaltefaktoren aus den Siedeexperimenten NALA III a  
 - RF I -

| Vorgang            | 1. Lauf | 2. Lauf | 3. Lauf |
|--------------------|---------|---------|---------|
| Aufheizen          | 14      | 144     | 48      |
| dto und Sieden     | 30      | 26      | 12      |
| Sieden             | 23      | 90      | 13      |
|                    | 47      | 26      | 32      |
| dto, mehr Leistung | 26      | 29      | 10      |
| Abkühlen           | 50      | 30      | 23      |

RF-Werte aus den Probeschälchen; Einwaage als NaI-Pulver  
 Konzentration im Pool gerechnet als 0,534 %

Tab. 6

**Rückhaltefaktoren aus den Siedeexperimenten NALA III a**  
**Proben aus dem Gasvolumen dicht über der Natriumoberfläche**

| RF:                   | Sr  | U   | Ce   | Te  |
|-----------------------|-----|-----|------|-----|
| Gasverteilungsrohr    | 73  | 47  | 4,6  | 5   |
| Gassammelbehälter I   | 94  | 233 | 9,2  | 9   |
| Gassammelbehälter II  | 230 | 110 | > 14 | 1,3 |
| Gassammelbehälter III | 375 | 170 | > 14 | 2,7 |

Tab. 7 a)

**Rückhaltefaktoren aus den Blasenexperimenten NALA III a**  
**Proben aus dem Gasvolumen dicht über der nicht siedenden Natriumoberfläche**  
**Auswertung des Abluftsystems zum Ausgleich der Gasblaseneinleitung ( $T_{Na}$  836 - 865 °C)**

| RF:           | Sr     | U     | Ce     | Te    |
|---------------|--------|-------|--------|-------|
| Zuleitung     | > 5000 | 105   | > 1000 | 960   |
| Vorabscheider | 610    | 2.500 | 2.250  | 4,7   |
| Filter        | > 5000 | 105   | > 1000 | > 160 |

Tab. 7 b)

**Rückhaltefaktoren aus den Blasenexperimenten NALA III a**  
**RF-Werte aus den Probeschälchen; T<sub>Na</sub> 836 °C mit Blasen und 865 °C ohne Blasen**

| Vorgang     | RF: | Sr    | U      | Ce     | Te   |
|-------------|-----|-------|--------|--------|------|
| Aufheizen   |     | 340   | 1.600  | > 1000 | 46   |
| mit Blasen  |     | 3600  | 4.400  | > 1000 | 13   |
| ohne Blasen |     | 4500  | 16.200 | > 1000 | 11,4 |
| mit Blasen  |     | >5000 | 20.300 | > 1000 | 14,5 |
| ohne Blasen |     | 5800  | 9.300  | > 1000 | 4,4  |
| Abkühlen    |     | 620   | 2.300  | > 1000 | 13   |

Einwaage als SrO, UO<sub>2</sub>, CeO<sub>2</sub>, TeO<sub>2</sub> und NaI;  
 Konzentrationen im Pool gerechnet als Sr 1,3%, U 1,02 %, Ce 1,25%, Te 1,23%, I 0,43 %.

**Tab. 8**

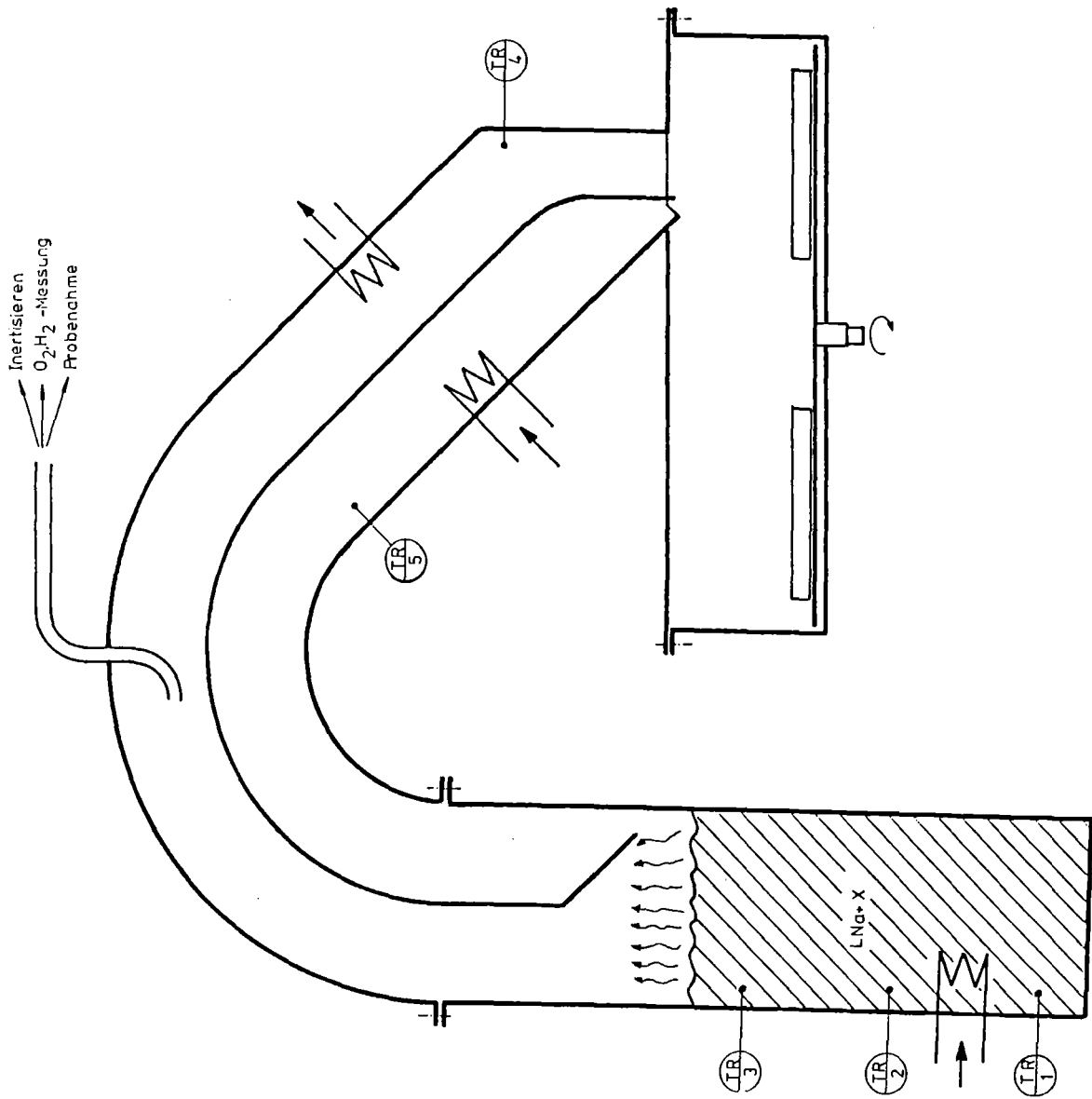
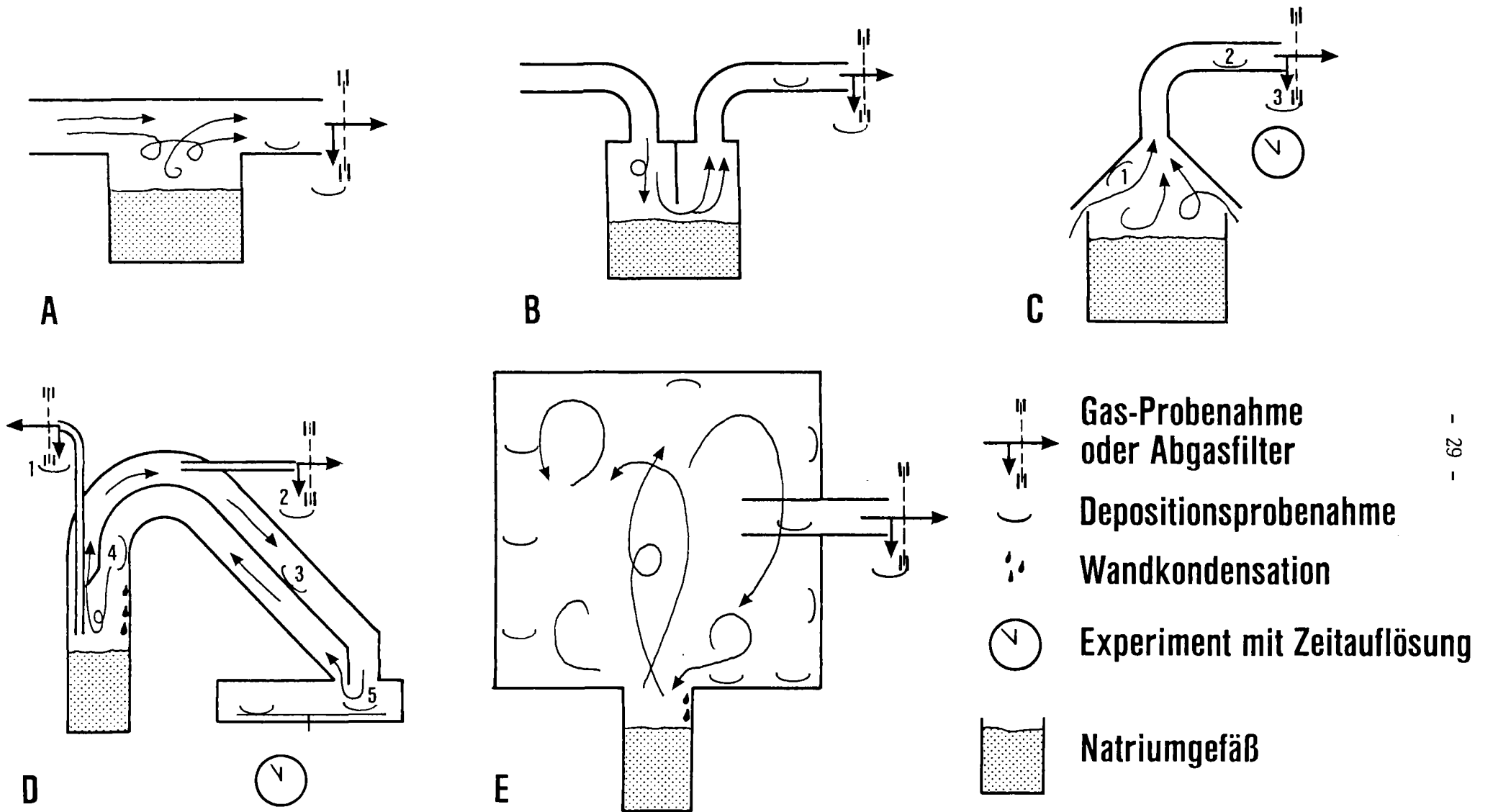


Abb. 1 Schema des NALA III a - Versuchsaufbaues



**Abb. 2** Schema der verschiedenen NALA-Aufbauten