



Forschungszentrum Karlsruhe
in der Helmholtz-Gemeinschaft

Wissenschaftliche Berichte
FZKA 7155

**Erstes HGF Doktorandenseminar
„Nukleare Sicherheitsforschung“
mit Verleihung des
EnBW-Seminar-Preises
für den besten Vortrag**

**Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
am 9.-10. März 2005**

**InfoCenter des Kernkraftwerks
Philippsburg (KKP)
am 11. März 2005**

J.U. Knebel, V. H. Sánchez Espinoza

Programm Nukleare Sicherheitsforschung

März 2006

Forschungszentrum Karlsruhe

in der Helmholtz-Gemeinschaft

Wissenschaftliche Berichte

FZKA 7155

**Erstes HGF Doktorandenseminar
„Nukleare Sicherheitsforschung“
mit Verleihung des EnBW-Seminar-Preises
für den besten Vortrag**

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH

am 9.-10. März 2005

InfoCenter des Kernkraftwerks Philippsburg (KKP)

am 11. März 2005

Herausgeber:

J.U. Knebel, V.H. Sánchez Espinoza

Programm Nukleare Sicherheitsforschung

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

2006

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe

Mitglied der Hermann von Helmholtz-Gemeinschaft
Deutscher Forschungszentren (HGF)

ISSN 0947-8620

urn:nbn:de:0005-071557

Zusammenfassung

Erstes HGF Doktorandenseminar „Nukleare Sicherheitsforschung“ mit Verleihung des EnBW-Seminar-Preises für den besten Vortrag

Vom 9. bis 11. März 2005 trafen sich 40 Doktorandinnen und Doktoranden zum Ersten Doktorandenseminar der Helmholtz-Gemeinschaft „Nukleare Sicherheitsforschung“, das gemeinschaftlich vom Forschungszentrum Karlsruhe und der Energie Baden-Württemberg AG veranstaltet wurde und mit der Verleihung des EnBW-Seminar-Preises für den besten Vortrag erfolgreich endete. Dr. Peter Fritz, eröffnete das Seminar und begrüßte die zahlreichen Teilnehmerinnen und Teilnehmer. Anschließend stellte Dr. Joachim U. Knebel die Ziele und thematische Inhalte der technischen Sitzungen des Seminars dar.

Die kerntechnischen Nachwuchskräfte berichteten in 28 Vorträgen über ihre Arbeiten, die einen weiten Bogen über die Themen Reaktorsicherheit, Partitioning und Transmutation, Innovative Reaktorsysteme und Sicherheitsforschung zur Endlagerung spannten. Die jungen Wissenschaftlerinnen und Wissenschaftler überzeugten dabei nicht nur durch exzellente Fachkompetenz sondern zeigten Vortragsqualitäten auf höchstem Niveau.

Motivation für das Doktorandenseminar war die erfolgreiche Finanzierung der zwei vom Forschungszentrum Karlsruhe koordinierten Virtuellen Institute „Kompetenzerhaltung in der Kerntechnik“ und „Funktionelle Eigenschaften Aquatischer Grenzflächen“ durch den Präsidenten der Helmholtz-Gemeinschaft Professor Walter Kröll. Durch diese Virtuellen Institute konnten zusammen mit der RWTH Aachen, den Universitäten Heidelberg, Karlsruhe, Münster und Stuttgart und dem Forschungszentrum Jülich 8 Doktoranden- und 2 Nachwuchswissenschaftler-Stellen zusätzlich finanziert und besetzt werden.

An dem Seminar nahmen neben den kerntechnischen Doktoranden der oben genannten Institutionen auch Nachwuchskräfte des Instituts für Transurane (ITU) sowie sieben Doktoranden teil, die über das Patenschaftskonzept des Kompetenzverbunds Kerntechnik von der Industrie (Framatome ANP, RWE Power und EnBW) finanziert werden und am Forschungszentrum Karlsruhe ihre Ausbildung erfahren.

Der EnBW-Seminar-Preis für den besten Vortrag wurde von Herrn Dr. Hans-Josef Zimmer, Vorstand der EnBW Kraftwerksgesellschaft, an Frau Ayelet Walter von der Universität Stuttgart verliehen für ihre Arbeit zur Systemmodellierung eines HTR mit Helium-Gasturbine unter Betriebs- und Störfallbedingungen.

Das Doktorandenseminar machte einmal mehr deutlich, dass eine solide kerntechnische und ingenieurwissenschaftliche Ausbildung attraktive berufliche Entwicklungsmöglichkeiten im Energiesektor bietet: in Deutschland und im europäischen Ausland.

In diesem Bericht sind die Beiträge (Compacts) und Vorträge der Doktoranden zusammengefasst.

Abstract

First Ph.D. Student Workshop of the Hermann von Helmholtz Association of National Research Centers (HGF) on „Nuclear Safety Research“

The First Ph.D. Student Workshop “Nuclear Safety Research” of the Helmholtz Association of National Research Centers (HGF) was jointly organized by the Research Center Karlsruhe GmbH and the Energie Baden-Württemberg AG (EnBW) from Wednesday 9th to Friday 11th March 2005. The workshop was opened with welcome greetings by Dr. Peter Fritz, Forschungszentrum Karlsruhe. Subsequently Dr. Joachim U. Knebel explained the main goals and the content of the workshop.

The young scientists reported in 28 high-level presentations about their research work which covered a wide spectrum from reactor safety, partitions and transmutation, and innovative reactor systems, to safety research for nuclear waste disposal. The junior researchers showed excellent professional competence and demonstrated presentation qualities at the highest level.

The successful funding of two Virtual Institutes, namely: the “Competence in Nuclear Technologies” and “Functional Characteristics of Aquatic Interfaces both co-ordinated by Forschungszentrum Karlsruhe”, by the President of the Helmholtz Association Prof. Walter Kröll was the motivation for the organization of this first Ph.D. Student Workshop. Thanks to these two Virtual Institutes, the Research Center Karlsruhe and Jülich together with several universities i.e. RWTH Aachen, Heidelberg, Karlsruhe, Münster, and Stuttgart, have successfully financed eight Ph.D. and two post-doctoral students.

Moreover, young scientists of the European Institute for Transuranium Elements (ITU) and additional seven Ph.D. Students, who are sponsored by the German nuclear industry (Framatome ANP, RWE Power, EnBW) in the frame of the Alliance Competence in Nuclear Technology, and who are trained at Forschungszentrum Karlsruhe, actively contributed to this workshop.

The EnBW-Award was handed over by Dr. Hans-Josef Zimmer, member of the board of directors of the EnBW-Kraftwerksgesellschaft, to Mrs. Ayelet Walter from the University of Stuttgart for the best lecture entitled “System modelling of a HTR-reactor with He-turbine under operational and accidental conditions”.

This Ph.D. Student Workshop demonstrates once again that a solid nuclear and scientific-oriented engineering education offers excellent career opportunities in the energy sector in both Germany and Europe.

In this report a compilation of the compacts and the respective slides of all presentations are documented.

INHALTSVERZEICHNIS

Begrüßung Dr. Fritz, P.	1
Thematische Einführung Dr. Knebel, J.U.	25
Process development studies for the separation of actinides from high active raffinates Asp, H., FZJ/ISR	41
Fabrication of ceramic targets containing actinides for Transmutation Barrier, D., FZJ/ISR	45
Extension of time-dependent neutron transport model for analysis of fast transient in an ADS Rabiti, C., FZK/IKET	49
Improved model for calculation of the heat transport in turbulent Convection with different fluids Chandra, L., FZK/IKET	55
In-situ specification of mineral surfaces under electrolyte with Nonlinear optical techniques Kruse, K.-W., FZK/INE	61
An approach on near-field Raman spectroscopy using the tetrahedral SNOM Tipp Klein, S., Uni Münster	67
Spektroskopische Untersuchungen zum Einbau von dreiwertigen Actiniden in Calcit Marques Fernandes, M., FZK/INE	71
Bildungsmechanismen und Stabilität tetravalenter Actinidkolloide In aquatischer Umgebung Cho, H.-R., FZK/INE	73
Formation and characterization of aquatic actinide colloids: Nucleation of actinides with aluminosilicate colloids Breban, D., FZK/INE	75
Leaching behaviour of (Th, U) O ₂ fuel kernels under repository- Relevant conditions Titov, M., FZJ/ISR	81
Qualifizierung von Polysiloxanen für die langzeitstabile Konditionierung Radioaktiver Abfälle Kucharczyk, P., FZJ/ISR	85

Determination of long-lived radionuclides at ultratrace using Advanced mass spectrometric techniques Zoriy, M., FZJ/S	91
Experimental investigations on flow reversal in stratified horizontal Flow Stäbler, T., FZK/IKET	93
Entwicklung und Validierung eines Phasenwechselwirkungsmodells Für Schichtenströmungen in horizontalen Kanälen Wintterle, T., IKE Stuttgart	99
Aspekte der wärmetechnischen Auslegung innovativer Brennelemente, Kriger, S., RWTH Aachen	105
Further development and verification of steam explosion models – Calculations for experiments and first applications to reactor conditions, Vujic, Z., IKE Stuttgart	111
Experimentelle Untersuchungen zur Kühlbarkeit von Partikelbetten Zur Verifikation numerischer Modelle in der Reaktorsicherheitsforschung, Schäfer, P., IKE Stuttgart	119
Ergebnisse zur Ermittlung extremer Reaktivitätstransienten bei Verschiedenen Reaktorsystemen Aygozjiev, K., RWTH Aachen	125
Auslegung eines Brennelements für einen High Performance Light Water Reactor Hofmeister, J., RWE Power AG	131
Untersuchung der Hüllrohrtemperaturen eines HPLWR Brennelements Im Gleitdruckbetrieb Behnke, L., RWE Power AG	137
Wärmeübergangsvergleiche für eine Rohrströmung von Wasser Im überkritischen Zustand Löwenberg, M., RWE Power AG	143
Coupled MCNP and Sub-Channel code for analyses of a high performance Light Water Reactor fuel assembly Waata, C., FZK/IKET	149
Impact of basic cross-sections and thermal scattering law data on Neutronics parameters of HPLWR's, Conti A., IKE Stuttgart	155
Kopplung numerischer Modelle für Neutronik und Thermohydraulik Zur Simulation von Transienten beim HTR Rademer, T., IKE Stuttgart	161

Thermofluiddynamische Modelle und Analysen für den HTR: Betriebsverhalten und passive Nachwärmeabfuhr-Transienten Nader, B.-S., IKE Stuttgart	167
Entwicklung von webbasierten Werkzeugen zur Simulation von HTR-Anlagen, Schulz, A., IKE Stuttgart	175
System modeling and simulation of HTR circuits with Brayton cycle For operational and accidental conditions Walter, A., IKE Stuttgart	181
Nuclear hydrogen generation and storage methods Ossowski, M., IKE Stuttgart	187

Begrüßung

Dr. Peter Fritz

Mitglied des Vorstands

Forschungszentrum Karlsruhe

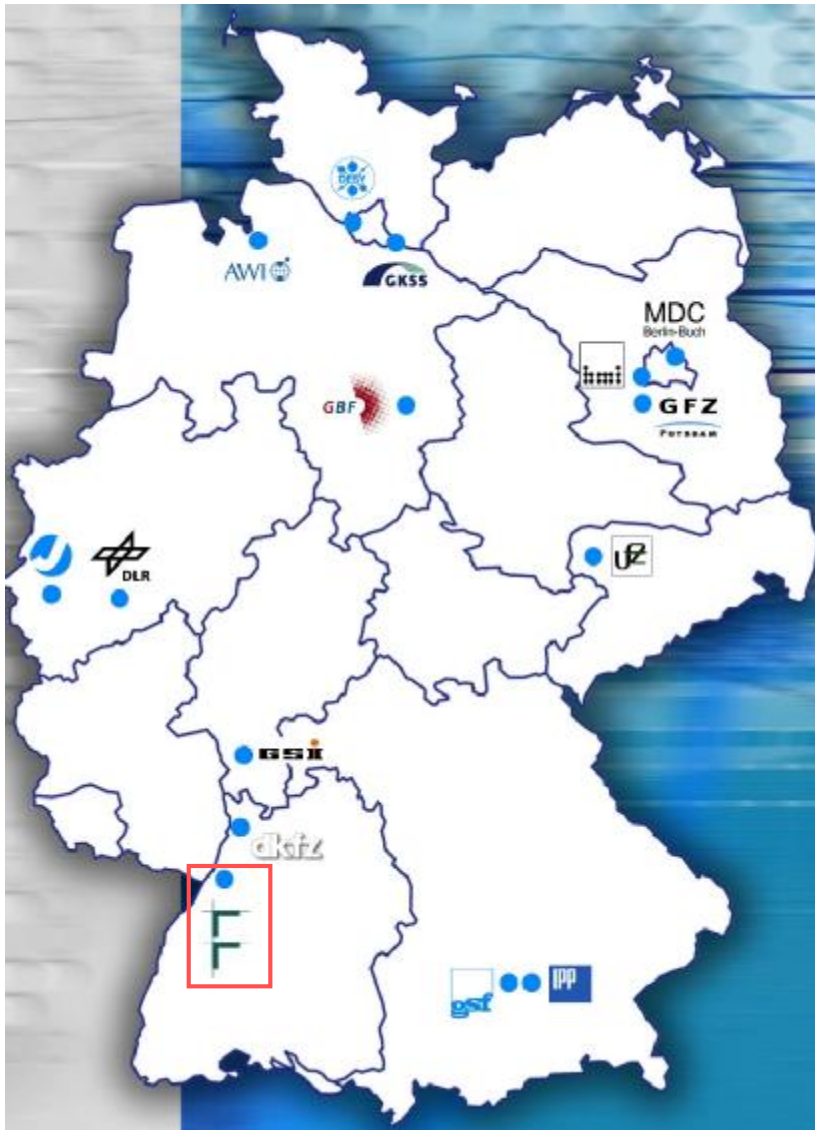






Die „Helmholtz-Gemeinschaft“ (HGF)

Jahr 2004



Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt

Kosten
[Mio. €]

464,0 4333

Forschungszentrum Jülich

359,0 3593

**Forschungszentrum
Karlsruhe**

285,0 3589

Deutsches Krebsforschungszentrum

134,0 1524

Deutsches Elektronen-Synchrotron

185,0 1483

Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit

169,0 1337

Max-Planck-Institut für Plasmaphysik

118,0 1025

Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung

80,0 764

Gesellschaft für Schwerionenforschung

56,0 725

Hahn-Meitner-Institut Berlin

81,0 740

Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle

70,0 661

Max-Delbrück-Centrum für Molekulare Medizin

62,0 674

Forschungszentrum Geesthacht

73,0 646

GeoForschungszentrum Potsdam

51,0 547

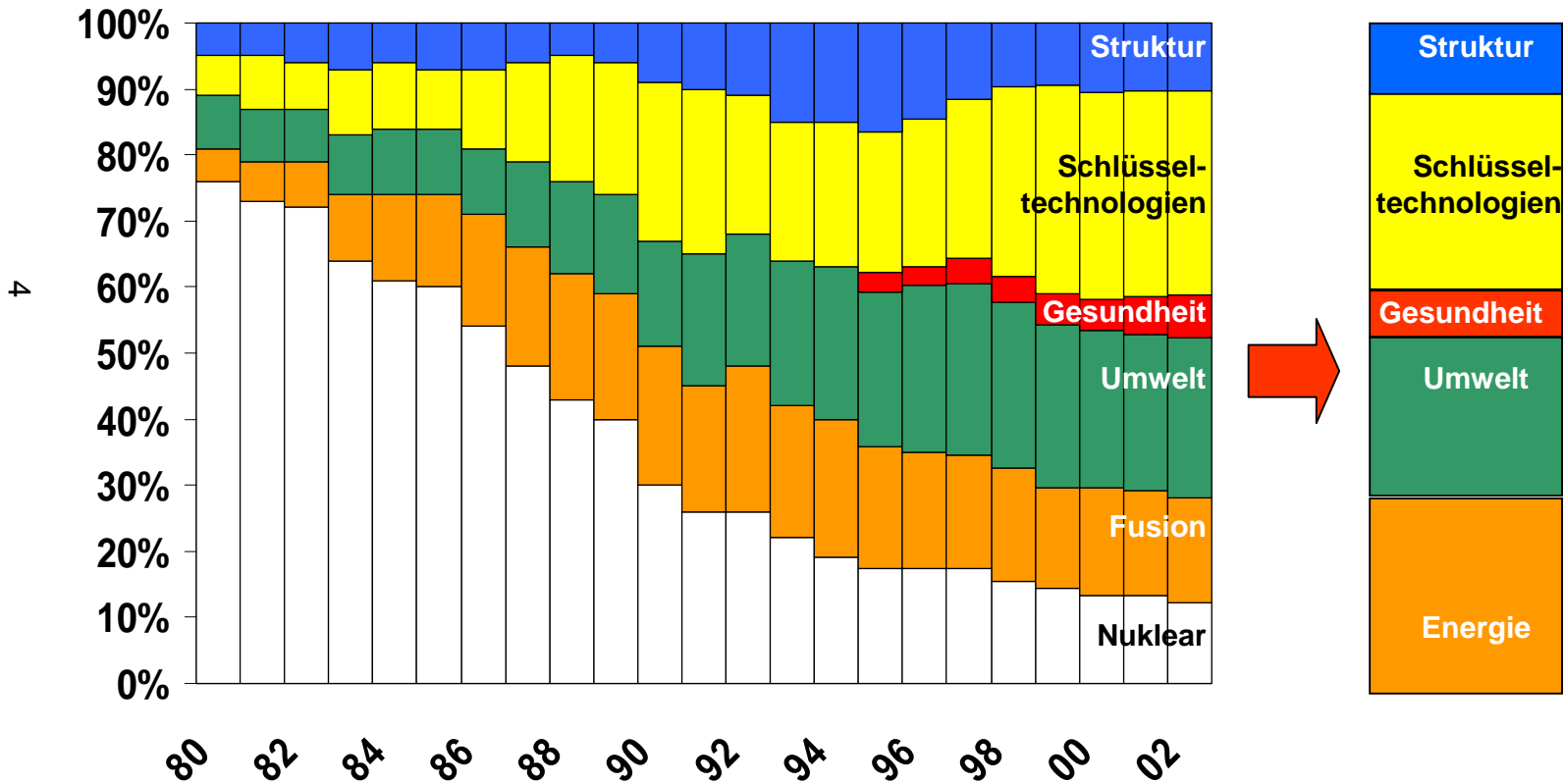
Gesellschaft für Biotechnologische Forschung

50,0 518

2237,0 22149

Wandel der Arbeitsschwerpunkte

2004



Bewertung der FZK-Programme in der HGF - Begutachtung

Bestes HGF-Zentrum:

- 3 % Rationelle Energieumwandlung
- 11 % Kernfusion
- 10 % Nukleare Sicherheitsforschung
- 10 % Atmosphäre & Klima
- 20 % Nachhaltigkeit & Technik
- 3 % Umweltbedingte Krankheiten
- 2 % Genomforschung
- 1 % Wissenschaftliches Rechnen
- 0,5 % Elementarteilchenphysik
- 6 % Astroteilchenphysik
- 0,5 % Hadronen & Kerne

unter Durchschnitt

- 4 % Medizintechnik
- 3 % Kondensierte Materie
- 6 % Photonen, Neutronen, Ionen

Ohne Konkurrenz:

- 12 % Mikrosystemtechnik
- 8 % Nanotechnologie

67 %

20 %

13 %



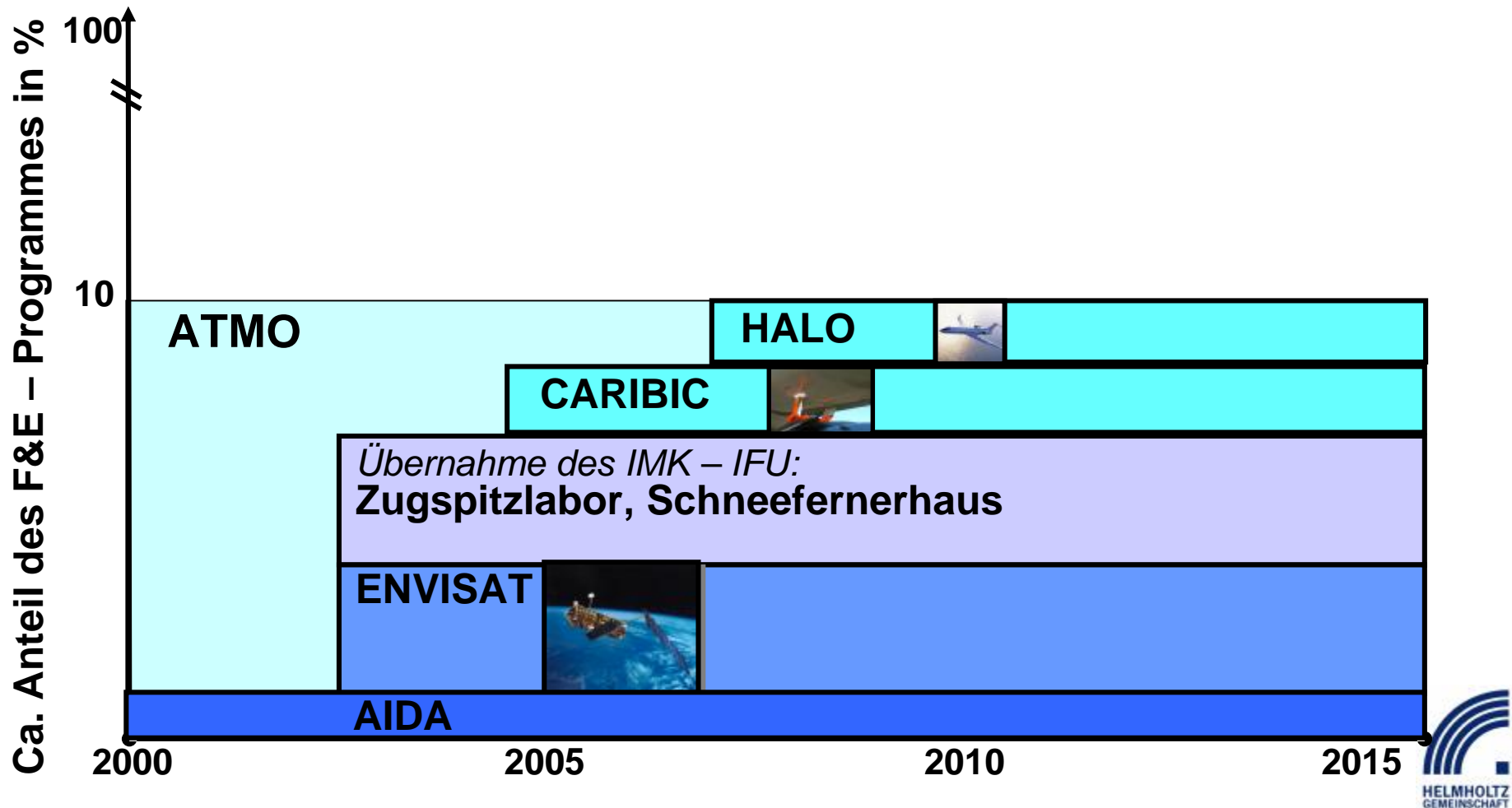
Zum Wettbewerb in der Hermann-von-Helmholtz- Gemeinschaft deutscher Forschungszentren

**Die Breite an der Spitze
ist dichter geworden.**

(Berti Vogts)

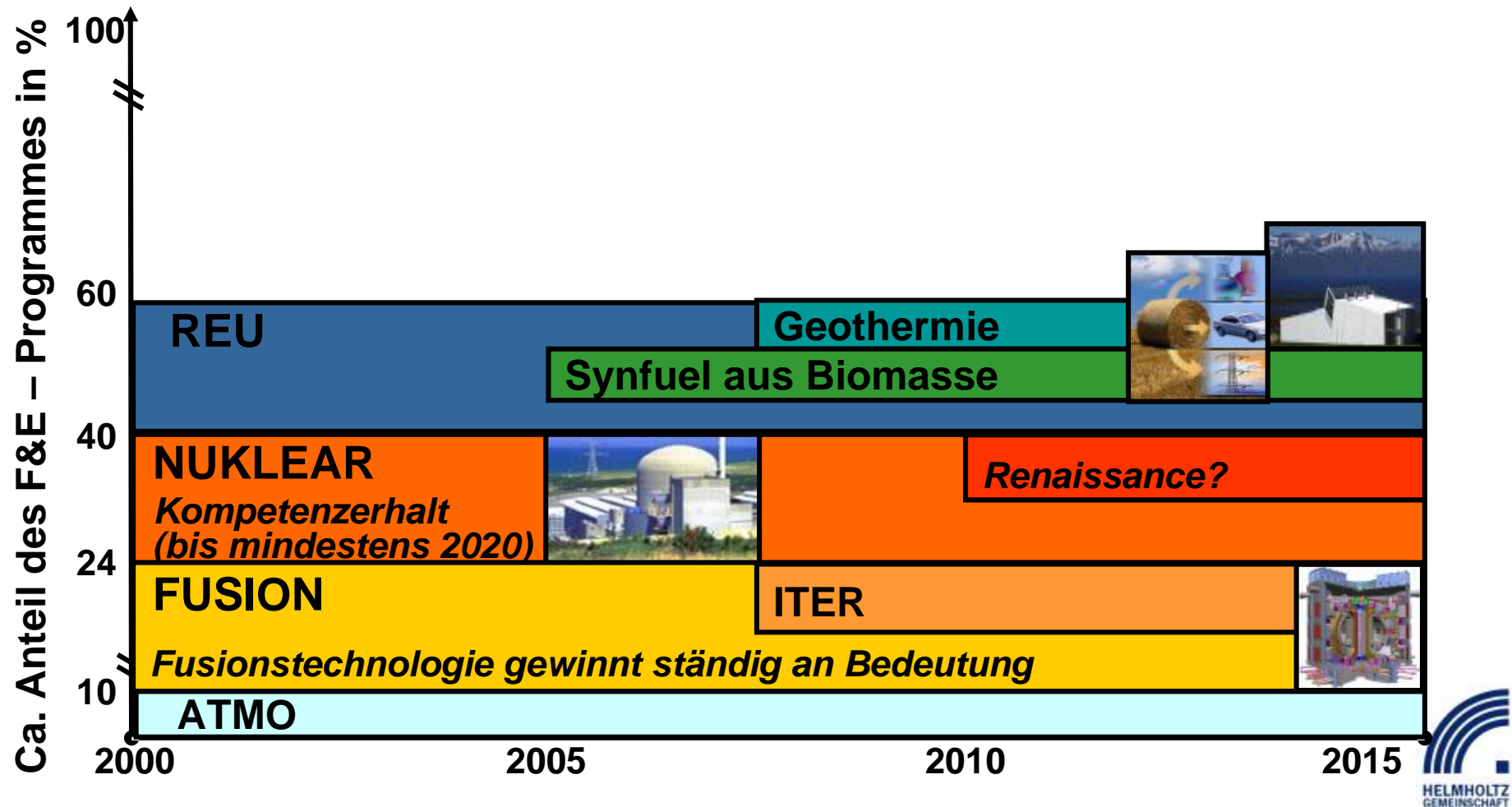
9

Langfrist – Strategie des Forschungszentrums Karlsruhe

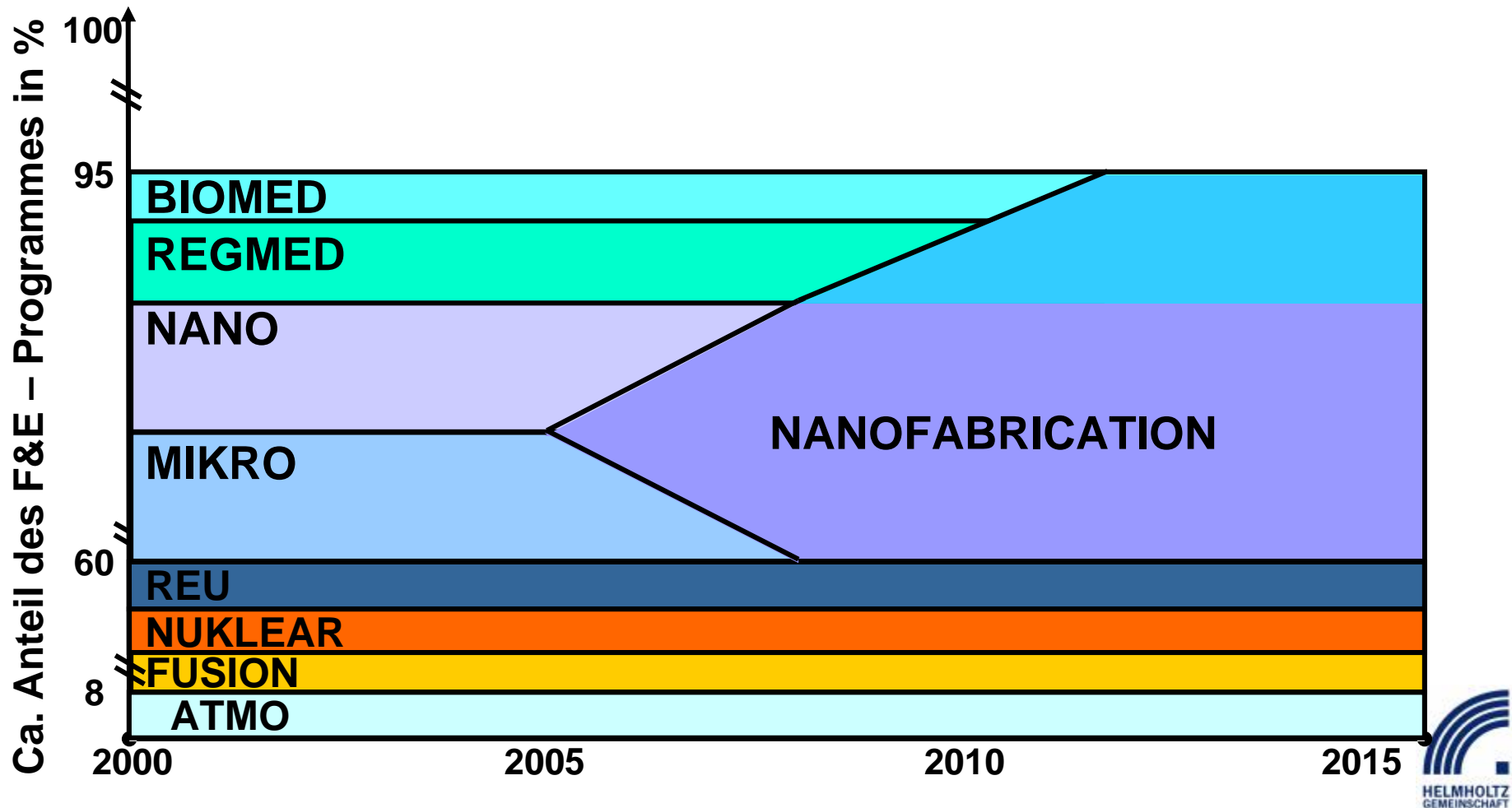


Langfrist – Strategie des Forschungszentrums Karlsruhe

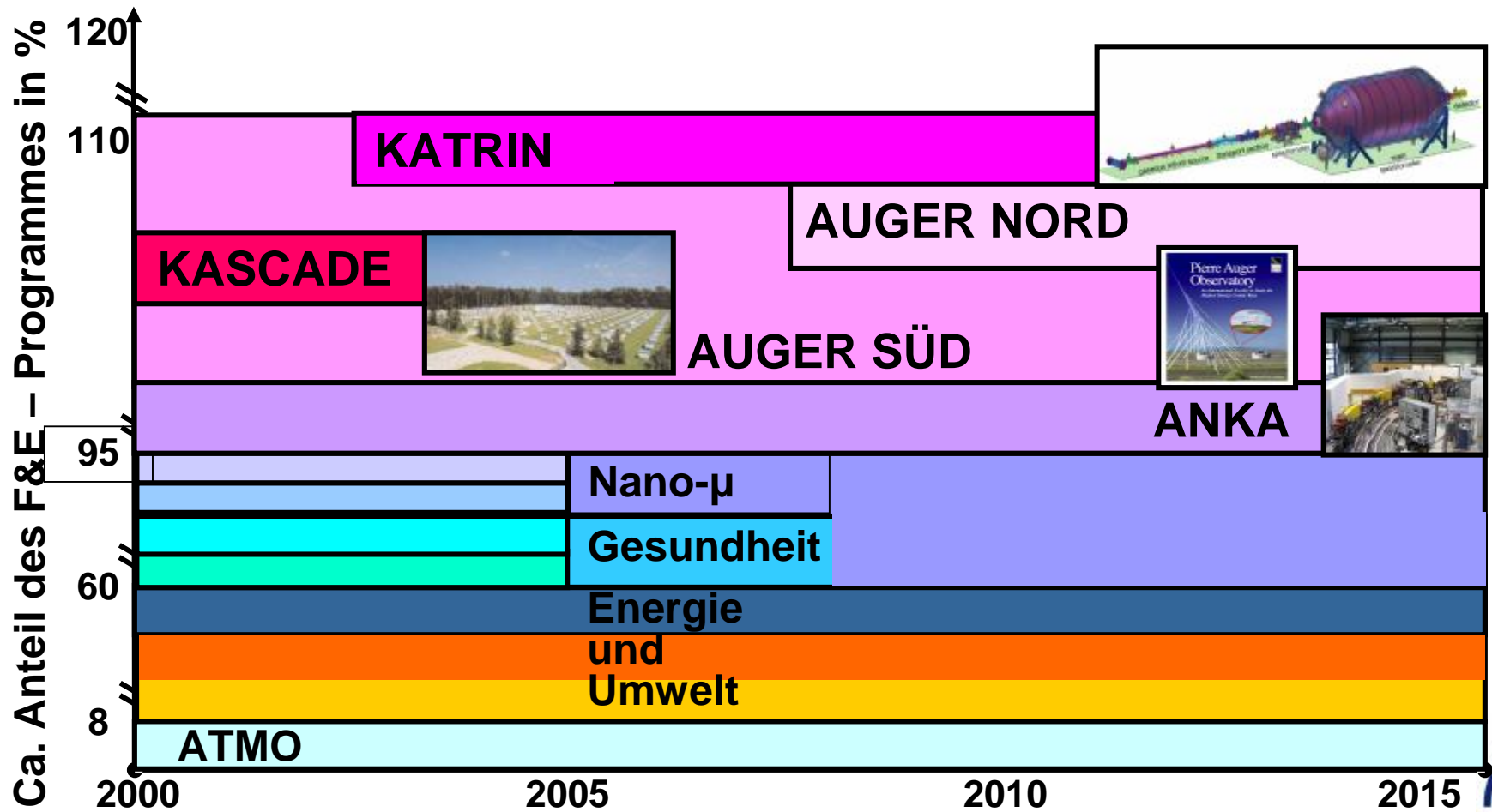
8



Langfrist – Strategie des Forschungszentrums Karlsruhe



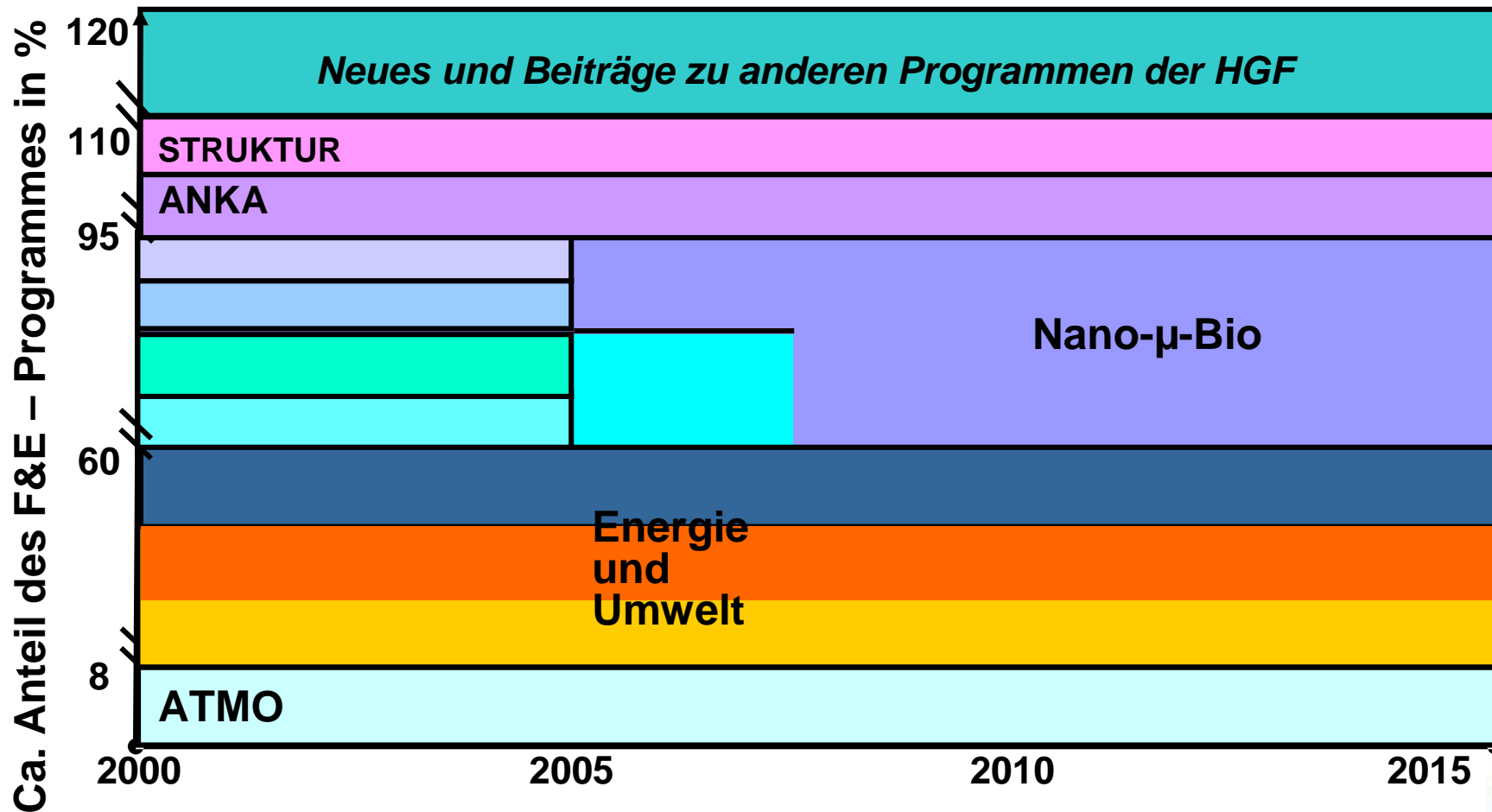
Langfrist – Strategie des Forschungszentrums Karlsruhe



10



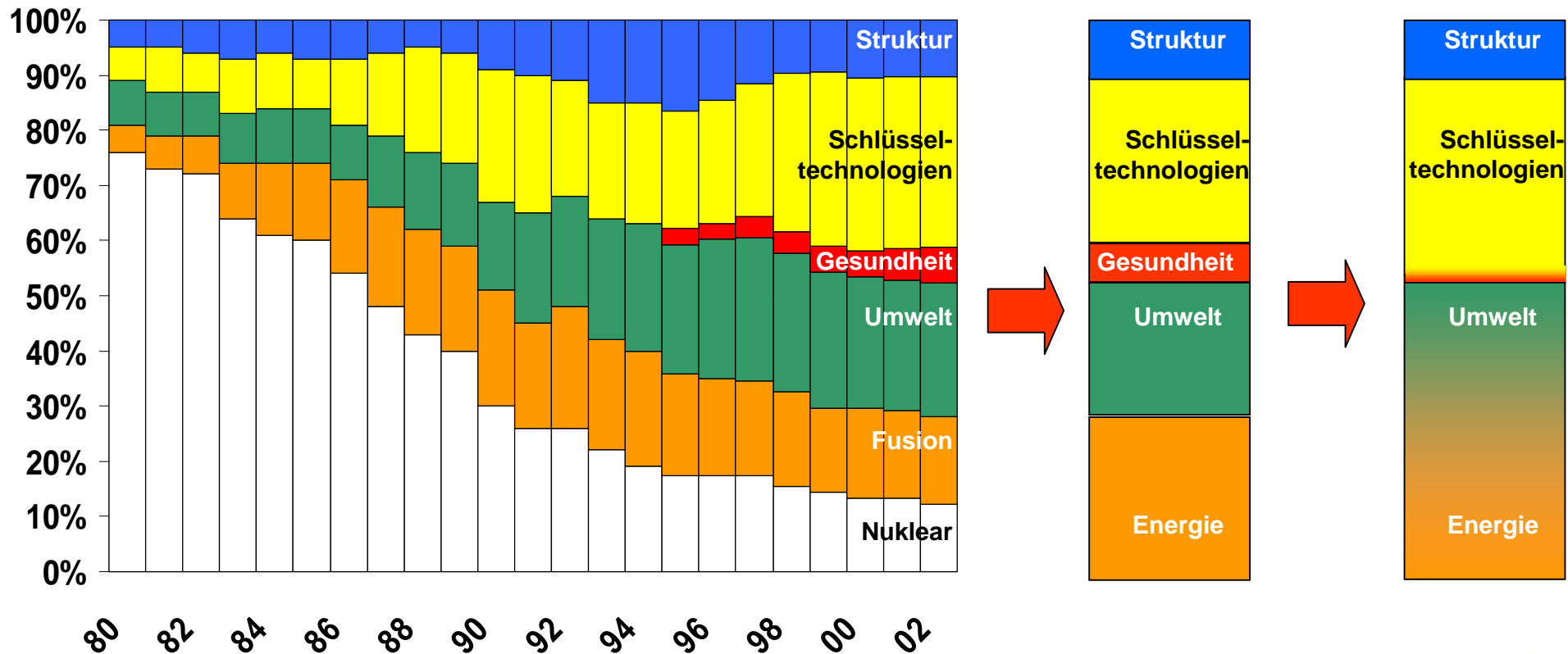
Langfrist – Strategie des Forschungszentrums Karlsruhe



Wandel der Arbeitsschwerpunkte

2004

Zukunft



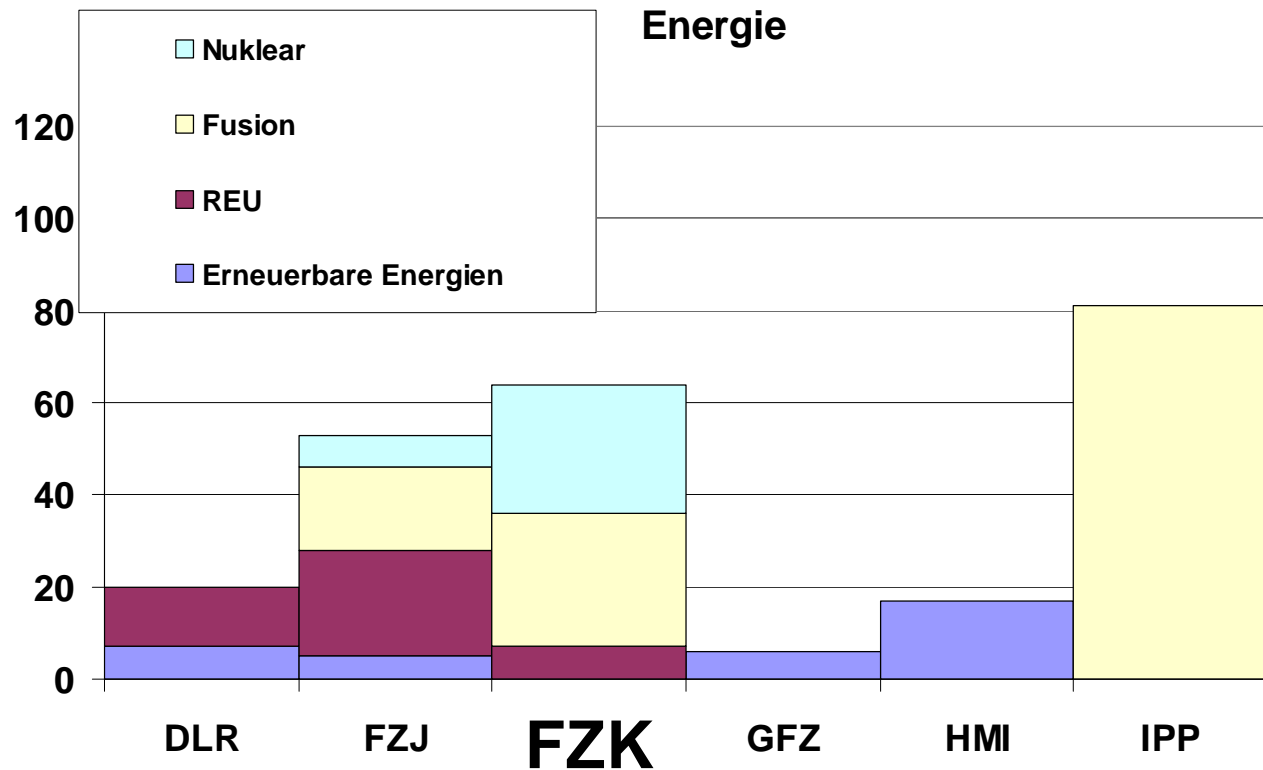
12



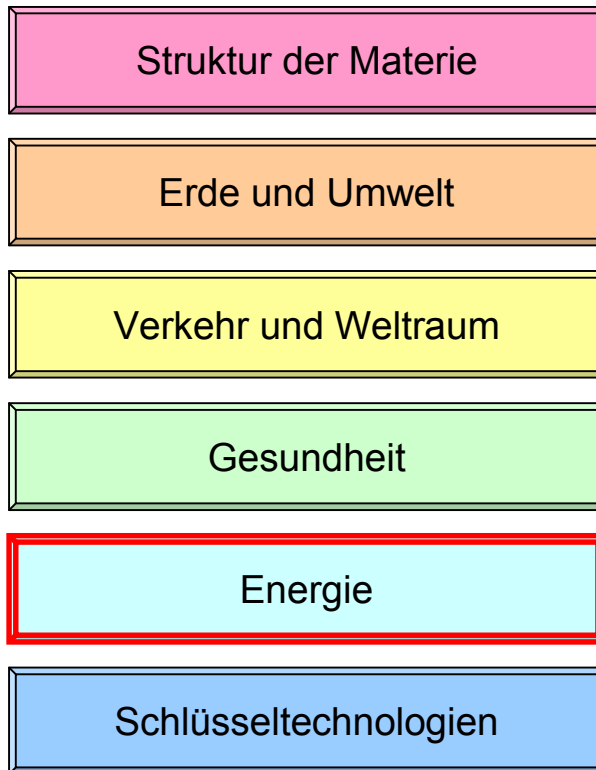
Forschungsbereiche



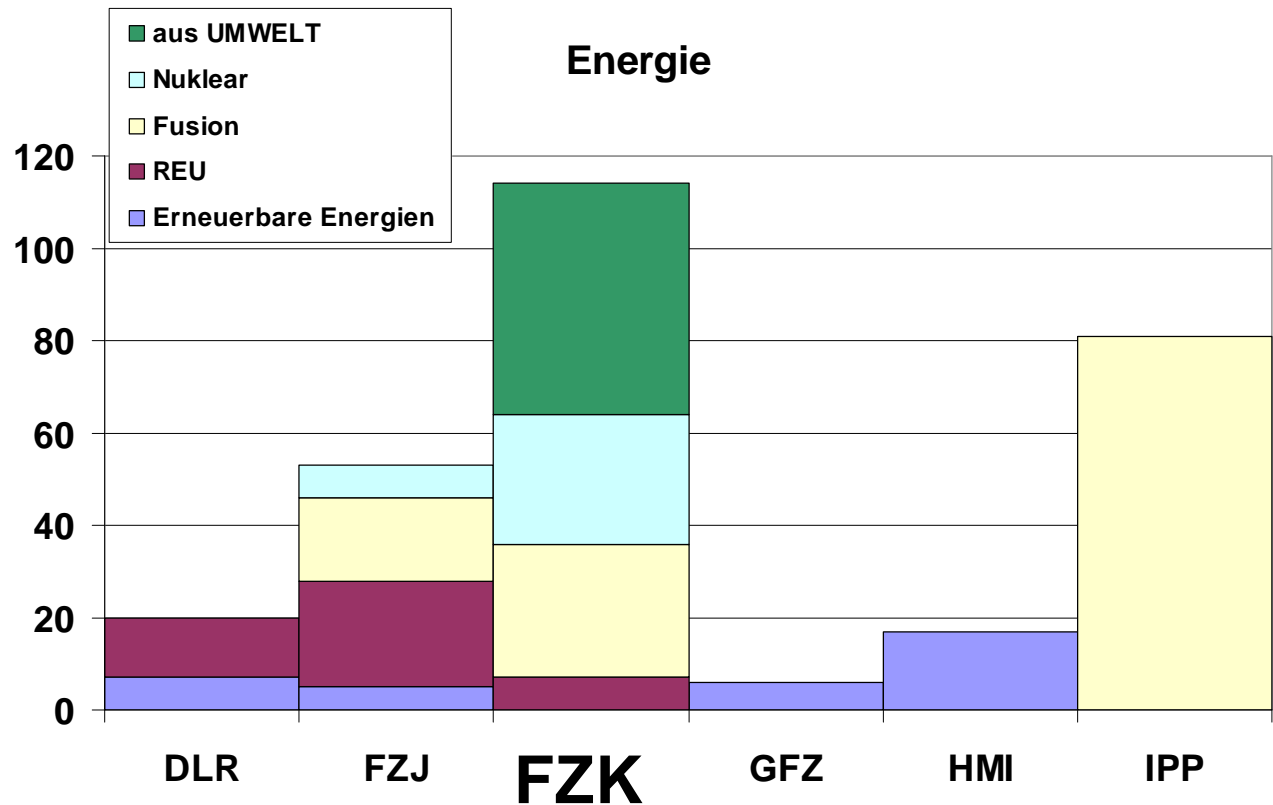
13



Forschungsbereiche



14



Programm NUKLEAR

FZK + FZJ

(Themen abgestimmt)

zusätzlich:

Abstimmung im Kompetenz-
verbund Kerntechnik

(7/6) FH Aachen/Jülich

(88/60) FZ Jülich

(7/6) RWTH Aachen

(89/89) BGR

BGR

MDC
Berlin-Guch

hmi

GFZ
PATRAM

TU Dresden (24/18)

FZ Rossendorf (116/72)

FH Zittau/Görlitz (20/18)

**Kompetenz-
zentrum Ost**

(1/1) Uni Heidelberg

(237/183) ITU

(245/167) FZ Karlsruhe

(4/2) Uni Karlsruhe

(27/24) Uni Stuttgart

(34/27) MPA Stuttgart

**Kompetenz-
zentrum Südwest**

TU München

(140/100)

IPP

Kerntechnisches FuE-Personal
(Gesamt / wiss.-techn.)

■ Universitäten

▲ Fachhochschulen

● Forschungseinrichtungen

Fachkompetenz in der Kerntechnik

Arbeitsplatzentwicklung für das techn.-wiss. Personal 2000 ÷ 2010

(Umfrageergebnisse aus den Jahren 2000 und 2004)

Arbeitsplatzbereich	Arbeitsplätze 2000 (bzw.: Ist 2004)*	Arbeitsplätze 2010	
KKW-Betreiber	5.500 (5550)*	4.000	5.250*
KKW-Hersteller- u. Service-Industrie	8.800 (9270)*	7.100	7.840*
Aufsichts- u. Gutachter-Institutionen	1.350	1.200	
F&E-Institutionen: Reaktorsicherheit Nukl. Entsorgung	370	370 (?)	
	350	380 (?)	
Mitwirkung in internat. Gremien	100	100 (?)	
Summe	16.470	13.150	15.140

*) Erhebung 2004

Fachkompetenz in der Kerntechnik

Arbeitsplatzentwicklung für Hochschulabsolventen* 2000 ÷ 2010

(Umfrageergebnisse aus den Jahren 2000 und 2004)

Arbeitsplatzbereich	Arbeitsplätze 2000 (bzw. Ist 2004)***	Arbeitsplätze 2010 (davon Neubesetzungen)	
KKW-Betreiber	1.250 (1.330)***	1.000 (keine**)	1.270 (450)***
KKW-Hersteller- u. Service-Industrie	3.500 (3.340)***	3.300 (1.000)	3.170 (930)***
Aufsichts- u. Gutachter-Institutionen	1.350	1.100 (300)	
F&E-Institutionen: Reaktorsicherheit Nukl. Entsorgung	370	370 ? (160)	
	350	380 ? (110)	
Mitwirkung in internat. Gremien	100	100 (100)	
Summe	6.920	6.250 (1.670)	6.390 (2150)

*) Uni, TU, FH

**) bei unveränderter Fluktuation

***) Erhebung 2004

Aktuelle Entwicklungen:

1. Universität Heidelberg

- a) Stiftungsprofessur EnBW (Nachfolge Prof. Grunze);
Ausschreibung erfolgt in Kürze
- b) FZK delegiert 2 MA an den Stiftungslehrstuhl
- c) Praktikum Radiochemie am FZK: 2005 = 10 Studenten

2. Universität Karlsruhe

Einrichtung einer Juniorprofessur für Kerntechnik

3. Universität Stuttgart

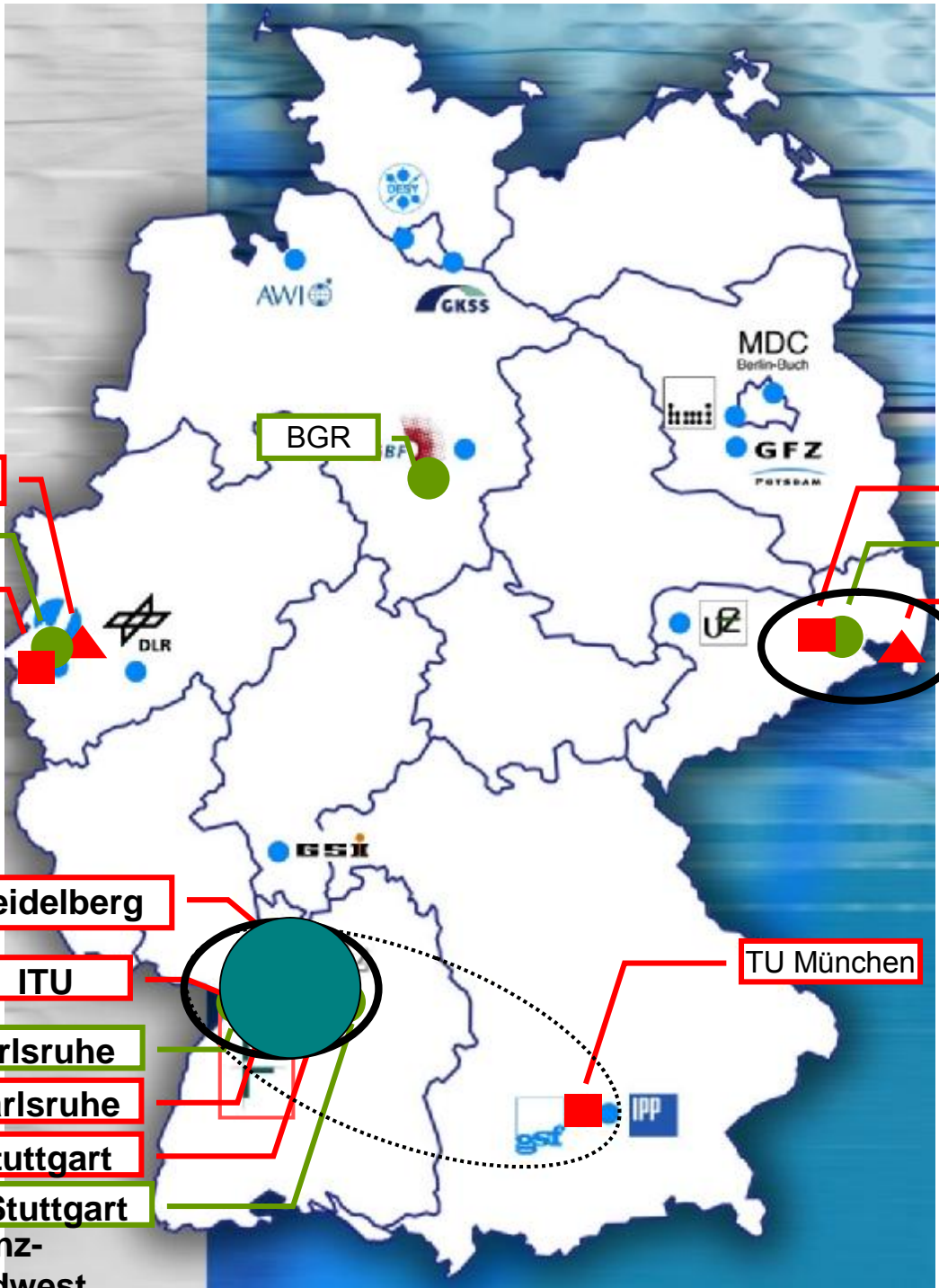
- a) Uni stellt W3-Stelle mit Leitungsfunktion; FZK finanziert,
FZK-Berufungsverfahren angelaufen;
Senat hat in der Sitzung vom 24.02.2005 zugestimmt
- b) W3-Stelle (Prof. Laurien)
- c) W3-Stelle (noch zu besetzen)

Programm NUKLEAR

FZK + FZJ

(Themen abgestimmt)

zusätzlich:
Abstimmung im Kompetenzverbund Kerntechnik



FH Aachen/Jülich
FZ Jülich
RWTH Aachen

TU Dresden
FZ Rossendorf
FH Zittau/Görlitz

Kompetenz-zentrum Ost

Uni Heidelberg
ITU
FZ Karlsruhe
Uni Karlsruhe
Uni Stuttgart
MPA Stuttgart

TU München

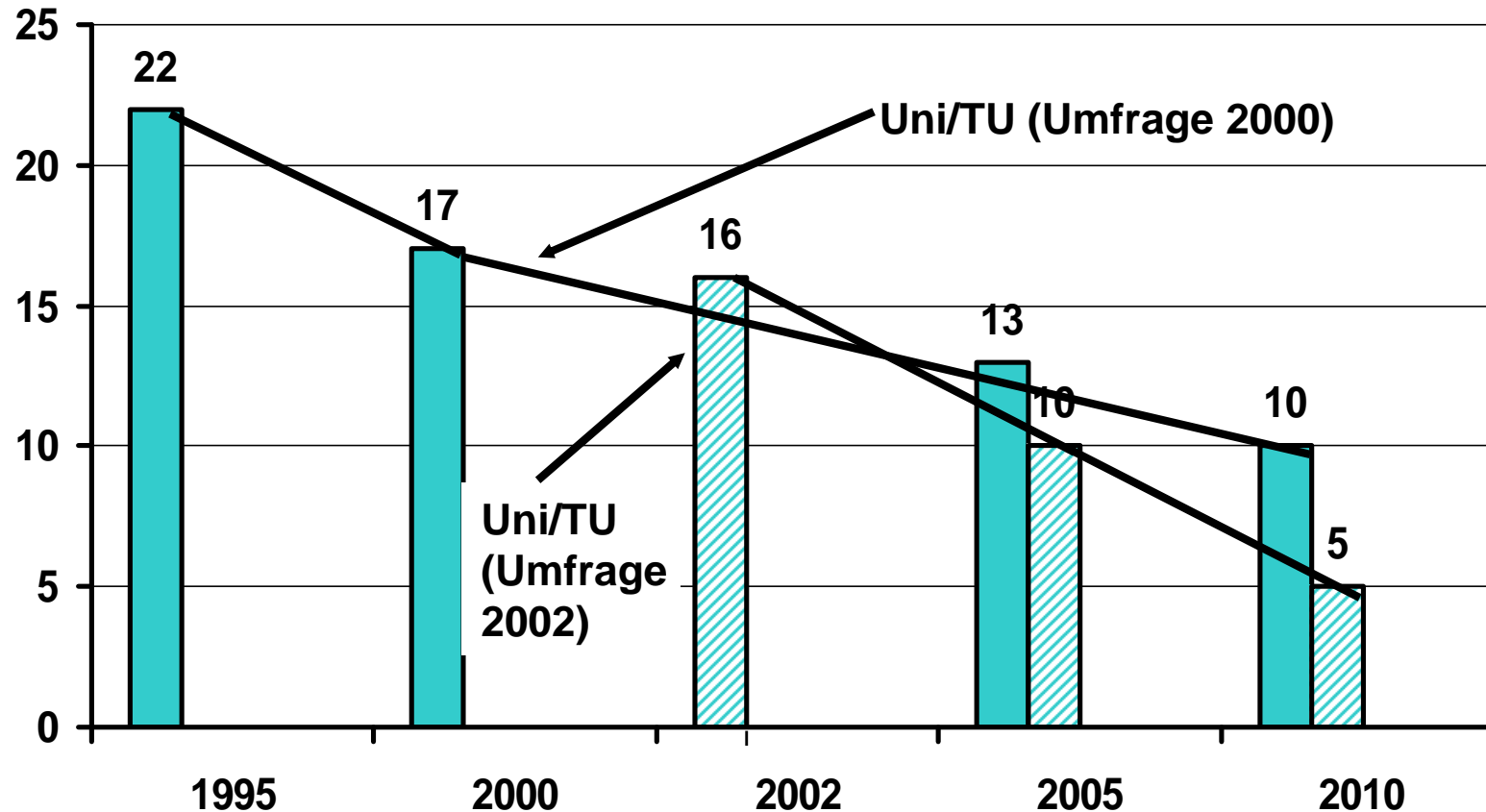
Kompetenz-zentrum Südwest

Kerntechnisches FuE-Personal
(Gesamt / wiss.-techn.)

- Universitäten
- ▲ Fachhochschulen
- Forschungseinrichtungen

Trend: Kerntechn. Lehrangebote* an deutschen Hochschulen (Uni, TU)

(Auswertung der Umfragen der KTG (1994), FZK (2000) und des FZK (2002))

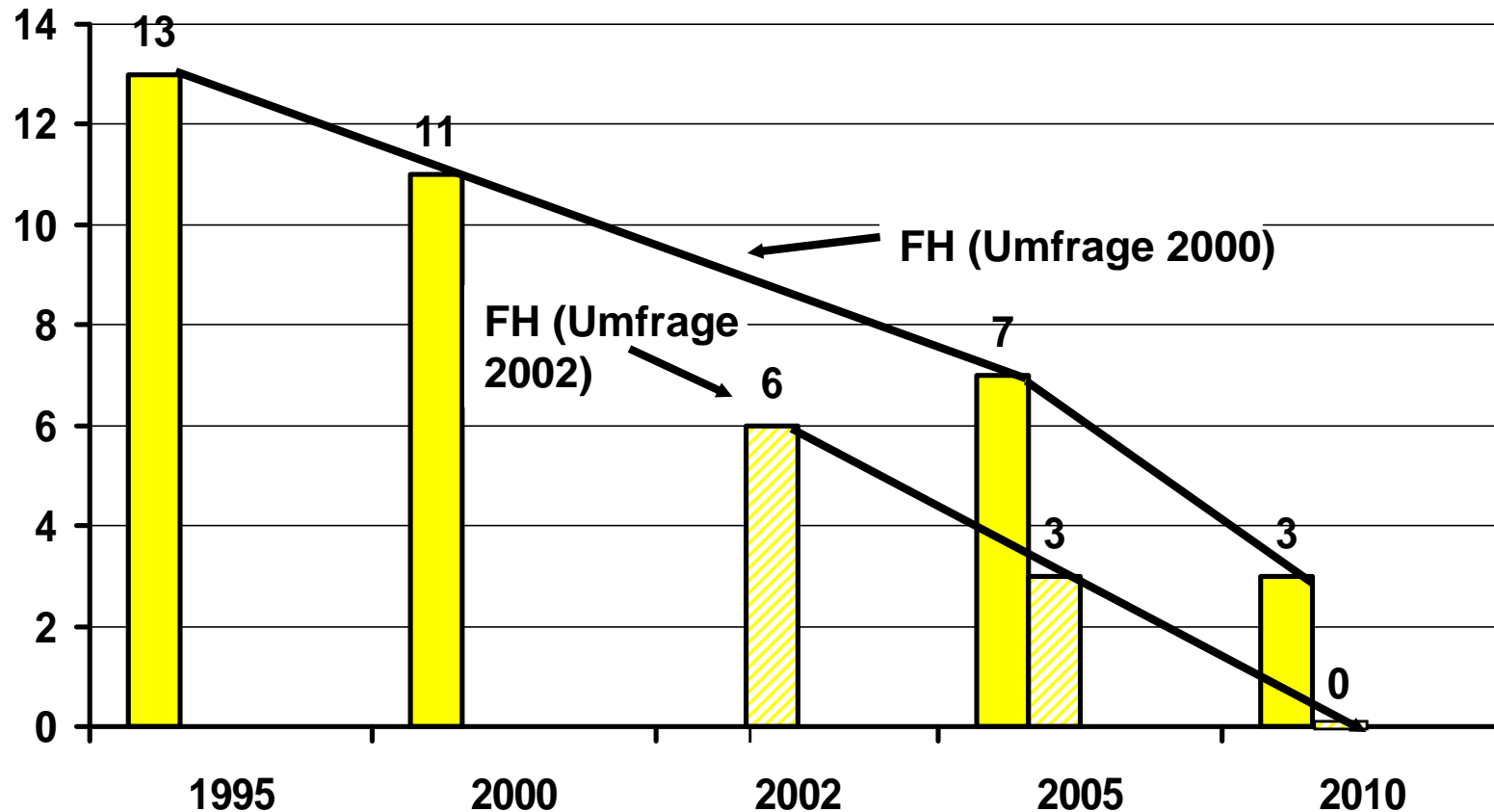


*) in den Fächern Reaktorphysik, -technik, -sicherheit, Nuklear- und Radiochemie und Strahlenschutz

Rev. Version,
Jan. 2004

Trend: Kerntechn. Lehrangebote* an deutschen Fachhochschulen

(Auswertung der Umfragen der KTG (1994), FZK (2000) und des FZK (2002))



*) in den Fächern Reaktorphysik, -technik, -sicherheit, Nuklear- und Radiochemie und Strahlenschutz

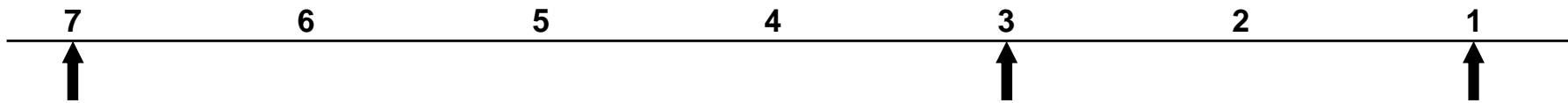
Rev. Version,
Jan. 2004

Zentrale Aufgaben der Helmholtz-Gemeinschaft

- **Entwicklung, Bau und Betrieb von Großgeräten für Grundlagen- und anwendungsnahe Forschung, auch oder überwiegend für andere wissenschaftliche Nutzer aus dem In- und Ausland,**
- **Langzeitprogramme, bei denen komplexe wissenschaftliche und technische Fragestellungen im Vordergrund stehen,**
- **Fächerübergreifende Querschnittsaufgaben und Systemlösungen,**
- **Hochtechnologieentwicklungen mit langen Vorlaufzeiten.**

Der Notenschlüssel

Wissenschaftliche Qualität

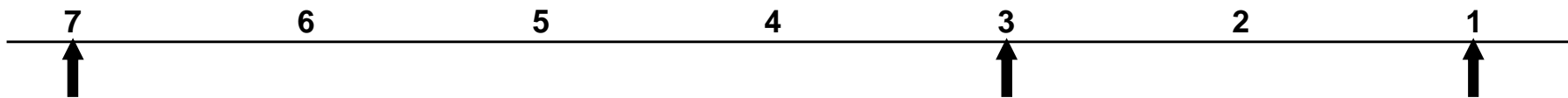


PT mit außergewöhnlich hohem internationalen Standard, mit bahnbrechenden, innovativen Arbeiten, die versprechen, einen sehr deutlichen Einfluss auf dieses Gebiet zu nehmen

PT das wettbewerbsfähig ist, durchschnittliches, internationales Niveau

PT das nicht wettbewerbsfähig ist, kein Potential um Einfluss auf dieses Gebiet ausüben zu können

Strategische Bedeutung



Überragende wissenschaftliche, ökonomische und gesellschaftliche Relevanz, die für die HGF ein internationales Profil ergibt, einschließlich der Kooperationsverfahren und Transferstrategien, mit einem exzellenten Beitrag zur Förderung junger Wissenschaftler und Frauen

hohe strategische Relevanz, benötigt aber Verbesserungen in den Unterpunkten

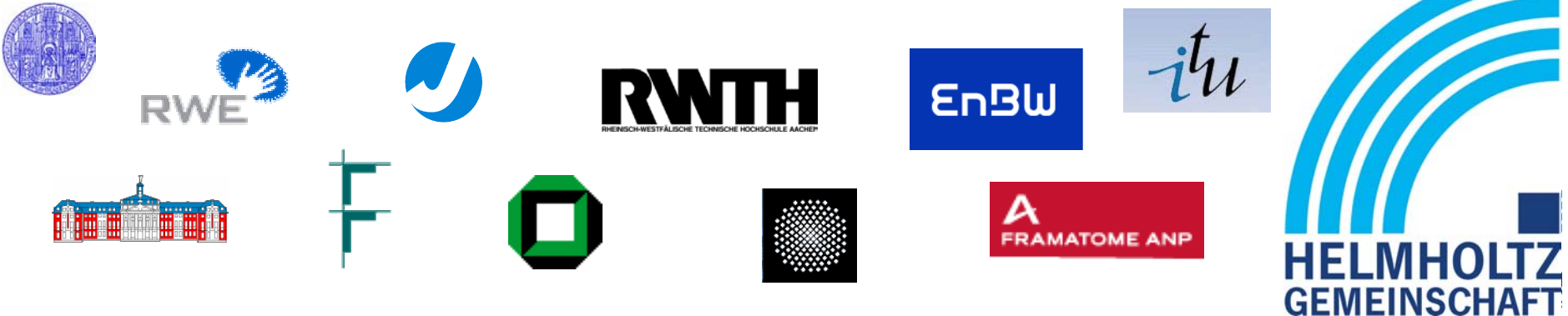
keine strategische Relevanz

Forschungszentrum Karlsruhe
in der Helmholtz-Gemeinschaft

Erstes HGF Doktorandenseminar „Nukleare Sicherheitsforschung“

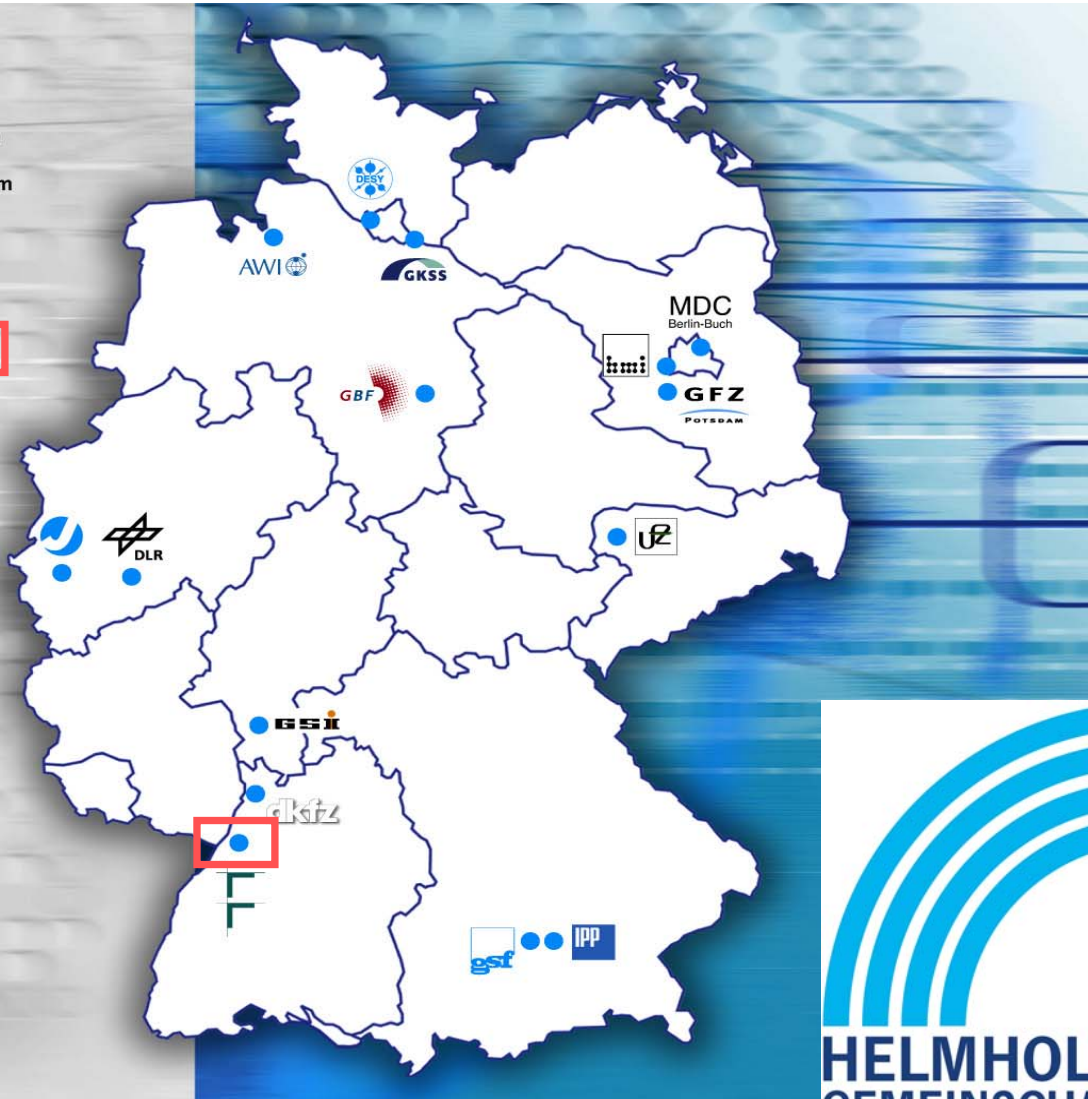
mit Verleihung des EnBW-Seminar-Preises
für den besten Vortrag

Forschungszentrum Karlsruhe und KKP Philippsburg
9.-11. März 2005



Forschungszentrum Karlsruhe in der Helmholtz-Gemeinschaft

- AWI Stiftung Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung
- DESY Stiftung Deutsches Elektronen-Synchrotron
- DKFZ Stiftung Deutsches Krebsforschungszentrum
- DLR Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V.
- FZJ Forschungszentrum Jülich GmbH
- FZK Forschungszentrum Karlsruhe GmbH**
- GBF Gesellschaft für Biotechnologische Forschung mbH
- GFZ Stiftung GeoForschungsZentrum Potsdam
- GKSS GKSS-Forschungszentrum Geesthacht GmbH
- GSF GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH
- GSI Gesellschaft für Schwerionenforschung mbH
- HMI Hahn-Meitner-Institut Berlin GmbH
- IPP Max-Planck-Institut für Plasmaphysik
- MDC Stiftung Max-Delbrück-Centrum für Molekulare Medizin
- UFZ UFZ-Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH



26

Helmholtz Gemeinschaft: Mission

- Die Helmholtz-Gemeinschaft ist mit ihren 15 Forschungszentren, ihren 24.000 Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern und einem Jahresbudget von rund 2,1 Milliarden € die größte Wissenschaftsorganisation Deutschlands.
- Die Helmholtz-Gemeinschaft identifiziert und bearbeitet große und drängende Fragen von Gesellschaft, Wissenschaft und Wirtschaft, insbesondere durch die Erforschung von Systemen hoher Komplexität.



Motivation für das Seminar

➤ Empfehlung des Helmholtz-Senats (Oktober 2003):

„Alle Partner einschließlich der finanzierenden Partner müssen angemessene Maßnahmen ergreifen, so dass ein attraktiver, politischer und wissenschaftlicher Rahmen geschaffen wird, um junge Wissenschaftler(innen) für die Kerntechnik zu gewinnen und das Ziel der Kompetenzerhaltung zu realisieren.“

➤ Einrichtung eines Virtuellen Instituts:

VI „Kompetenzerhaltung in der Kerntechnik“
VI „Aquatische Grenzflächen“

➤ Kompetenzverbund Kerntechnik:

Patenschaftskonzept der EVUs und der Industrie

VI Kompetenzerhaltung in der Kerntechnik

Förderung von 7 Dissertationen:



- **Grundlegende Arbeiten zu Reaktivitätstransienten in LWR**
 - RWTH Aachen
- **Grundlegende Arbeiten zum Sicherheitskonzept des HPLWR**
 - Universität Stuttgart
- **Grundlegende Arbeiten zur Sensitivitätsanalyse und NURESIM**
 - Implementierung der Adjoint Sensitivity Analysis Procedure in ATHLET, Universität Karlsruhe
 - Vergleich des dynamischen Verhaltens von kritischen und unterkritischen Reaktoren, Universität Karlsruhe
- **Grundlegende Arbeiten zum Sicherheitskonzept gasgekühlter Reaktoren**
 - Vergleich zwischen MCNP und vereinfachten Standardmodellen, RWTH Aachen
 - 3D CFD-Verfahren zur transienten Simulation des Primärkreislaufs, Universität Stuttgart

VI Aquatische Grenzflächen

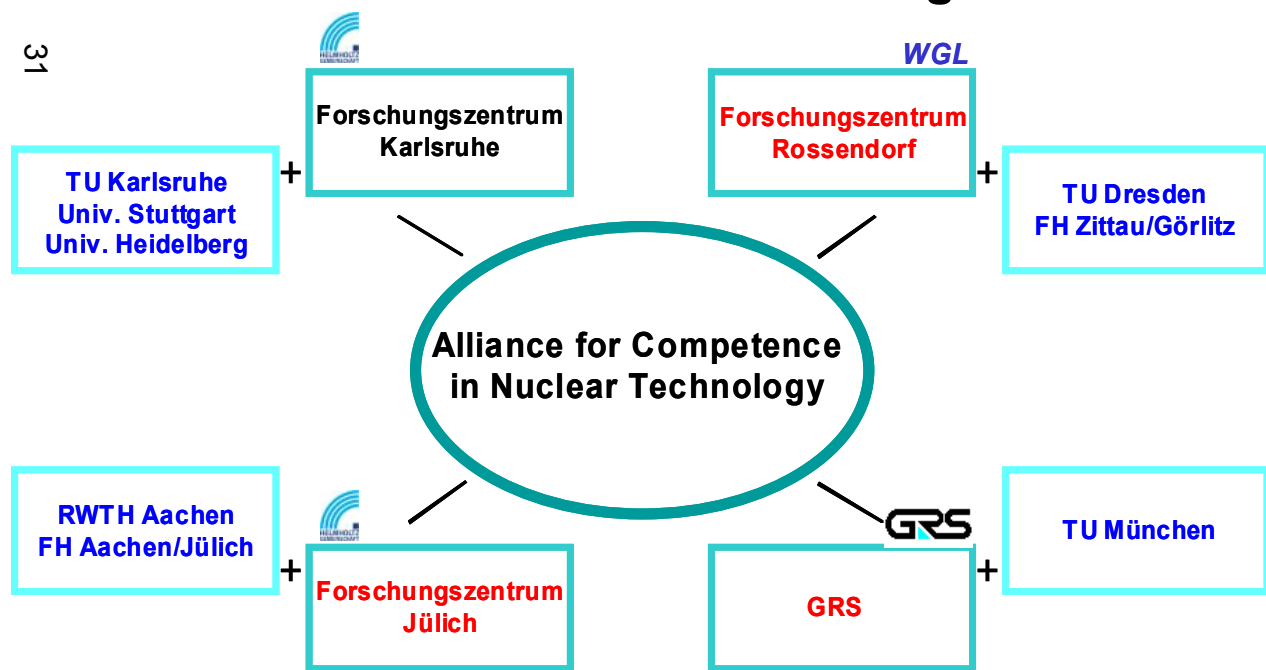
Förderung von 1 PhD, 2 PostDoc



- **Aufbau und Erprobung eines Raman-Nahfeldmikroskops auf der Basis der Spitzenverstärkung mit der Tetraedersonde, Universität Münster (Doktorand)**
- **Aufklärung der Speziation aquatischer Grenzflächen durch Neutronenreflektivitäts-Messungen und Monte Carlo Simulationen, Universität Heidelberg (PostDoc)**
- **Aufklärung der Speziation der funktionellen Eigenschaften von Mineral/Elektrolyt-Grenzflächen mit nichtlinear optischen Methoden, FZK (PostDoc)**

Kompetenzverbund Kerntechnik

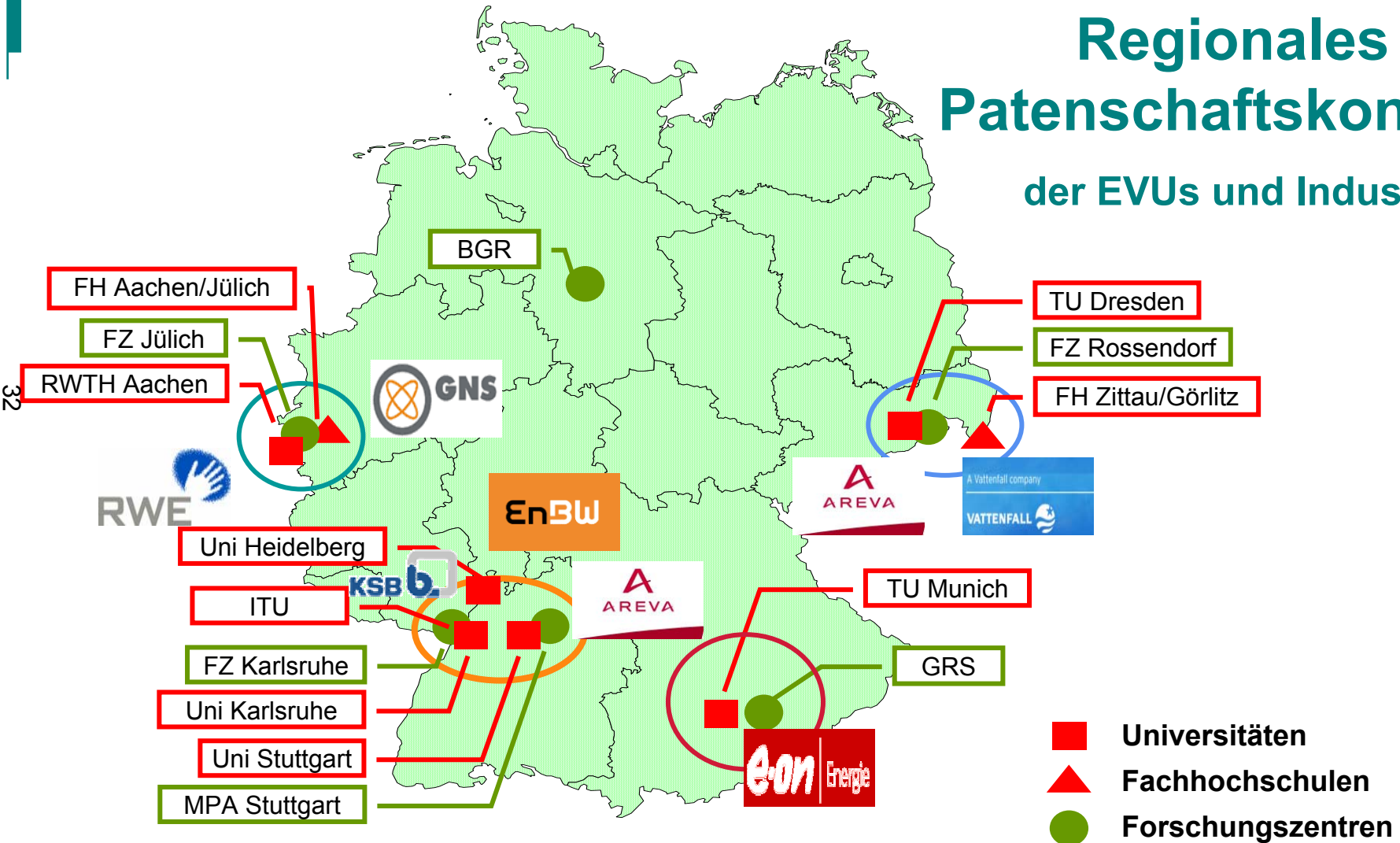
- Gründung auf Initiative der BMWA Evaluierungskommission (2000)
- Zielsetzung:
 - Koordination der Nuklearen Sicherheitsforschung in D
 - Festlegung von Forschungsschwerpunkten
 - Quantifizierung des erforderlichen Personals



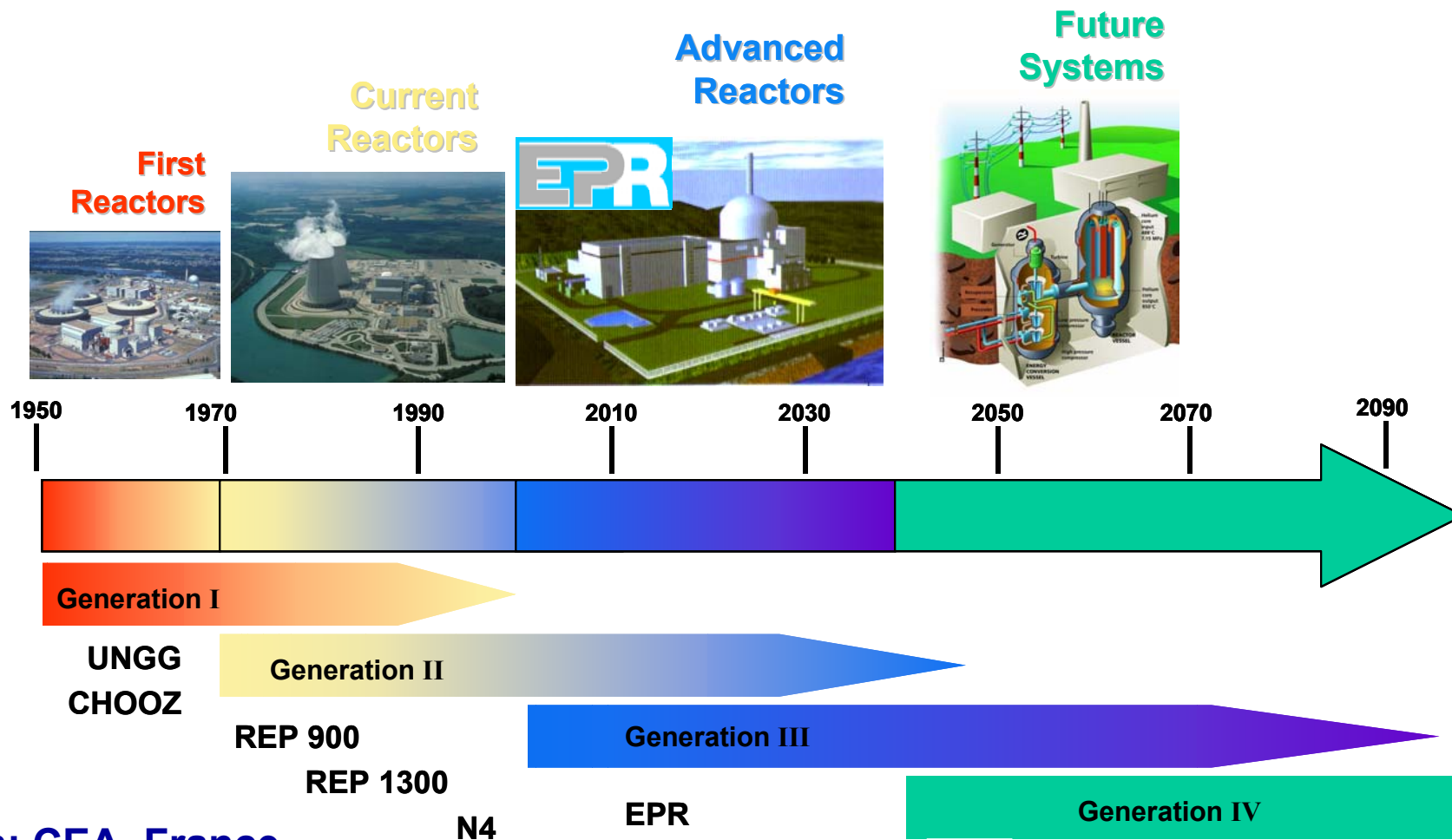
Zusätzliche Mitglieder:

- Bundesministerien: BMBF, BMU, BMWA
- Projektträger: PT-R, PTKA
- BGR, ITU, MPA
- Deutsche EVUs, Industrie

Regionales Patenschaftskonzept der EVUs und Industrie



Evolution of Nuclear Power in France

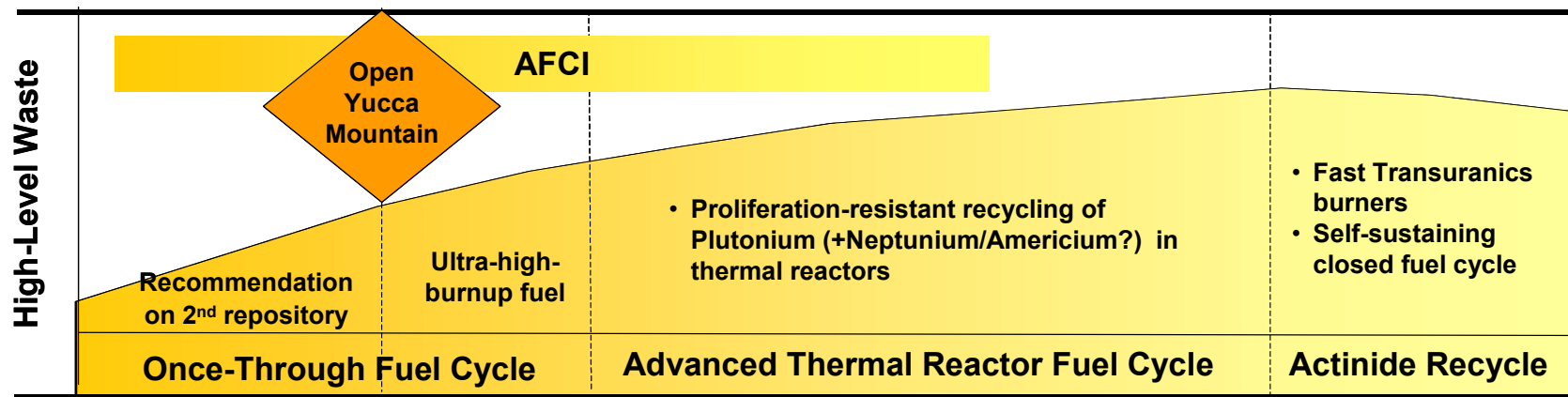
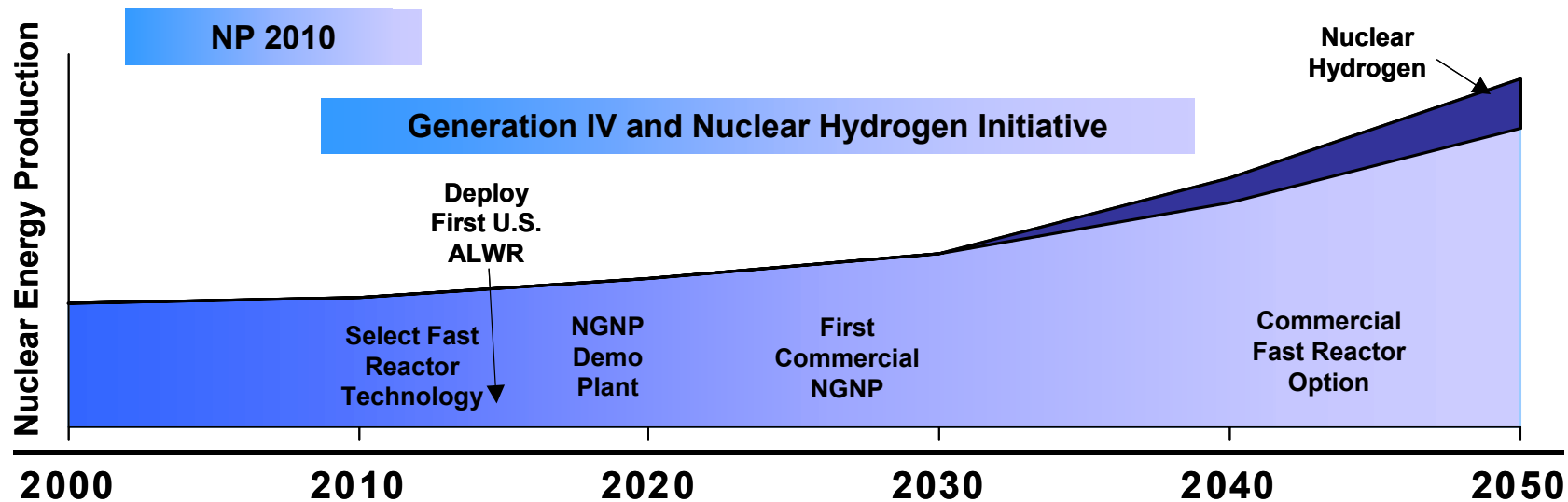


From: CEA, France



33

Long-term U.S. Strategy for Nuclear Energy



Sitzungsthemen des Seminars

- **Sitzung 1: Partitioning und Transmutation**
Sitzungsleiter: Prof. R. Odoj, FZJ
- **Sitzung 2: Sicherheitsforschung zur Endlagerung**
Sitzungsleiter: Prof. Th. Fanghänel, FZK
- **Session 3: Reaktorsicherheit**
Sitzungsleiter: Prof. G. Lohnert, Uni Stuttgart
- **Session 4: Innovative Systeme/Generation IV**
Sitzungsleiter: Prof. T. Schulenberg, FZK
- **Besichtigungen am FZK: KALLA, INE, VEK**
- **Session 5: Energie Baden-Württemberg AG**
Sitzungsleiter: Dr. J.U. Knebel, FZK
- **Besichtigung KKP**

Teilnehmer des Seminars

- 28 Vortragende von
FZJ (5), FZK (8), RWE Power (3), RWTH Aachen (2), Uni
Münster (1), Uni Stuttgart (9)
- 12 Zuhörer von
EnBW (2), FZK (2), ITU (5) und Uni Karlsruhe (3)



EnBW Seminarpreis für den besten Vortrag

Auswahlkriterien:

- 1. Sind Titel, Einleitung und Inhalt konsistent?
- 2. Ist der rote Faden in der Gliederung der Folien erkennbar?
- 3. Wurde der eigene Beitrag klar herausgestellt?
- 4. Wie ist die Qualität der Präsentation (Ausdrucksweise, Verständlichkeit)?
- 5. Wie ist der Aufbau der Folien (Lesbarkeit, Darstellung, Qualität der Grafiken)?
- 6. Wie ist das Auftreten des Redners (Körpersprache, Ausstrahlung)?
- 7. Wie hat sich der Redner bei der Beantwortung der Fragen und in der Diskussion verhalten?
- 8. Wie konnte der Redner die vorgegebene Zeit einhalten?

Auswahlgremium:

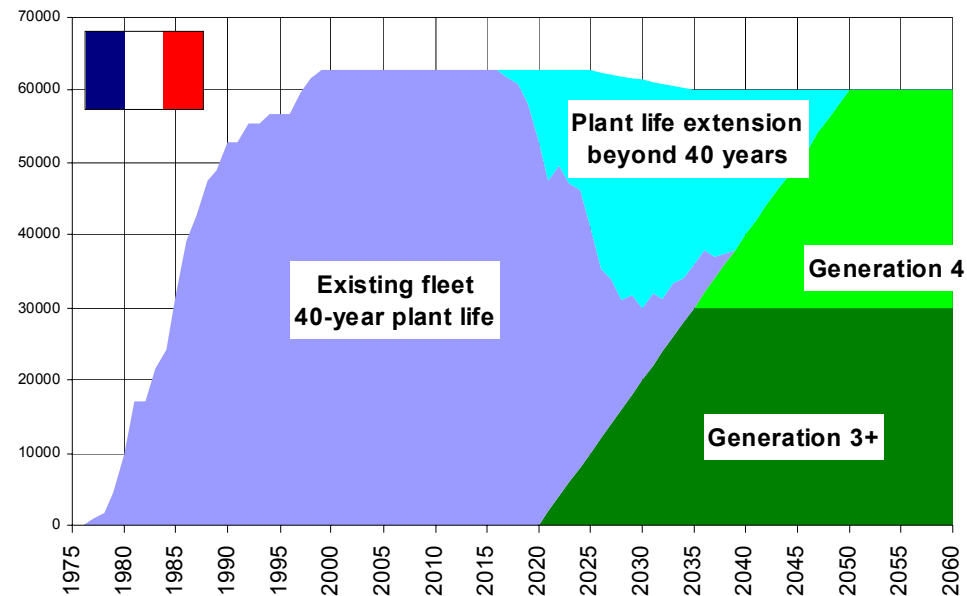
- H. Brücher FZJ, G. Lohner Uni Stuttgart, V. Sanchez-Espinoza FZK, J.U. Knebel FZK

Kerntechnik in Europa

- Neue Reaktorentwicklungen und Entsorgung sind eng miteinander verbunden.
- Gen III (EPR) und Gen IV sind wegweisend.

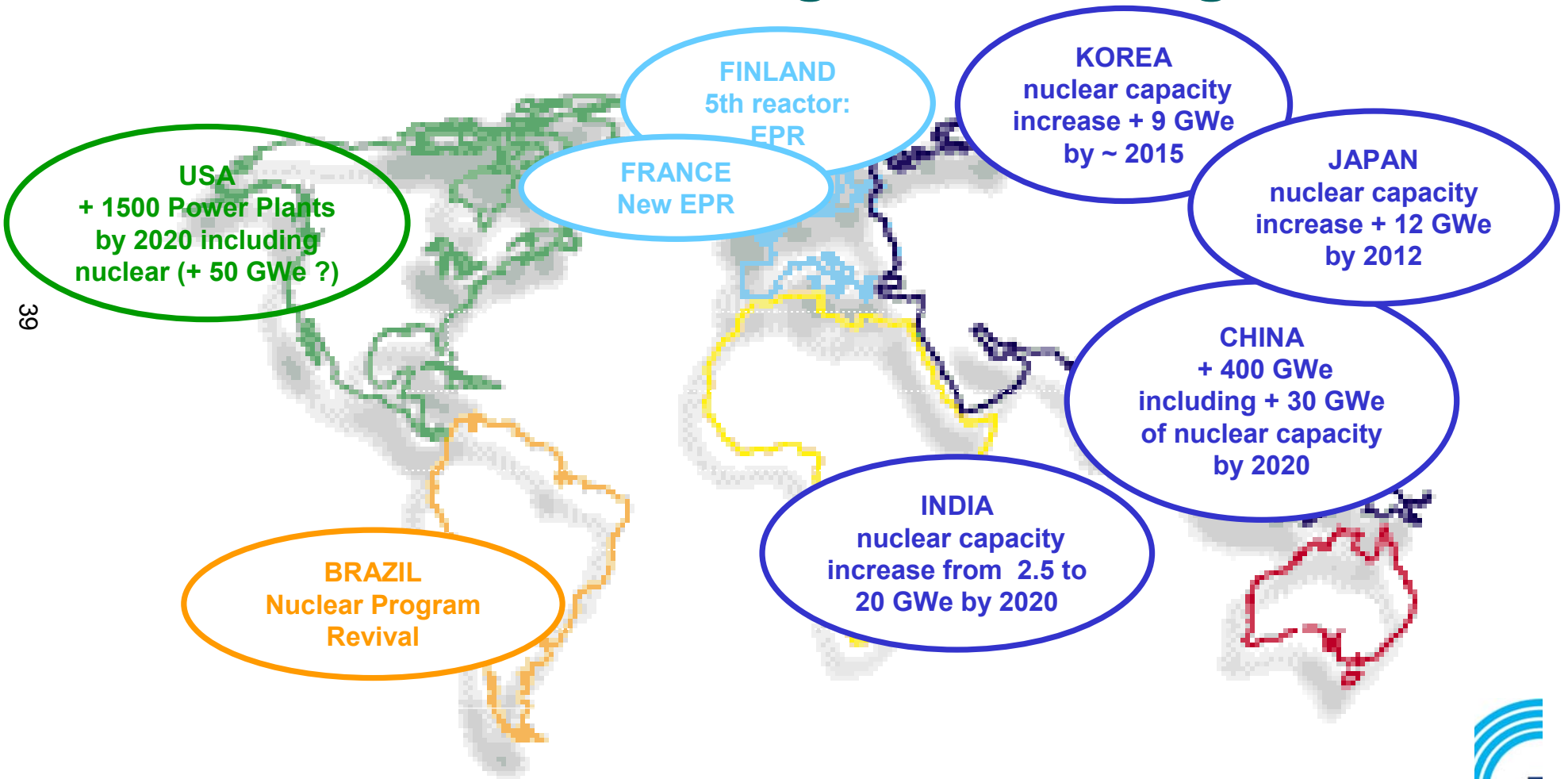


From: EPR Olkiluoto 3, Press release
TVO Finland, Oct. 10 2003



From: CEA

Zukunftstechnologie Kernenergie !



39

Forschungszentrum Karlsruhe
in der Helmholtz-Gemeinschaft

Vielen Dank

Joachim U. Knebel
Forschungszentrum Karlsruhe
Programm Nukleare Sicherheitsforschung

<http://www.fzk.de/nuklear>
[mailto: joachim.knebel@nuklear.fzk.de](mailto:joachim.knebel@nuklear.fzk.de)



PROCESS DEVELOPMENT FOR THE SEPARATION OF ACTINIDES FROM HIGH ACTIVE RAFFINATES

H. Asp

Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik,
Forschungszentrum Jülich GmbH, D-52425 Jülich, Germany
Tel: +49.2461.613965 / Fax: +49.2461-612450
E-Mail: h.asp@fz-juelich.de

In order to reduce the storage time for spent nuclear fuel, it is necessary to remove the minor actinides (MA) Np, Am, Cm from the waste since these are responsible for the greater part of the long-term radio-toxicity. In the existing Purex process, Pu and U are removed, leaving the MA's together with the fission products. In a following process trivalent actinides could be separated using the diglycolamide TODGA in a modified DIAMEX process.

The extracting properties of TODGA have been examined with different modifiers on order to control the separation properties using a simulated Purex waste stream and radiotracers. Furthermore, the extraction of HNO₃ and the formation of a second organic phase have been studied.

The main objectives of the PhD are on the one hand fundamental research, to improve the knowledge of the chemistry of actinides and the extraction agent TODGA, and on the other hand process development involving testing of extraction devices with cold and spiked waste solutions

PROCESS DEVELOPMENT STUDIES FOR THE SEPARATION OF ACTINIDES FROM HIGH ACTIVE RAFFINATES

H. Asp, G. Modolo, R. Odoj

Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik,
Forschungszentrum Jülich GmbH, D-52425 Jülich, Germany
Tel: +49-2461-613965 / Fax: +49.2461-612450
E-mail: h.asp@fz-juelich.de

The use of uranium based fuels for production of nuclear energy leads to the production of plutonium (Pu) and minor actinides (MA) together with numerous fission products. To be able to reduce the storage time for used nuclear fuel, it is in a first step necessary to remove the minor actinides Np, Am, Cm from the waste. The MA's are responsible for the high radiotoxicity over long periods ($>10^4$ years) and dominates the radiotoxicity in spent nuclear fuel for the greater part of the storage time needed. The current concept is the transmutation of the MA to less radiotoxic nuclides or to separate them for separate storage and thereby reduce the volume of the waste.

The present state of the art in reprocessing allows the separation of U and Pu from spent fuels with efficiencies of 99.88 %. Apart from minor amounts of U and Pu, the fission products remain in the liquid High Active Raffinates (HAR) as does 100 % of the Np, Am and Cm. Presently, the separation of the minor actinides is not performed in the commercial reprocessing facilities and the elements are incorporated in the vitrified high-level waste, together with the fission products. This is not only due to the fact that up to now there has been very little incentive to separate these elements, but also due to the impossibility of separating the trivalent actinides (Am, Cm) in the Purex process. The recovery of neptunium (stable oxidation state is V, inextractable in TBP), in contrast, can be achieved effectively using a modified Purex process: by adjusting the oxidation state to VI, Np is extracted with U and Pu and can be separated from the heavy metal stream. A lot of research is performed to find efficient methods to separate the trivalent actinides from the Purex waste stream and several processes have been developed in recent years. The best known processes include the DIAMEX process developed in France, DIDPA in Japan, TRPO in China, and TRUEx in USA.

The scheme developed in Europe [1, 2], shown in Figure 1, is a combination of the DIAMEX and SANEX processes. In this scheme Am and Cm [An(III)] are co-separated with lanthanides [Ln(III)] in the DIAMEX process and the subsequent separation of Am and Cm from lanthanides is carried out in the SANEX process. The product fraction (containing Am and Cm) can be subjected to a subsequent Am/Cm separation process to provide the possibility for a specific recycling and transmutation of Am and possibly a specific conditioning of Cm.

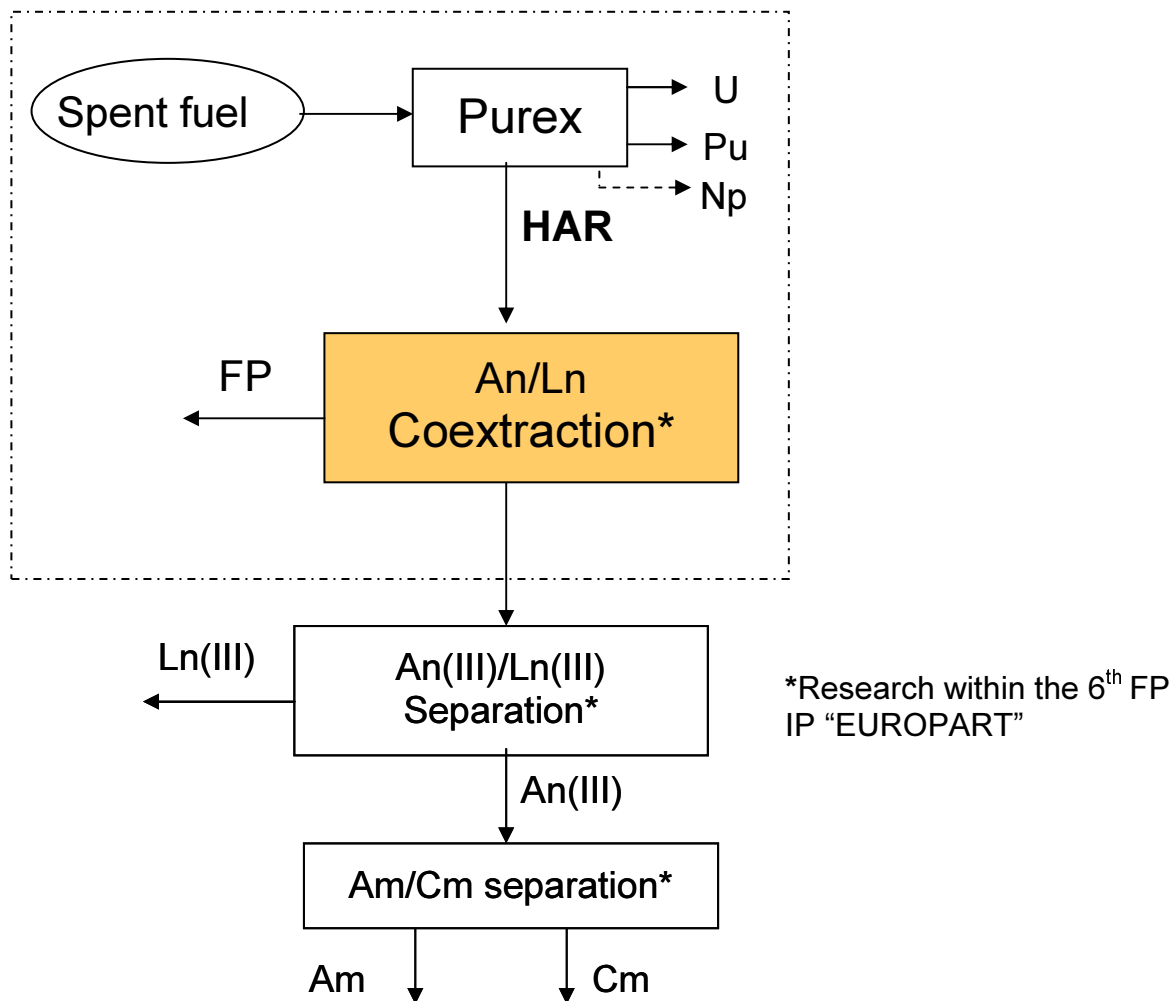


Figure 1 Advanced reprocessing of spent fuel including MA recovery from HAR

Within the DIAMEX process, malondiamides are used as extractants. Beside their good extractability of trivalent actinides from HAR, the diamide derivatives are completely incinerable and produce no further radioactive waste.

Recently, new diamide-like ligands with an ether bridge between the two carbonyl groups were proposed by Japanese scientists from JAERI [3]. The diglycolamides presented were characterized by their excellent extraction properties for An(III) /lanthanide(III) coextraction. At Forschungszentrum Jülich N,N,N',N'-tetraoctyl-3-oxapentanediamide (TODGA) was synthesized and extraction studies with simulated Purex-HAR solutions were carried out. The batch extraction results show, however, that although An(III)+Ln(III) are preferentially extracted with TODGA in TPH as diluent and the separation factors between these and most fission products are high, the extraction force of TODGA is so strong that many fission products are coextracted between 3.0 and 4.0 mol/L HNO₃.

Within the further course of our process development studies we were able to define a process for partitioning of Am(III) and Cm(III) from the Purex raffinate. There were doubts with respect to possible third-phase formation and a possibly ineffective joint backextraction of the actinides(III) and the lanthanides(III).

The main objectives of the PhD are on the one hand fundamental research, to improve the knowledge of the chemistry of actinides and the extraction agent TODGA, and on the other hand process development involving testing of extraction devices with cold and spiked waste solutions. In Jülich the process parameters were developed now, and in 2005 a simulated test run with the centrifugal extractor device installed in ISR is planned.

References:

- [1] Madic, C.; Testard, F.; Hudson, M.J.; Liljenzin, J.O.; Christiansen, B.; Ferrando, M.; Facchini, A.; Geist, A.; Modolo, G.; Gonzales-Espartero, A.; De Mendoza, J. PARTNEW- New Solvent Extraction Processes for Minor Actinides-Final Report, CEA-report 6066, 2004.
- [2]. P. Baron, X. Heres, M. Lecomte, M. Masson, Separation of the Minor Actinides:the DIAMEX –SANEX Concept, Proceedings of the Global 2001, September 9/13,2001,Paris, France (2001)
- [3] Y. Sasaki, Y. Sugo, S. Suzuki and S. Tachimori, Solvent Extr. Ion Exch., **19**, No. 1, 91-103 (2001).

FABRICATION OF CERAMICS TARGETS CONTAINING ACTINIDES FOR TRANSMUTATION

D. Barrier

Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik,
Forschungszentrum Jülich GmbH, D-52425 Jülich, Germany
Tel: +49.2461.612752 / Fax: +49.2461-612450
E-mail: d.barrier@fz-juelich.de

(Zr,Y,Ce)O_{2-x} and (Th,Ce)O₂ powders and pellets, with different ceria contents, used as substitute for tetravalent actinide oxides, were prepared by using mild treatments like co-precipitation, low calcination temperature grinding by attrition followed with a fractionation or pressing by repressing.

The influence of ceria concentration on the powders' properties, such as the thermal behaviour and the evolution of material crystallisation during annealing, was investigated in detail. Moreover, the sinterability of powder was studied as a function of ceria concentration. The physico-mechanical properties of the fabricated pellets, such as densities, microstructure were investigated.

FABRICATION OF CERAMICS TARGETS CONTAINING ACTINIDES FOR TRANSMUTATION

D. Barrier

Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik,
Forschungszentrum Jülich GmbH, D-52425 Jülich, Germany
Tel: +49.2461.612752 / Fax: +49.2461-612450
E-mail: d.barrier@fz-juelich.de

In using nuclear energy in the uranium fuel cycle, plutonium (Pu) and so-called minor actinides (MAs) such as neptunium (Np), americium (Am) and curium (Cm) are produced in addition to the fission products. The strategies currently pursued involve the partitioning of uranium and plutonium by the reprocessing of spent fuel elements for use as Pu/U-mixed oxide fuel (MOX) or the direct final disposal of the spent fuel elements after interim storage. In contrast to the predominantly short-lived fission products (< 300 years), the long-lived MAs as well as Pu dominate the toxicity potential of the waste over long periods (> 10⁴ years). The selective partitioning of MAs from the fission products and separate treatment can considerably improve long-term safety. At present, strategies are being discussed world-wide to “burn” the MAs as well as Pu in special reactors, i.e. using thorium based fuels, or accelerator-driven subcritical systems and thus transmute them into short-lived fission products [1].

Many different types of fuels or targets for transmutation of actinides have been suggested in the recent years, mainly depending on fuel cycle strategy considerations. One of the most interesting is the use of dedicated fuels/targets, which have a high content of MAs and are free of uranium. In this case, the production of actinides is limited ; a non-fissile (inert) matrix may so be advantageous as support or diluent of the actinides phase.

Due to its similar crystal structure than actinide oxides, its high solubility of PuO₂ and AmO₂ [2] Yttrium-stabilized Zirconia is discussed in the international nuclear community as candidate for the fixation of long-lived actinides as target material for transmutation, as well as a stable material for the long-term final disposal.

A ThO₂ based ceramic also seems to be promising from the waste minimisation point of view. In fact by using thoria as support for burning of plutonium in PWR, the actinides production is very low and so the consumption rates of plutonium are very high [3-4].

In this context, simulated fuel pellets have been produced and characterized. The possibility of fabrication of zirconia and thoria based fuel for transmutation was investigated and the impact of a large addition of actinides (simulated by Ce) in the properties of matrices was evaluated.

Nitrate solutions, issued from reprocessing and containing the elements composing the final product are converted into powder, that can be used for compaction into pellets, by using a co-precipitation method with ammonia.

Several oxide materials composed from Zr, Y and Ce as well as Th and Ce, containing from 0 to 100% Ce, have been synthesized.

The influence of ceria concentration on the powders' properties, such as the thermal behaviour and the evolution of material crystallisation during annealing, was investigated in detail by Thermogravimetry (TG) coupled with Differential Scanning Calorimetry (DSC) and X-ray Line Diffraction (XRD).

Both systems crystallise at high temperature in a stable solid solution, FCC, fluorite type structure and follow the Vegard's law for the complete range of Ceria. For both systems a critical concentration of 20 mol% has been established. For ceria concentration lower than 20 %, the properties of the system are mainly controlled by the matrix.

Pellets with different ceria concentrations were compacted from these powders by using different technological cycles. In order to obtain materials with reliable properties, the technological parameters, of each steps for each chosen fabrication route, have been optimised.

By employing mild wet methods (calcination at 600°C, wet-grinding in acetone and fractionation in acetone), (Zr,Y,Ce)O_{2-x} pellets with densities up to 0.97 TD can be obtained. In the case of (Th,Ce)O₂ system, a pressing by repressing from non-milled powder was selected as fabrication route, allowing the fabrication of pellets with densities up to 0.98 TD. In both cases, materials with homogeneous repartition of pores, well formed grains and boundaries were obtained.

References

References

- 1- Konings, R. J. M. Et al., Advanced fuel cycles for accelerator-driven systems: fuel fabrication and reprocessing, EU report 19928, 2001
- 2- Gong, W. L., Lutze, W. and Ewing, R. C., Zirconia ceramics for excess weapons plutonium waste. J. Nucl. Mater., 2000, 227, 239-249
- 3- Schram, R. P. C., Kuijper, J. C., Sommer, D., Somers, J., Phlippen, P., Bodewig, T., Worrall, A., Struzik, C., Raison, PH., Proc. of the International Workshop on P&T and ADS Development 2003 (October 6-8 2003) Mol, Belgium
- 4- Lombardi, C., Luzzi, L., Padovani, E., Vettraino, F., Progress in Nuclear Energy, Vol. 38, No 3-4, (2001) 395-398

Extension of a Time-Dependent Neutron Transport Model for Analyses of Fast Transients in an ADS

*C. Rabiti**, *G. Lohnert***
and
*W. Maschek**, *A. Rineiski**
* *Forschungszentrum Karlsruhe*
D-76021 Karlsruhe, Germany
***Universität Stuttgart*
D-70569 Stuttgart, Germany
e-mail: rabiti@iket.fzk.de

Introduction

Innovative nuclear waste burning concepts, such as Accelerator Driven Systems (ADSs), are under investigation and development worldwide and also at Forschungszentrum Karlsruhe. To prove safety of an ADS and to simulate experiments related to ADS studies, transient analyses are carried out. Recently, experimental studies and corresponding transient simulations with the VARIANT/KIN3D code were performed in order to study an ADS response (detector rates at different positions) to a short source pulse. The obtained numerical results are reasonable, however they deviate slightly from the experimental. The deviations may occur due to different reasons, in particular due to certain approximations implemented originally in the KIN3D model. We have recently extended the model aiming at improving the accuracy and reliability of the code. In the paper we present a new KIN3D time discretization scheme for PN and SPN neutron flux angular discretization models (PN stands for the classical spherical harmonics method, SPN stands for the simplified spherical harmonics method that is faster, but in general less accurate than PN, at lowest order they coincide).

Extension of a Time-Dependent Neutron Transport Model for Analyses of Fast Transients in an ADS

C. Rabiti*, G. Lohnert**
and

W. Maschek*, A. Rineiski*

* Forschungszentrum Karlsruhe
D-76021 Karlsruhe, Germany

**Universität Stuttgart
D-70569 Stuttgart, Germany
e-mail: rabiti@iket.fzk.de

Introduction

Innovative nuclear waste burning concepts, such as Accelerator Driven Systems (ADSs), are under investigation and development worldwide and also at Forschungszentrum Karlsruhe. To prove safety of an ADS and to simulate experiments related to ADS studies, transient analyses are carried out. These analyses require use of codes based on advanced neutron transport models. In particular, the Variational Nodal Method (VNM), implemented in the VARIANT code [1, 2], shows a great potential for 3-D transport calculations. Initially, VARIANT was developed for solving the steady-state neutron transport equation. Later a neutron kinetics model, KIN3D [3], was coupled with VARIANT for dealing with time-dependent problems. Recently, experimental studies and corresponding transient simulations with VARIANT/KIN3D [4, 8] were performed in order to study an ADS response (detector rates at different positions) to a short source pulse. The obtained numerical results are reasonable, however they deviate slightly from the experimental data as shown [8] in Fig 1. The deviations may occur due to different reasons, in particular due to certain approximations implemented originally in KIN3D. We have recently extended KIN3D aiming at improving the accuracy and reliability of the code [5, 6]. In the paper we present a new KIN3D time discretization scheme for PN and SPN neutron flux angular discretization models (PN stands for the classical spherical harmonics method, SPN stands for the simplified spherical harmonics method that is faster, but in general less accurate than PN, at lowest order they coincide).

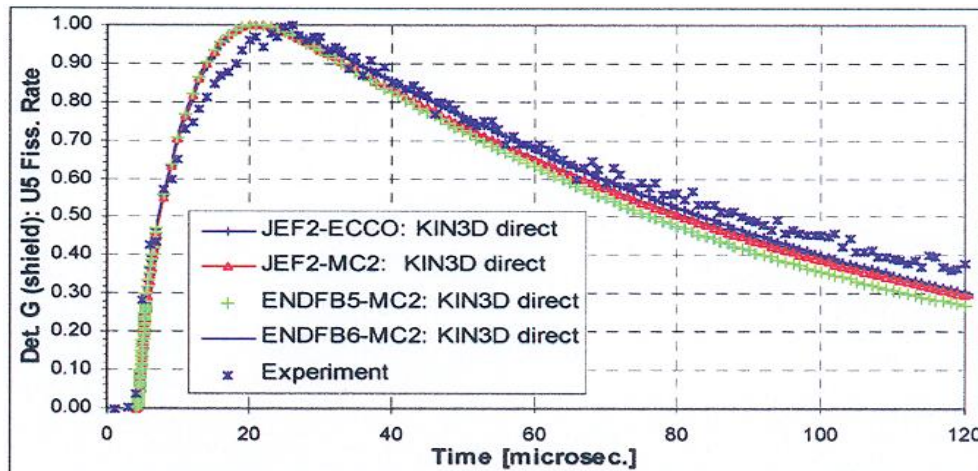


Fig. 1: Comparison experimental data and old version KIN3D results (from [8])

The second-order form of the time-dependent neutron transport equation

By employing the second-order form of the transport equation the number of unknowns in the discretized (with respect to angle) problem can be reduced with respect to the first order form (roughly by half in case of using PN/SPN methods as the odd-parity flux moments are excluded from the unknowns). This reduction of unknowns is obtained by a partially analytic inversion of the transport operator. In the time-dependent case this partial inversion becomes slightly more complex. To illustrate our approach, we should recall the standard form of the neutron transport equation (delayed neutrons are neglected in order to simplify the equation).

$$\frac{\partial}{\partial t} j(t, \mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, E) + \mathbf{\Omega} \cdot \mathbf{\nabla} j(t, \mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, E) + L[j](t, \mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, E) = F[j](t, \mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, E) + S(t, \mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, E). \quad (1)$$

Here:

- $j(t, \mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, E)$: neutron angular flux,
- $L[j](\mathbf{r}, \mathbf{\Omega})$: self scattering and absorption operator,
- $F[j](t, \mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, E)$: prompt fission operator (assumed isotropic),
- $S(t, \mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, E)$: external angular source.

By introduction of the even- and odd-parity fluxes:

$$\begin{cases} y(t, \mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, E) = \frac{1}{2}(j(t, \mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, E) + j(t, \mathbf{r}, -\mathbf{\Omega}, E)), & \text{even flux} \\ c(t, \mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, E) = \frac{1}{2}(j(t, \mathbf{r}, \mathbf{\Omega}, E) - j(t, \mathbf{r}, -\mathbf{\Omega}, E)), & \text{odd flux} \end{cases} \quad (2)$$

and, with similar definition, of odd- and even-parity components of the source and L operator Eq. (1) could be recast in the following system:

$$\begin{cases} \frac{1}{v} \partial_t y(t) + \mathbf{\Omega} \cdot \mathbf{\nabla} c(t) + L^+[y](t) = F[y](t) + S^+(t), \\ \frac{1}{v} \partial_t c(t) + \mathbf{\Omega} \cdot \mathbf{\nabla} y(t) + L^-[c](t) = S^-(t). \end{cases} \quad (3)$$

By eliminating the odd-parity flux one gets the second-order time-dependent equation:

$$\begin{aligned} & \frac{1}{v^2} (L^-)^{-1} [\partial_t^2 y](t) + \frac{1}{v} (L^-)^{-1} [\partial_t (L^+[y](t))] + \frac{1}{v} \partial_t y(t) + L^+[y](t) \\ & - \mathbf{\Omega} \cdot \mathbf{\nabla} \left((L^-)^{-1} [\mathbf{\Omega} \cdot \mathbf{\nabla} y](t) \right) = F[y](t) + \frac{1}{v} (L^-)^{-1} [\partial_t (F[y](t))] + S^+(t) + \\ & \frac{1}{v} (L^-)^{-1} [\partial_t S^+](t) - \mathbf{\Omega} \cdot \mathbf{\nabla} \left((L^-)^{-1} [S^-](t) \right). \end{aligned} \quad (4)$$

At steady-state conditions it reduces to a more simply form:

$$L^+[y] - \mathbf{\Omega} \cdot \mathbf{\nabla} \left((L^-)^{-1} [\mathbf{\Omega} \cdot \mathbf{\nabla} y] \right) = F[y] + S^+ - \mathbf{\Omega} \cdot \mathbf{\nabla} \left((L^-)^{-1} [S^-] \right), \quad (5)$$

To simplify the solution algorithm of the time-dependent problem, the time derivative of the odd-parity flux was assumed to be negligible in the original version of KIN3D, thus leading to the following equation:

$$\frac{1}{v} \partial_t y(t) + L^+[y](t) - \mathbf{\Omega} \cdot \mathbf{\nabla} \left((L^-)^{-1} [\mathbf{\Omega} \cdot \mathbf{\nabla} y](t) \right) = F[y](t) + S^+(t) - \mathbf{\Omega} \cdot \mathbf{\nabla} \left((L^-)^{-1} [S^-](t) \right). \quad (6)$$

A new time discretization option, free of the mentioned assumption, was introduced in KIN3D recently and can be used for PN and SPN angular discretization schemes in 2D and 3D hexagonal and rectangular geometries.

Results

For the lowest angular expansion order (i.e. P1), Eq. (4) is reduced to a telegrapher's like equation, while Eq. (6) is reduced to the well-known time-dependent diffusion equation. An analytic solution of telegrapher's like equation for a Dirac's delta-function-like variation (in space and time) of the source in 1D slab geometry is provided in [7]. By employing this solution as Green's function and using a numerical convolution, one may get a pseudo-analytic solution for an arbitrary source variation in order to validate the new time-discretization scheme in the P1 case. In Fig. 2 one may compare results (flux shapes at $t=5$ ns and at $t=10$ ns after a source pulse, the source being located at position 0) of application of the original (diffusion) and the new (P1) options (using different time steps) with reference (pseudo-analytic) ones. As could be expected, the diffusion model is quite inaccurate in this case, while the new discretization scheme gives close to reference results if the time step (dt) is small enough.

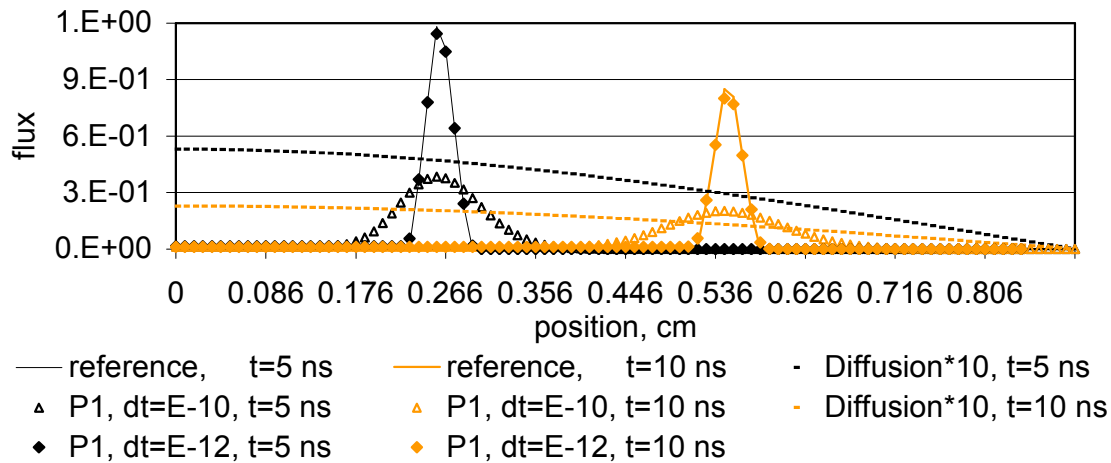


Fig. 2: Comparison of the pseudo-analytic (reference) and numeric (P1/Diffusion) solutions.

In the following, we consider a more close to the code application area case: detector (U-235 fission rate at certain locations) response to a source pulse in a 2D model related to the MUSE experiment (see Fig. 3). We compare the performance of the original and new time discretization options while employing different angular expansions: P1, P3, and SP3. The new P3 scheme is assumed to be the reference in this case. Fig. 4 shows the source behavior and the reference curves for the three detectors fission rate. In Fig. 5, we plotted the relative errors (with respect to the reference) for the 2nd detector (for other detectors the errors are of similar magnitude). In Fig. 5, the errors at steady-state are excluded, but they are shown in Table 1. In Table 1 the ratios of computer times are also given as well as different k -eff values obtained for P1, P3 and SP3 cases (they were used to adjust the cross-sections to make the transient computations compatible with the reference case). One may see that P1 results (for both new and old time discretization schemes) deviate from the reference up to 5%. The P3 and SP3 models with the old time discretization scheme show a very similar behavior with an error that is not negligible (more than 1%). The

best performances (taking into account the computer time and the accuracy of results) is demonstrated by the new scheme with the SP3 model.

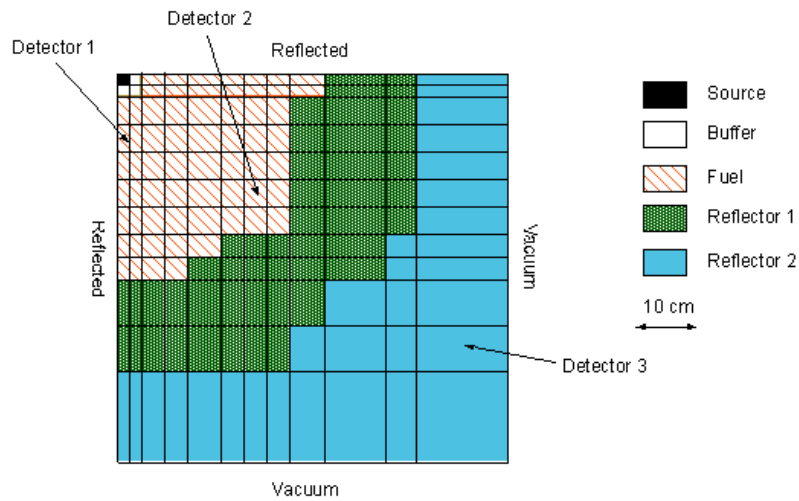


Fig. 3: Geometry, source and detector position.

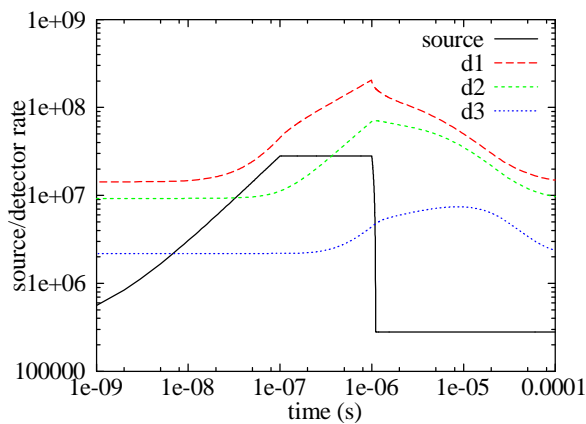


Fig. 4: Source time behavior and reference detector rate

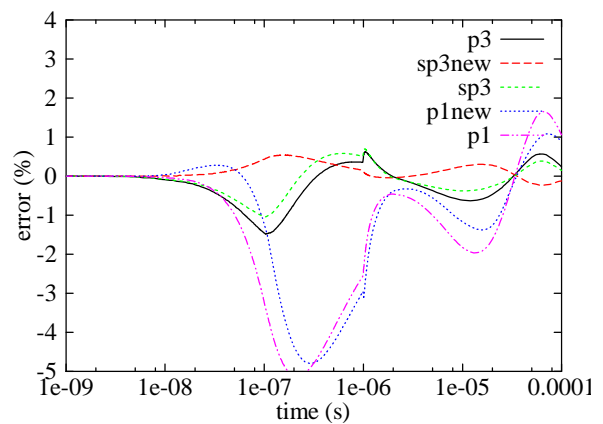


Fig. 5: Relative error for detector 2

Angular-time option	Computer time ratio (P3new is reference)	K-eff	Detector rate error at t=0 (%)		
			Detector 1	Detector 2	Detector 3
P1	0.42	0.95345	-1.8	-2.5	13.0
P1new	0.40				
SP3	0.47	0.96046	-0.20	0.06	-0.22
SP3new	0.46				
P3	1.07	0.96011	0	0	0

Table 1: Performances of different angular and time discretization schemes

Conclusion

A new time discretization scheme has been developed, implemented in the VARIANT/KIN3D code, and validated against analytic results. The new scheme increases the precision of VARIANT/KIN3D simulations for modeling fast source-induced transients in an ADS without affecting the computation time. Further performance improvements are expected as a result of employment of an adaptive time step control technique that has been implemented in KIN3D recently.

References

1. G. PALMIOTTI, C. B. CARRICO, E. E. LEWIS, "Variational Nodal Formulation for the Spherical Harmonics Equations", *Nucl. Sci. Eng.*, **122**, pp. 194-203 (1996).
2. E.E. LEWIS, G. PALMIOTTI, "Simplified Spherical Harmonics in the Variational Nodal Method", *Nucl. Sci. Eng.*, **126**, pp. 48-58 (1997).
3. A. RINEISKI, J. Y. DORIATH, "Time Dependent Neutron Transport with Variational Nodal Method", *Proc. Joint Int. Conf. on Math. Methods and Supercomputing for Nuclear Application*, Saratoga Springs, New York, p. 1661 (1997).
4. G. ALIBERTI, G. RIMPAULT, R. JACQMIN, J.F. LEBRAT, P.J. FINCK, G. IMEL, A. RINEISKI, P. RAVETTO, J.C. SENS, "Dynamic Measurements and Control of an Accelerator Driven System (ADS)", *PHYSOR 2002*, Seoul, Korea (2002).
5. C. RABITI, A. RINEISKI, "Modeling of Fast Transient Driven by External Neutron Source Variation", *Jahrestagung Kerntechnik*, Düsseldorf, 2004.
6. C. RABITI, A. RINEISKI, "Extension of KIN3D, a Kinetics Capability of VARIANT, for Modeling Fast Transient in Accelerator Driven Systems", *PHYSOR-2004*, Chicago, 2004.
7. H. KRAINER, N. PUCKER, "Propagation of Neutron Pulses According to the Time Dependent P1-Approximation", *Atomkernenergie (ATKE)*, **14-4**, pp. 11-16, (1969).
8. G. ALIBERTI, G. IMEL, G. PALMIOTTI "MUSE-4 Experiment Measurements and Analysis", ANL-AFCI-092, Chicago, September 2003

Improved model for calculation of the heat transport in turbulent convection with different fluids.

L. Chandra & G. Grötzbach

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Institut für Kern- und Energietechnik
Postfach 3640, 76021, Karlsruhe, Germany.

Email: Laltu.Chandra@iket.fzk.de, Tel: 0049 (0) 7247 82 3585.

Abstract

The buoyancy effect due to thermal stratification plays an important role for developing better safety features for new reactor concepts. In such applications water or liquid metal is used as coolant. In general, the Reynolds Averaged Navier Stokes (RANS) modeling approach is employed for the numerical investigation of such turbulent fluid flow types. We already know that the standard RANS models (e.g. $k-\varepsilon$ which is a 2-equation model) which are available in the commercial codes are inadequate for these fluid flow types.

In this work, the two different buoyant fluid flow types, namely, Rayleigh Bénard convection and internally heated fluid layers will be discussed based on Direct Numerical Simulation (DNS) data at different Rayleigh (Ra) and Prandtl (Pr) numbers. The considered fluid flow types involve different kinds of fluid, e.g. Water (Pr = 7.0) and Air (Pr = 0.71).

The standard RANS models (e.g. 1, 2, 3 or 4- equation models) use the transport equation of the turbulent kinetic energy ($\overline{E'} \equiv k$). This transport equation contains the turbulent diffusion as one of the closure terms. This is usually modeled with the help of a gradient-diffusion approximation. Based on investigations in meteorology, one of the possibilities of improving this model for this closure term is presented. This so-called improved model includes the effect of buoyancy which is necessary for the numerical investigation of the above fluid flow types. Finally, these flow types are used as a vehicle for the verification of this model.

Improved model for calculation of the heat transport in turbulent convection with different fluids

L. Chandra & G. Grötzbach

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Institut für Kern- und Energietechnik
Postfach 3640, 76021, Karlsruhe, Germany.

Email: Laltu.Chandra@iket.fzk.de, Tel: 0049 (0)7247 82 3585.

1. Introduction

Buoyancy phenomena including stable and unstable thermal stratification play an important role in the cooling of nuclear reactors applying passive systems or in some accelerator driven reactors. In evaluating several European benchmark exercises and comparisons between Reynolds Averaged Navier-Stokes models (RANS) with Direct Numerical Simulation (DNS) data it was shown that the current models in our CFD codes lead to serious uncertainties in buoyancy driven flows [4]. These standard RANS models use the transport equation of turbulent kinetic energy $\overline{E'}$. Here we use $\overline{E'}$ instead of k . According to [8] the buoyancy effect is important in the turbulent diffusion of $\overline{E'}$ and according to [13] the gradient diffusion model for this closure term needs improvement for a certain buoyant flow type. The turbulent diffusion of $\overline{E'}$ consists of velocity-fluctuation triple correlation $\overline{u'_j E'}$ and velocity-pressure fluctuation correlation $\overline{u'_j p'}$ which are the closure terms. In the classical gradient diffusion model both terms are modeled together. On the contrary, DNS data of Rayleigh Bénard convection (RBC) and internally heated fluid layers (IHL) at different Rayleigh (Ra) and Prandtl (Pr) numbers show [14] that the importance of each of the terms and their behavior is strongly dependent on the flow type.

The objective of this work is to study a possibility for improving the gradient diffusion model for the turbulent diffusion of $\overline{E'}$ which overcomes some of its shortcomings in buoyant flows. The basic idea is to model each of the closure terms in the turbulent diffusion of $\overline{E'}$ separately. Based on this idea, an improved RANS model for the turbulent diffusion of $\overline{E'}$ is presented. This model is analyzed and verified using DNS data.

2. Modeling needs deduced from DNS data

In this section some DNS data for two different fluid flow types, namely RBC and IHL are presented. In RBC a fluid layer which is confined between two infinite horizontal plates is heated uniformly from below and cooled from above. In IHL the plates are at a lower temperature than the fluid confined in-between which is having a uniform volumetric energy source. The DNS of RBC and IHL is performed with the 3-dimensional time-dependent TURBIT code [3, 12] which is based on the finite volume method. Here $x_{1,2}$ indicates the horizontal and x_3 is the vertical co-ordinate.

Table 1: Case specifications (Database in: <http://www.fzk.de/irs/turbit/>)

Flow Type	External / Internal Rayleigh number (Ra)	Prandtl number(Pr)	Source of DNS data	Domain Size $X_{1,2}/X_3$	Grid $N_1 * N_2 * N_3$
RBC	6.3×10^5	0.71 (Air)	[12]	7.2	200*200*49
IHL	5×10^6	7 (Water)	[13]	5	100*100*35

The Spatial resolution requirements [2] have been fulfilled in the performed DNS for RBC

and IHL. Table 1 shows the different case specifications which are used in the present work and their verifications are given in the references. Figure 1 shows that RBC is unstably stratified (negative temperature gradient) over the complete height of the channel whereas the IHL is stably stratified (positive temperature gradient) in most of the regions with an unstably stratified upper thermal boundary layer. This thin layer is driving the vertical heat and momentum exchange.

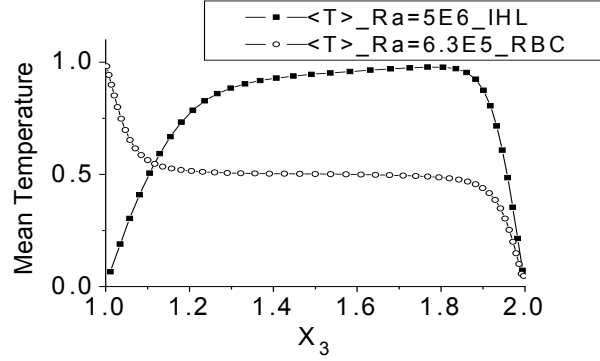


Figure1: Vertical profiles of time mean temperature $\langle T \rangle$.

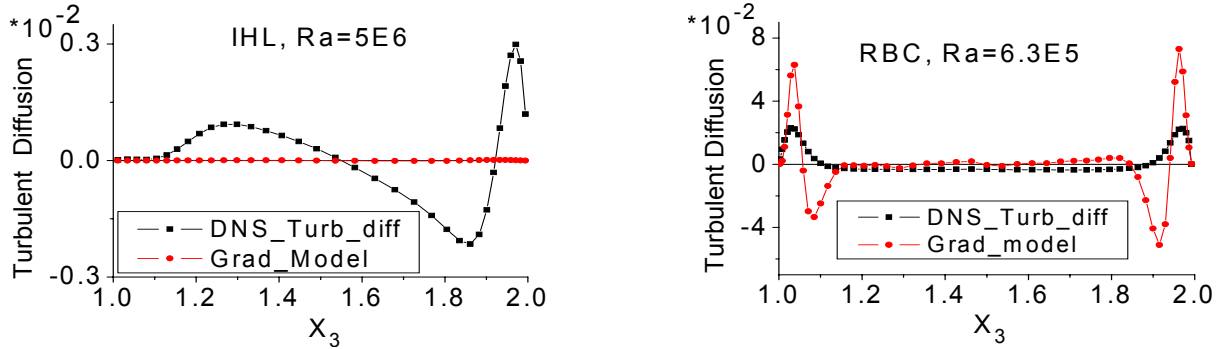


Figure 2: Vertical profiles of DNS data of the turbulent diffusion of $\overline{E'}$ and of model results.

The analysis of DNS data in figure 2 shows that the classical gradient diffusion model (eqn. (2)) for the turbulent diffusion of $\overline{E'}$ does not agree qualitatively as well as quantitatively in both the fluid flow types at different Ra and Pr. Moreover, it even fails to reproduce roughly the required distribution. Hence we observe that improvement of this model is inevitable.

3. RANS modeling

Both considered fluid flow types are described mathematically by the RANS equations which include an averaged energy equation for the mean temperature field. Here, the classical time average is used for separating the physical variables (e.g. y) into their mean (\overline{y}) and fluctuating parts (y'). In these equations appear the unknown Reynolds stresses $\overline{u'_i u'_j}$ and the turbulent heat fluxes $\overline{u'_i T'}$. These are calculated by means of first order models using the isotropic eddy viscosity/eddy conductivity. Generally, the Reynolds stresses are calculated as follows,

$$\overline{u'_i u'_j} = \frac{2}{3} \overline{E'} \delta_{ij} - \nu_t \left(\frac{\partial \overline{u}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \overline{u}_j}{\partial x_i} \right), \text{ with } i, j = 1, 2, 3. \quad (1)$$

In eqn. (1), $\nu_t = c_\mu \overline{E'}^2 / \varepsilon$ is the isotropic eddy viscosity with $c_\mu = 0.09$. In this $\overline{E'} - \varepsilon$ model it is calculated using the transport equations of $\overline{E'}$ and ε (turbulent dissipation of $\overline{E'}$) [5]. The turbulent diffusion, $-\frac{\partial}{\partial x_j} (\overline{u'_j E'} + \overline{u'_j \rho'})$ in the transport equation of $\overline{E'}$, is generally

modeled using the well-known gradient diffusion assumption which is as follows, (see e.g. [5])

$$\overline{u'_j E'} + \overline{u'_j p'} = -\frac{\nu_t}{\sigma_k} \frac{\partial \overline{E'}}{\partial x_j}. \quad (2)$$

Here, p' is the fluctuating part of the pressure and σ_k is the turbulent Prandtl number for $\overline{E'}$, with $\sigma_k = 1.0$. We have already observed that eqn. (2) is not an adequate model for the turbulent diffusion of $\overline{E'}$ (see figure 2).

Hence, in order to overcome this deficiency, the different terms in the turbulent diffusion of $\overline{E'}$ will be modeled separately. For this purpose, $\overline{u'_j p'}$ is represented by simple diffusion as in [1]. In this case we introduce a coefficient C_2 which depends on the turbulent Reynolds number, $Re_t = \overline{E'}^2 / \nu \varepsilon$ with ν as kinematic viscosity,

$$\overline{u'_j p'} \approx -C_2 \frac{\overline{E'}^2}{\varepsilon} \frac{\partial u'_j{}^2}{\partial x_j}. \quad (3)$$

In order to obtain the model for $\overline{u'_j E'}$, we use the transport equation for this term (see e.g. [10]). In this transport equation the assumptions for the pressure strain as in [9], for the fourth-order correlations as in [7] and for the dissipation term as in [6] are applied. Considering the above fluid flows as shear free, the transport equation of $\overline{u'_j E'}$ in the steady state reduces to

$$\overline{u'_j E'} \approx C_1 \frac{\overline{E'}}{\varepsilon} \left(\underbrace{-\overline{u'_j{}^2} \frac{\partial \overline{E'}}{\partial x_j}}_{\text{gradient approximation}} + 2 \underbrace{\frac{Ra}{Re^2 Pr}}_{C_B} \underbrace{\overline{u'_j{}^2 T'} \delta_{j3}}_{\text{buoyancy}} - \underbrace{\frac{\partial \overline{p' u'_j{}^2}}{\partial x_j}}_{\text{Pressure transport}} \right). \quad (4)$$

In both models which are in non-dimensional form, we assume $\overline{u'_i u'_j} \ll \overline{u'_j{}^2} \forall i \neq j$. In eqn. (4) C_1 is a coefficient. In this equation the buoyancy term is modeled according to [1] in which the model coefficient depends on Re_t . This term is important along the vertical direction ($j = 3$). The pressure transport term can be neglected in case of IHL, which is consistent with [14]. Finally, in order to reduce the number of coefficients, we join the above models (eqn. (3) & (4)) and replace some of their coefficients with one coefficient $C_p = C_p / Re_t^\alpha$, with α as a parameter. Using the above, the improved model for the turbulent diffusion of $\overline{E'}$ along the vertical direction is given by,

$$\overline{u'_3 E'} + \overline{u'_3 p'} = -C_1 \frac{\overline{E'}}{\varepsilon} \left(\overline{u'_3{}^2} \frac{\partial \overline{E'}}{\partial x_3} \right) - \left(\frac{C_p}{Re_t^\alpha} \right) \frac{\overline{E'}}{\varepsilon} \left(C_B \frac{\overline{E'}}{\varepsilon} \left\{ 2 \overline{u'_3{}^2} \frac{\partial \overline{u'_3 T'}}{\partial x_3} + \overline{u'_3 T'} \frac{\partial \overline{u'_3{}^2}}{\partial x_3} \right\} + \overline{E'} \frac{\partial \overline{u'_3{}^2}}{\partial x_3} \right). \quad (5)$$

In our case using scales as in [12], $C_B = 1$. The applications of this extended RANS model require an additional transport equation of $\overline{u'_3{}^2}$. In other words, the above model extends the common $\overline{E'} - \varepsilon$ to a $\overline{E'} - \varepsilon - \overline{u'_3{}^2}$ model which is a 3-equation model. For the verification of this RANS model as given in eqn. (5) $C_1 = 0.17$, $C_p = 0.7$ and $\alpha = 0.8$ is used.

4. Verification

Figure 3 shows a significant improvement in predicting the turbulent diffusion of $\overline{E'}$ by using the improved model in comparison to the existing gradient diffusion model in case of

IHL. Moreover, the improved model shows an acceptable agreement with the DNS data of the turbulent diffusion of $\overline{E'}$ in comparison to the gradient diffusion model in case of RBC. This model has also been verified in case of RBC with Mercury (Pr=0.025). Nevertheless, the deviations between the modeled and the DNS data indicate further possibilities to improve even this RANS model.

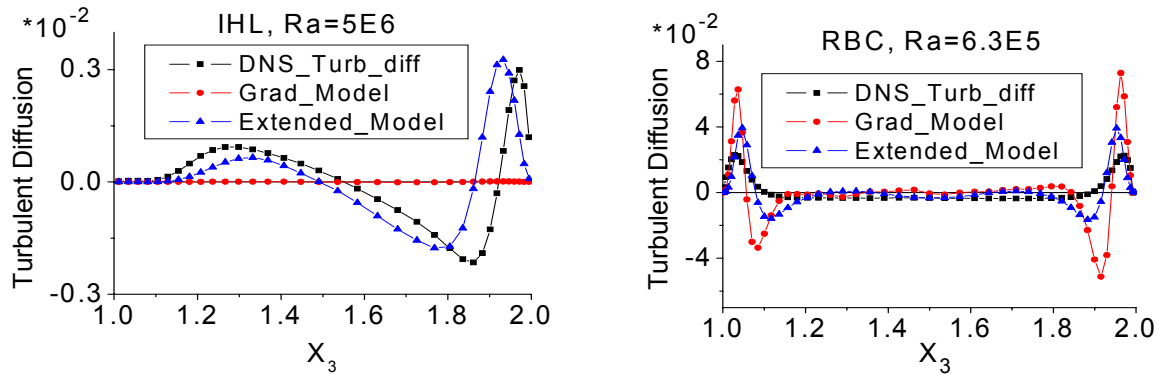


Figure 3: Comparison between the predicted and DNS data of the turbulent diffusion of $\overline{E'}$

5. Conclusions

In the present work we have explained one of the relevant inadequacies of the standard RANS models (e.g. $\overline{E'} - \varepsilon$ model) for investigating buoyancy driven or affected flows. These types of flows are important in some nuclear applications. As a result of a literature survey we have improved the existing gradient diffusion model for the turbulent diffusion of $\overline{E'}$. For this purpose, unlike the classical gradient diffusion approach (eqn. (2)), both the closure terms in the turbulent diffusion of $\overline{E'}$ are modeled separately. This results in a so-called improved model as in eqn. (5). This model shows a possibility of extending $\overline{E'} - \varepsilon$ to a $\overline{E'} - \varepsilon - \overline{u_3'^2}$ model which is a 3-equation model. Finally, this model has been verified using the DNS data of RBC and IHL at different Ra and Pr. It has been found out that in case of RBC with Mercury this model shows an acceptable agreement with the DNS data of the turbulent diffusion of $\overline{E'}$. From these studies we conclude that, this improved model has a better predictive capability in comparison to the existing gradient diffusion model for the turbulent diffusion of $\overline{E'}$. Therefore, using this model in commercial CFD codes allows us to expect more accurate results.

6. References

- [1] Daly J. B. & Harlow F. H. (1970). Phys. of Fluids 13, 2634-2649.
- [2] Grötzbach G. (1983). J. Comp. Physics 49, 241-264.
- [3] Grötzbach G. (1987). Encyclopedia of Fluid Mechanics 6, 1337-1391.
- [4] Grötzbach G., Batta A., Lefhalm C.-H., Otić I. (2004). Proc. NUTHOS-6, Nara.
- [5] Launder B. E. & Spalding D. B. (1972). Lectures in mathematical models of turbulence, Academic Press, London.
- [6] Lumley, J. L. (1975), Lecture series 75: Prediction method of turbulent flows, Von Kármán Inst. Fluid. Dyn., Rhodes St.-Genése, Belgium.
- [7] Millionshtchikov, M. D. (1941), C.R. Acad. Sci. S.S.S.R. 32, 615-619.
- [8] Moeng C.-H. & Wyngaard J.C. (1989). J. Atmos. Sc. 46, 2311- 2330.
- [9] Rotta, J. (1951), Zeitschrift für Physik 129, 547-572.
- [10] Sander, J. (1998), Continuum Mech. Thermodyn., Springer-Verlag 10, 1-28.
- [12] Wörner M. (1994). Dissertation, Universität Karlsruhe, KfK 5228.
- [13] Wörner M., Schmidt M., Grötzbach G. (1997). J. Hyd. Res. 35, 773-797.
- [14] Wörner M. & Grötzbach G. (1998). Int. J. Heat & Fluid Flow 19, 150-158.

SPEZIATION VON MINERAL-OBERFLÄCHEN IN-SITU UNTER ELEKTROLYTEN MIT NICHTLINEAR OPTISCHEN METHODEN

Klaus Kruse

Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Nukleare Entsorgung (INE) und
Virtuelles Institut Funktionelle Eigenschaften aquatischer Grenzflächen,
Karlsruhe, Klaus-Werner.Kruse@ine.fzk.de

Für einen geochemisch geführten Langzeit-Sicherheitsnachweis eines Endlagers radioaktiver Materialien ist es notwendig, das Rückhaltevermögen des Aquifers zuverlässig zu modellieren. Das Rückhaltevermögen wird wesentlich durch die Adsorptions/Desorptions-Prozesse für die Radionuklid-Ionen an den Mineral/Elektrolyt-Grenzflächen im Aquifer bestimmt. Zur Modellierung benötigt man ein Verständnis der Grenzflächen auf der molekularen Ebene. Die chemische Zusammensetzung der meisten Grenzflächen konnte bisher jedoch nicht in-situ gemessen werden, weil es nicht gelang, grenzflächenselektive chemisch-analytischen Verfahren in-situ unter Wasser anzuwenden. In meiner Doktorarbeit zeige ich nun, daß nichtlinear optische Methoden ein detailreiches Bild der Speziation liefern.

IN-SITU SPECIATION OF MINERAL SURFACES UNDER ELECTROLYTE WITH NONLINEAR OPTICAL TECHNIQUES

Klaus-Werner Kruse

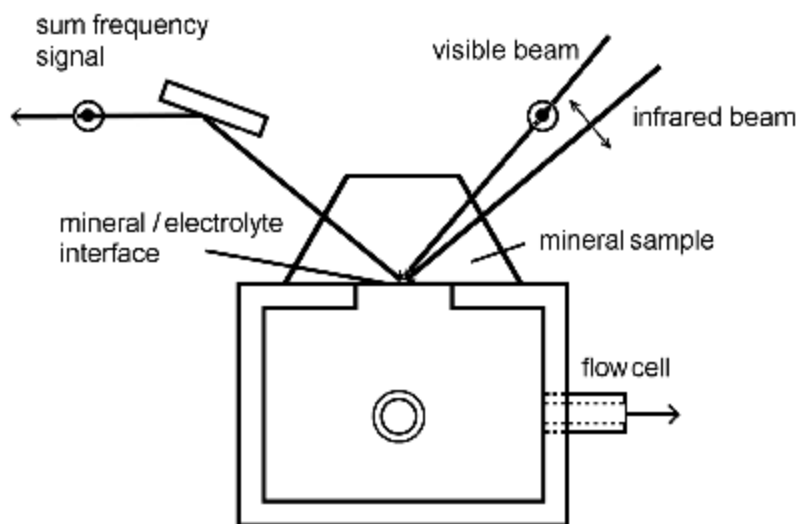
Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Nukleare Entsorgung (INE) and
Virtual Institute Funktional Properties of Aquatic Interfaces,
Karlsruhe, Klaus-Werner.Kruse@ine.fzk.de

The reactivity and the adsorption/desorption properties of mineral/electrolyte interfaces are controlled by the functional species of the mineral surfaces. The most basic and important reactions of many surface species is their protonation or deprotonation upon decreasing or increasing the pH, respectively. These reactions lead to dramatic changes of the surface properties such as the adsorption capability with respect to radioisotopes. The identification of the functional groups and the measurement of their stability constants is thus essential for the quantitative understanding of mineral/electrolyte interaction in the aquifer and for the reliable long-term modeling of the migration of radionuclide ions in the aquifer. So far, however, it was difficult to obtain chemical in situ information with interface selectivity. We thus introduce a novel approach for speciation measurements. We apply vibrational sum frequency (SF) spectroscopy^{1,2} to sapphire (α -Al₂O₃) single crystal surfaces. Sapphire can be considered as a simple model for natural clay minerals and analogous iron phases.

In the nonlinear optical experiment of sum frequency generation, a sample is illuminated with intense light from two lasers at frequencies w_1 and w_2 . Due to the high intensities, photons from the two beams can couple to the sample at the same time in order to generate photons at the sum frequency $w_{SF} = w_1 + w_2$. An SF signal can always be generated at a surface or an interface. In the bulk of media which exhibit certain point groups, however, SF generation is symmetry forbidden. In particular centrosymmetric matter such as the bulk of a liquid does not provide SF light in the electric dipole approximation. Also, no signal originates from the bulk of, for example, a sapphire crystal. As a result, we can obtain SF light selectively from the interface between sapphire and water.

Additionally chemical analytical information can be obtained. To this end, a laser system is applied that provides one beam of coherent light at a fixed wavelength (532 nm) and another beam whose wavelength is tunable to the infrared (IR) absorption bands of the functional species at the interface. If the wavelength is within an absorption band resonance enhancement of the SF intensity occurs. From the quantitative measurement of the SF intensities the interface concentrations of the

individual species can be obtained. From the polarization state of the SF signal as a function of the incident polarizations, the orientation of the species can be calculated.



*Fig. 1
Scheme of the sum
frequency experiment,
top view*

A scheme of my experiment is shown in Figure 1. The sapphire crystal is applied in the form of a Dove prism whose hypotenuse face is cut in a well-defined crystallographic orientation. The crystal is pressed against the wall of a flow cell. In the wall, there is a drill hole so that contact between the mineral surface and the electrolyte occurs. The two laser beams are applied to the interface under total internal reflection conditions. In my first experiments, I tuned the IR laser over the spectral region in which the O-H stretching bands are expected. The polarization state of the incident and the detected light can be altered. The spectrum of Figure 2 was obtained by using the polarization combination shown in Fig. 1. As electrolyte, I used Millipore water whose pH was varied by applying NaOH or HCl. In the measurement of Fig. 2, the pH was 12.0. The crystal surface was C-cut.

In the experiment, the signal depends on the optical nonlinearities of the interface and on its Fresnel factors.³ The latter do not provide information on the surface speciation. Due to their frequency dependence, however, they influence the spectra considerably. I thus correct the measured spectra for this effect by normalizing the raw data with the Fresnel factors. In the spectrum of Fig. 2, the square root of the corrected SF intensity $I^{(SF)}$ is given as a function of the IR wavenumber $\tilde{\nu}$. The deconvolution of the corrected spectrum provides seven bands which are also shown in Fig. 2. I modeled the bands as Lorentzian lines⁴ which are inhomogeneously broadened according to Gaussian functions. The two bands at 3112 and 3215 cm^{-1} , which are well-known from various aquatic interfaces, are due to the polar ordered

water film directly near the interface. The other five bands originate from up to five aluminol species or from specifically bound water molecules. This surprisingly high number of species could not be detected in recent studies.⁵ The dominating peak at 3693 cm^{-1} among these five bands, I attribute to an OH species bridging two⁶⁻⁹ aluminium atoms.

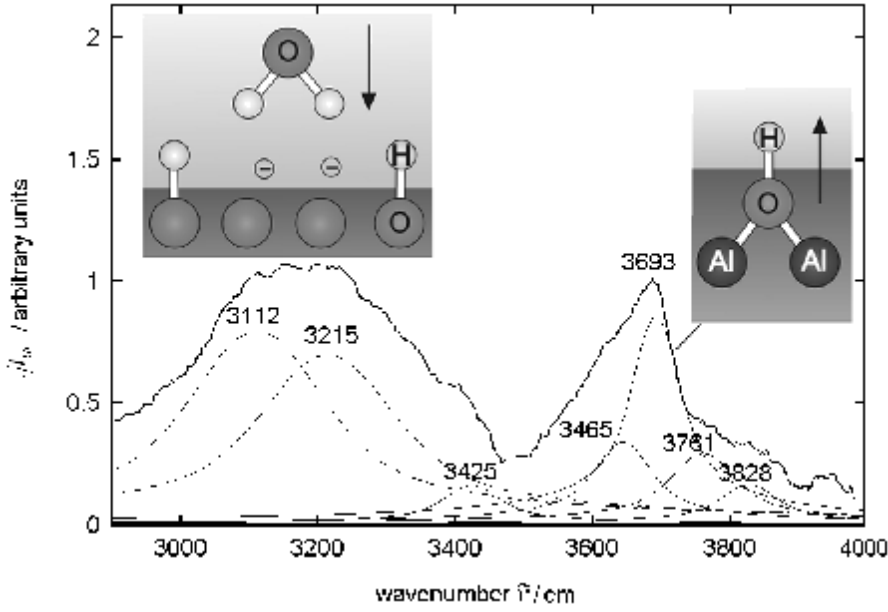


Fig. 2
Sum frequency spectrum of sapphire (001) surface under water at pH 12 together with result of deconvolution and interpretation. The two arrows indicate the dipoles of the polar ordered water film near the interface and the dipole of the OH group bridging two Al atoms

For the complete interpretation of Fig. 2, is important to realize that an SF spectrum cannot be considered as a simple addition of the intensities from the individual bands. Due to the coherence of the SF light, we have to consider the *interference* of the signal contributions from the individual species. The spectrum $I^{(SF)}(\tilde{\nu})$ is given by

$$\sqrt{I^{(SF)}(\tilde{\nu})} \propto \left| \sum_{species} d_{eff}(\tilde{\nu}, species) \right| \quad (1)$$

with d_{eff} an effective susceptibility. This quantity describes the nonlinear optical properties of a species at an interface. It is different for different kinds of species and depends also on the IR wavenumber. The effective susceptibilities are complex quantities with magnitude and phase. The seven individual bands in Fig. 2 give the *magnitudes* of the corresponding seven effective susceptibilities as a function of the IR wavenumber.

In order to obtain the *phases* of the effective susceptibilities we have to know that the phases in a second-order optical experiment depend on the polar orientation of the species which generate the light. The signal phases from two species, whose polar

orientation is opposite, differ by 180° at their resonance maxima. Parallel species exhibit identical phases at their resonance maxima. In general, an SF spectrum is thus the result of partially constructive and partially destructive interference of signal contributions from the different species. The addition of the complex nonlinearities in Eq. (1) takes account of this interference phenomenon.

I have taken advantage of Eq. (1) already when I decomposed the spectrum in Fig. 2 into the individual bands. I obtained a phase difference of 180° at the maxima near 3112 and 3215 cm^{-1} (polar water film) relative to the phases at the other maxima. This result is indicated in Fig. 2 by using broken lines for the two bands of the polar water film. We can assume that the OH dipole of the aluminol species with the peak maximum at 3693 cm^{-1} points into the aquatic phase. The dipoles of the polar ordered water film thus point to the interface. This result agrees with our expectation for the interface at high pH.

In first series of experiments in which I altered the pH between 4 and 12 I observed that the positions of most of the bands do not change. This is a strong, additional argument for my interpretation of the spectrum in Fig. 2 with seven bands. These bands are not due to arbitrary assumptions but represent real species. Additionally I observed that the magnitudes of the water bands decrease if the pH is reduced down to ~ 6 . This indicates that the point of zero charge is near pH 6 which was not expected from conventional chemical titration experiments. The spectra between pH 4 and 6 indicate a preferential polar orientation of the water molecules near the interface which can be explained with hydrogen bonds.

In conclusion, I have shown that SF generation can be used to probe the speciation of the functional species of mineral surfaces in situ under electrolyte with interface selectivity. First results show that rich information at the molecular level can be obtained. Such information is required for the reliable long-term modeling of the migration of contaminants such as radioisotopes in the aquifer.

References

- [1] Shen Y.R. (1989) *Nature* **357**, 519
- [2] Richmond G.L. (2002) *Chem. Rev.* **102**, 2693
- [3] Mizrahi V., Sipe J.E. (1988) *J. Opt. Soc. Am. B* **5**, 660
- [4] Morita A., Hynes J.T. (2000) *Chem. Phys.* **258**, 371
- [5] Yeganeh M.S., Dougal S.M., Pink H.S. (1999) *Phys. Rev. Lett.* **83**, 117
- [6] Digne M., Sautet P., Raybaud P., Euzen P., Toulhoat H. (2002) *Journal of Catalysis* **211**, 1
- [7] Barrón V., Torrent J. (1996) *J. Colloid Interface Sci.* **177**, 407
- [8] Busca G., Lorenzelli V., Sanchez Escribano V., Guidetti R. (1991) *Journal of Catalysis* **131**, 167
- [9] Hass K.C., Schneider W.F., Curioni A., Andreoni W. (2000) *J. Phys. Chem. B* (2000) **104**, 5527

AN APPROACH ON NEAR-FIELD RAMAN SPECTROSCOPY USING THE TETRAHEDRAL SNOM TIP

S. Klein¹, U.Ch. Fischer¹, H. Fuchs¹ and M. Hietschold²

¹ Physikalisches Institut, Westfälische-Wilhelms-Universität Münster,
Wilhelm-Klemm-Str. 10, D – 48149 Münster

² Institut für Physik, Technische Universität Chemnitz, D – 09107 Chemnitz

Abstract

The effect of field enhancement at nanoscale metallic structures is utilized to probe a small amount of sample molecules. Most recently tip-enhanced Raman scattering (TERS), where a metallic tip is situated near a smooth surface covered by Raman active species has been reported. The experimental results show, that only a small amount of molecules in the near-field of the laser irradiated tip-apex contributes to an observed characteristic Raman spectrum. The tip acts in these experiments similar to a single particle supporting a single hot-spot, which enhances the incident electric field. Different experimental approaches on TERS have been realized using metal coated AFM cantilevers or STM tips. Here we present an approach on near-field Raman spectroscopy using the tetrahedral Scanning Near-field Optical Microscope (SNOM) tip to investigate molecular species adsorbed on (smooth) surfaces.

AN APPROACH ON NEAR-FIELD RAMAN SPECTROSCOPY USING THE TETRAHEDRAL SNOM TIP

S. Klein¹, U.Ch. Fischer¹, H. Fuchs¹ and M. Hietschold²

¹ Physikalisches Institut, Westfälische-Wilhelms-Universität Münster,
Wilhelm-Klemm-Str. 10, D – 48149 Münster

² Institut für Physik, Technische Universität Chemnitz, D – 09107 Chemnitz

Abstract

The effect of field enhancement at nanoscale metallic structures is utilized to probe a small amount of sample molecules. Most recently tip-enhanced Raman scattering (TERS), where a metallic tip is situated near a smooth surface covered by Raman active species has been reported. The experimental results show, that only a small amount of molecules in the near-field of the laser irradiated tip-apex contributes to an observed characteristic Raman spectrum. The tip acts in these experiments similar to a single particle supporting a single hot-spot, which enhances the incident electric field. Different experimental approaches on TERS have been realized using metal coated AFM cantilevers or STM tips. Here we present an approach on near-field Raman spectroscopy using the tetrahedral Scanning Near-field Optical Microscope (SNOM) tip to investigate molecular species adsorbed on (smooth) surfaces.

Introduction

A large number of methods to characterize molecular species on a macroscopic scale nowadays exist. Most of them are not suitable for the purpose of analysis of the order of resolution at the single molecule level. Either these methods are based on bulk materials (where a large number of molecules contribute to a signal) or the probing tool is not sensible enough to allow a level of magnification down to nanometer sized objects. The main limitation in terms of probing small amounts of an analyte in optical imaging and spectroscopy is given by the so called diffraction limit or Abbé criterion. One method to overcome this wavelength dependent barrier is Scanning Near-field Optical Microscopy (SNOM). In SNOM, the resolution is pushed beyond the diffraction limit by probing the near-field rather than recording a far field image as in conventional microscopy [1]. Raman spectroscopy provides rich spectral and structural information on gaseous, liquid and solid samples. Furthermore, Raman spectroscopy is a fingerprint method that allows identification of molecular species by their characteristic Raman spectrum. However, the Raman scattering process is rather weak and usually exhibits very low cross sections of the order of $(d\sigma/d\Omega) \sim 10^{-31} - 10^{-28} \text{ cm}^2 \text{ sr}^{-1}$. The low cross section prevents its wide application, particularly when

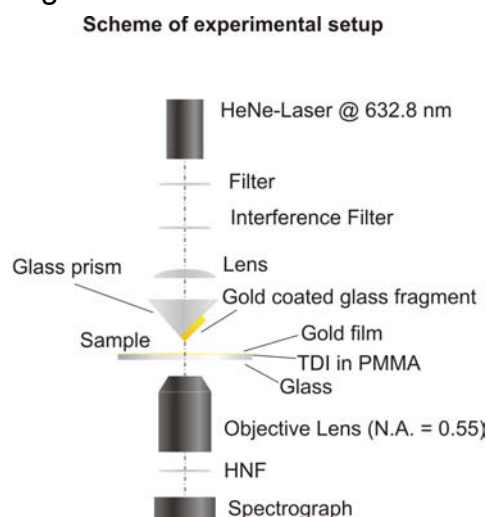


Fig. 1: Scheme of the experimental set-up. Further description is given in the text.

only a small amount of an analyte shall be probed, as is the case for adsorbate systems on (smooth) surfaces [2].

The presented approach to enhance the Raman scattering intensity is a combination of Raman spectroscopy and SNOM, which is called tip-enhanced Raman spectroscopy (TERS). The main part is the laser illumination of the SNOM tip (covered with an Au film) placed in close vicinity to a sample surface. In the present set-up, the tip-sample distance is controlled by a tunneling current. Localized surface plasmons are excited by the incident laser beam at the tip apex, producing a local increase of the electric field with respect to the incident electric field. Since the Raman intensity is proportional to the fourth power of the field enhancement, the local enhancement gives rise to an enhanced Raman signal of analyte molecules near the tip. This combination takes advantage of the high spatial resolution of SNOM and the rich chemical information of Raman spectroscopy [3].

Experimental

The experimental set-up consists of an inverted optical microscope as depicted by Fig. 1. In the present case, a HeNe-laser beam (wavelength 632.8 nm) is coupled into a glass prism and the Au coated glass fragment. Neutral density filters can reduce the intensity of the beam. An appropriate interference filter reduces other lasing transitions of the HeNe-laser. Fig. 2 shows the apex of the glass fragment in detail. It acts as an apertureless tetrahedral SNOM tip [1]. During experiments the tip is brought into tunneling contact to the Au covered sample (electronics and mechanical positioning systems are not displayed in Fig. 1). The SNOM tip transmits only a fraction, but highly confined part of the incident light. The enhanced electric field affects molecules in the near field of the SNOM tip. A microscope objective collects the scattered or emitted radiation of the sample molecules. The light is guided via an optical multimode fiber to a spectrograph. Before successive spectral analysis (Acton Research SP500i and LN cooled ICCD detector) a holographic notch filter that reduces only the incident laser light (@ 632.8 nm) filters the collected light. Hence, even low intensity signals can be detected.

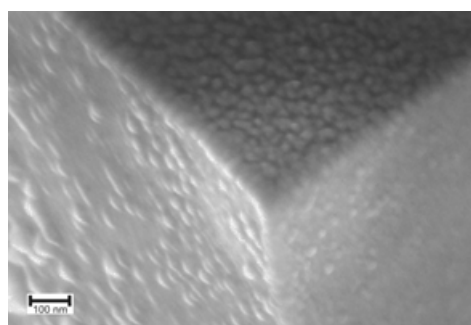


Fig. 2: SEM picture of the tetrahedral tip apex. The bar indicates 100 nm.

An initial test of the existing set-up was conducted by utilizing a fluorescent dye. The cross section of the fluorescence process is several magnitudes higher than the Raman cross section but is appropriate to assess the optical setup. For this purpose, Terrylendiimid (TDI) of 10^{-7} molar concentration in PMMA was spin coated to an approximately 120 nm thick film on a glass slide. The film was afterwards covered by a 30 nm thin Au layer to allow tunneling of the SNOM tip. The HeNe laser wavelength is situated near the absorption maximum of the TDI. To estimate the sensitivity of the system the fluorescence signal of the dye mole-

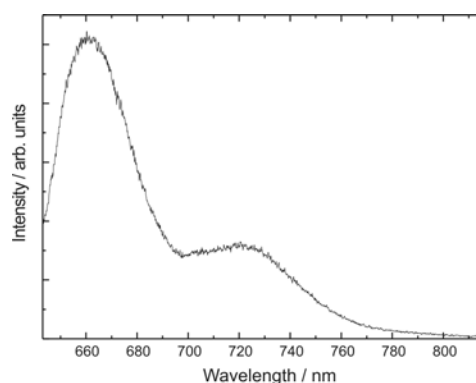


Fig. 3: Measured fluorescence spectrum of TDI dye molecules in PMMA with a 10^{-7} molar concentration.

cules was recorded after establishing tunneling contact of the SNOM tip (resulting in a tip sample distance of approximately one nm). Fig. 3 shows an example of a measured fluorescence spectrum. The acquisition time was 30 seconds.

Outlook

Future activities will concentrate on improving the sensitivity of the presented experimental system. Measuring Raman spectra of adsorbed molecular species on Au substrates will be the next focus of the experimental work. For this purpose, another but non-fluorescent dye is chosen as a first sample molecule. Further experiments utilizing resonance and off-resonance Raman scattering applying the presented set-up are planned. To conduct near-field microscopy of electrolyte interfaces an approach to utilize the tetrahedral SNOM tip in an electrochemical scanning tunneling microscope will be performed. This work will be done in cooperation with a group at the MPI in Stuttgart.

References

- [1] See for example: J. Koglin, U.Ch. Fischer, K.D. Brzoska, W. Göhde, H. Fuchs: The tetrahedral tip as a probe for scanning near-field optical and for scanning tunneling microscopy. NATO-Series, Vol. 300, Photons and Local Probes, 79-92 (1995) and references therein
- [2] See for example: J. Gersten: Electromagnetic theory of enhanced Raman scattering by molecules adsorbed on rough surfaces. J. Chem. Phys. 73 (1980) 3023 – 3037 and references therein
- [3] Concerning enhanced Raman scattering see for example: A. Otto, I. Mrozek, W. Akemann: Surface-enhanced Raman scattering. J. Phys. Condens. Matter 4 (1992) 1143 – 1212
Concerning TERS see: R.M. Stöckle, Y.D. Suh, V. Deckert, R. Zenobi: Nanoscale chemical analysis by tip-enhanced Raman spectroscopy. Chem. Phys. Lett. 318 (2000) 131 – 136; M.S. Anderson: Locally enhanced Raman spectroscopy with an atomic force microscope. Appl. Phys. Lett. 76 (2000) 3130 – 3132; N. Hayazawa, Y. Inouye, Z. Sekkat, S. Kawata: Metallized tip amplification of near-field Raman scattering. Opt. Commun. 183 (2000) 333 – 336; A. Hartschuh, N. Anderson, L. Novotny: Near-field Raman spectroscopy using a sharp metal tip. J. Microsc 210 (2003) 234 – 240; B. Pettinger, B. Ren, G. Picardi, R. Schuster, G. Ertl: Nanoscale probing of adsorbed species by tip-enhanced Raman spectroscopy. Phys. Rev. Lett. 92 (2004) 096101 and references therein

INCORPORATION OF TRIVALENT ACTINIDES (CM(III)) IN CALCITE. A TIME RESOLVED LASER FLUORESCENCE SPECTROSCOPY (TRLFS) STUDY.

M. MARQUES FERNANDES¹, T. STUMPF², T. RABUNG¹, D. BOSBACH¹, A. BAUER¹ AND T. FANGHÄNEL^{1,2}

¹*Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Nukleare Entsorgung
P.O. Box 3640, D-76021 Karlsruhe, Germany*

²*Physikalisch-Chemisches Institut, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, Im Neuenheimer Feld
253, 69120 Heidelberg, Germany*

The aim of this study was the characterization and quantification of the incorporation and substitution mechanism (charge compensation, coordination) of Ca^{2+} by Cm^{3+} in the calcite crystal. Information on the coordination of Cm(III) incorporated in calcite was obtained by Time Resolved Laser Fluorescence Spectroscopy (TRLFS). Homogeneous Cm(III) doped calcites were synthesized in a mixed-flow-through reactor, which allows crystal growth under controlled steady state conditions (saturation state, pH). Two homogenous Cm(III) doped calcites were synthesized with different trivalent metal ion concentrations of 1 ppm Cm^{3+} (calcite 1) and of 500 ppm (1 ppm Cm^{3+} and 499 ppm Gd^{3+}) (calcite 2). At 293K, both fluorescence emission spectra show two emission bands with peak maxima at 605.5 nm (1) and 620.3 nm (2), which can be assigned to two different Cm/calcite species. The extreme red shift of the emission spectrum of the second Cm/calcite species is a clear indication for a significant change in the strength and symmetry of the ligand field of Cm(III). The emission decay follows a biexponential decay law. Two different lifetimes $\tau_1 \approx 350 \mu\text{s}$ and $\tau_2 \approx 2000 \mu\text{s}$ were deduced. According to a correlation between lifetime and number of water molecules in the first hydration sphere given by Kimura et al., a lifetime of 2000 μs indicates the total loss of the hydration sphere. A lifetime of 350 μs can be attributed to a Cm species with one water or OH^- molecule in the first coordination sphere. The long emission lifetime and the extreme red shift of the spectrum of the Cm(III)/calcite species with peak maximum at 620.3 nm are a clear indication for the incorporation of Cm(III) into the calcite bulk. At low temperature (20K), we observe the increasing splitting of the emission band at 620.3 nm. The emission band splits into two clearly distinguishable emission bands at 617 nm und 623 nm. Cm(III) is occupying different energy states which indicates that there are different Cm(III) sites. The emission band at 605.5 nm does not split and remains rather broad, which seems to indicate that this emission band can be attributed to a surface sorbed species. This statement is in agreement with the short emission lifetime. The present results allow a detailed characterization of the sorption and incorporation process of trivalent actinides at trace level concentration into the mineral calcite.

Formation and stability of tetravalent actinide colloids in aquatic environment

Cho, H.R.; Walther, C.; Marquardt, C.M.; Neck, V.; Seibert, A.; Yun, J.I.; Fanghänel, Th.

Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Nukleare Entsorgung, PO Box 3640,
D-76021 Karlsruhe, Germany, e-mail: cho@ine.fzk.de

Electrochemically prepared 10^{-5} to $5 \cdot 10^{-3}$ M Pu(IV) solutions in 0.5 M HCl/NaCl at pH_c 0.1 - 2.1 (under air or Ar) were investigated as function of time by UV/Vis absorption spectroscopy, using a 1 m capillary cell for low concentrations, and LIBD to detect the presence of Pu(IV) colloids above the solubility limit of Pu(OH)₄(am). After the equilibrium of the different Pu oxidation states was reached, redox potentials (pe) were measured with Pt and Ag/AgCl reference electrodes.

The formation of Pu(III), Pu(V) and/or Pu(VI) is usually described as disproportionation of Pu(IV). However, the data strongly suggest that the underlying reaction mechanism is not disproportionation. The initial step is the oxidation of Pu(IV) colloids/polymers by dissolved O₂ (analogous to the oxidation of solid PuO₂(s,hyd) to PuO_{2+x}), followed by the dissolution of oxidised fractions and simultaneous equilibration of the redox couples $\text{Pu}^{4+} + e^- \rightleftharpoons \text{Pu}^{3+}$, $\text{PuO}_2^+ \rightleftharpoons \text{PuO}_2^{2+} + e^-$ and $\text{PuO}_{2(\text{coll})} \rightleftharpoons \text{PuO}_2^+ + e^-$ which are related by pe and pH because of Pu(IV) hydrolysis equilibria. The redox potentials calculated from the species distribution for all three couples agree well with directly measured pe values.

Combining the redox equilibrium $\text{Pu}^{4+} + e^- \rightleftharpoons \text{Pu}^{3+}$ with the Pu(IV) hydrolysis equilibria, $\text{Pu}^{4+} + n \text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{Pu}(\text{OH})_n^{4-n} + n \text{H}^+$, the mononuclear hydrolysis constants for $n = 1$ and 2 are calculated. The determined values are consistent with the Pu^{IV}(aq) concentrations in equilibrium with Pu(OH)₄(am) colloids detected by LIBD and the solubility product of $\log K_{\text{sp}}^\circ = -58.3$ selected in the NEA-TDB.

Formation and Characterization of Aquatic Actinide Colloids: Nucleation of Actinides with Aluminosilicate Colloids

Domnica Breban

Institut für Nukleare Entsorgung, Forschungszentrum Karlsruhe, D-76021 Karlsruhe

Abstract

Migration of colloid-borne actinides (An) in the geosphere has been ascertained by laboratory and in situ experiments, but the mechanisms of their formation and long-term stability remain poorly understood. Hydroxy-aluminosilicate (HAS) colloids, known to be kernels of aquatic colloids are generated by nucleation of Si and Al via oxo-bridging, by dispersion of aluminosilicate minerals, or by sorption of Al(Si) on dispersed silica(alumina) particles. Actinides may be incorporated into such aquatic colloid formation processes and thus become colloid-borne species.

The present work is a systematic investigation of the behaviour of actinide ions of different oxidation states in the process of aluminosilicate formation at room temperature, either by co-nucleating with Si and Al via oxo-bridging, or by sorbing onto aged HAS colloids. The nuclides used are: $^{241}\text{Am(III)}$, $^{234}\text{Th(IV)}$, $^{237}\text{Np(V)}$ and $^{233}\text{U(VI)}$. The distribution of these actinides in three phases: ionic, colloidal and precipitate, is monitored by radiometric assay as a function of pH, time and the concentration of Si and Al. The binding affinity of the actinides incorporated into the colloidal phase

(Am(III), Th(IV) and U(VI)) is appraised by desorption experiments with water and EDTA (ethylenediaminetetraacetic acid) for and compared with literature results from TRLFS (Time Resolved Laser Fluorescence Spectroscopy) for Cm(III).

The results lead to the following conclusions: Np(V) does not take part in the formation of HAS colloids, whereas Am(III), Th(IV) and U(VI) are readily incorporated into the HAS colloids. The strongest binding affinity of actinides in HAS colloids is found for colloids formed from polysilicic acid at neutral pH (pH 6-pH 9). Desorption experiments manifest that HAS-colloid-borne An(III) are water-resistant and colloid-borne An(IV) and An(VI) are EDTA-resistant within the experimental time period (> 40 d).

Formation and Characterization of aquatic Actinide Colloids: Nucleation of Actinides with Aluminosilicate Colloids

Domnica Breban

Institut für Nukleare Entsorgung, Forschungszentrum Karlsruhe, D-76021 Karlsruhe

Compact

1. Introduction

Aquatic colloids, ubiquitous in all natural waters are composed of inorganic oxides, organic substances (e.g. humics), or a mixture of both [1]. An average size of the predominant number density is in general smaller than 50 nm and their population ranges from $1E+8$ to $1E+14$ particles per litre water. Actinides of higher charges ($z \geq 3+$) are readily absorbed into aquatic colloids and thus colloid-borne actinides can be generated, which may migrate without substantial geochemical hindrance [2]. However, the provenance of aquatic colloids cannot be explained explicitly, hence the generation of colloid-borne actinides is not well understood. This work is intended to elucidate the fundamental aspects of the provenance of aquatic colloids and how actinides can be incorporated in them to become colloid-borne species. Aquatic colloids of inorganic nature are composed mostly of hydrated aluminosilicates as prime kernels in natural aquifer systems [3], in which water-borne trace elements are incorporated via oxo-bridge building. Such heterogeneous nucleation processes have been investigated in the presence of tracer amounts of tri- and tetravalent actinides (Am(III), Cm(III) and Th(IV)) by radiometric methods as well as by TRLFS (Time-Resolved Laser Fluorescence Spectroscopy) of the optically sensitive element Cm(III) in previous work [3-6]. The present study is an extension of the former investigations to actinides of higher oxidation states (Np(V), U(VI)) and also to the question how to evaluate the actinide/colloid binding strength, especially in the case of tetravalent actinides which do not show fluorescence properties.

2. Experiment

Actinides interacting with HAS colloids in statu nascendi: For the heterogeneous nucleation of Al and Si in the presence of a tracer amount of actinide, an acidic Al solution ($1E-5$, $1E-4$ mol/l) is titrated with an alkaline Si solution ($1E-3$ mol/l undersaturated Si, monosilicic acid), $1E-2$ mol/l oversaturated Si, polysilicic acid), respectively, to the pre-adjusted pH within 4 – 9. Blanks either without Si or without Al, as well as with actinides only, are equally included for the purpose of comparison. In this titration process the formation of three phases is ob-

served: ionic phase, colloidal phase, and precipitate. The generation of colloid-borne actinides is ascertained by ultrafiltration with the aid of radiometry.

Actinides interacting with aged HAS colloids: The mother solutions for HAS formation from mono- and polysilicic acid are prepared as described above but without actinide. After a conditioning time of seven days, a tracer amount of actinide is added to the aged colloids.

Activity desorption experiments: For the appraisal of actinide/colloid binding affinities, desorption experiments with inactive ultrafiltrate or bidistilled water are performed on separated colloid-borne actinides. Alternately, ligand displacement experiments are carried out with EDTA (1E-4, 1E-3 mol/l) added to the above mentioned mother solutions for colloid formation on the basis of mono- and polysilicic acid, respectively.

3. Results and discussion

Actinide incorporation patterns: An overview for the formation of colloid-borne actinide species, as determined by radiometry with the aid of ultrafiltration is shown in Fig. 1 as a function of the different experimental parameters: pH, concentration of Si and Al, and actinide oxidation state. The result shows that Np(V) does not take part in the formation of HAS colloids, whereas Am(III), Th(IV) and Np(V) are readily incorporated into HAS colloids. The maximum incorporation is found for colloids formed on the basis polysilicic acid and among the considered actinides, incorporation of U(VI) is the highest in a broad pH region. The incorporation pattern of U(VI) is similar to that of Th(IV), indicating similar incorporation mechanisms, but different from that of Am(III), reflecting a distinct interaction behaviour with HAS colloids.

Actinide incorporation kinetics: The activity fraction of colloids is analyzed as a function of pH after different conditioning times of the mother solutions up to 35 days. The Am-, Th- and U-fraction in the colloidal phase of HAS-monosilanol colloids decreases with time. For HAS-polysilanol colloids, the activity of Am remains constant with time, but, interestingly, grows into the colloids with time for Th as well as for U. The latter effect is correlated with the wellknown slow polymerization kinetics of Si at low pH [5,6]. The hypothesis, that Th(IV) and U(VI) follow the polynucleation process of Si at their incorporation into HAS colloids is made. This is in contrast with the behaviour of Am(III) which appears to be similar to that of Al(III) as follows from TRLFS studies [4, 6].

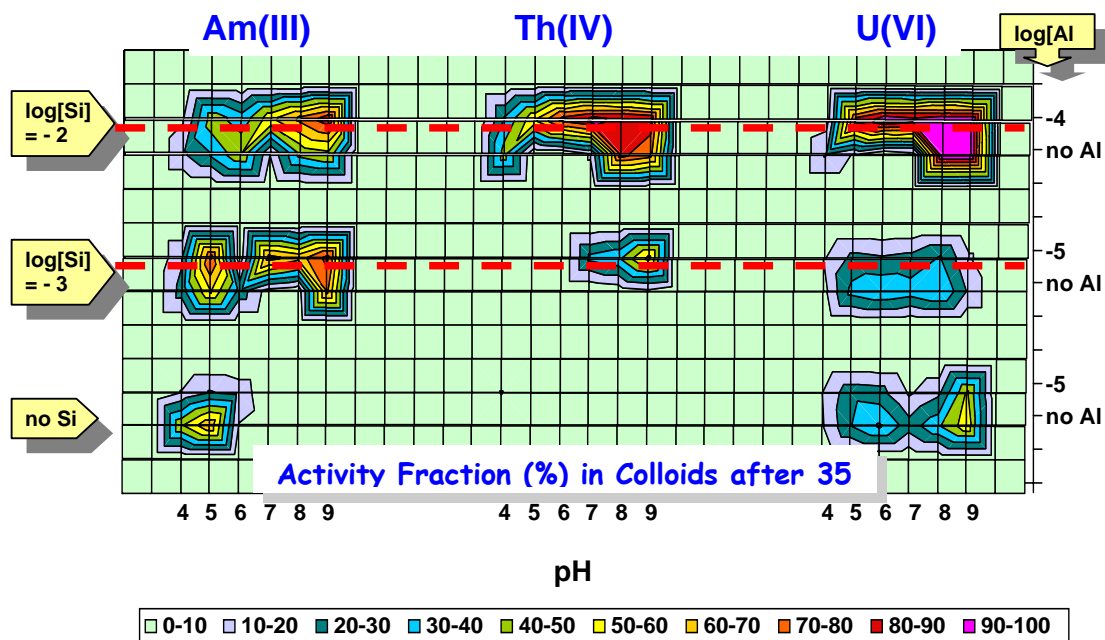
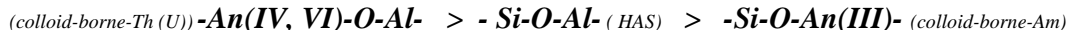


Fig. 1: Contour diagrams of the colloid-borne Am, Th and U (from left to right) fraction (z-axis) normalized to the initial Am, Th & U activities, respectively, after 35 days of conditioning as a function of pH. Concentrations of Si and Al (included blanks) are indicated on the left & right axis, respectively.

Actinide/colloid binding affinities: Desorption experiments show that HAS-polysilanol-colloid-borne Am, -Th and -U are water-resistant at neutral pH (7-9). The result is in line with the recognition from TRLFS that all coordination water molecules of the Cm-aquoion are replaced by silanol ligands [4]. Desorption experiments with EDTA at pH 7-9 (see Fig. 2), however, show that HAS-polysilanol-colloid-borne Am is EDTA-reversible, whereas similar colloid-borne-Th(U) are EDTA-resistant. From the literature we further know that, out of mother solutions with an Si/Al concentration ratio of 100, HAS colloids with an Si/Al atomic ratio of about 1 are generated. From the actinide (An) incorporation experiment (Fig. 1), it is obvious that 100% of the original Th as well as U input in the mother solution is found in the HAS colloids after 35 days. The facts indicate following binding affinity series in decreasing order:



The result indicates that Th or U could displace Si out of preformed colloids. To test this hypothesis, interaction of Am, Th as well as U is allowed with aged HAS colloids, generated from polysilanol, and followed by desorption with EDTA. Again, Am incorporated after accomplished HAS formation, is EDTA-reversible, whereas “post-incorporated” Th or U is

EDTA-resistant. The result corroborates the proposed hypothesis that Th and U behave as thoronate or uranate-ligands substituting the silicate ligand in HAS colloids.

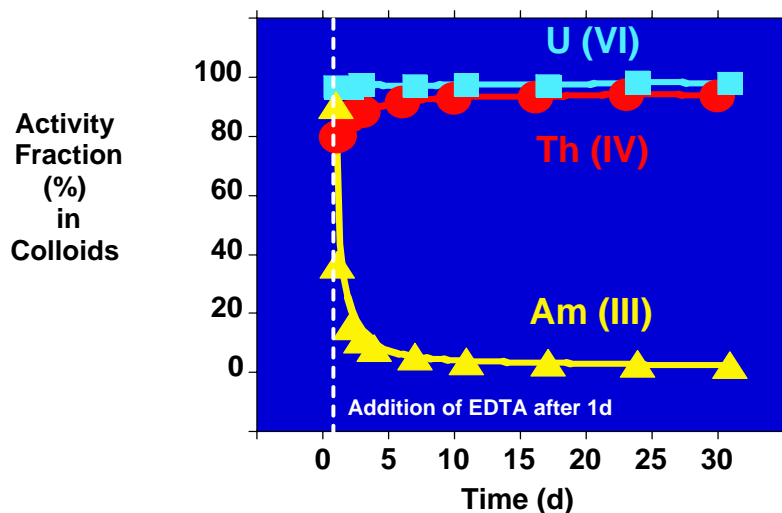


Fig. 2: Colloid-borne Am, Th or U fraction (%) in a sample as a function of contact time with EDTA. The initial sample is prepared at pH 9 with 10^{-2} mol l^{-1} Si, 10^{-4} mol l^{-1} Al and tracer amounts of actinides and conditioned for 1 day prior to addition of EDTA (10^{-3} mol l^{-1})

4. Conclusions

Np(V) does not take part in the formation of HAS colloids, whereas Am(III), Th(IV) and U(VI) are readily incorporated into HAS colloids. The binding of Am(III) appears to be similar to Al, showing a strong affinity towards silicic acid, while Th(IV) and U(VI), as hydroxy-anions, display their affinity primarily to the Al ion, as a ligand substitution to silicic acid. Formation of HAS colloids from polysilicic acid reveals stronger binding affinities of actinides in HAS colloids at neutral or higher pH. Desorption experiments manifest that the HAS-colloid-borne Am(III) is water-resistant and colloid-borne Th(IV) and U(VI) are EDTA-resistant within the experimental time period (> 40 d).

5. Literature

- [1] J.I. Kim, MRS Bull. 19, 47 (1994) & Radiochimica Acta 52, 49 (1991).
- [2] R. Artinger; W. Schuessler, F. Scherbaum, D. Schild, J.I Kim, Envir. Sc. & Techn. 36, 5092 (2002).
- [3] M.A. Kim, P.J. Panak, J.I. Yun, J.I. Kim, R. Klenze, K. Köhler, Colloids Surf. A 216, 97 (2003).
- [4] P.J. Panak, M.A. Kim, J.I. Yun, J.I. Kim, Colloids Surf. A 227, 93 (2003).
- [5] M.A. Kim, P.J. Panak, J.I. Yun, A. Priemyshev, J.I. Kim, Colloids surf. A 254, 137 (2005).
- [6] M.A. Kim, P.J. Panak, J.I. Yun, A. Priemyshev, J.I. Kim, RCM Report, RCM 012004, 2004.

Leaching behaviour of (Th,U)O₂ fuel kernels under repository-relevant conditions

M.M. Titov, J. Fachinger, R. Odoj

Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik,
Forschungszentrum Jülich GmbH, D-52425 Jülich, Germany

The direct disposal of spent HTR fuel in deep geological formations is an attractive method to utilise the spent HTR fuel. In the accident scenario of water ingress into repository, the leaching stability of the ceramic fuel kernels will play an important role for long-term radionuclide retention. In the present work the leaching behaviour of unirradiated reactor grade ThO₂, (Th_{0.906},U_{0.094})O₂, (Th_{0.834},U_{0.166})O₂ and UO₂ fuel kernels was investigated. The overall duration of leaching experiments performed exceeds one year.

It was shown that mixed oxide fuel kernels possess one-two orders of magnitude higher chemical stability than UO₂ in all media investigated. Moreover, thoria-based materials are indifferent to presence of oxidative or radiolytic species in solution. A lifetime of intact (Th,U)O₂ kernel even in aggressive MgCl₂-rich brine at 90 °C was estimated as ~100,000 years. However, the lasting contact of mixed oxide fuel kernels investigated with aquatic phase leads to grain boundaries separation, degradation of kernel mechanical stability, and spontaneous kernel self-crumbling. Therefore, a control of grain boundaries state is required on all stages of kernel fabrication.

Leaching behaviour of (Th,U)O₂ fuel kernels under repository-relevant conditions

M.M. Titov, J. Fachinger, R. Odoj

Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik,
Forschungszentrum Jülich GmbH, D-52425 Jülich, Germany

Two HTR reactors operated in Germany have produced about 1 million spent fuel pebbles. The direct disposal of spent fuel in deep geological formations is considered as one of the most attractive methods to utilise the spent HTR fuel. In the accident scenario of water ingress into repository the leaching stability of the ceramic fuel kernels will play an important role for long-term radionuclide retention. The radiolysis of aqueous phases, induced by high spent fuel activity, changes the nominally anoxic conditions in the final disposal vault and affects the stability of both the engineered barriers and the spent fuel.

In the present work the leaching behaviour of unirradiated reactor grade ThO₂, (Th_{0.906},U_{0.094})O₂, (Th_{0.834},U_{0.166})O₂ and UO₂ fuel kernels was investigated. The kernels are dense spherical particles about 0.5 mm in diameter. They have a polycrystalline structure with well-formed grains and boundaries. Microscopic investigations of kernel sections confirm their high relative densities of approximately 98 %. The bulk material of fuel kernels has a fluorite-type cubic structure and for mixed oxide kernels represent a solid solution of thorium and uranium dioxides.

The leaching behaviour of ThO₂, (Th_{0.906},U_{0.094})O₂, (Th_{0.834},U_{0.166})O₂ and UO₂ fuel kernels and powders was investigated in two salt brines, deionised water, HCl of different molarity, and 5 M HNO₃ at 90 °C under anaerobic conditions. Additional leaching experiments in deionised water and salt brines in the presence of γ -irradiation were performed to simulate the influence of radiolysis effect on the fuel kernel leaching stability.

The results of the experiments performed demonstrate high chemical stability of (Th,U)O₂ mixed oxide fuel kernels. They have one-two orders of magnitude lower disso-

lution rates than UO_2 fuel kernels. In 5 M HNO_3 , which is highly aggressive with respect to uranium dioxide dissolution, the mixed oxide fuel kernels dissolve more than four orders of magnitude more slowly than UO_2 . The leaching experiments in deionised water under γ -irradiation show similar behaviour. Despite the acceleration of UO_2 dissolution of about two orders of magnitude, the mixed oxide fuel kernels seem to be insensitive to the presence of radiolytic species in solution. Based on the results of the experiments performed, a lifetime of intact $(\text{Th,U})\text{O}_2$ kernel even in aggressive MgCl_2 -rich brine at 90 °C was estimated as $\sim 100,000$ years.

On the other hand, the investigations performed revealed the unexpectedly high initial uranium release from mixed oxide fuel kernels, predominant etching of grain boundaries and triple junctions, spontaneous kernel breakage and significant degradation of their mechanical properties during leaching. This can have the negative impact on the mixed oxide fuel kernels long term stability. The decrease of sample size from 500 μm (typical intact kernel) to 10 μm (single grain of completely crumbled kernel) will result in an approximately fiftyfold decrease of kernel life-time. From this point of view, an extensive control of grain boundaries state is required on all stages of kernel fabrication.

QUALIFIZIERUNG VON POLYSILOXANEN FÜR DIE LANGZEITSTABILE KONDITIONIERUNG RADIOAKTIVER ABFÄLLE

**P. Kucharczyk
Forschungszentrum Jülich
Institut für Sicherheits- und Reaktor Technik ISR-3**

Durch die verlängerte Zwischenlagerung von radioaktiven Abfällen ergeben sich erhöhte Anforderungen an die verwendeten Lagerbehälter, insbesondere hinsichtlich des Korrosionsschutzes.

Polysiloxane weisen physikalische und chemische Eigenschaften auf, die sich für ein innere und äußere Beschichtung von Abfallbehältern eignen. Vor allem ist dies der Schutz von mechanischen Beschädigungen, durch die andere Korrosionsschutzbeschichtungen zerstört würden.

Ein wichtiges Kriterium für die Verwendung als Beschichtung ist ihre einfache Applikation. Mit Spritzversuchen wurde gezeigt, dass Polysiloxane mit einer Viskosität bis 40 000 mPas im Airless-Spritzverfahren appliziert werden können. Durch die entsprechende Einstellung der Thixotropie und der Topfzeit konnten glatte Beschichtungsflächen hergestellt werden.

Die Eignung des Polysiloxans RT 622 als Korrosionsschutzbeschichtung wurde gemäß DIN 50905 untersucht. Diese Material wurde verwendet, weil es aufgrund seiner geringen Viskosität mit bis zu 50 Gew.-% korrosionshemmenden Pigmenten (Zn-Staub bzw. Fe-Glimmer) beladen werden konnte. Die untersuchten Stahlproben mit pigmentierten Silikonbeschichtungen wiesen einen kleineren flächenbezogenen Massenverlust auf, als die mit unpigmentierten Silikonüberzügen. Dabei wurde festgestellt, dass mit Zn-Staub die beste Korrosionshemmung erzielt werden konnte. Der Korrosionsschutz konnte durch eine zusätzliche Beschichtung mit einer 60 µm dicken Zinkfarbe-Beschichtung noch weiter verbessert werden.

Aufgrund dieser Korrosionsuntersuchung wird folgendes Beschichtungssystem vorgeschlagen: Es besteht aus einer Zinkfarbe-Beschichtung, auf die eine 1 mm dicke mit Zn-Staub pigmentierte Polysiloxanschicht aufgetragen wird. Die weitere unpigmentierte Silikonschicht mit einer Schichtdicke von 4 mm sollte für den mechanischen Schutz aufgebracht werden.

QUALIFIZIERUNG VON POLYSILOXANEN FÜR DIE LANGZEITSTABILE KONDITIONIERUNG RADIOAKTIVER ABFÄLLE

P. Kucharczyk

Forschungszentrum Jülich

Institut für Sicherheits- und Reaktor Technik ISR-3

Die bei der friedlichen Nutzung der Kernenergie anfallenden radioaktiven Abfälle müssen in einer umweltverträgliche Form gelagert werden, um sie nachhaltig von der Biosphäre zu isolieren. Dazu werden sie nach einer abfallformgerechten Konditionierung in geeigneten Behältern zwischengelagert und schließlich in ein Endlager überführt. Polysiloxane weisen physikalische und chemische Eigenschaften auf, die sich für eine innere und äußere Beschichtung von Abfallbehältern eignen. Vor allem ist dies der Schutz von mechanischen Beschädigungen, durch die andere Korrosionsschutzbeschichtungen zerstört würden. Das Material ist unter dem handelsüblichen Namen „Silikon“ bekannt, wobei es eine große Vielzahl verschiedener Silikonarten mit unterschiedlichen Eigenschaften gibt.

Die Korrosion der Behälterwände ist einer der Hauptprobleme der Langzeitzwischenlagerung, die einen Zeitraum von 30 – 40 Jahren umfasst. Die heutzutage verwendeten Überzüge auf Basis von Epoxydharzen können wegen der Sprödigkeit nur in einer begrenzten Schichtdicke aufgetragen werden. Diese dünne Beschichtungen sind anfällig für die Beschädigungen und Verletzungen, die bei der Handhabung auftreten können. Dies kann eine Korrosion zur Folge haben, so dass eine Abfallverpackung mehrmals umkonditioniert werden muss, damit es handhabbar bleibt und in ein Endlager transportiert werden kann.

Ein wichtiges Kriterium für die Verwendung als Beschichtung ist ihre einfache Applikation. Mit Spritzversuchen wurde gezeigt, dass Polysiloxane mit einer Viskosität bis 40 000 mPas im Airless-Spritzverfahren appliziert werden können. Für die Untersuchung wurde das Silikonmaterial RT 622 ohne und mit korrosionsschützenden Pigmenten wie Zn-Staub und Fe-Glimmer verwendet. Durch die entsprechende Einstellung der Thixotropie und der Topfzeit konnten glatte Beschichtungsflächen hergestellt werden. Die Spritzversuche zeigten, dass die Applikation eines Polysiloxans mit einer Viskosität über 50 000 mPas problematisch sein könnte. Die Probleme sind vor allem im Aufreißen des Spritzstrahls sowie in der ungleichmäßigen Materialauftragung und in der geringen Qualität der hergestellten Beschichtung zu sehen. Daher sind die Silikonmaterialien mit einer höheren Viskosität als 50 000 mPas für den betrachteten Anwendungsfall weniger geeignet.

Die Eignung des Polysiloxans RT 622 als Korrosionsschutzbeschichtung wurde gemäß DIN 50905 untersucht. Diese Material wurde verwendet, weil es aufgrund seiner geringen Viskosität mit bis zu 50 Gew.-% korrosionshemmenden Pigmenten (Zn-Staub bzw. Fe-Glimmer) beladen werden konnte. Als Prüfmedium wurde 800 ml destilliertes Wasser verwendet, das auf eine Temperatur von 70 °C erhitzt wurde. In Abb. 1 sind vier Beschichtungssysteme dargestellt, die in den Korrosionsversuchen untersucht wurden.

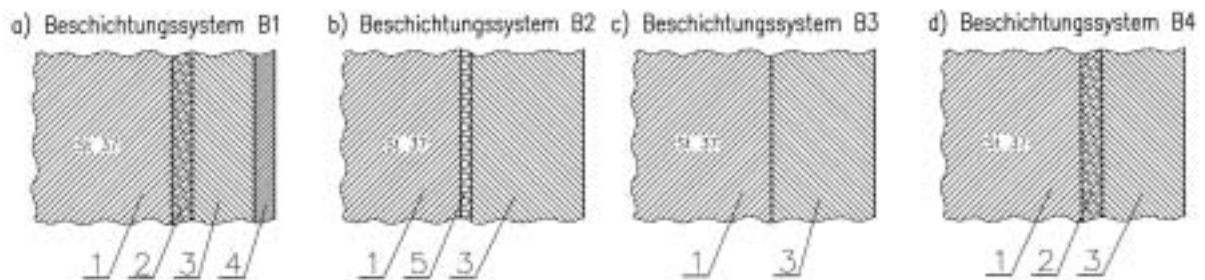


Abb. 1 Untersuchte Korrosionsbeschichtungssysteme; 1 - Stahl St 37, 2 - Silikon mit 50 Gew.-% Zn-Staub, 3 - Silikon ohne Pigmentierung, 4 - Silikon mit 50 Gew.-% Fe-Glimmer, 5 - Zinkfarbe

Abb. 1 a zeigt das Beschichtungssystem B1, das aus drei Silikonschichten besteht. Direkt am Stahl (1) befindet sich eine 1 mm dicke Silikonschicht (2), die durch Einrühren von Zn-Staub mit einem Anteil von 50 Gew.-% hergestellt wurde. Die Mittelschicht (3) ist 3 mm dick und besteht aus unpigmentiertem Polysiloxan. Das System ist mit einer 1 mm starken Deck- oder Sperrschicht (4) versehen, die einen Anteil von 50 Gew.-% Fe-Glimmer enthält. Für das zweite Beschichtungssystem B2 (Abb. 1 b) wurde eine handelsübliche Zinkfarbe-Beschichtung (5) (60 µm dick) verwendet, auf die eine 5 mm starke unpigmentierte Polysiloxanschicht (3) aufgetragen wurde. Der dritte Beschichtungsaufbau B3 (Abb. 1 c) besteht aus einer 5 mm starken Silikonschicht (3) ohne Korrosionspigmente, das zum Vergleich mit pigmentierten Beschichtungssystemen dient. Abb. 1 d stellt den Beschichtungsaufbau B4 dar, der eine 1 mm dicke Silikonschicht (2) mit einem Anteil von 50 Gew.-% an Zn-Staub und eine 4 mm starke Silikonbeschichtung (3) ohne zusätzlichen Korrosionspigmente enthält. Damit kann der Einfluss des Zn-Staubes bestimmt werden.

In Abb. 2 ist der Versuchsaufbau dargestellt. Für diese Untersuchungen wurde das Prüfgefäß (1) verwendet, in dem gleichzeitig zwölf Proben (2) untersucht werden konnten. Die Proben, in Gestalt von kleinen Plättchen, wurden in drei unterschiedlichen Höhen auf den Probehalter (3) aufgehängt. Sie befanden sich sowohl vollständig- und halbeingetaucht im Prüfmedium, als auch in der Gasphase oberhalb des Flüssigkeitsspiegels. Als Prüfmedium wurde 800 ml destilliertes Wasser verwendet, das auf eine Temperatur von 70 °C erhitzt wurde. Zur Konstanthaltung der Temperatur kam das Silikonbad zum Einsatz, in dem sich das Prüfgefäß (1) befand

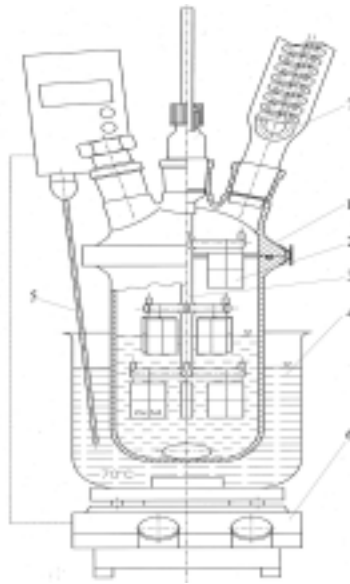


Abb. 2 Versuchsaufbau; 1 - Gefäß, 2 - Probe, 3 - Probehalter, 4 - Silikonöl, 5 - Temperatursensor, 6 - Magnetprüher, 7 - Rückflusskühler

Die Korrosionsversuche wurden insgesamt 140 Tage durchgeführt. Zur Beurteilung der Korrosionsprozesse erfolgte alle 35 Tage eine Probenahme, bei der die Beschichtungen und sich darunter befindenden Korrosionsprodukte entfernt wurden.

Die 5 mm dicken Polysiloxanbeschichtungen gewährleisteten einen Korrosionsschutz der in Wasser und in der Gasphase untersuchten Proben. Nach der Entfernung der Beschichtung wiesen die Stahlplättchen keine Korrosion auf. Eine deutliche Korrosion war aber bei den halbgetauchten Proben zu sehen. Die Stahloberfläche war zur Hälfte mit schwarzen und braunen Korrosionsprodukten bedeckt. Die Korrosion ist vor allem durch die unterschiedliche Belüftung entstanden. Die Stellen in sauerstoffarmer Umgebung, also unter Wasser liegende Zonen, sind Anoden und werden zerstört. In der Wasserlinie befinden sich Kathodenbezirke – Stellen mit höheren O_2 -Konzentrationen, die nicht korrodieren.

In Abb. 3 sind die zeitlichen Verläufe des flächenbezogenen Massenverlusts der halbgetauchten Proben mit den berechneten flächenbezogenen Massenverluststraten dargestellt.

Die ermittelten Massenverlust-Zeit-Kurven zeigen dass, die Korrosionsprozesse nach 140 Tagen kein Gleichgewicht erreicht haben. Daher kann der weitere Verlauf der Korrosion schwer abgeschätzt werden. Die Stahlplättchen unter den pigmentierten Silikonbeschichtungen wiesen einen kleineren flächenbezogenen Massenverlust auf, als die unter den unpigmentierten Silikonüberzügen. Dabei wurde festgestellt, dass die Anwesenheit von Zn-Staub den größten Einfluss auf die Verbesserung des Korrosionsschutzes ausübt. Das Beschichtungssystem, bei dem zusätzlich Fe-Glimmer verwendet wurde, wies einen nahezu identischen Massenverlust auf, wie das System ohne Fe-Glimmer. Der beste Korrosionsschutz wurde bei einem System festgestellt,

dass aus einer 60 mm dicken Zinkfarbe-Beschichtung und einer 5 mm starke Polysiloxanschicht bestand.

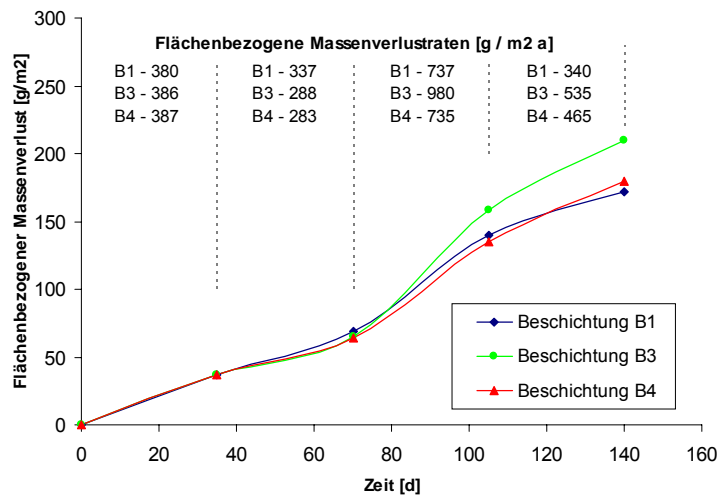


Abb. 3 Flächenbezogener Massenverlust der halbgetauchten Proben

Die durchgeführten Versuche kamen zu dem Ergebnis, dass die Polysiloxane keinen vollständigen Korrosionsschutz gewährleisten können. Es ist notwendig direkt an das Stahlsubstrat eine zusätzliche Beschichtung aus der Zinkfarbe aufzutragen, die mit dem Polysiloxanmaterial bedeckt wird. Abb. 4 zeigt ein Vorschlag für ein optimales Beschichtungssystem, das für den langzeitigen Korrosionsschutz geeignet sein könnte. Es besteht aus einer Zinkfarbe-Beschichtung (5), auf die eine 1 mm dicke mit Zn-Staub pigmentierte Polysiloxanschicht (2) aufgetragen wird. Die weitere unpigmentierte Silikonschicht mit einer Schichtdicke von 4 mm sollte für den mechanischen Schutz aufgebracht werden.

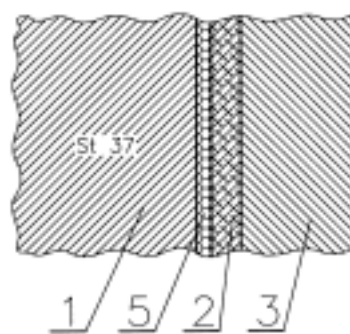


Abb. 4 Korrosionsschützendes Beschichtungssystem; 1 - Stahl St 37, 2 - Silikon mit 50 Gew-% Zn-Staub, 3 - Silikon ohne Pigmentierung, 5 - Zinkfarbe

Determination of long lived radionuclides at ultratrace level using advanced mass spectrometric techniques

Myroslav V. Zoriy^{1,2}, P. Ostapczuk², C. Pickhardt¹ and J.S.Becker¹

¹Central Department of Analytical Chemistry, Research Centre Juelich,
D-52425 Juelich, Germany

²Department for Safety and Radiation Protection

The precise and accurate determination of concentration as well as isotope ratios of long-lived natural and artificial radionuclides is required for different application[1]. Inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) with its ability to provide the sensitive and fast multielemental analysis is one of the most suitable method for the measurements of long lived radionuclides in the trace and ultra trace concentration range[2].

In present study a variety of procedures have been developed permitting the sub fg ml⁻¹ determination of long-lived radionuclides (e.g. U, Th, Pu, ²²⁶Ra and ⁹⁰Sr (T_{1/2}= in different samples at fg ml⁻¹ concentration range. In order to avoid influence of isobaric interferences, increase the sensitivity, precision and accuracy of the methods, the application of different techniques: pre-concentration of the sample, of-line separation on the crown resin, cold plasma conditions, using microconcentric nebulizers (e. g DIHEN, DS-5) or LA-ICP-MS have been studied.

This presentation will discuss the latest results on the determination of long lived radionuclides at ultratrace level using developed mass-spectrometric techniques

[1] J.S. Becker, Spectroch. Acta B, 58 (2003) 1757-1784.

[2] J.S. Becker, H.-J. Dietze, Fresenius J. Anal. Chem., 368(1) (2000) 23-30.

EXPERIMENTAL INVESTIGATIONS ON FLOW REVERSAL IN STRATIFIED HORIZONTAL FLOW

Thomas Stäbler, Thomas Schulenberg, Leonhard Meyer
Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
P.O. Box 3640
D-76021 Karlsruhe, Germany
Tel: +49 7247 82 3494, Fax: +49 7247 82 6323
Thomas.Staebler@iket.fzk.de

ABSTRACT

With application to the Emergency Core Cooling System (ECCS) in Pressurized Water Reactors (PWR) the phenomena of flow reversal in stratified flow is investigated in a horizontal channel. In case of a Loss-of-Coolant-Accident (LOCA) coolant is injected through a secondary pipe, the so called Hot Leg, counter-current to the steam flow. To guarantee coolability it is essential that the coolant reaches the reactor core. Due to high temperatures in such accident scenarios steam is generated, which escapes from the reactor core vessel through the Hot Leg. In case of sufficiently high steam flow rates only a reduced amount of coolant or even no coolant will be delivered to the reactor core.

The WENKA test facility at the *Institute for Nuclear and Energy Technologies (IKET)* at *Forschungszentrum Karlsruhe* is capable to investigate the fluid dynamics of two-phase flows in such scenarios. Water and air flow counter-currently in a horizontal channel made of clear acrylic glass to allow full optical access. Once flow reversal sets in a strong hysteresis effect can be observed. In order to quantify this phenomenon, available flow regime maps have been extended. Due to recent improvements at the test facility, lines of constant backflows are added to the flow regime maps. Measurements by means of Particle Image Velocimetry (PIV) provide local flow velocities for different flow conditions. Results will be compared and discussed in detail allowing a better fundamental understanding of the phenomena of flow reversal.

EXPERIMENTAL INVESTIGATIONS ON FLOW REVERSAL IN STRATIFIED HORIZONTAL FLOW

Thomas Stäbler, Thomas Schulenberg, Leonhard Meyer
Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
P.O. Box 3640
D-76021 Karlsruhe, Germany
Tel: +49 7247 82 3494, Fax: +49 7247 82 6323
Thomas.Staebler@iket.fzk.de

INTRODUCTION

In case of a Loss-of-coolant-Accident (LOCA) in Pressurized Water Reactors (PWR) it is essential that the coolability of the reactor core can be assured. During such a scenario coolant is injected by the Emergency Core Cooling System (ECCS). The coolant can be injected through a secondary pipe within the feeding line of the primary circuit, the so called Hot Leg. It is indispensable that the coolant reaches the reactor core. Due to high temperatures within the core, steam will be generated. The steam escapes from the reactor core vessel through the Hot Leg counter-current to the injected coolant. In case of sufficiently high steam flow rates, only a reduced amount of coolant or even no coolant will be delivered to the reactor core. This phenomenon is referred to as flow reversal.

There are still few experimental data available for flow reversal during hot leg injection in PWRs. In order to extend appropriate models on flow reversal in horizontal two-phase flow and to include them into numerical codes, local experimental data are needed. The WENKA test facility at the *Institute for Nuclear and Energy Technologies (IKET)* at *Forschungszentrum Karlsruhe* is capable to investigate the fluid dynamics of two-phase flows in such scenarios. In the ongoing investigations water and air have been used as cold simulants for cooling water and steam. The simulants flow counter-currently in a horizontal channel with a geometry analogous to that of a PWR hot leg. To allow full optical access the experimental channel was made of clear acrylic glass. For the present investigations the test facility has been extended to quantify liquid delivery rates with high accuracy within a wide range of parameters.

EXPERIMENTAL FACILITY

The WENKA test facility (Figure 1) is used to conduct investigations in countercurrent horizontal two phase flows. For the present investigations water and air are used as simulants. Water is circulating in a closed loop and air in an open loop.

Water is pumped from a primary tank (capacity 600 litres) by a centrifugal pump. Before the water enters the experimental channel through a parallel plate, liquid flow rates are measured by two independent flow meters. The plate can be set manually to heights between 2 and 22 mm. Finally, the water returns to the primary tank through the water outlet.

The countercurrent flow of air is induced to the inlet path by a blower, whereby it enters the experimental channel above a manually adjustable inlet plate. The air enters the area of interest smoothly and accurate boundary conditions can be assured. Under the condition of reversed flow, a certain portion of water is carried back over the water inlet plate by the countercurrent flow of air. The two phases are separated again by a cyclone upstream the experimental channel. Finally, the air is released to the atmosphere again. The separated water flows down into a secondary tank. For the present investigations the test facility has been extended by a secondary water loop which connects the secondary tank to the primary tank. Any change of height in the secondary water tank is measured by a capacity level probe. A PID control circuit controls a pump, which conducts the exact amount of water reaching the secondary water tank coming from the cyclone. Subsequently, water flow rates are measured through a system of independent flow meters. Backflow ratios can then be calculated by dividing the amount of water measured in the secondary water loop by the amount of initially injected water into the experimental channel.

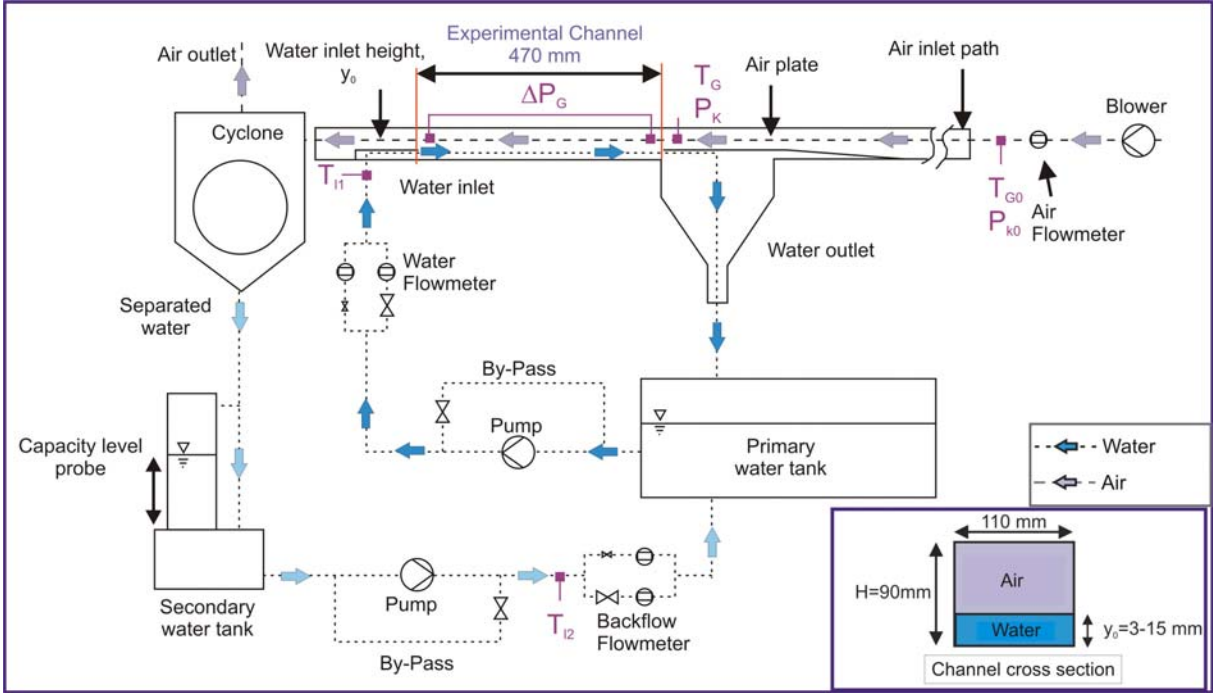


Figure 1: Schematic diagram of the WENKA test facility

The area of interest of the test facility is the experimental channel, where air and water meet. The channel has a cross section of 90 x 110 mm² and a length of 470 mm. It was made of clear acrylic glass to allow full optical access.

EXPERIMENTAL RESULTS AND DISCUSSION

Throughout the present investigations, flow regime maps (Gargallo, 2004) have been extended: As a strong hysteresis must be taken into account once flow reversal sets in, the hysteresis zone was quantified during the present investigations. Due to

recent improvements at the test facility it is possible to measure backflow ratios with high accuracy. Lines of constant backflow ratios were determined. As a result of the present investigations the conditions at any point within the flow regime map are well-defined. Using these extended flow regime maps, no special procedure is needed to approach any specific point.

Furthermore, the effect of changing the height of the air-inlet plate while keeping the height of the water inlet plate constant was investigated. Small deviations in the air inlet geometry do not influence the transitions between the different flow regimes. Only for higher deviations the onset of totally reversed flow changes, especially if the air inlet area is increased.

Local flow velocities were obtained by using Particle Image Velocimetry (PIV). Glass hollow spheres with a diameter $d_P < 50\mu\text{m}$ were used as seeding particles for the liquid phase. Illumination of the liquid flow has been realised from the bottom of the test section to ensure uniform brightness within the flow field. The obtained velocity vector plots were averaged over 100 instantaneous images.

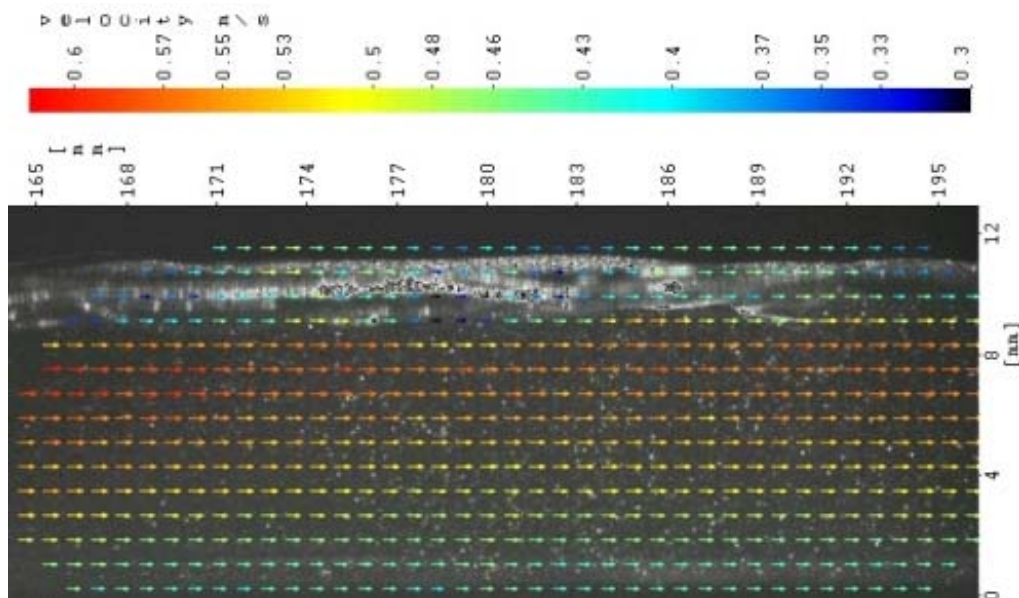


Figure 2: Velocity field of supercritical flow ($Fr > 1$)

Figure 2 shows the velocity field of a supercritical flow ($Fr > 1$). The background shows an instantaneous arbitrary chosen image of the recorded particles within the liquid phase. Air flows counter-current to the liquid in the upper region where no particles can be seen. Due to the change in refractive index between the two phases, a ligament with reflections can clearly be seen at the liquid surface. Thus, the error in the velocity vectors near the interfacial area is much higher than the error in velocity vectors in regions not affected by reflections. This problem increases significantly when investigating flow reversal, due to subcritical waves with high amplitudes.

As a solution, further investigations are carried out using red fluorescent particles ($d_P < 50\mu\text{m}$). The wavelengths of the light emitted from these particles ($\lambda_{em,max}=584\text{nm}$)

are longer than the wavelength emitted by the Nd:YAG lasers ($\lambda_{em}=532\text{nm}$). Consequently, an optical band-pass filter in front of the camera can be used to eliminate the reflections at the liquid surface, as shown in Figure 3.

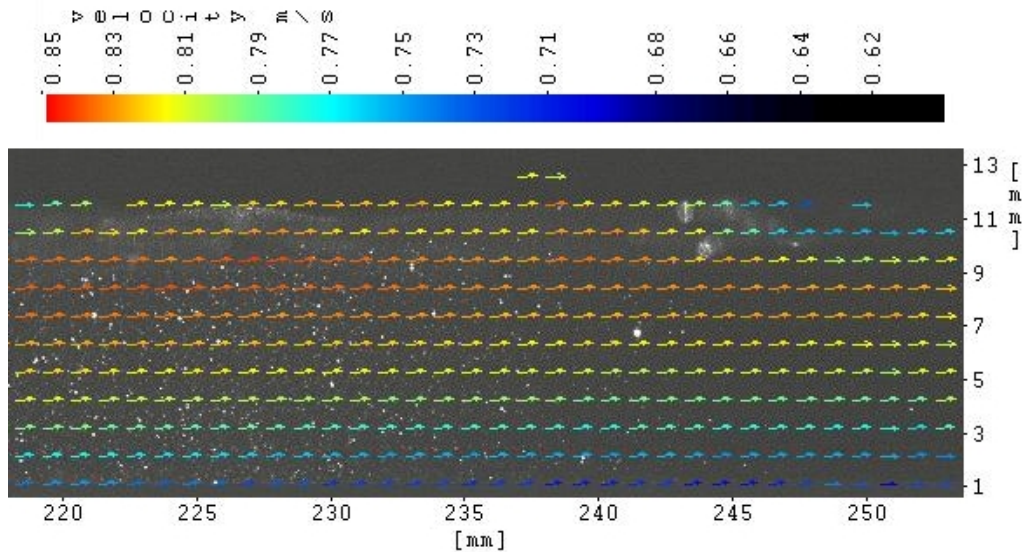


Figure 3: Velocity field of supercritical flow using fluorescent particles.

CONCLUSIONS

There is still few experimental data available for the phenomenon of flow reversal during hot leg injection. The WENKA test facility is capable to investigate the fluid dynamics of two-phase flows in such scenarios.

The results of the present and ongoing investigations allow a better fundamental understanding of the phenomenon of flow reversal in horizontal two-phase flows. Due to the recent improvements of the test facility, backflow ratios can be measured with high accuracy and can even be used as constraints. The extended flow regime maps effect a much easier handling of future experiments due to a more sophisticated knowledge of the present flow conditions.

The difficulties with reflections at the liquid surface when applying laser-optical measurement techniques in stratified two-phase flows could be solved using fluorescent particles and an optical band-pass filter in front of the camera. In order to regulate the particle density needed for the various experimental conditions, a dosing pump will be installed shortly. Thus, also the problem of falling particles (due to their higher density compared to that of water) can be reduced significantly.

REFERENCES

Gargallo, M. 2004. *Countercurrent Flow Limitations in Horizontal Stratified Flows of Air and Water*. Ph. D. thesis, University of Stuttgart.

Entwicklung und Validierung eines Phasen- Wechselwirkungsmodells für Schichtenströmungen in horizontalen Kanälen

Thomas Wintterle, Eckart Laurien
University of Stuttgart, Institute for Nuclear Technology and Energy Systems (IKE),
Pfaffenwaldring 31, D-70569 Stuttgart, Germany
wintterle@ike.uni-stuttgart.de , laurien@ike.uni-stuttgart.de

Übersicht

In dieser Arbeit werden die auftretenden thermohydraulischen Phänomene der Einspeisung in den heißen Strang während eines Kühlmittelverlust-Störfalles numerisch untersucht. Dieser Störfall tritt z.B. bei einem Bruch der Hauptkühlmittelleitung eines Druckwasserreaktors auf. Wenn eingespeistes Kühlmittel und austretender Dampf sich im Gegenstrom befinden, kann es im heißen Strang zur teilweisen Strömungsumkehr kommen. Hierbei ist der Lieferungsgrad von kaltem Fluid für die Kühlung des Kerns entscheidend und direkt abhängig von dem wieder ausströmenden Dampfmassenstrom. Bei geringen Dampfgeschwindigkeiten im heißen Strang tritt eine schießende Strömung auf. Dabei ist der Einfluss auf den Lieferungsgrad von kaltem Fluid vernachlässigbar. Hingegen bei höheren Dampfgeschwindigkeiten kommt es zu einem hydraulischen Sprung der bei noch größeren Dampfgeschwindigkeit in einer partiellen oder totalen Strömungsumkehr endet. Diese Strömungsphänomene können mit dem WENKA Versuchsstand experimentell abgefahren werden.

Die Simulation solcher Strömungsphänomene bedarf eines Phasenwechselwirkungsmodells zwischen der gasförmigen und der flüssigen Phase, da dieses den Strömungscharakter, ob schießend oder mit partieller bzw. totaler Strömungsumkehr, maßgeblich beeinflusst. Dazu wird in dieser Arbeit ein Phasenwechselwirkungsmodell entwickelt und anhand der experimentellen Daten des WENKA Versuchsstandes validiert. Es soll gezeigt werden, dass dieses Modell die verschiedenen thermohydraulischen Strömungszustände simulieren kann. Später soll es auf eine realtypische Geometrie des heißen Stranges angewendet werden. In dieser Arbeit wird der numerisch berechnete hydraulische Sprung, der sich aus dem Phasenwechselwirkungsmechanismus ergibt, diskutiert.

Entwicklung und Validierung eines Phasenwechselwirkungsmodells für Schichtenströmungen in horizontalen Kanälen

Thomas Wintterle, Eckart Laurien
University of Stuttgart, Institute for Nuclear Technology and Energy Systems (IKE),
Pfaffenwaldring 31, D-70569 Stuttgart, Germany
wintterle@ike.uni-stuttgart.de , laurien@ike.uni-stuttgart.de

Übersicht

Ziel ist es die verschiedenen Strömungszustände bei Einspeisung in den heißen Strang mit einem Phasenwechselwirkungsmodell numerisch zu simulieren. Das Modell wird in einem ersten Schritt anhand von Experimenten im WENKA Versuchstand des FZ-Karlsruhe getestet. Dabei wird der hydraulische Sprung simuliert, der den Übergang von schießender Strömung zur partiellen Strömungsumkehr einleitet.

1. Einleitung

In dieser Arbeit werden die auftretenden thermohydraulischen Phänomene der Einspeisung in den heißen Strang während eines Kühlmittelverlust-Störfalles numerisch untersucht. Dieser Störfall tritt z.B. bei einem Bruch der Hauptkühlmittelleitung eines Druckwasserreaktors auf. Wenn eingespeistes Kühlmittel und austretender Dampf sich im Gegenstrom befinden, kann es im heißen Strang zur teilweisen Strömungsumkehr kommen. Hierbei ist der Lieferungsgrad (Verhältnis eingespeistes Kühlmittel zu tatsächlich im Kern ankommendem) für die Kühlung des Kerns entscheidend und direkt abhängig von dem wieder ausströmenden Dampfmassenstrom.

Bei Schichtenströmungen strömt das leichtere Fluid, also heißer Dampf, über dem schwereren und die Wechselwirkung an der Oberfläche findet durch Impulsaustausch statt. Im heißen Strang können sich vier verschiedene Strömungszustände einstellen, welche sich u.a. durch die lokale Froude-Zahl (Verhältnis zwischen Trägheitskräften und Schwerkraft, siehe [1-3]) unterscheiden (siehe Abb. 1). Wie Abb. 1a für den Fall der schießenden Strömung zeigt, ist die Dampfgeschwindigkeit zu gering, um eine Reduktion des Massenstroms in den Kern zu erzwingen. Aufgrund der Reibung an der Oberfläche nimmt die Schichthöhe h des Wassers vom Eintritt bis zum Austritt zu. Dies bedeutet gleichzeitig eine Erniedrigung der lokalen Froude-Zahl. Erreicht diese den Wert eins, so tritt ein hydraulischer Sprung auf. Dieser ist in Abb. 1b gezeigt. Erhöht sich die Dampfgeschwindigkeit weiter, tritt der Fall der partiellen Strömungsumkehr ein (Abb. 1c). Ab diesem Strömungszustand nimmt gleichzeitig der Massenstrom, der nach rechts zum Reaktorkern fließt, ab. Bei sehr hohem Dampfmassenstrom kommt es zu einer totalen Strömungsumkehr und einem Abreißen des Kühlmittelmassenstroms zum Kern (Abb. 1d). Dies kann eine teilweise oder vollständige Freilegung des Kerns zur Folge haben. Je nach Strömungsbedingungen kann die Phasenwechselwirkung an

einer glatten oder welligen Oberfläche wie auch innerhalb eines ausgedehnten turbulenten Vermischungsgebietes stattfinden.

Experimentelle Untersuchungen zu den Übergängen zwischen den unterschiedlichen Strömungszuständen im heißen Strang wurden im WENKA-Versuchsstand des FZ-Karlsruhe von Gargallo-Gallego [4] untersucht. In dieser Arbeit wurden die Kriterien für das Einsetzen der Strömungsumkehr angegeben und erste Messungen des Massenstroms bei partieller Strömungsumkehr durchgeführt. Diese Untersuchungen werden derzeit fortgesetzt.

Am WENKA Versuchstand lässt sich die Einlasshöhe und der Volumenstrom von Wasser und Luft (anstelle von Dampf) in einem weiten Bereich variieren. Da jedoch die Versuchsstrecke von der Geometrie und Größe eines realen heißen Stranges abweicht, ist es erforderlich ein Simulationsmodell zu entwickeln.

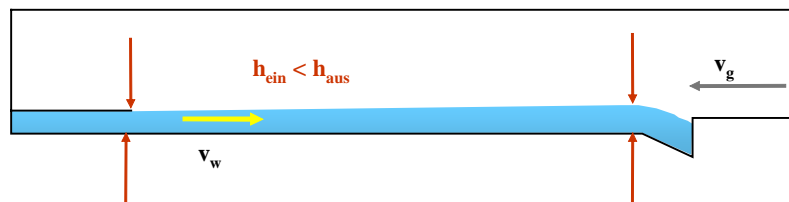


Abb. 1a: Schließende Strömung $Fr > 1$

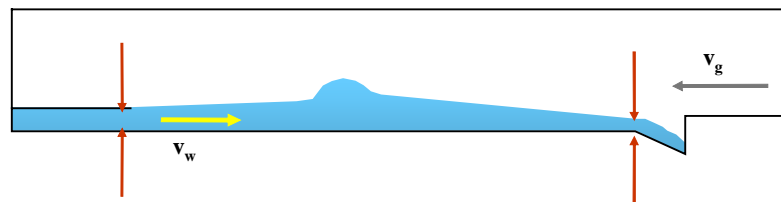


Abb. 1b: Hydraulischer Sprung $Fr = 1$

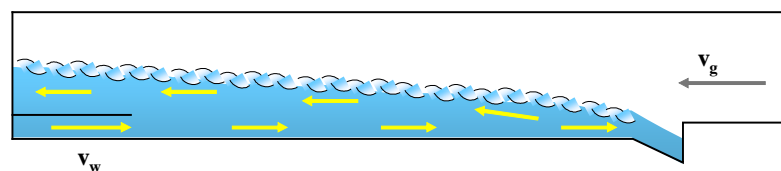


Abb. 1c: Partielle Strömungsumkehr

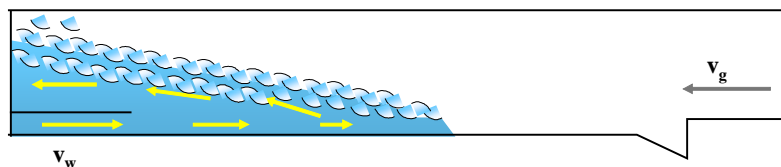


Abb. 1d: Totale Strömungsumkehr

Die Simulation derartiger Strömungsphänomene bedarf eines Phasenwechselwirkungsmodells zwischen der gasförmigen und der flüssigen Phase, da dieses den Strömungscharakter, ob schließend oder mit partieller bzw. totaler Strömungsumkehr, maßgeblich beeinflusst. Dies wird in dieser Arbeit entwickelt und anhand der experimentellen Daten des WENKA Versuchsstandes validiert. Es soll gezeigt

werden, dass das neue Modell die verschiedenen thermohydraulischen Strömungszustände simulieren kann. In dem vorliegenden Beitrag wird zunächst der numerisch berechnete hydraulische Sprung, der sich aus dem Phasenwechselwirkungsmechanismus ergibt, diskutiert.

2. Phasenwechselwirkungsmodell

Bei schießenden Strömungen beobachtet man die sogenannten Kelvin-Helmholtz Instabilitäten, die sich auf der Oberfläche stromab ausbreiten. Die Amplituden dieser Oberflächenwellen sind in einem weiten Bereich unabhängig von den entgegengerichteten Strömungsgeschwindigkeiten. Lakehal [5] untersucht Oberflächenwellen anhand von DNS Rechnungen und Strubelj [6] betrachtet in seiner Arbeit die Kelvin-Helmholtz Instabilitäten an einem Kanalauschnitt. Da sich Oberflächenwellen nur mit sehr feinen Gittern oder DNS Rechnungen simulieren lassen, können diese in realen Geometrien nur statistisch gemittelt modelliert werden. Aus diesem Grund wird die Oberfläche numerisch verschmiert. Dabei wird eine normal zur Oberfläche wirkende Kraft F_S verwendet, die proportional zur Größe des Gradienten des lokalen Gasgehalts α_G ist.

$$F_S = C \cdot \nabla \alpha_G \quad (1)$$

In dem sich einstellenden Bereich der Verschmierung muss nun die Physik für die Kräfte der Phasenwechselwirkung modelliert werden. Dazu wird der folgende Ansatz verwendet,

$$\tau_i = \lambda_i \frac{\rho_G}{2} \vec{u}_{rel} \quad (2)$$

wobei τ_i die Schubspannung an der Phasengrenzfläche, λ_i der Reibungsbeiwert und \vec{u}_{rel} die Relativgeschwindigkeit der beiden Phasen ist. In der Literatur finden sich weitergehende Korrelationen für den Reibungsbeiwert an der Phasengrenzfläche. So findet man z.B. in Wang und Mayinger [7] oder in Gargallo-Gallego [4] einige Korrelationen für den Reibungsbeiwert λ_i .

Mit zunehmender Gasgeschwindigkeit geht die schießende Strömung über den hydraulischen Sprung über in eine Strömung mit partieller Strömungsumkehr. Die Oberfläche wird durch die erhöhte Gasgeschwindigkeit rauer und turbulent bis es zu vereinzelter Tropfenbildung und -mitriss kommt. Dies kann durch einen erhöhten numerischen Dispersionsfaktor C in Gl. (1) berücksichtigt werden.

3. Numerische Methode

Für die Berechnung wird das Zwei-Fluid-Modell des Strömungscodes CFX 5.7 verwendet. Dieser basiert auf einer Finiten Volumen Methode. Für die Modellierung der Phasenaustauschterme wird das Mischungsmodell und für die Phasenwechselwirkung eigene entwickelte User Fortran Routinen verwendet. Die Turbulenz wird mit Hilfe des $k - \varepsilon$ Modells modelliert.

4. Ergebnisse

Das Modell wird anhand der experimentellen Daten, die mit dem WENKA Versuchstand gewonnen werden und gewonnen wurden [4] validiert. Diese dienen in ersten Testrechnungen für das numerische Modell als Vergleichsdaten. So wurde der Fall einer Einlasshöhe von 9 mm mit $Fr=2.3$ für Wasser gewählt. Dabei wurde die Einströmgeschwindigkeit des Gases als auch des Reibungsbeiwertes λ_i variiert. Abbildung. 2 zeigt für diesen Fall den hydraulischen Sprung. Weiterhin wurde für diese Rechnung ein konstanter Dispersionsfaktor C verwendet.

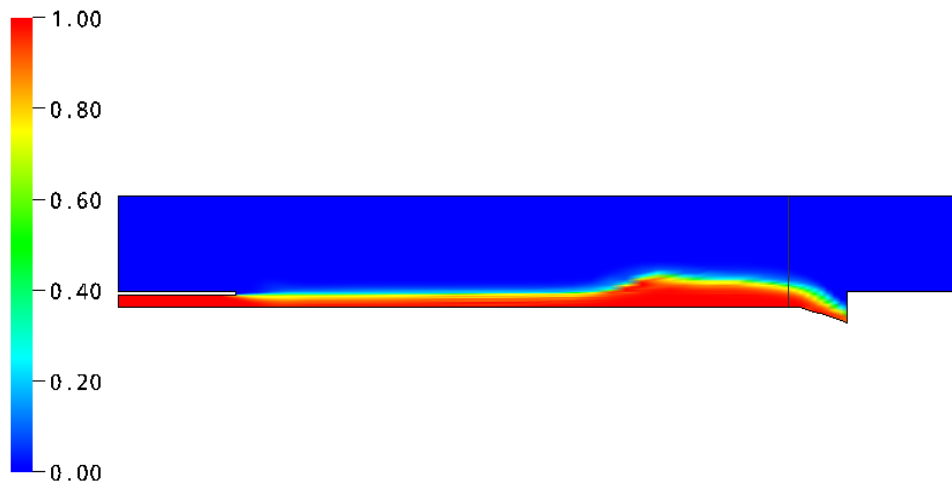


Abb.2: Hydraulischer Sprung

5. Ausblick

In einem weiteren Schritt soll das turbulente Phasenwechselwirkungsgebiet für die partielle und totale Strömungsumkehr numerisch untersucht und mit Hilfe der Messdaten des WENKA Versuchstandes validiert werden. Später soll das Modell auf eine realtypische Geometrie des heißen Stranges angewendet werden.

6. Literatur

- [1] Chanson, H., The Hydraulics of Open Channel Flow: An Introduction, Elsevier, Amsterdam, Boston, London, 2004
- [2] Zanke, U.C.E., Hydromechanik der Gerinne und Küstengewässer, Parey Buchverlag, Berlin 2002
- [3] Truckenbrodt, E., Fluidmechanik, Springer, Berlin, Heidelberg, 1996
- [4] Gargallo, M.G.: Countercurrent Flow Limitations in Horizontal Stratified Flows of Air and Water, Dissertation Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, 2004
- [5] Lakehal, D., DNS and LES of Turbulent Multifluid Flows, 3rd International Symposium on Two-Phase Flow Modelling and Experimentations, Pisa, Italy, 22-24 September 2004
- [6] Stefan, J., CFX Simulation of Kelvin-Helmholtz Instability, Multiphase Flow: Simulation, Experiments and Applications, Dresden, Germany, June 2004
- [7] Wang, M.J., Mayinger, F., Simulation and analysis of thermal-hydraulic phenomena in a PWR hot leg related to SBLOCA

Aspekte der wärmetechnischen Auslegung innovativer Brennelemente
S.Kruger, A.Aygozhiev, D.Knoche, A.Zucker
RWTH, Lehrstuhl für Reaktorsicherheit und -technik

Abstract

Anhand von mit dem Programm WIMSD ermittelten Temperaturkoeffizienten werden mit punktkinetischem Modell schnelle Reaktivitätstransienten modelliert. Dabei werden drei Brennstoffkonzepte betrachtet: konventioneller UO_2 -Brennstoff, Brennstoff mit SiC-Hüllrohr, Dispersionsbrennstoff. Maximal erreichbaren Brennstofftemperaturen im Heißkanal und im Brennstoff freigesetzte Energie während der Transiente werden für jedes Brennstoffkonzept abgeschätzt. Die Ergebnisse für einzelne Konzepte werden miteinander und mit jeweiligen Rechenergebnissen von DYN3D Programm verglichen.

Aspekte der wärmetechnischen Auslegung innovativer Brennelemente

S.Kruger, A.Aygozhiev, D.Knoche, A.Zucker
RWTH, Lehrstuhl für Reaktorsicherheit und -technik

Compact

1. Einleitung

Bei nuklearen Transienten kommt es zur Freisetzung großer Mengen an Energie, was zu einer Erwärmung des Brennstoffs führt. Dabei ist es hinsichtlich der Reaktorsicherheit wichtig, diese Energie zu begrenzen, abzuführen oder zu speichern. Dafür werden hier einige Brennstabkonzepte untersucht, die dieses Ziel ermöglichen können.

2. Problemstellung

Die wichtigsten Parameter bei Betrachtung von Wärmetransport im Brennstoff sind die spezifische Wärmekapazität (Speicherung), Wärmeleitfähigkeit (Abfuhr) oder Geometrie bzw. Leistungsdichte (Begrenzung). Es sind solche Materialien auszuwählen, die möglichst günstigere Bedingungen der Wärmebelastung des Stabes während der Transiente ermöglichen.

3. Lösungswege

In Abb.1 sind angenommene Brennstabkonzepte und einige Maße für die folgenden Rechnungen angegeben.

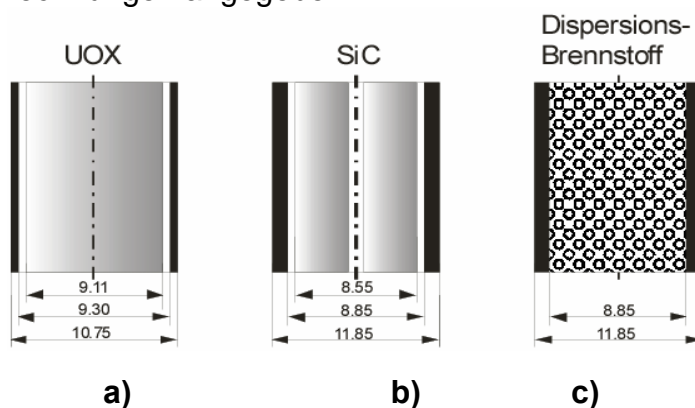


Abb.1 Brennstabvarianten, die in den folgenden Untersuchungen behandelt werden

- Bezugsbrennstab (konventioneller Brennstab von Konvoireaktoren mit UO₂-Pellets)
- Hohlpellets aus UO₂ mit SiC-Canning
- Dispersionsbrennstoff

Die geometrischen Parameter sind so gewählt, dass sämtliche Temperatur- und Moderator-koeffizienten stets negativ bleiben. Eine grundlegende Annahme bei allen Rechnungen ist die Beibehaltung der Reaktorleistung und der Basisdaten der Kerngeometrie. Die Zahl der Brennelemente und der Brennstäbe wurde konstant gehalten und damit ist auch die mittlere lineare Stableistung unverändert hoch.

Um die effektive Wärmeleitfähigkeit des Dispersionsbrennstoffes zu berechnen, ist zuerst ein Modell dieses Brennstoffes zu erstellen. Man muss dabei von der realen Struktur zu einer idealisierten Struktur übergehen, die besser für numerische Untersuchungen geeignet ist. Dieser Übergang schließt zwei Aspekte ein:

- Geometrischer Aspekt:** Hier wird anstatt einer realistischen, stochastischen Verteilung der Brennstoffpartikeln in der Dispersionsmatrix eine regelmäßige Anordnung betrachtet.
- Physikalischer Aspekt:** Hier wird anstatt realer Dispersionsbrennstäbe mit Wärmefreisetzung in den Brennstoffpartikeln, die in der Matrix dispergiert sind, ein kubisches, mit dem Dispersionsbrennstoff gefülltes Volumen betrachtet. In den Brennstoffpartikeln, die dieser Kubus enthält, wird Wärme nicht frei, aber in

zwei gegenüberliegenden Flächen von diesem Kubus, werden unterschiedliche Temperaturen festgelegt. Durch Temperaturdifferenz entsteht der Wärmestrom durch den Kubus, der mit dem FEM-Programm ANSYS, in der Version 8.0 berechnet wird. Die übrigen Kubusflächen werden mit adiabatischen Randbedingungen versetzt.

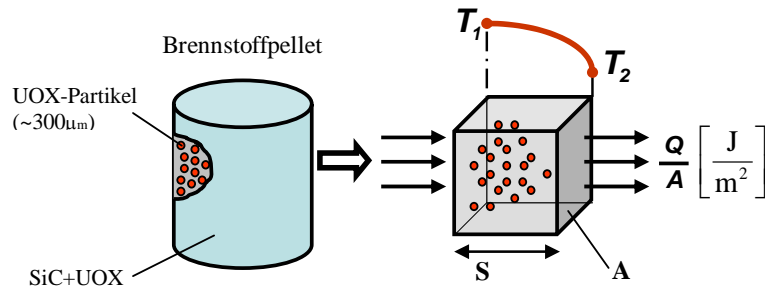


Abb.2 Modell zur Ermittlung einer Effektiven Wärmeleitfähigkeit im Dispersionsbrennstoff

Zur Modellierung der nuklearen Transienten wurde ein punktkinetisches Modell zugrunde gelegt [1]. Die Neutronen Bilanz wird mit der folgenden Integro-Differenzialgleichung, in der die verzögerten Neutronen in 6 Gruppen berücksichtigt werden, beschrieben.

$$\Lambda \frac{d}{dt} n(t) = [\rho(t) - \beta_{\text{eff}}] n(t) + \sum_i \beta_{\text{eff},i} \int_{t'=-\infty}^{t'=t} n(t') \lambda_i e^{-\lambda_i(t-t')} dt'$$

Die Reaktivität $\rho(t)$ setzt sich dabei zusammen aus einer von außen zugeführten Reaktivität $\rho_{\text{ext}}(t)$ und einer inneren Reaktivität $\rho_{\text{int}}(t)$, die vom Moderatorkoeffizienten und Brennstofftemperaturkoeffizienten bestimmt wird. Die gesamte Reaktivität ergibt sich damit zu: $\rho(t) = \rho_{\text{ext}}(t) + \rho_{\text{int}}(t)$ mit $\rho_{\text{int}}(t) = \Gamma_{\text{TB}} [T_{\text{B}}(t) - T_{\text{B0}}] + \Gamma_{\text{TK}} [T_{\text{K}}(t) - T_{\text{K0}}]$. Der Index B bezieht sich auf den Brennstoff, K auf den Moderator. Die Brennstofftemperatur und die Kühlmitteltemperatur werden aus Energiebilanzgleichungen ermittelt. Es wird angenommen, dass einem heißen Core bei Null Leistung eine Reaktivität von 1.5\$ zugeführt wird. Freier Parameter ist die Zeit, in der diese Reaktivität dem Reaktor zugeführt wird. Sie wurde hier von 0,1 bis 0.9 Sekunden variiert.

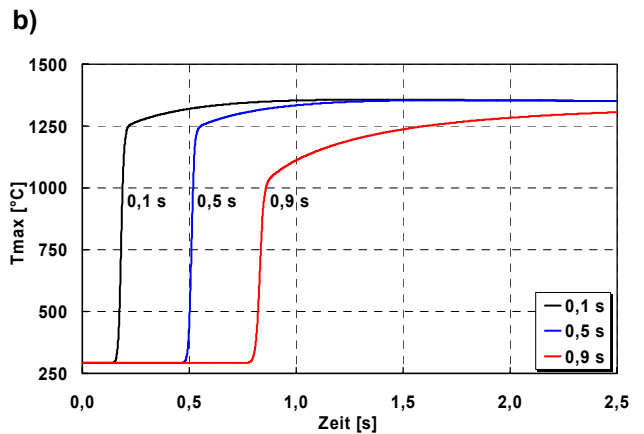
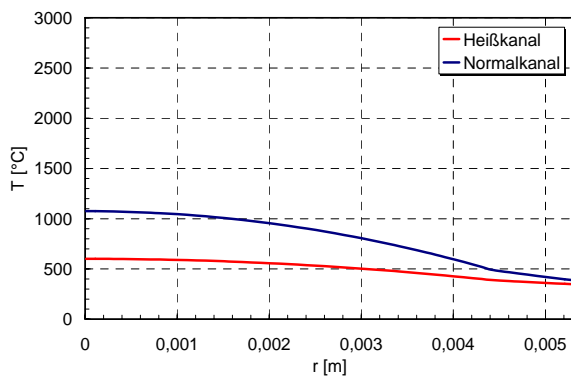
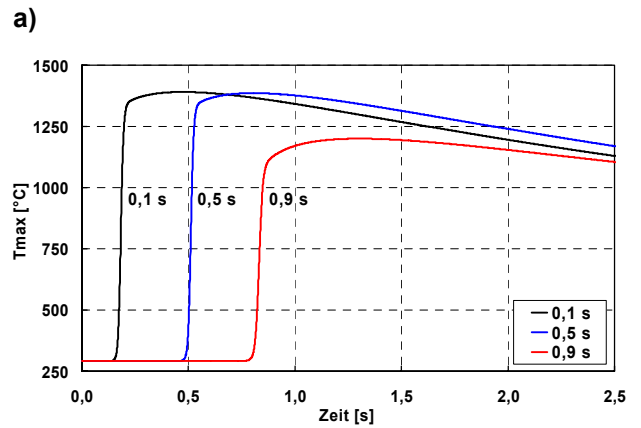
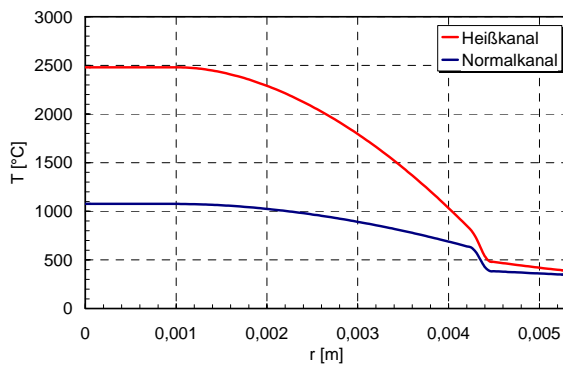
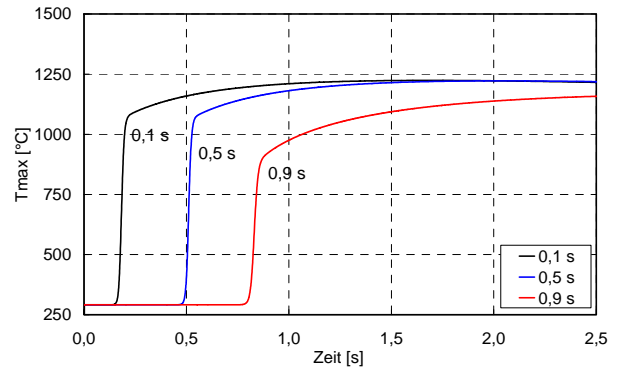
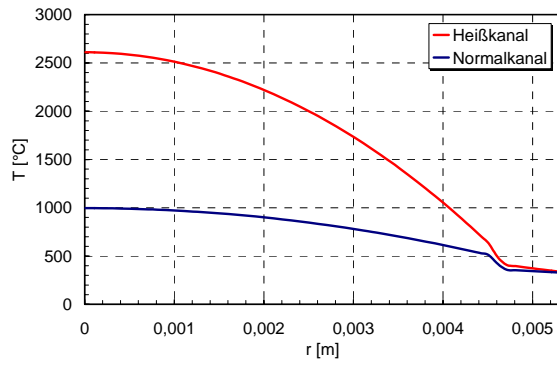
4. Erzielte Ergebnisse

Die Berechnungsergebnisse von λ_{eff} des Dispersionsbrennstoffes sind in Tab.1 zusammengestellt.

Die Abb.3 a) bis c) zeigen die radiale Abhängigkeit der Temperaturverteilungen in den verschiedenen Brennstäben unter stationären Bedingungen gestellt.

Während der Transiente auftretende maximale Brennstofftemperaturen sind in Abb.4 angegeben.

Abb.5 zeigt im Vergleich die Reaktivitäts- und die Brennstofftemperaturverläufe berechnet mit dem punktkinetischen Modell und mit dem dreidimensionalen Programm DYN3D.

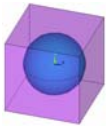
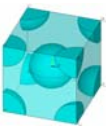
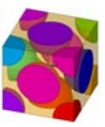
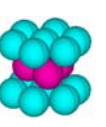


c)

Abb.3 Verlauf der radialen Temperaturen in verschiedenen Brennstabkonzepten

Abb.4 Aspekte bei Reaktivitätstransienten entsprechend einem punktkinetischem Modell: Maximale Brennstofftemperatur im Heißkanal in Abhängigkeit von der Zeit und von der Dauer des Reaktivitätseintrages (Reaktivitätseintrag von $1,5 \beta_{\text{eff}}$ linear in 0,1s; 0,5s; 0,9s eingeführt)

- a) UO_2 -Brennstoff mit Zirkaloy-Canning
- b) UO_2 -Brennstoff mit SiC-Canning
- c) Dispersionsbrennstoff

Art der Packung der Brennstoffpartikel (Elementarzelle)	Primitive	Innenzentrierte	Kubisch-dichteste	Hexagonal-dichteste
				
Brennstoffanteil %	60	60	60	60
$\lambda_{\text{eff}}, \frac{\text{W}}{\text{mK}}$	7.11	7.38	7.52	-

Tab.1 λ_{eff} der verschiedenen Packungstypen von Dispersionsbrennstoff. (UO₂: 60%, SiC: 40 %, $\lambda_{\text{UO}_2} = 3,3\text{W/mK}$, $\lambda_{\text{SiC}}=20\text{ W/mK}$)

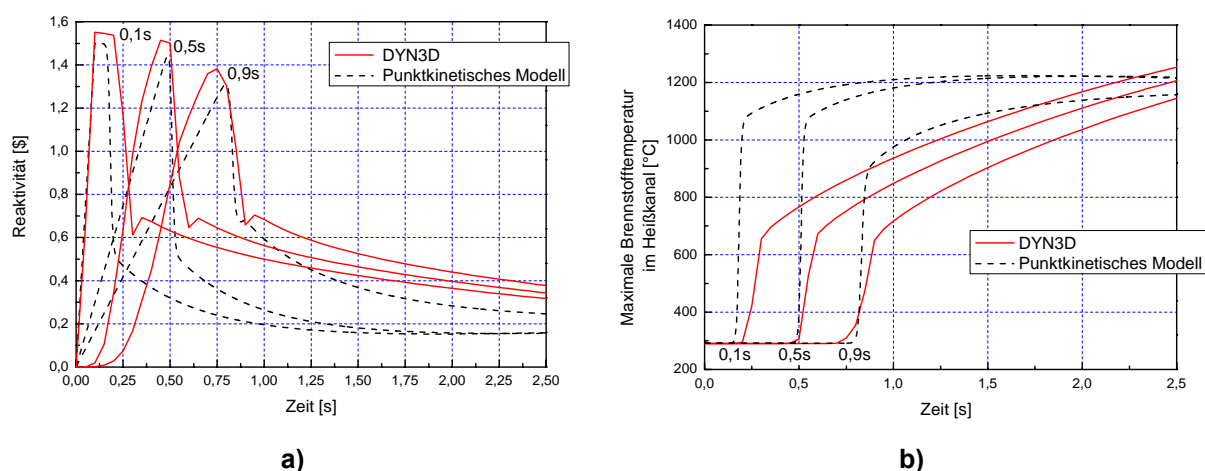


Abb.5 Vergleich zweier Rechenmethoden: DYN3D und Punktkinetisches Modell. Abhängigkeit von der Zeit und von der Dauer des Reaktivitätseintrages (0,1s; 0,5s; 0,9s, UOX-Brennstoff)
a) Verlauf der gesamten Reaktivität
b) Verlauf der maximalen Brennstofftemperatur im Heißkanal

5. Schlussfolgerungen

- Die effektive Wärmeleitfähigkeit von Dispersionsbrennstoff ist wesentlich höher als die von UO₂.
- Die geometrische Anordnung der Partikel im Dispersionsbrennstoff hat einen sehr geringen Einfluss auf die effektive Wärmeleitfähigkeit von diesem.
- Bei Einsatz von Dispersionsbrennstoff werden die maximalen Brennstofftemperaturen im Normalbetrieb wesentlich abgesenkt. Für konventionellen UOX-Brennstoff und für SiC-gecannten UOX-Brennstoff liegen die Temperaturen im Bereich von 2500°C, für Dispersionsbrennstoff dagegen im Bereich von etwa 1100°C.
- Die maximalen Temperaturen bei schnellen nuklearen Transienten unterscheiden sich für die drei hier verglichenen Brennstabkonzepte nicht stark voneinander.
- Für Parameterstudien und für die Beurteilung von Tendenzen bei nuklearen Transienten liefert das punktkinetische Modell bereits recht gut brauchbare Ergebnisse, für quantitative Aussagen sind 3D-Rechnungen unverzichtbar.

6. Literaturquellen

1. Emendörfer, Dieter ; Höcker, Karl-Heinz: *Theorie der Kernreaktoren*. Bd. 2 Der instationäre Reaktor. Mannheim; Leipzig; Wien; Zürich : Wissenschaftsverlag, 1993

FURTHER DEVELOPMENT AND VERIFICATION OF STEAM EXPLOSION MODELS – CALCULATIONS FOR EXPERIMENTS AND FIRST APPLICATIONS TO REACTOR CONDITIONS

Zoran Vujic

Institut für Kernenergetik und Energiesysteme (IKE) der Universität Stuttgart,
Pfaffenwaldring 31, 70569 Stuttgart, Germany

E-mail: vujic@ike.uni-stuttgart.de

Phone: +49-711-685 2124; Fax: +49-711-685 2010

ABSTRACT

Steam explosions may occur during an accident with core melting in light water reactors (LWR) as a consequence of an interaction of molten core material with water inside the reactor pressure vessel (RPV) or in the cavity. Analytical tools to model and simulate the premixing (IKEMIX) and explosion phase (IDEMO) are being developed at IKE Stuttgart. The objective is to evaluate critical conditions and resulting damage potential of steam explosions.

Before reactor application it is necessary to verify codes against experiments. The experiment FARO L-28 is especially suited for the verification of premixing models due to the long pour of melt with a well defined jet resulting in a quasi-stable period for mixing which allows to check basic features. KROTOS K44 with alumina is the most appropriate explosion experiment due to clearly detected propagating or escalating waves (in the experiments with corium melt, only weak explosions were obtained, but probably related to specific experimental features yielding different premixing behaviour).

Application of the codes to reactor conditions (ex-vessel case) is done with the same modelling assumptions and the same associated choice of parameters as in the previous calculations for the experiments.

The preliminary results show that in spite of remaining uncertainties with respect to the verification results, tools are now available to analyse steam explosion risks. Further work on improvement of the codes and models is to be done, related to the verification results.

FURTHER DEVELOPMENT AND VERIFICATION OF STEAM EXPLOSION MODELS – CALCULATIONS FOR EXPERIMENTS AND FIRST APPLICATIONS TO REACTOR CONDITIONS

Zoran Vujic

Institut für Kernenergetik und Energiesysteme (IKE) der Universität Stuttgart,
Pfaffenwaldring 31, 70569 Stuttgart, Germany

E-mail: vujic@ike.uni-stuttgart.de

Phone:+49-711-685 2124, Fax: +49-711-685 2010

INTRODUCTION

A so-called steam explosion is an energetic interaction between two liquids coming into contact at very different temperatures. This may occur during an accident with core melting in light water reactors (LWR) due to an interaction of molten core material with water inside the reactor pressure vessel (RPV) or, if RPV failure cannot be excluded, due to release of melt from the RPV into water in the cavity. It is to be analysed whether such events can produce failure of the RPV or of supporting structures in the containment.

In general, two stages of a steam explosion can be distinguished. During the *premixing phase* the corium falls into the water under the form of jets and is progressively transformed into droplets which are dispersed into the two phase coolant. The melt vaporises part of the coolant during this contact and stable vapour film boiling develops around the droplets stabilising the mixture due to limited heat transfer.

The *explosion phase* can e.g. be initiated by destabilisation of the vapour film around the melt drops, leading to fine fragmentation, rapid heat transfer and local pressure rise. This can generate shock waves which propagate at supersonic speed through the multiphase mixture producing further fine fragmentation (to sizes in the order of some ten microns) of the melt inside the wave and related increased heat transfer, thus supporting escalation of the waves.

The assessment of the knowledge on steam explosions and thus of the methods for the reliable prediction of loads under realistic reactor conditions is the subject of the current OECD programme SERENA [1]. The objective is to reach a status, where the existing models and corresponding computer programs can be applied for risk analysis and management. The IKE is participating in the SERENA programme with applications of the computer codes IKEMIX for modelling of the premixing phase and IDEMO for modelling of the explosion phase of steam explosions. These codes are under development at IKE. The task includes verification against small scale steam explosion experiments as well as reactor applications. Here, special emphasis is on key processes for steam explosions, i.e. jet fragmentation under film boiling conditions, drag laws in three phase flow (melt, water and steam) and heat transfer from very hot melt to water in the premixing phase and fine fragmentation and rapid heat transfer in the explosion phase of steam explosion.

MODEL DESCRIPTION

The *premixing* process is described with IKEMIX in a two-dimensional multi-phase approach, where the steam and water phases are modelled by a quasi-continuum Eulerian and the melt drops in discrete Lagrangean description. Melt jets are treated in a representative quasi-1D description yielding the coherent jet length and, together with a model for jet breakup, the rate of mass release (fragmentation rate), which acts as a line source of drops of melt.

For the process of jet breakup, stripping of the crests of surface waves generated by instabilities due to relative flow between the liquid melt and the surrounding fluid is assumed. The fragmentation rate is related to the wave growth rate. This is calculated from a model based on the Kelvin-Helmholtz approach, depending on the relative velocity which itself is derived from the surrounding mixture conditions. By this, feedback between breakup and the produced mixture is introduced.

Besides the processes of heat transfer from the droplets to the water and associated steam production, interfacial friction, especially between steam and water, is decisive for amount of steam accumulating in the mixture. The friction laws used in IKEMIX are based on the Ishii-Zuber model for bubbles in liquid continuous and droplets in vapour continuous regimes, as well as a blend of these in the transition range between the respective regimes. In the transition range, the friction coefficients are interpolated between the two regime.

Fine fragmentation and resulting rapid heat transfer from the fragments to the water is the crucial process determining the behaviour of *explosion* waves. Stronger pressure buildup can result, if only part of the coolant is heated by the fragments. Thus, description of non-homogeneous coolant heating, also often called micro-interactions concept, is an important feature of the two-dimensional IDEMO model. It applies a multi-phase approach considering melt droplets, fine fragments, steam, as well as heated and cold parts of water as different fields.

Fine fragmentation of fuel drops inside a pressure wave is modelled based on hydrodynamic mechanisms which are considered to be more relevant within strong pressure waves than thermal fragmentation mechanisms. As most effective mechanism, stripping of crests of waves induced by shear flow instabilities (known as a Kelvin-Helmholtz instabilities) is considered. Heat transfer from the fragments to the coolant is very fast. As an extreme, instantaneous temperature equilibration is often assumed. In order to take into account also finite rates of heat transfer, they can be parameterised in IDEMO by applying a constant heat transfer coefficient. The heated part of the coolant is determined from the local volume of fragmented fuel, assuming a related part of water as entrained.

CALCULATIONS FOR THE PREMIXING EXPERIMENT FARO L-28

The experiment FARO L-28 [2] is especially suited for the verification of premixing models due to the long pour of melt with a well defined centred jet resulting in a quasi-stable period for mixing which allows to check basic features like jet breakup, heat transfer from resulting drops, pressurisation due to steam production and release of steam from the mixing zone.

First calculations performed with the IKEMIX code using standard model parameters showed that the heat transfer to the coolant and the pressure buildup in the vessel was significantly lower than in the experiment (see also [3]). The reason was the

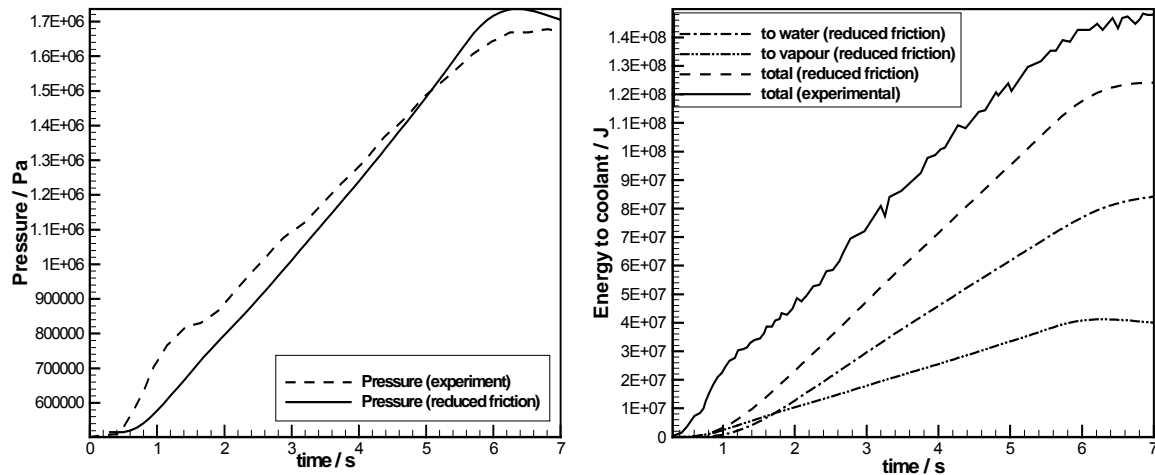


Figure 1: Comparison of pressure development (left) and energy transferred to coolant (right) between experiment FARO L-28 and IKEMIX calculation.

strong steam accumulation in the mixture (voiding), which practically cut off the heat transfer. By various parametric and modelling variations it was not possible to reach the experimentally obtained quasi-steady pressure increase over ~ 5 s, always due to counteraction of high void. On the other hand, the amount of steam production yielding high void is required for obtaining the experimental pressure increase. Thus, only more efficient steam release from the water to the upper steam volume appears to yield a solution. This may be explained by channel-like flow patterns for the steam in the transition range between water and steam continuous ranges, already at lower voids. Presently, in order to decrease the void, the interfacial friction between vapour and water was parametrically reduced in order to facilitate more rapid steam removal from the mixture. The achieved results were closer to the experiment in respect to energy input, void and pressure development (Fig. 1). A more physical solution is under way by taking into account different steam velocities in liquid and vapour continuous parts in the transition range which are considered to consist in parallel.

CALCULATIONS FOR EXPLOSION EXPERIMENTS

Among existing explosion experiments the series of KROTOS [4] tests are especially suited for verification due to relatively well defined conditions and detailed measurements. While in the experiments using corium melt only weak explosions have been obtained, tests with alumina showed strong explosions with clearly detectable escalating and propagating waves. The difference can be attributed to specific experimental conditions (low melt mass, high melt entrance velocity) accentuating differences in breakup related to the melt density. They lead to the observed strongly different premixing behaviour with much smaller droplets with corium and consequently much higher void buildup. Since a physically based justification for a general reduction of explosivity for corium and alumina is not in view, a verification of explosion models oriented at the alumina experiments is appropriate in a best estimate as well as conservative sense.

Good agreement with experimental results for pressure levels, wave propagation speed and duration of pressure pulses have been obtained in IDEMO calculations for the experiment KROTOS K-44 with alumina melt using the standard set of parameters (see Fig. 2 and [5] for more details). Further verification calculations for

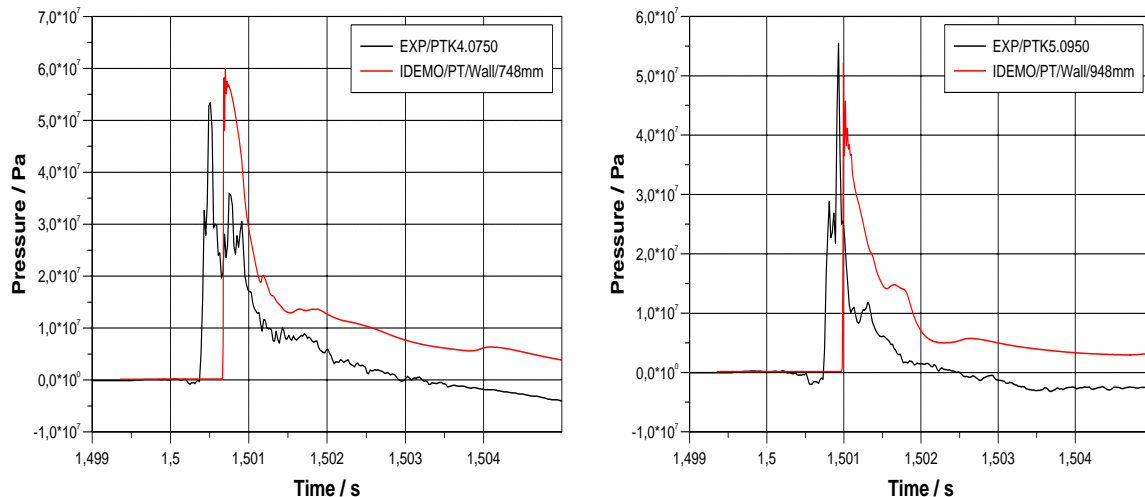


Figure 2: Comparison of measured pressure histories at 75 cm and 95 cm height with results of an IDEMO calculation for the experiment KROTOS K-44.

the experiment FARO L-33 (see also [5]), using the same set of parameters, showed overestimation of the explosion strength. Adaptation to experimental results could be reached by assuming slower heat transfer from fragments to coolant. However, a unique description has to be aspired in view of capabilities for extrapolation to reactor conditions. This may be reached by taking into account the partial freezing of melt droplets during premixing. Further verification and confirmation work is under way.

REACTOR APPLICATION

Calculations for reactor conditions are done with the aim to assess the capabilities of the codes in general and to identify the key physics which is decisive for the explosion strength and the resulting loads. As an example, the application of the IKEMIX and IDEMO codes to an ex-vessel case is presented, assuming the release of a melt jet of 0.5 m diameter from the RPV to a water filled cavity. Premixing was calculated with IKEMIX up to the time of first melt-bottom contact. Then an explosion triggered at the bottom was calculated with IDEMO. The modelling assumptions and the associated choice of parameters for calculations were essentially kept the same as in the previous calculations for the experiments.

Premixing results at melt bottom contact (0.6 s) are given in Fig. 3. About 70 % of the melt reaches the bottom as a coherent jet, due to the large initial diameter, about 1.3 tons have fragmented to fuel drops in a range between 1 and 2 mm. The relatively small fuel droplet size compared e.g. to FARO experiments can be explained by the larger jet length, leading to higher steam velocities at higher elevations, i.e. by the different scale under reactor conditions. Average volume fractions in the mixing zone, roughly within a radius of 0.5 m, are below 3 % for fuel and between 30 – 40 % for vapour, with maximum values below 60 % (Fig. 3).

Results of the explosion calculation are given in Fig. 4. Starting from the trigger at the bottom centre, an escalating explosion wave initially propagates upwards and towards the side. Since the mixture is mainly concentrated within a radius of 0.5 m, pressures there are significantly higher than at the sides. When the explosion wave has reached the upper surface of the mixture after about 7 ms, it vents towards the void region above and pressures start to decrease in the mixing zone. The pressure

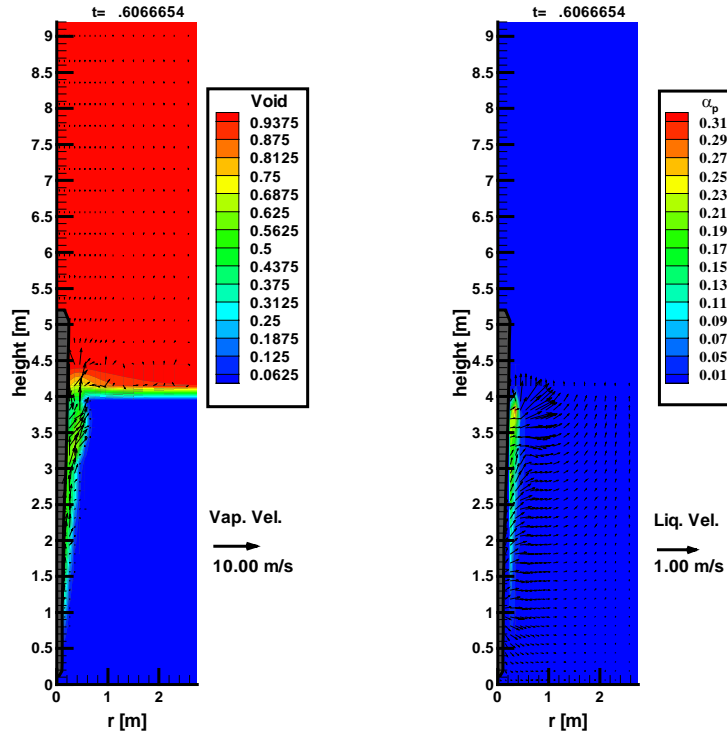


Figure 3: IKEMIX results for the ex-vessel case: vapour volume fraction and liquid velocity (left); fuel volume fraction and fuel velocity (right).

in the centre, i.e. in inner regions of the mixture with non-negligible parts of melt, reaches up to 100 MPa for a short time of 1.5 ms, while at side walls, pressures up to 17 MPa were obtained for a few milliseconds.

CONCLUSIONS

With the models IKEMIX and IDEMO developed at IKE for the premixing and explosion phases of steam explosions, calculations have been performed for validation on FARO and KROTOS experiments. A major measure of adaptation necessary with respect to premixing in FARO L-28 was to reduce interfacial friction between steam and water, thus increasing steam removal from the mixture and enabling lower void in mixture. A more mechanistic way of modelling instead of the present parametric approach is indicated and under way. The pressure escalation in KROTOS 44 could be calculated well with standard parameters, but application to FARO L-33 yielded an overestimation of pressures. An explanation via partial freezing of melt is pursued presently to check the validity of a unique modelling approach.

Calculations for premixing and explosion have been performed for an assumed ex-vessel scenario. In this case, the pressure loads on the wall remain modest in this calculation, but are in a range that could lead to destruction of cavity walls. Such questions could be investigated in future by providing the calculated pressure histories to structural mechanics calculations. The preliminary results presented here show that, in spite of remaining uncertainties mentioned with respect to the verification results, tools are now available to support the analysis of steam explosion risks but further improvement of the codes and models is to be done.

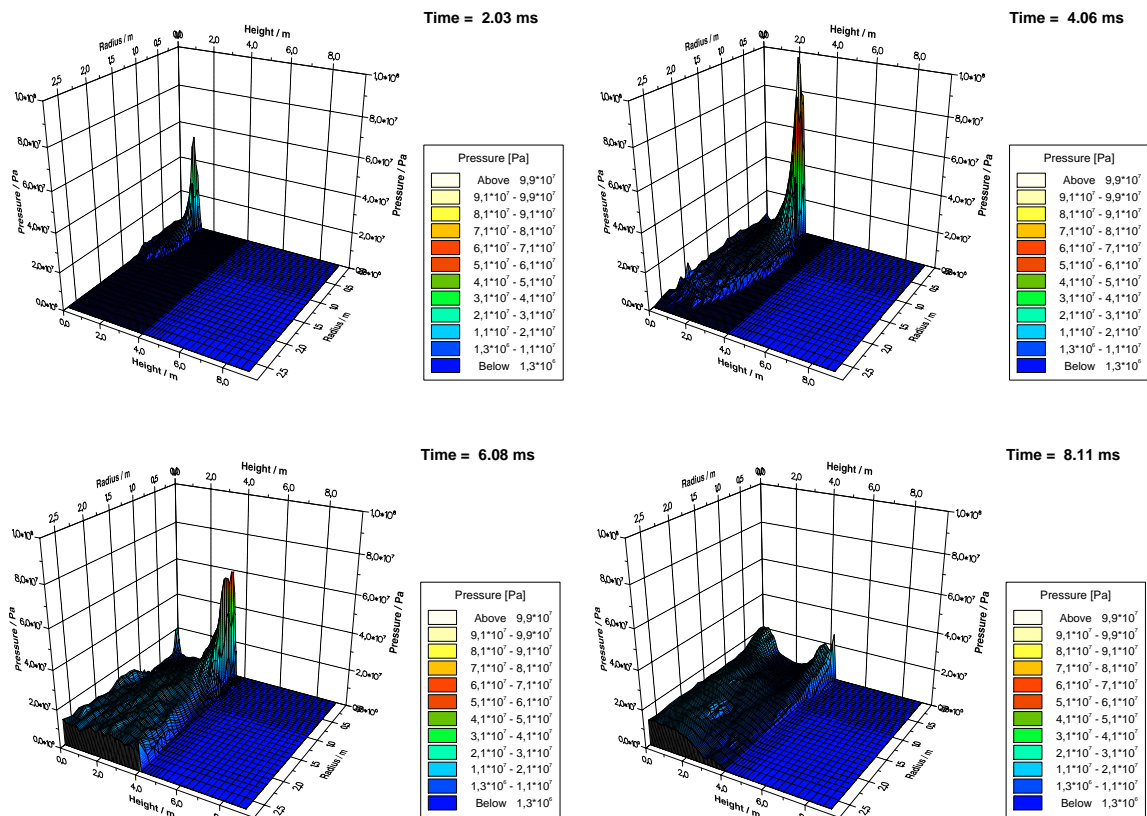


Figure 4: Pressure field calculated with IDEMO for the ex-vessel case at different times showing propagation of the explosion wave.

REFERENCES

- [1] D. Magallon et al.: OECD Programme SERENA (Steam Explosion Resolution for Nuclear Applications) – Work Programme and First Results, The 10th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-10), Seoul, Korea, October 5-9, 2003.
- [2] R. Silverii, D. Magallon: FARO LWR PROGRAMME, Test L-28 Data Report, Technical Note No.I.99.76, INV-MFCI(99)-D033, European Commission, Directorate General JRC, Joint Research Centre, Ispra Site, April 1999.
- [3] M. Bürger, G. Pohlner, Z. Vujic: Stand der Arbeiten zur Vorvermischung, Zwischenbericht zum Vorhaben BMWA 150 1266, IKE Universität Stuttgart, IKE 2-151, September 2004.
- [4] I. Huhtiniemi, D. Magallon and H. Hohmann: Results of recent KROTOS FCI tests: alumina versus corium melts, Nuclear Engineering and Design, Volume 189, Issues 1-3, 11 May 1999, Pages 379-389.
- [5] M. Bürger, M. Buck, Z. Vujic: Stand der Arbeiten zur Explosion, Zwischenbericht zum Vorhaben BMWA 150 1266, IKE Universität Stuttgart, IKE 2-153, Februar 2004.

ACKNOWLEDGEMENT

The work presented in this paper is sponsored by the German Ministry of Economics and Labour under contract BMWA 150 1266. The author is responsible for the scientific content.

EXPERIMENTELLE UNTERSUCHUNGEN ZUR KÜHLBARKEIT VON PARTIKELBETTEN ZUR VERIFIKATION NUMERISCHER MODELLE IN DER REAKTORSICHERHEITSFORSCHUNG

Patrick Schäfer

Institut für Kernenergetik und Energiesysteme (IKE), Universität Stuttgart
Pfaffenwaldring 31, 70569 Stuttgart
schaefer@ike.uni-stuttgart.de

ABSTRACT

Im Rahmen von sicherheitstechnischen Untersuchungen zur Kühlbarkeit von verlagertem und fragmentiertem Kernmaterial wurden Experimente an induktiv beheizten zylindrischen Partikelschüttbetten aus 3 mm und 6 mm Kugeln durchgeführt. Die Versuchsreihen umfassen Siedeversuche (Messung der Druckänderungen im stationär siedenden Schüttbett), Dryoutversuche (Bestimmung der Dryoutwärmestromdichte) und Flutversuche von heißen, trockenen Schüttungen (Messung der Abkühlraten). Die Experimente dienen zur Validierung der Reibungsgesetze in numerischen Modellen und insbesondere der Überprüfung der Interphasenreibung. Diese Modelle werden z. B. im deutschen Systemcode ATHLET-CD eingesetzt.

Die Siedexperimente zeigen, dass Modelle ohne explizite Berücksichtigung der Interphasenreibung (Reed [1], Lipinski [2], Hu & Theofanous [3]) den Druckverlauf in der Schüttung nicht einmal qualitativ korrekt wiedergeben. Nur Berechnungen mit Modellen, die die Interphasenreibung explizit berücksichtigen (Schulenberg & Müller [4], Tung & Dhir [5]), weisen eine qualitative Übereinstimmung mit den experimentellen Druckverläufen auf. Der Druckverlauf wird für das Schüttbett aus 6 mm Kugeln gut wiedergegeben, beim Schüttbett aus 3 mm Kugeln sind die Abweichungen größer. Mehrdimensionale Fallrechnungen unter Anwendung der Reibungsmodelle mit expliziter Interphasenreibung zeigen auf, dass vermehrt Wasser in die Schüttung gefördert werden kann und dadurch die Kühlbarkeit der Schüttung verbessert wird.

1. W. REED, "The Effect of Channeling on the Dryout of Heated Particulate Beds Immersed in a Liquid Pool", Ph.D. Thesis, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, (1982)
2. R. J. LIPINSKI, "A Model for Boiling and Dryout in Particle Beds", Sandia Labs, SAND 82-9765, NUREG/CR-2646, (1982)
3. K. HU and T. G. THEOFANOUS, "On the Measurement of Dryout in Volumetrically Heated Coarse Particle Beds", Int. J. of Multiphase Flow, Vol.17, pp. 519-532, (1991)
4. T. SCHULENBERG and U. MÜLLER, "An Improved Model for Two-Phase Flow Through Beds of Coarse Particles", Int. J. of Multiphase flow, Vol.13, pp. 87-97, (1987)
5. V.X. TUNG, and V.K. DHIR, "A Hydro-dynamic Model for Two-Phase Flow through Porous Media", Int. J. Multiphase Flow, Vol.14, No. 1, pp. 47-65, (1988)

EXPERIMENTELLE UNTERSUCHUNGEN ZUR KÜHLBARKEIT VON PARTIKELBETTEN ZUR VERIFIKATION NUMERISCHER MODELLE IN DER REAKTORSICHERHEITSFORSCHUNG

Patrick Schäfer

Institut für Kernenergetik und Energiesysteme (IKE), Universität Stuttgart
Pfaffenwaldring 31, 70569 Stuttgart
schaefer@ike.uni-stuttgart.de

Abstract

Im Rahmen von sicherheitstechnischen Untersuchungen zur Kühlbarkeit von verlagertem und fragmentiertem Kernmaterial wurden Experimente an induktiv beheizten zylindrischen Partikelschüttbetten aus 3 mm und 6 mm Kugeln durchgeführt. Die Versuchsreihen umfassen Siedeversuche (Messung der Druckänderungen im stationär siedenden Schüttbett), Dryoutversuche (Bestimmung der Dryoutwärmestromdichte) und Flutversuche von heißen, trockenen Schüttungen (Messung der Abkühlraten). Die Experimente dienen zur Validierung der Reibungsgesetze in numerischen Modellen und insbesondere der Überprüfung der Interphasenreibung. Diese Modelle werden z. B. im deutschen Systemcode ATHLET-CD eingesetzt.

Die Siedexperimente zeigen, dass Modelle ohne explizite Berücksichtigung der Interphasenreibung (Reed [1], Lipinski [2], Hu & Theofanous [3]) den Druckverlauf in der Schüttung nicht einmal qualitativ korrekt wiedergeben. Nur Berechnungen mit Modellen, die die Interphasenreibung explizit berücksichtigen (Schulenberg & Müller [4], Tung & Dhir [5]), weisen eine qualitative Übereinstimmung mit den experimentellen Druckverläufen auf. Der Druckverlauf wird für das Schüttbett aus 6 mm Kugeln gut wiedergegeben, beim Schüttbett aus 3 mm Kugeln sind die Abweichungen größer. Mehrdimensionale Fallrechnungen unter Anwendung der Reibungsmodelle mit expliziter Interphasenreibung zeigen auf, dass vermehrt Wasser in die Schüttung gefördert werden kann und dadurch die Kühlbarkeit der Schüttung verbessert wird.

1. Einleitung

In einem Leichtwasserreaktor kann bei einem schweren Störfall mit Ausfall aller Kühl- und Notkühlsysteme der Reaktorkern trocken gelegt werden und sich bis zum Aufschmelzen erhitzen. Im Fall des TMI-II Unfalls verlagerten sich ca. 19 t Corium-Schmelze in das untere, mit Wasser gefüllte Plenum des Reaktordruckbehälters. Die Schmelze wurde dort fragmentiert und erstarrte zu einer Partikelschüttung. Aufgrund der Nachzerfallswärme ist die Kühlung solcher Schüttungen notwendig, um ein Versagen des Reaktordruckbehälters (Durchschmelzen) zu verhindern. Aus diesem Grund sind Untersuchungen zur Kühlbarkeit von Partikelschüttungen von großem Interesse und deshalb auch ein zentraler Untersuchungsgegenstand in der Reaktorsicherheitsforschung. Durch die hohe spezifische Oberfläche einer Schüttung (ca. $500 \text{ m}^2/\text{m}^3$ für ein Schüttbett aus 6 mm Kugeln) ist die Kühlung nicht ausschließlich durch den Wärmeübergang zwischen Partikeln und Kühlwasser begrenzt, sondern auch durch die Menge des vorhandenen Wassers in der Schüttung. Bei hohen abzuführenden Wärmeströmen wird im Schüttbett ein großer Dampfstrom erzeugt. Dieser Volumenstrom kann so groß werden, dass für Wasser / Dampf-Gegenstrombedingungen der Wasserzustrom in die Schüttung zunehmend behindert wird und in Folge eine Unterversorgung der Schüttung mit

Wasser bis hin zur Austrocknung der Schüttung (Gegenstrombegrenzung) eintreten kann. In der Literatur sind zahlreiche Modelle zur Berechnung dieser Gegenstrombegrenzung vorhanden. Die Modelle basieren in der Regel auf der Ergun-Gleichung, die um zwei Faktoren, die relative Passabilität und die relative Permeabilität, erweitert wurde. Beide Faktoren wurden dabei empirisch an die experimentell ermittelten Dryoutwärmeströme (DHF) aus 1D-Strömungsanordnungen für Wasser / Dampf-Gegenstrombedingungen angepasst. Das Druckfeld in der Schüttung ist bei diesem Vorgehen nicht von Bedeutung. Dies ändert sich, wenn komplexere Strömungssituationen angenommen werden und beispielsweise Wasser über strömungsgünstige Bereiche (höhere Porosität, geringere Schüttbetthöhe, geringerer Wärmestrom) den Schüttbettboden erreichen kann. In einem Experiment von Hofmann [6] mit zusätzlicher Wassereinspeisung von unten über eine Wassersäule konstanter Höhe (Druckrandbedingung) konnte eine erhebliche Steigerung des DHF beobachtet werden, der von Modellen ohne Interphasenreibung so nicht vorhergesagt wird. Der Zustrom des Wassers von unten in die Schüttung hängt dann wesentlich vom sich einstellenden Druckfeld in der Schüttung ab. Den Schwerpunkt vorliegender Experimente bilden daher Untersuchungen zur Bestimmung der Druckgradienten in einem siedenden Schüttbett.

2. Versuchsaufbau

Der Versuchsaufbau besteht aus der Versuchsstrecke (Abbildung 1), die in einem Druckbehälter eingebaut und mit einem externen Wasserbehälter verbunden ist. Die Versuchsanordnung ermöglicht Siedeeperimente ohne zusätzliche Wassereinspeisung, so dass Wasser und Dampf im Gegenstrom im Schüttbett strömen, sowie Experimente mit zusätzlicher Wassereinspeisung von unten, bei denen die beiden Fluidphasen sich im Gegenstrom befinden. Durch den Einbau der Versuchsstrecke in den Druckbehälter sind auch Versuche unter erhöhtem Systemdruck möglich (z. Z. max. 5 bar). Als Kühlmittel wird demineralisiertes Wasser verwendet. Die Beheizung des Schüttbetts erfolgt volumetrisch mit einer Induktionsspule (200 kHz), um die Nachzerfallswärmequellen eines realen Reaktorschüttbetts im Experiment abzubilden. Die wesentlichen experimentellen Messgrößen sind die Temperatur und der Druck in der Schüttung. Die Versuchsstrecke ist mit 60 Thermoelementen (Typ N) und 8 Differenzdruckaufnehmern (100 mbar, Genauigkeitsklasse 0.1) instrumentiert. Die

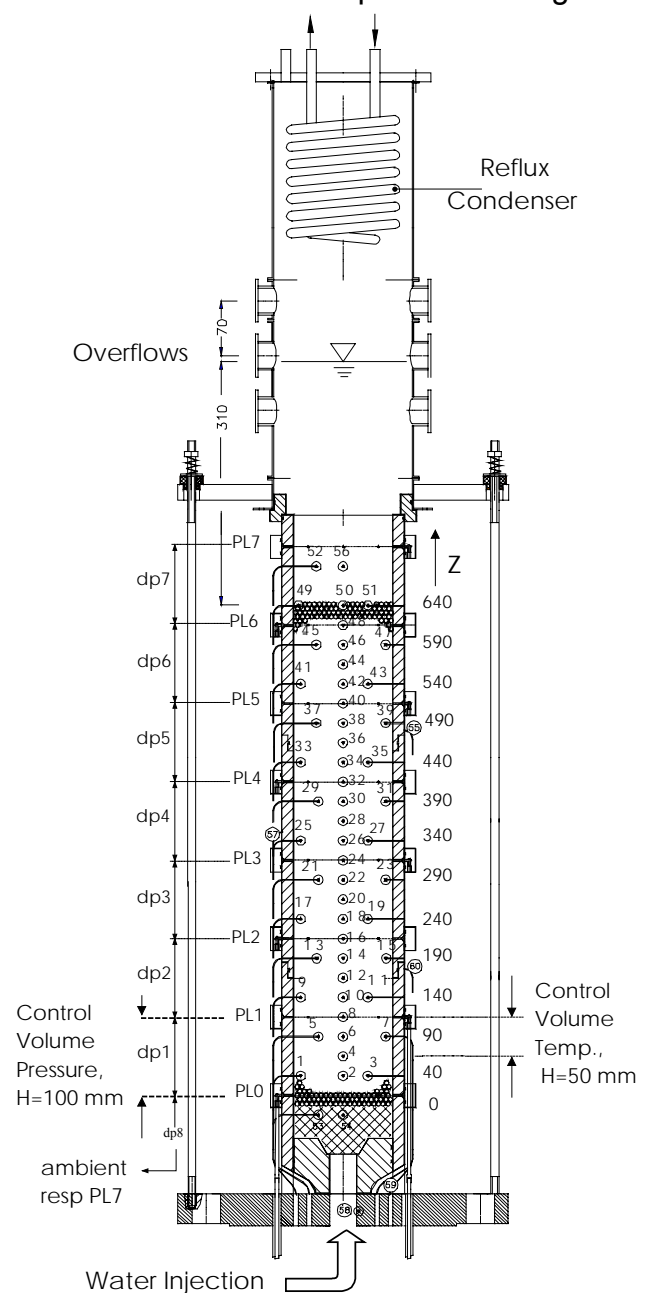


Abbildung 1: Instrumentierte Versuchsstrecke

Druckmessstellen befinden sich entlang des Schüttbettbehälters in äquidistanten Abständen von 100 mm (s. Abbildung 1, PL0 bis PL7).

3. Dryoutmodelle

Die meisten Dryoutmodelle basieren auf der für Zweiphasen-Strömung erweiterten Ergun-Gleichung. Hierzu wird die Gleichung für jede Fluidphase separat formuliert und mit relativen Permeabilitäten ($K_{r,g}$, $K_{r,l}$) und relativen Passabilitäten ($\eta_{r,g}$, $\eta_{r,l}$) ergänzt.

$$-\frac{dp_g}{dz} = \rho_g g + \frac{\mu_g}{K \cdot K_{r,g}} J_g + \frac{\rho_g}{\eta \cdot \eta_{r,g}} J_g \cdot |J_g| \left(+ \frac{F_i}{\alpha} \right) \quad (1a)$$

$$-\frac{dp_l}{dz} = \rho_l g + \frac{\mu_l}{K \cdot K_{r,l}} J_l + \frac{\rho_l}{\eta \cdot \eta_{r,l}} J_l \cdot |J_l| \left(- \frac{F_i}{1-\alpha} \right) \quad (1b)$$

Die relativen Permeabilitäten und relativen Passabilitäten erfassen den Einfluss der zusätzlichen Phase gegenüber einer Einphasenströmung. Unter der Annahme eines Druckgradientengleichgewichts kann aus den Gleichungen der sich einstellende Druckgradient sowie der Dampfgehalt für eine gegebene Wasser/Wasserdampfströmung berechnet werden. Ein Dryout tritt beim Überschreiten der nach Gleichungen (1a) und (1b) maximal möglichen Dampferrohrgeschwindigkeit J_g auf. Erweiterte Ansätze, die die Interphasenreibung an der Grenzfläche der Fluidphasen berücksichtigen (siehe F_i in Gleichungen (1a) und (1b)) wurden von Schulenberg & Müller und Tung & Dhir entwickelt.

4. Versuchsergebnisse

In Dryoutversuchen bei Gegenstrombedingungen wurde der maximal abführbare Wärmestrom für die 6 mm-Schüttung zu 1330 kW/m^2 ($J_{g,\max} = 1 \text{ m/s}$) und für das 3 mm-Schüttbett zu 813 kW/m^2 ($J_{g,\max} = 0.6 \text{ m/s}$) bestimmt. Diese Dryoutwärmeströme werden sowohl von Modellen ohne Interphasenreibung als auch mit Interphasenreibung für diese Strömungssituation und Schüttbettkonfiguration gut vorhergesagt. Für komplexere, mehrdimensionale Konfigurationen ist die Definition eines einheitlichen Dryoutwärmestroms aber nicht ausreichend, da eine ungleichmäßige Wärmeabfuhr in der Schüttung vorliegen kann. Lokal kann in solchen Konfigurationen der aus 1D-Anordnungen bestimmte DHF überschritten werden, wenn über strömungsgünstige Bereiche Wasser einströmen kann. Dieser Zustrom wird maßgeblich vom Druckfeld beeinflusst.

Abbildung 2 zeigt die experimentell ermittelten Druckgradienten für Gegenstrombedingungen in Abhängigkeit von der Dampferrohrgeschwindigkeit J_g für die Schüttung aus 3 mm sowie 6 mm Kugeln. In beiden Fällen ist für kleine Dampferrohrgeschwindigkeiten ein deutlicher Abfall der Druckgradienten zu erkennen. Im Vergleich zu einer statischen Wassersäule fallen die gemessenen Druckgradienten um bis zu 3800 Pa/m (6 mm Kugeln) bzw. um bis zu 2300 Pa/m (3 mm Kugeln) ab. Dieser Abfall wird von Modellen ohne Interphasenreibungsanteil nicht beschrieben. Der berechnete Druckgradient entspricht in etwa dem der hydrostatischen Wassersäule. Erst in der Nähe des Dryouts fällt der Druckgradient aufgrund der jetzt hohen Reibung zwischen den Partikeln und der flüssigen Phase stark ab.

Dagegen können Modelle mit Interphasenreibungsanteil den experimentell ermittelten Druckgradientenverlauf qualitativ berechnen. Der Druckgradientenverlauf

wird für das Schüttbett aus 6 mm Kugeln mit den Modellen von Schulenberg & Müller und Tung & Dhir gut wiedergegeben. Für das 3 mm-Schüttbett wird der Druckgradientenanstieg im Bereich der Dampfleerrohrgeschwindigkeiten $0.2 \text{ m/s} \leq J_g \leq 0.35 \text{ m/s}$ nur unzureichend von zuvor genannten Modellen beschrieben. Durch eine Modifikation des Tung & Dhir Modells von Schmidt [7] (Annahme kleinerer Blasendurchmesser, Änderung der Gültigkeitsbereiche der Strömungsformen, Reduzierung der Interphasenreibung im Ringströmungsbereich) kann für beide gezeigten Fallbeispiele eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten erzielt werden.

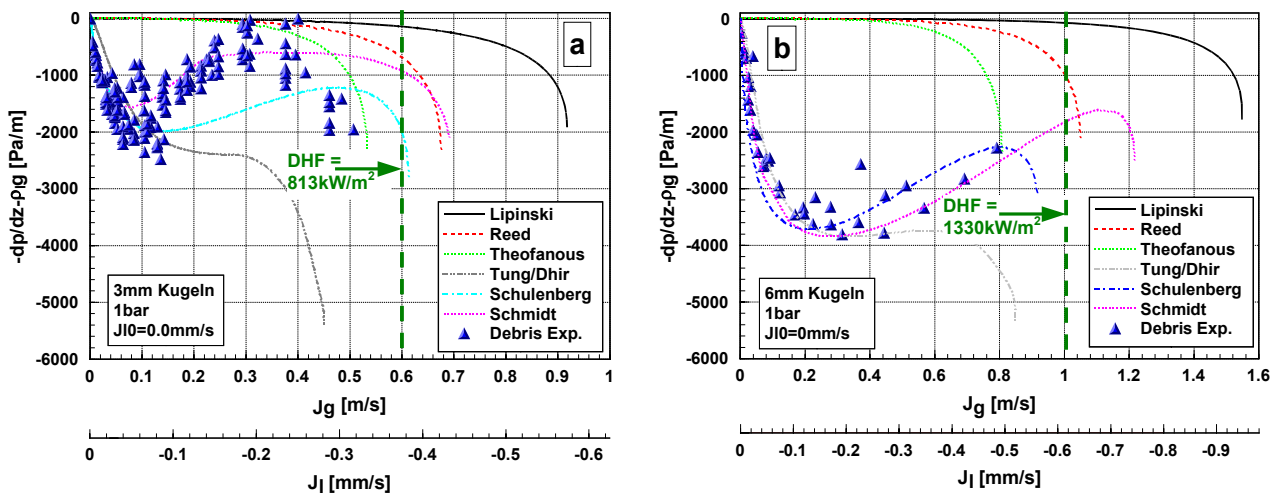


Abbildung 2: Gemessene Druckgradienten für das Schüttbett aus 3 mm bzw. 6 mm Kugeln

5. Zusammenfassung

Zur Validierung von Dryoutmodellen wurden Experimente mit induktiv beheizten Partikelschüttbetten durchgeführt. Der Vergleich der ermittelten Druckgradienten mit Ergebnissen numerischer Modelle zeigt, dass Modelle ohne Interphasenreibung den Druckverlauf in der Schüttung nicht einmal qualitativ wiedergeben können. Nur Modelle mit expliziter Berücksichtigung der Interphasenreibung zeigen eine qualitative Übereinstimmung mit den Experimenten. Obwohl die grundsätzliche Bedeutung der Interphasenreibung mit vorliegenden Untersuchungen gezeigt werden konnte, ist für eine abschließende und gesicherte Beurteilung der Modelle eine Ausweitung der Versuchsparameter notwendig. Diese sollte u. a. den Einfluss des Systemdrucks und realistischere Partikelformen beinhalten.

Literatur

1. W. REED, "The Effect of Channeling on the Dryout of Heated Particulate Beds Immersed in a Liquid Pool", Ph.D. Thesis, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, (1982)
2. R. J. LIPINSKI, "A Model for Boiling and Dryout in Particle Beds", Sandia Labs, SAND 82-9765, NUREG/CR-2646, (1982)
3. K. HU and T. G. THEOFANOUS, "On the Measurement of Dryout in Volumetrically Heated Coarse Particle Beds", Int. J. of Multiphase Flow, Vol. 17, pp. 519-532, (1991)
4. T. SCHULENBERG and U. MÜLLER, "An Improved Model for Two-Phase Flow Through Beds of Coarse Particles", Int. J. of Multiphase Flow, Vol. 13, pp. 87-97, (1987)
5. V.X. TUNG, and V.K. DHIR, "A Hydrodynamic Model for Two-Phase Flow through Porous Media", Int. J. Multiphase Flow, Vol. 14, No. 1, pp. 47-65, (1988)
6. G. HOFMANN, "On the Location and Mechanisms of Dryout in Top-Fed and Bottom-Fed Particulate Beds", Nuclear Technology, Vol. 65, pp. 36-45, (1984)
7. W. SCHMIDT, "Influence of Multi-Dimensionality and Interfacial Friction on the Coolability of Fragmented Corium" Ph.D. Thesis, University of Stuttgart, (2004)

ERGEBNISSE ZUR ERMITTLUNG EXTREMER REAKTIVITÄTSTRANSIENTEN BEI
VERSCHIEDEN REAKTORSYSTEMEN.

K. Aygozhiev, S. Kriger, K. Kugeler, A. Zuker, D. Knoche
LRST–RWTH, Aachen, Eilfschornsteinstrasse 18

Abstract

The behaviour of fuel elements under reactivity transients is an important task from safety point of view for various types of reactors. The main features of fast reactivity transients are considered.

By example for pressurized-water reactor (type DWR, Siemens) it has been shown the behaviour of fuel composition both for ordinary and advanced fuel elements, so called encapsulated SiC fuel, under reactivity transients.

The steady-state and dynamic calculation results of ordinary fuel of PWR and encapsulated SiC-fuel have been carried out.

The comparison of main neutronic characteristics SiC-fuel with ordinary fuel for selected scenario is presented.

ERGEBNISSE ZUR ERMITTLUNG EXTREMER REAKTIVITÄTSTRANSIENTEN BEI VERSCHIEDEN REAKTORSYSTEMEN.

K. Aygozhiev, S. Kriger, K. Kugeler, A. Zuker, D. Knoche
LRST–RWTH, Aachen, Eilfschornsteinstrasse 18

Compact

Introduction

The behaviour of fuel elements under reactivity transients is an important task from safety point of view for various types of reactors. The fast reactivity transient can cause the severe accidents which lead to destroying of active core.

In the compact by example for pressurized-water reactor (type DWR, Siemens) it has been shown the behaviour of fuel composition both for ordinary and advanced fuel elements, so called encapsulated SiC fuel, under fast reactivity transients.

The steady-state and dynamic calculation results of ordinary fuel of PWR and encapsulated SiC-fuel have been carried out.

The comparison of main neutronic characteristics SiC-fuel with ordinary fuel for selected scenario is presented.

Background of problem

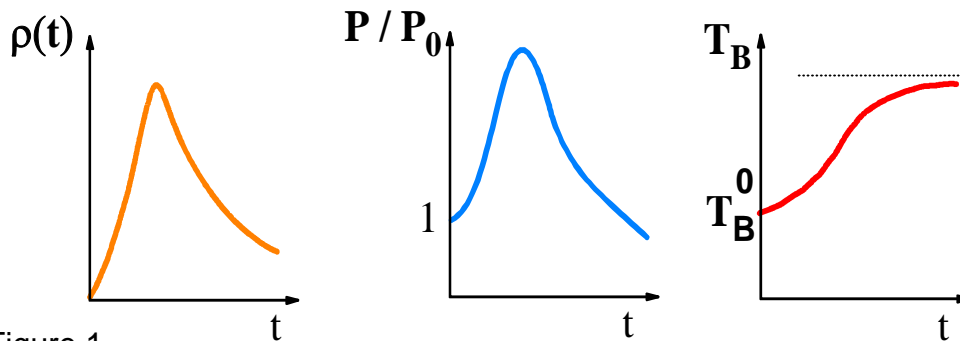


Figure 1.

General aspects of the fast reactivity transient are following (fig.1):

- Large excess reactivity inserted in short time interval assumed.
- Transient dies out due to negative Doppler coefficient.
- Power increases sharply during short time.
- Fuel temperature increases above operating temperature; stabilizes at T_{max} .

During fast reactivity transient some part of energy is realized into active core. To preclude the energetic dispersal of fuel particles into the coolant and ensure coolability of the core after such accidents the several threshold enthalpy values are used. These values depend from the type of reactor and indicate the some important processes being in active core like cladding failure, fission product

release into coolant and so on /1/. In our work threshold enthalpy value for PWR-reactor is used that will be explained further.

Problem

Our aim was to examine the behaviour of ordinary fuel and so-called alternative fuel in PWR-reactor under fast reactivity transient. For this purpose the Dyn-3D code and WIMSD4 are used. The Dyn-3D code was created for simulation of both the stationary and dynamic processes in the active core of LWR reactors /3/. The first case is involved an ordinary UO₂-fuel (reference case). This case represents fuel for DWR-1000 (Siemens Konvoi Reactor) with the same radius of fuel, cladding and pitch. The case is required for following reasons. First of all, it is used like benchmark to reproduce and compare with the corresponded values from Manual Book of Siemens /2/. The other reason, the case is used to compare with proposed advanced fuel compositions. Therefore, we can fully realize all advantages and disadvantages the proposed advanced fuel concepts. Another case is involved encapsulated SiC-fuel (SiC case), which will be compared with the reference case.

Discussion of results

For reference case the points from Siemens Manual Book are submitted to compare with obtained values. The comparison is presented in the table 2.

The main parameters of steady-state calculation for both cases are presented in table 3. These results are obtained for fresh core without insertion control rods at full-power conditions of reactor.

In pressurized-water reactors, it is assumed that in the most severe of such accidents a control-rod housing in the pressure-vessel head breaks and the control-rod assembly is ejected from the core as a result of a pressure differential. The worst such potential accident would occur from zero-power conditions, and the minimum coolant temperature for such an accident would be 271 C as set by Technical Specification. Because initial heatup is accomplished with waste heat from the operating coolant pumps, coolant would flow through the core at this time. This is so-called hot zero-power rod-ejection accident. /1/

Therefore, the following scenario was taken into account. All D & L-bank is completely inserted into active core plus central control rod at zero-power condition. Actually, the central control rod is a part of E-bank, which is permanently outside from active core. But to simulate the worst scenario the central CR is taken into account. The results of simulation under transient accident can be found in Figure 2-3 while the central control rod is ejected for 0.1, 0.5 and 0.9 sec. Figure 2 presents the realized energy for various time of rod ejection for reference and SiC cases. Figure 3 shows the peak fuel enthalpy versus reactivity for various time of rod ejection for reference and SiC cases. As shown on the figure 3 the obtained values for selected scenario lie deeply below Failure Criteria (170 cal/g of fuel) having been taken from regulatory assessment of Nuclear Regulatory Commission (NRC).

Conclusion and outlook

On the basis of obtained results the main conclusions of investigation are following:

- Stationary parameters of active core for UOX-case and for SiC-case are reasonable.
- Both cases behave very stable under reactivity transient.
- At the selected scenario the peak fuel enthalpy for both cases is lower than 170 cal/g fuel (failure criteria for UOX-fuel with Zr-can).
- Under reactivity transient the encapsulated SiC-fuel behaviour is slightly better than ordinary UOX-fuel.

In the further steps we are planning to simulate the behaviour of Pu-Th fuel under fast reactivity transient in the water cooled pebble bed reactor.

References

1. Ralph O. Meyer and etc., A Regulatory Assessment of Test Data for Reactivity-Initiated Accidents, Nuclear Safety Technical Progress Journal, vol.37-no.4, October-
2. Sicherheitsbericht Kernkraftwerk mit Druckwasserreaktor, elektrische Leistung 1300 MW (standortneutrale Beschreibung), Kraftwerk Union Aktiengesellschaft, Januar 1983.
3. U.Grungmann, S.Mittag, U.Rohde, DYN3D2000/M1 for the Calculation of Reactivity Initiated Transients in LWR with Hexagonal and Quadratic Fuel Elements, Code Manual and Input Data Description for Release, 3rd Edition, FZ Rossendorf, November 2001.

Table 2.

Parameter	Einheit	Konvoi-Anlage(Siemens)	Eigene Rechnung	Bemerkung
thermische Leistung	MW	3775	3775	FPS
kritische Borkonzentration	ppm	ca 925	1009	BOL,FPS
mittlere Stableistung	W/cm	207	212	FPC
maximale Stableistung	W/cm	517	425	FPC
Heißkanalfaktor F_q	-	2,5	2	FPC
Boreffektivität	%/ppm	-90	-100	BOL
Wert aller Kontrollstäbe	%	<7.5	8,25	bei 3775 MW Kern ohne Kontrollstäbe
Wert von 4 D-bank Kontrollstäben	%	0.25	0.39	bei 3775 MW Kern ohne Kontrollstäbe
1 Kontrollstab	%	0.1	0.11	bei 3775 MW Kern ohne Kontrollstäbe
effektivster Kontrollstab	%	1,5	1,5	bei 3.775 kW zentraler Kontrollstab

Table3.

Parameter	Dim.	UOX-fuel	SiC-fuel
Thermische Leistung	MW	3775	3775
mittlere Leistungsdichte	MW/m ³	~ 100	~100
Stabwirksamkeit	%	2,2	2,3
spezifische Leistung	KW/KgHM	37	41
mittlere Stableistung	W/cm	212	212
maximale Stableistung	W/cm	425	427
Heißkanalfaktor	--	2,2	2,2
maximale Brennstofftemperatur	°C	2271	2120
krit. Borkonzentration bei Nennlast	ppm	1009	875
krit. Borkonzentration bei Nulllast	ppm	1207	1201

Figure 2.

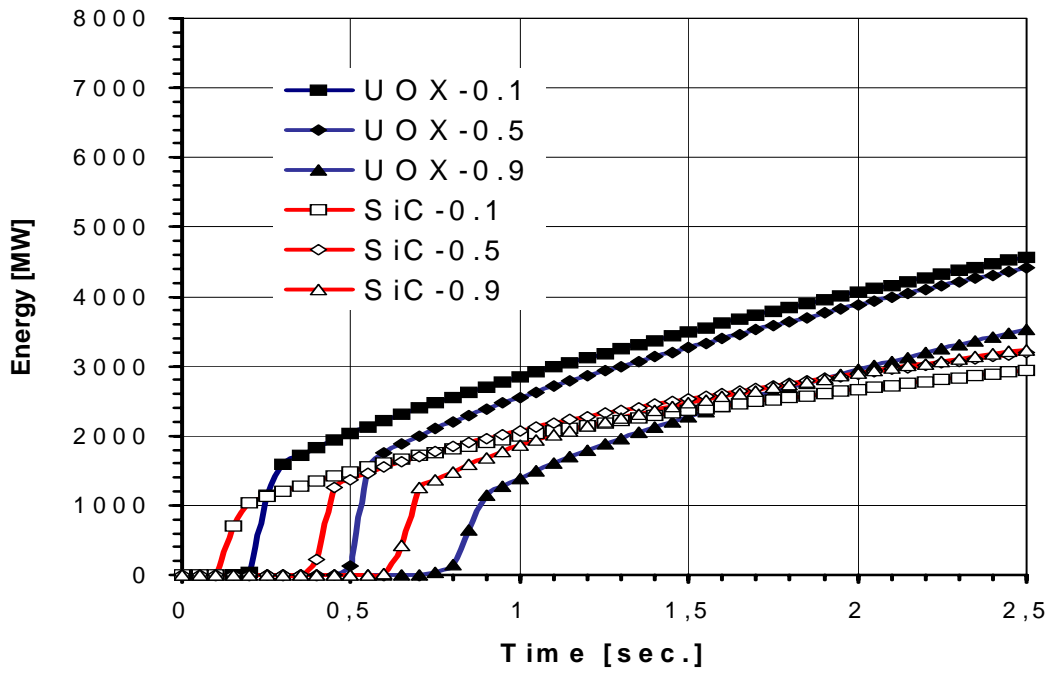
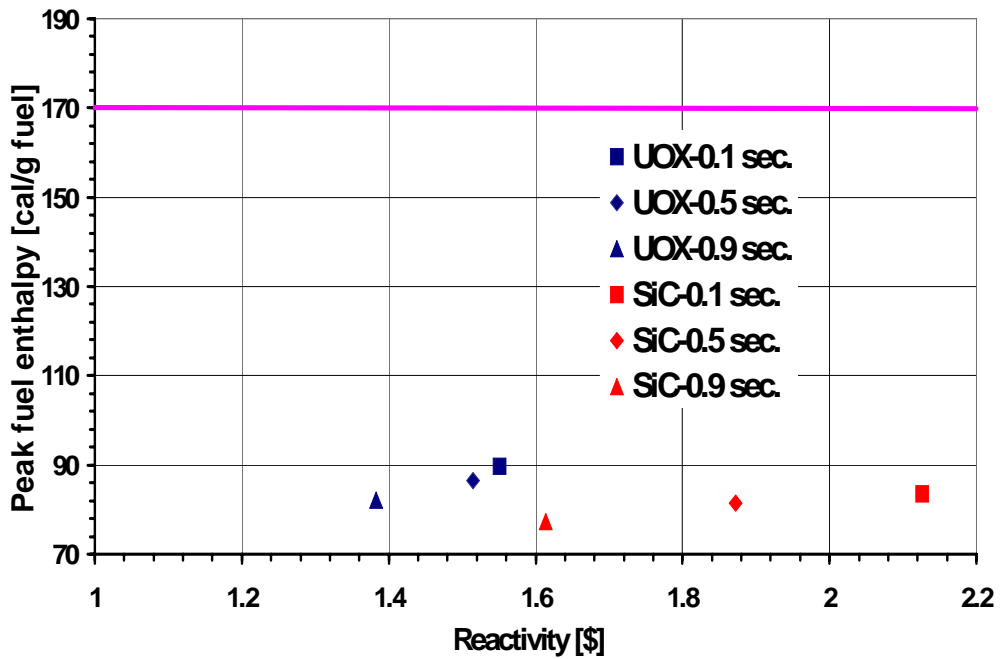


Figure 3.



AUSLEGUNG EINES BRENNELEMENTS FÜR EINEN HIGH PERFORMANCE LIGHT WATER REACTOR

Jan Hofmeister¹⁾, Thomas Schulenberg²⁾, Jörg Starflinger²⁾

1) RWE Power AG
Huysenallee 2
D-45128 Essen, Germany
Tel: +49 7247 82 8320, Fax: +49 7247 82 6323
Jan.Hofmeister@iket.fzk.de

2) Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
P.O. Box 3640
D-76021 Karlsruhe, Germany

ABSTRACT

Das Konzept des High Performance Light Water Reaktors (HPLWR) unterscheidet sich gegenüber einem aktuellen Leichtwasserreaktor darin, dass das Kühlmedium im überkritischen Zustand (Druck größer 22,1 MPa und Temperaturen über 374°C) im Kern vorliegt. So herrscht im Reaktor ein Systemdruck von ca. 25 MPa, und das Kühlmedium wird um mehr als 200°C aufgeheizt. Auf diese Weise erreicht es eine Austrittstemperatur von mehr als 500°C und das Kraftwerk damit einen thermischen Wirkungsgrad von etwa 44%. Weitere Merkmale sind Außentemperaturen der Brennstabhüllrohre bis zu 620°C und eine Dichtedifferenz im Kern bis Faktor 7. Im ganzen Kern ist das Kühlmedium aufgrund seines überkritischen Zustandes einphasig.

Bisher wurden schon einige viel versprechende Konzepte für ein Brennelementdesign veröffentlicht, die die Umsetzbarkeit des Konzeptes demonstriert haben. Der nächste Schritt ist nun eine systematische Designstudie, um ein optimiertes Brennelement für den HPLWR entwickeln zu können. Folgende Bedingungen muss dieses Brennelementdesign erfüllen:

- Eine zusätzliche Verfügbarkeit an Moderator ist zu gewährleisten, damit gleichmäßigere Leistungsprofile erreicht werden können. Dies wird durch Wasserkästen realisiert, die von Oka et al. vorgestellt wurden.
- Das Design soll einen Gegenstrom von Moderator und Kühlmittel innerhalb des Brennelements ermöglichen.
- Die Steuerstäbe sollen von oben in den Kern eingefahren werden, um existierende Antriebstechnologien von Druckwasserreaktoren (DWR) anwenden zu können.

Der hier vorgestellte Konstruktionsentwurf des optimierten Brennelements erfüllt die oben genannten Kriterien hinsichtlich Strömungsführung im Kern und minimiert gleichzeitig Leckagen in das Frischdampfplenum. Das Brennelementcluster, das aus Kopf-, Fußstück und neun Brennelementen besteht, und die Lösung des Leckageproblems werden erläutert.

AUSLEGUNG EINES Brennelements FÜR EINEN HIGH PERFORMANCE LIGHT WATER REACTOR

Jan Hofmeister¹⁾, Thomas Schulenberg²⁾, Jörg Starflinger²⁾

1) RWE Power AG

Huysenallee 2

D-45128 Essen, Germany

Tel: +49 7247 82 8320, Fax: +49 7247 82 6323

Jan.Hofmeister@iket.fzk.de

2) Forschungszentrum Karlsruhe GmbH

P.O. Box 3640

D-76021 Karlsruhe, Germany

EINLEITUNG

Das Konzept des europäischen Leichtwasserreaktors mit überkritischem Wasser (HPLWR – High Performance Light Water Reactor) zeigt gegenüber einem aktuellen Leichtwasserreaktor grundsätzliche Unterschiede. So herrscht im Reaktor ein Systemdruck von ca. 25 MPa, und das Kühlmedium wird um mehr als 200°C aufgeheizt. Auf diese Weise erreicht es eine Austrittstemperatur von mehr als 500°C und das Kraftwerk damit einen thermischen Wirkungsgrad von etwa 44%. Weitere Merkmale sind Außentemperaturen der Brennstabhüllrohre bis zu 620°C und eine Dichtedifferenz im Kern bis Faktor 7. Im ganzen Kern ist das Kühlmedium aufgrund seines überkritischen Zustandes (Druck größer 22,1 MPa und Temperaturen über 374°C) einphasig. Wasserabscheider oder die Rezirkulation des Kühlmediums, wie z.B. bei laufenden Siedewasserreaktoranlagen üblich, sind somit nicht mehr notwendig.

Seit 1990 werden an der Universität Tokio unter der Leitung von Yoshiaki Oka Konzepte zur Kernauslegung von Leichtwasserreaktoren mit überkritischem Wasser entwickelt. Oka und Koshizuka [1] stellen bereits 1993 einen ersten Konstruktionsentwurf vor. Sie betrachten insbesondere zwei unterschiedliche Möglichkeiten der Moderation: einen festen Moderator aus Zirkoniumhydrid und einen im Brennelement integrierten Wasserkasten („water rod“). Dobashi et al. [2] finden 1998 bei der numerischen Analyse des von Oka und Koshizuka [1] konstruierten Kerns heraus, dass das Moderatorwasser aufgrund der hohen Dichtedifferenz im Kern durch die Wasserkästen nach unten fließen sollte. Während Dobashi et al. [2] ein hexagonales Brennelement untersuchen, veröffentlichen Yamaji et al. [3] im Jahr 2001 ein Kerndesign mit quadratischen Brennelementen. Yamaji's Kriterien für ein quadratisches Brennelement sind eine einfachere Brennelementgeometrie und eine möglichst gleichmäßige Aufheizung über den Brennelementquerschnitt.

Innerhalb des 5. Rahmenprogramms der europäischen Kommission entwickeln Squarer et al. [4] einen ersten Entwurf eines HPLWR-Reaktordruckbehälters. Als Vorbild für den Reaktordruckbehälter dienen das Design von Dobashi et al. [2] und das eines Druckwasserreaktors, da auch hier keine Wasserdampfabscheider über dem Kern nötig sind und die Kontrollstäbe von oben in den Kern gelangen. In der folgenden Abb. 1 ist das Konzept des Reaktordruckbehälters von Squarer et al. [4] dargestellt. Der Frischdampf wird über das innere Rohr eines coaxialen Doppelrohrs direkt Richtung Turbinen geleitet. Durch das äußere Rohr, welches das innere Rohr umschließt, strömt das Speisewasser in den Reaktordruckbehälter. Durch diese

koaxiale Führung der Rohre wird der Reaktordruckbehälter von hohen thermischen Belastungen durch den über 500°C heißen Dampf geschützt. Ein Teilstrom des Speisewassers (Moderator) wird in den oberen Teil des Druckbehälters und dann über eine Verbindungsleitung, welche das Dampfplenum oberhalb der Brennelemente durchstößt und gleichzeitig als Führungsrohr für die Steuerstäbe dient, in die Wasserkästen und in den Spalt zwischen den Brennelementen geleitet. Der andere Teilstrom des Speisewassers (Kühlmittel) fließt durch den Downcomer und Reflektor nach unten. Nach der Vermischung der beiden Teilströme im unteren Plenum strömt das Kühlmittel durch den Kern nach oben und erreicht den überhitzten Zustand. In diesem Zustand wird es im Dampfplenum gesammelt und verlässt danach den Druckbehälter durch das Doppelrohr. Dabei kann es am Ein- und Austritt des großen Rohres zu möglichen Leckagen von kaltem Speisewasser in das Dampfplenum kommen. Dadurch würde sich die Temperatur des Frischdampfes reduzieren, was wiederum den Wirkungsgrad minimieren würde.

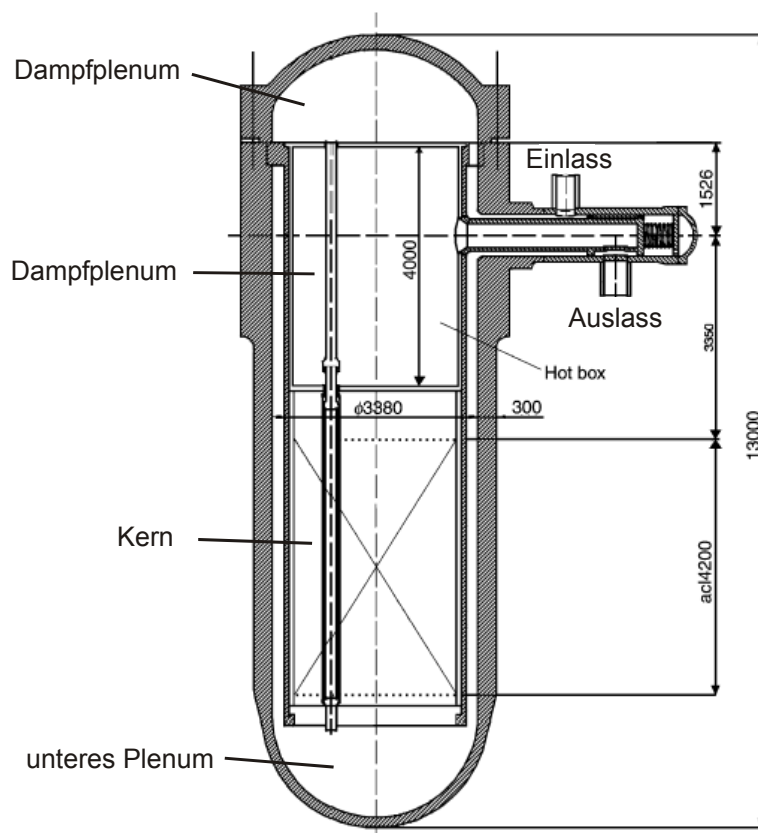


Abb. 1: HPLWR-Reaktordruckbehälter-Konzept von Squarer et al. [4]

Um ein nach oben strömendes Kühlmedium und gleichzeitig ein nach unten strömenden Moderator realisieren zu können, muss vom Design aktueller Brennelemente Abstand genommen werden und ein neues Brennelement-Design für den HPLWR entwickelt werden, dass diesen Anforderungen genügt.

DESIGN DES BRENNELEMENTS

Abb. 2 zeigt ein hexagonales (rechts) und ein quadratisches Brennelement für den Einsatz in einem HPLWR. In beiden sind die Brennstoffstäbe in zwei Reihen angeordnet.

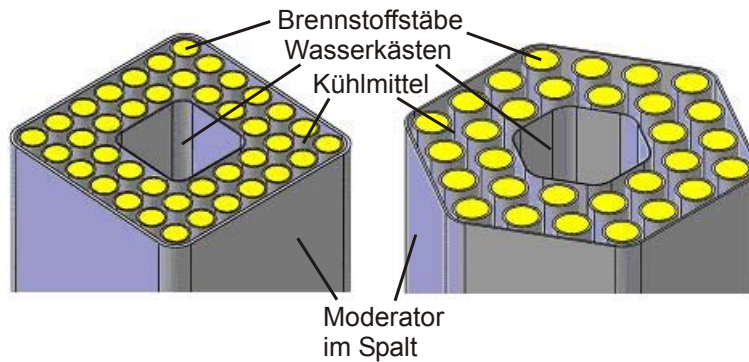


Abb. 2: Quadratisches und hexagonales zweireihiges Brennelement

Das Kühlmittel gelangt zwischen den Brennstäben vom unteren Plenum des Reaktordruckbehälters in das Dampfplenum. Der Moderator strömt durch die Wasserkästen, die sich in der Mitte der beiden Brennelemente befinden, nach unten. Zusätzlich dienen die Wasserkästen zur Führung der Kontrollstäbe. Neben den Wasserkästen strömt der Moderator zwischen den Brennelementen im sog. Moderatorspalt nach unten. Erste Analysen haben gezeigt, dass das quadratische Brennelement Vorteile gegenüber dem hexagonalen aufweist [5]. Daher wird für ein erstes Design das quadratische Brennelement gewählt.

Da in den Wasserkästen neben dem Moderator auch die Kontrollstäbe vorgesehen sind und die Brennelemente des quadratischen, zweireihigen Typs sehr klein sind, wäre für die Flansche der einzelnen Steuerstabantriebe im Deckel des Reaktordruckbehälters kein Platz. Deshalb werden neun Brennelemente in einem 3x3-Brennelementcluster angeordnet. Auf diese Weise kann auf die Steuerstabs-technik bestehender Druckwasserreaktoren zurückgegriffen werden.

Das komplette Brennelementcluster besteht aus den neun kleinen Brennelementen, einem Kopfstück und einem Fußstück, die nachfolgend diskutiert werden.

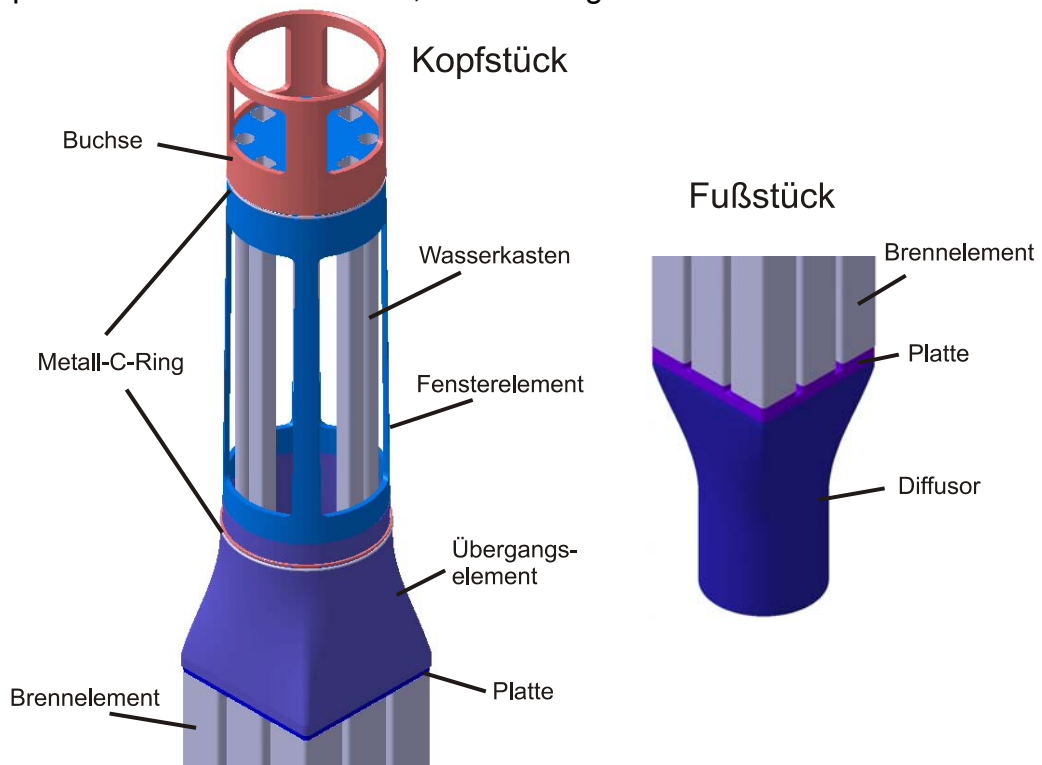


Abb. 3: Brennelementcluster-Kopfstück und -Fußstück

DESIGN DES BRENNELEMENTCLUSTER-KOPFSTÜCKS

Das Kopfstück des Brennelementclusters besteht aus vier Bauteilen: Kopfstückplatte, Kopfstück-Übergangselement, Fensterelement und Buchse (Abb. 3, links). Die Aufgaben des Kopfstücks bestehen darin, den überkritischen Dampf von den Brennstäben in das Dampfplenum zu leiten und dabei keine Leckagen zuzulassen. Das wird mittels Metall-C-Ringen realisiert, die selbst bei extremen Bedingungen eingesetzt werden können, beständig gegen radioaktive Strahlung und selbst verstärkend sind. Das Kopfstück wird auf das Brennelementcluster geschweißt, um eine größtmögliche Dichtigkeit zu gewährleisten.

DESIGN DES BRENNELEMENTCLUSTER-FUSSSTÜCKS

Die Bauteile Platte und Diffusor bilden das Fußstück (Abb. 3, rechts). Auf der Platte stehen die Brennstäbe des Brennelementclusters. Der Diffusor soll eine möglichst homogene Vermischung des Moderatorwassers, das von oben durch die Wasserkästen und durch den Spalt zwischen den Brennelementen nach unten strömt und erhitzt wird, mit dem im unteren Teil des Reaktordruckbehälters befindlichen Frischwasser ermöglichen. Nach der Vermischung strömt das Kühlmittel zwischen den Brennstäben nach oben. Das Brennelementcluster ist über den Brennelementkasten des zentralen Brennelements am Fußstück mittels Muttern befestigt. Mit der Demontage des Fußstücks und mit einer geeigneten Drehapparatur können einzelne Brennstäbe gezogen und durch neue ersetzt werden.

SCHLUSSFOLGERUNG

Der High Performance Light Water Reactor ist ein Reaktor mit weitaus höheren Dampfzuständen (Druck über 22,1 MPa, Temperatur über 374°C) als herkömmliche Leichtwasserreaktoren. Der Konstruktionsentwurf zeigt, wie eine gegengerichtete Strömungsführung im Kern realisiert werden kann, ohne dass es zu unzulässigen Leckagen in den Frischdampf führt. Die Bündelung der kleinen Brennelemente zu Clustern ist sowohl eine wirtschaftliche Lösung zur Konstruktion kleiner Brennelemente, als auch eine Lösung zur Verwendung herkömmlicher Steuerstabantriebe.

Wir danken Framatome ANP für die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit.

- [1] Y. Oka, S. Koshizuka, *Concept and design of a supercritical-pressure, direct-cycle light water reactor*, Nuclear Technology 103, 295-302, 1993
- [2] K. Dobashi, Y. Oka, S. Koshizuka, *Conceptual Design of a high temperature power reactor cooled and moderated by supercritical light water*, ICONE6, May 10-15, 1998
- [3] A. Yamaji, Y. Oka, S. Koshizuka, *Conceptual core design of a 1000MWe supercritical-pressure light water cooled and moderated reactor*, Proceedings of 2001 ANS/HPS Student Conference in Texas, A&M University, Texas, March 29-April 1, 2001
- [4] D. Squarer et al., *High Performance Light Water Reactor*, Nuclear Engineering and Design 221, 167-180, 2003
- [5] J. Hofmeister, T. Schulenberg, J. Starflinger, *Optimization of a fuel assembly of a HPLWR*, ICAPP'05, Seoul, Korea, 15-19 May 2005, to be published

Untersuchung der Hüllrohrtemperaturen eines HPLWR Brennelements im Gleitdruckbetrieb

Lars Behnke¹⁾, Thomas Schulenberg²⁾, Jörg Starflinger²⁾

¹⁾ RWE Power AG

Huyssenallee 2

D-45128 Essen, Germany

Tel: +49 7247 82 62 07, Fax: +49 7247 82 6323

Lars.Behnke@iket.fzk.de

²⁾ Forschungszentrum Karlsruhe GmbH

P.O. Box 3640

D-76021 Karlsruhe, Germany

Zusammenfassung

Eines der Konzepte der 4. Generation Nuklearer Systeme ist der „High Performance Light Water Reactor“ (HPLWR), der sich durch höhere Wirkungsgrade und geringere Anlagenkosten im Vergleich zu den modernsten konventionellen Leichtwasserreaktoren (LWR) auszeichnet. Der HPLWR wird bei Volllast oberhalb des thermodynamisch kritischen Punktes im direkten Kreislauf betrieben, das Kühlwasser verlässt den Reaktorkern als trockener, überhitzter Dampf. Im Rahmen einer Machbarkeitsstudie wurde untersucht, ob der bei konventionellen Kraftwerken übliche Gleitdruckbetrieb bei Teillast auch bei dieser nuklearen Anwendung möglich sein wird. Bei Gleitdruckbetrieb im Teillastbereich werden Drücke und Temperaturen unterhalb des kritischen Punktes vorliegen. Da aber der Dampf am Kernaustritt überhitzt sein soll, wird zwangsläufig ein Dryout im Kern auftreten, dessen Folgen für die Hüllrohrtemperatur auf maximal 620°C begrenzt werden muss, um lokal resultierende Schäden der Brennstäbe zu vermeiden. Für eine erste Abschätzung der Folgen eines Dryout bei Teillast wurde zunächst lediglich der heißeste Unterkanal dieses Brennelements als eindimensionale Rohrströmung ohne Wechselwirkung mit den Nachbarkanälen betrachtet. Weitere detaillierte Rechnungen mit einem Unterkanalprogramm sind geplant.

Die durchgeführten Untersuchungen lassen erwarten, dass der HPLWR für den Gleitdruckbetrieb bei Teillast grundsätzlich geeignet sein wird. Eine leistungsproportionale Absenkung des Kühlmittelmassenstroms bei Teillast ist jedoch nur möglich, wenn durch weitere Maßnahmen die Massenstromdichte erhöht wird. Um eine Absenkung der Kernaustrittstemperatur und damit Kondensationsprobleme in der Dampfturbine zu auszuschließen, sind dazu konstruktive Maßnahmen erforderlich, die die Massenstromdichte bei unverändertem Massenstrom erhöhen.

Untersuchung der Hüllrohrtemperaturen eines HPLWR Brennelements im Gleitdruckbetrieb

Lars Behnke¹⁾, Thomas Schulenberg²⁾, Jörg Starflinger²⁾

¹⁾ RWE Power AG

Huyssenallee 2

D-45128 Essen, Germany

Tel: +49 7247 82 62 07, Fax: +49 7247 82 6323

Lars.Behnke@iket.fzk.de

²⁾ Forschungszentrum Karlsruhe GmbH

P.O. Box 3640

D-76021 Karlsruhe, Germany

1 Einleitung

Kernkraftwerke produzieren heute etwa 16% der weltweiten Elektrizität und tragen dadurch zur Einsparung von CO₂-Emissionen bei. Um in Zukunft die weltweite Nachfrage nach Energie decken zu können und weiter von den Vorteilen der Kernkraft zu profitieren, wurde vom Generation IV International Forum ein Rahmenprogramm zur Entwicklung einer zukünftigen Generation von Kernkraftwerkskonzepten initiiert. Eines der Konzepte der 4. Generation Nuklearer Systeme [1] ist der „High Performance Light Water Reactor“ (HPLWR), der sich durch höhere Wirkungsgrade und geringere Anlagenkosten im Vergleich zu den modernsten konventionellen Leichtwasserreaktoren (LWR) auszeichnet¹ [2]. Der HPLWR wird bei Vollast oberhalb des thermodynamisch kritischen Punktes im direkten Kreislauf betrieben. Das Kühlwasser verlässt den Reaktorkern als trockener, überhitzter Dampf². Kerneinbauten zur Dampftrocknung sowie ein sekundärer Kreislauf entfallen. Der Turbosatz kann auf der Technologie konventioneller, überkritischer Dampfkraftwerke basieren. Im Rahmen dieser Arbeit wird untersucht, ob der bei konventionellen Kraftwerken übliche Gleitdruckbetrieb bei Teillast auch bei dieser nuklearen Anwendung möglich sein wird. Bei diesem Gleitdruckbetrieb im Teillastbereich werden Drücke und Temperaturen unterhalb des kritischen Punktes vorliegen. Da der Dampf am Kernaustritt überhitzt sein soll, wird zwangsläufig ein Dryout im Kern auftreten, in dessen Folge die Hüllrohrtemperatur auf maximal 620°C begrenzt werden muss, um lokale Schäden der Brennstäbe zu vermeiden.

Hofmeister et al. [3] berichten über ein neues Brennelementdesign in quadratischer Anordnung, das aus Clustern kleiner Brennelemente mit je 40 Brennstäben und einem innenliegenden Wasserkanal besteht. Waata et al. [4] berechneten bereits für diese Geometrie die Oberflächentemperaturen der Brennstabhüllrohre für den Vollastfall bei überkritischen Dampfungständen. Mit diesen Berechnungen konnte gezeigt werden, dass bei geeigneter Wahl der Anreicherung des Kernbrennstoffs im Brennelement die maximal zulässige Hüllrohrtemperatur nicht überschritten wird. Für eine erste Abschätzung der Folgen eines Dryout bei Teillast wurde zunächst lediglich der heißeste Unterkanal dieses Brennelements als eindimensionale Rohrströmung ohne Wechselwirkung mit den Nachbarkanälen betrachtet. Weitere detaillierte Rechnungen mit einem Unterkanalprogramm sind geplant.

¹ HPLWR: $\eta_{\text{net}} = 44\%$, Kosten \$ 900/kW, LWR: $\eta_{\text{net}} = 34\%$, Kosten \$ 1.800/kW [2]

² HPLWR Frischdampfparameter: $T_{\text{Frischdampf}} = \text{ca. } 500^\circ\text{C}$, $p_{\text{Frischdampf}} = \text{ca. } 25 \text{ MPa}$ [1]

2 Berechnungen

Für die Berechnungen wurde anhand der Stableistungsprofile bei Volllast von Waata et al. [4] der thermisch höchstbelastete Unterkanal bestimmt. Dieser Unterkanal wurde für die Berechnungen als extern beheiztes, zwangsdurchströmtes Rohr mit einem entsprechenden hydraulischen Durchmesser betrachtet. Für den gewählten Unterkanal wurden anhand der Volllast-Leistungsprofile der Brennstäbe die lokalen Wärmestromdichten und der Massenstrom proportional zur Brennelement-Querschnittsgeometrie berechnet und für realistische Teillastpunkte skaliert. Der Druck wurde jeweils leistungsproportional angenommen. Aus der Energiebilanz und dem Massenstrom wurden aufgrund der vom Kühlwasser eingebrachten und extern zugeführten Enthalpie der Dampfanteil x sowie die mittlere Kühlmitteltemperatur berechnet. Das Auftreten eines Dryout wurde nach dem Kriterium von Kon'kov [5] und eines DNB nach dem Kriterium von Doroshchuk et al. [6] bestimmt und mit den lokalen Wärmestromdichten verglichen. Bei der Überschreitung der kritischen Wärmestromdichten und einem hinreichenden Dampfgehalt wurde das Auftreten der jeweiligen Siedekrise postuliert. Die Berechnung der Wandtemperatur stromab des Dryout erfolgte anhand der Wärmeübergangsbeziehung von Groeneveld [7]. Im oberen Teil des Unterkanals wurde für den einphasigen, trockenen und überhitzten Dampf die Wandtemperatur mit den Korrelationen von Groeneveld-Delorme [8] sowie als Vergleich nach Dittus-Boelter berechnet. Ausgehend von einer leistungsproportionalen Absenkung der Massenstromdichte bei Teillast wurde die Massenstromdichte soweit erhöht, bis die zulässige Hüllrohrtemperatur am Ort des Dryouts mit einem gewissen Sicherheitsabstand unter 620°C lag.

3 Ergebnisse

Im Rahmen dieser Untersuchung wurden verschiedene relevante Lastpunkte analysiert. Im Folgenden werden exemplarisch die Teillastfälle 60% und 80% erläutert.

Abb. 3-1 zeigt die Kurven der lokalen Wärmestromdichten (ausgefüllte Symbole), des jeweiligen Dampfgehalts (leere Symbole) sowie die Kurven der kritischen Wärmestromdichten für den DNB (gestrichelt) bzw. Dryout (gepunktet). Das Leistungsmaximum im unteren Drittel des Unterkanals, das ca. 40-70% über der mittleren Wärmestromdichte liegt, verursacht in allen betrachteten Fällen erfreulicherweise keine Siedekrise. Kritisch sind die Betriebszustände knapp unterhalb des kritischen Punkts zu betrachten, als Beispiel der Lastfall bei 80% der Volllast mit 20 MPa Druck. Hier kann das Auftreten eines DNB zwar gerade noch ausgeschlossen werden, allerdings liegt hier die kritischen Wärmestromdichten für das Auftreten eines Dryout bzw. DNB sehr nahe beieinander, so dass auch beim Dryout hohe Hüllrohrtemperaturen auftreten können.

Mit einer vertikalen Linie durch den Schnittpunkt der Kurvenverläufe der lokalen und kritischen Wärmestromdichte kann wie in Abb. 3-1 beispielhaft für den 60% Lastfall durch Pfeile dargestellt die Höhe und der Dampfgehalt ermittelt werden, bei der der Dryout auftritt. Weiterhin kann ebenfalls die lokale Wärmestromdichte abgelesen werden, bei der der Dryout auftritt (horizontale Linie).

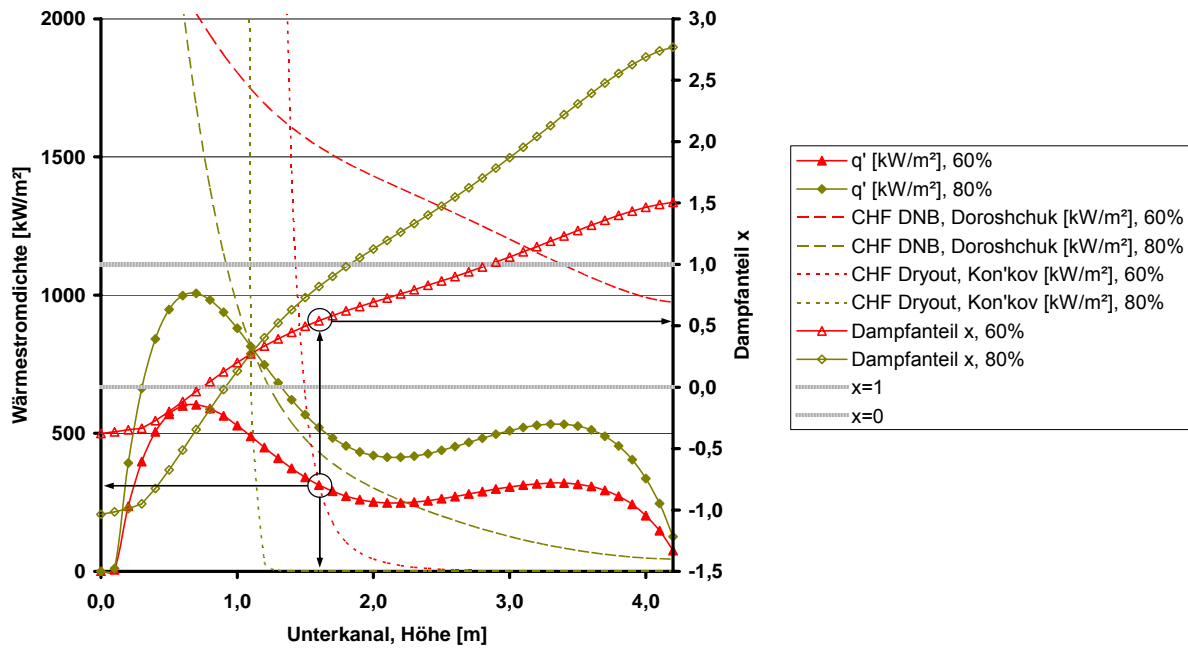


Abb. 3-1: Lokale und kritische Wärmestromdichten

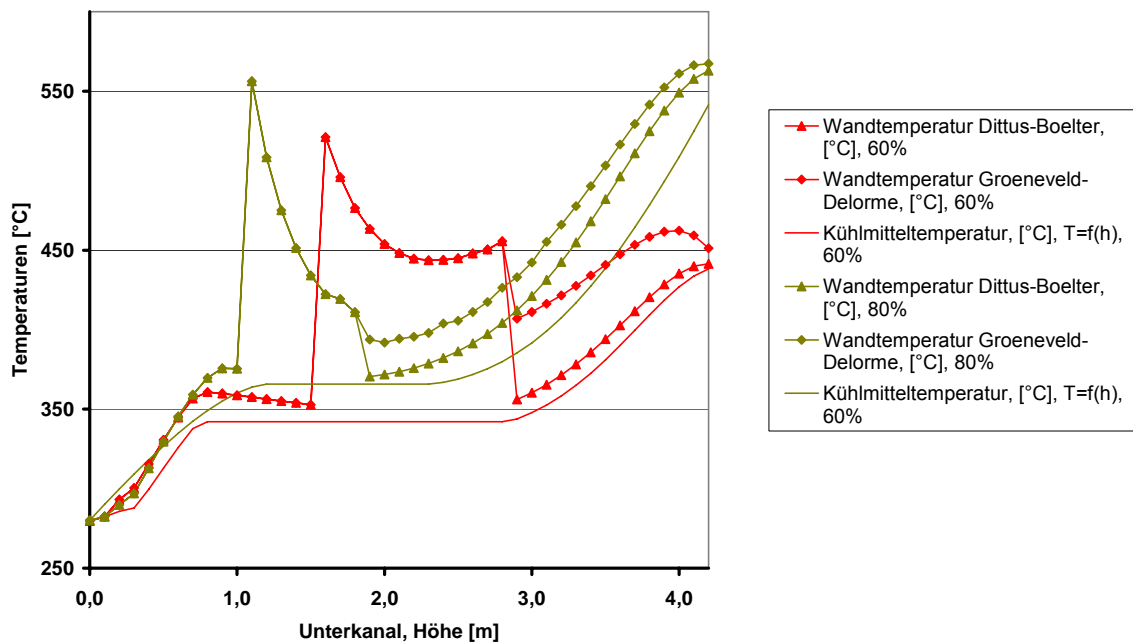


Abb. 3-2: Hüllrohr- und mittlere Kühlmitteltemperaturen

Die Temperaturverläufe für die Hüllrohroberfläche sowie die mittlere Dampftemperatur über der Unterkanalhöhe sind in Abb. 3-2 dargestellt. Die maximale Hüllrohrtemperatur für den 60% Teillastpunkt stellt sich im Dryout-Punkt ein. Es musste eine überproportionale Kühlmittelmassenstromdichte von $633,3 \text{ kg/m}^2\text{s}$ eingestellt werden, um eine Hüllrohrtemperatur unterhalb 620°C sicher zu stellen, wobei sich die Berechnung empfindlich gegenüber kleinen Variationen der Kühlmittelmassenstromdichte erwies. Für den 80% Teillastpunkt ergibt sich bereits durch eine leicht überproportionale Kühlmittelmassenstromdichte von $760 \text{ kg/m}^2\text{s}$ eine maximale Hüllrohrtemperatur unterhalb der 620°C , wobei die Temperaturmaxima im Bereich

Thermische Leistung Unterkanal (100% = 63 kW)		Kühlmittel- massenstromdichte (100% = 844,4 kg/m ² s)		max. Wandtemperatur	Kühlmitteltemperatur
[%]	[kW]	[%]	[kg/m ² s]	[°C]	[°C]
60	37,80	75	633,3	521,1	438,3
80	50,40	90	760,0	567,3	561,8

Tab.: 3-1 - Betriebspunktparameter

des Dryout und im Austrittsbereich ähnlich groß werden. Der negative Temperatursprung bei $x=1$ lässt sich physikalisch nicht erklären und scheint lediglich eine Folge der verwendeten Korrelationen zu sein. Eine Zusammenfassung der Ergebnisse in Abhängigkeit der thermischen Unterkannalleistung im jeweiligen Teillastpunkt mit der benötigten Kühlmittelmassenstromdichte und den daraus resultierenden Brennstabhüllrohr- und Kühlmittelaustrittstemperaturen ist in Tab. 3-1 dargestellt.

4 Schlussfolgerung

Die durchgeführten Untersuchungen lassen erwarten, dass der HPLWR für den Gleitdruckbetrieb bei Teillast grundsätzlich geeignet sein wird. Eine leistungsproportionale Absenkung des Kühlmittelmassenstroms bei Teillast ist jedoch nur möglich, wenn durch weitere Maßnahmen die Massenstromdichte erhöht wird. Da eine Absenkung der Kernaustrittstemperatur zu Kondensationsproblemen in der Dampfturbine führen könnte, sind eher konstruktive Maßnahmen erforderlich, die die Massenstromdichte bei unverändertem Massenstrom erhöhen. Denkbar sind geeignete Abstandshalter, ein mehrfacher Durchgang des Wassers durch den Kern, raue Hüllrohre, größere Brennstabdurchmesser bei unveränderter Stableistung o.ä. Maßnahmen.

Wir danken Framatome ANP für die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit.

5 Literatur

- [1] U.S. DOE Nuclear Energy Research Advisory Committee and the Generation IV International Forum (GIF): "A Technology Roadmap for Generation IV Nuclear Energy Systems", GIF-002-00, 2002
- [2] Squarer, D. et al., "High Performance Light Water Reactor", Nuclear Engineering and Design 221, 167-180, 2003
- [3] Hofmeister, J., et al. „Auslegung eines Brennelements für einen High Performance Light Water Reactor“ Jahrestagung Kerntechnik 2005
- [4] Waata, Chr., et al. "Coupled MCNP with a Sub-channel code for Analysis of a High Performance Light Water Fuel Assembly", Jahrestagung Kerntechnik 2005
- [5] Kon'kov, A. S., Experimental Study of the Conditions under which Heat Exchange Deteriorates when a Steam-Water Mixture Flows in Heated Tubes", Teploenergetika, Vol 13, No. 12, p. 77 (1965)
- [6] Doroshchuk, V. E., Levitan, L. L., Lantsmann, F.P. "Recommendations for Calculating Burnout in a Round Tube with Uniform Heat Release", Teploenergetika 22(12) p. 66-70 (1975)
- [7] Groeneveld, D. C. "An investigation of heat transfer in the liquid deficient regime", Atomic Energy of Canada Limited AECL-3281 (1969)
- [8] Groeneveld, D. C., u. G. G. J. Delorme "Prediction of thermal non-equilibrium in the post-dryout regime", Nuclear-Eng. and Design 36 (1976), S. 17/26

WÄRMEÜBERGANGSVERGLEICHE FÜR EINE ROHRSTRÖMUNG VON WASSER IM ÜBERKRITISCHEN ZUSTAND

Matthias Löwenberg¹⁾, Thomas Schulenberg²⁾, Jörg Starflinger²⁾

1) RWE Power AG
Huysenallee 2
D-45128 Essen, Germany
Matthias.Loewenberg@iket.fzk.de

2) Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
P.O. Box 3640
D-76021 Karlsruhe, Germany

ABSTRACT

Neue, fossil gefeuerte Kraftwerke erzielen höhere Anlagenwirkungsgrade und eine verbesserte Wirtschaftlichkeit durch die Nutzung überkritischen Dampfes. Diese Idee wurde von Squarer et al. auf ein Leichtwasserreaktor-konzept High Performance Light Water Reactor (HPLWR) übertragen. Da für durchströmte Rohrbündel in einem solchen Reaktor keine experimentell verifizierten Wärmeübergangskorrelationen im überkritischen Bereich existieren, muss vorerst auf Korrelationen und Experimente für innendurchströmte Einzelrohre zurückgegriffen werden. Vier verschiedene, u.a. von Piro et al. zitierte Wärmeübergangskorrelationen für überkritisches Wasser werden vergleichend gegenübergestellt und diese dann mit experimentellen Daten anderer Autoren verglichen.

Der Vergleich mit Wärmeübertragungskorrelationen mit experimentellen Daten zeigt, dass eine gute Übereinstimmung bei kleinen Rohrdurchmessern erreicht werden kann. Bei größeren Durchmessern sind teilweise deutliche Abweichungen ersichtlich. Diese Unsicherheit zeigt, dass diese Korrelationen für Stabbündel, wie sie im HPLWR vorkommen, nur mit äußerster Vorsicht angewendet werden dürfen.

WÄRMEÜBERGANGSVERGLEICHE FÜR EINE ROHRSTRÖMUNG VON WASSER IM ÜBERKRITISCHEN ZUSTAND

Matthias Löwenberg¹⁾, Thomas Schulenberg²⁾, Jörg Starflinger²⁾

1) RWE Power AG

Huysenallee 2

D-45128 Essen, Germany

Matthias.Loewenberg@iket.fzk.de

2) Forschungszentrum Karlsruhe GmbH

P.O. Box 3640

D-76021 Karlsruhe, Germany

EINLEITUNG

Neue, fossil gefeuerte Kraftwerke erzielen höhere Anlagenwirkungsgrade und eine verbesserte Wirtschaftlichkeit durch die Nutzung überkritischen Dampfes. Diese Idee wurde von Squarer et al. [1] auf ein Leichtwasserreaktorconcept High Performance Light Water Reactor (HPLWR) übertragen. Im Kern dieses Reaktors wird Wasser bei einem Druck von 25MPa auf etwa 508°C aufgeheizt, wobei seine Dichte um den Faktor 7 abnimmt. Da für durchströmte Rohrbündel in einem solchen Reaktor keine experimentell verifizierten Wärmeübergangskorrelationen im überkritischen Bereich existieren, muss vorerst auf Korrelationen und Experimente für innendurchströmte Einzelrohre zurückgegriffen werden. Nachfolgend werden vier verschiedene, u.a. von Piro et al. [2] zitierte Wärmeübergangskorrelationen für überkritisches Wasser vergleichend gegenübergestellt und diese dann mit experimentellen Daten anderer Autoren verglichen.

KORRELATIONEN

Bishop et al. [3] führten Experimente mit überkritischem Wasser in Rohren durch mit dem Ziel, eine Korrelation für den Wärmeübergang abzuleiten (Gl. 1). Sie betrachteten den folgenden Versuchsbereich: Massenstromdichte 651-3662kg/(m²s), Druck 22.8-27.6MPa, Bulk Temperaturen 282-527°C und Wärmestromdichten von 0.31-3.46MW/m².

$$Nu = 0.0069 * Re_b^{0.90} * Pr_b^{0.66} * \left(\frac{\bar{c}_p}{c_p}\right)^{0.66} * \left(\frac{\rho_w}{\rho_b}\right)^{0.43} * \left(1 + \frac{2.4D}{L}\right) \quad \bar{c}_p = \frac{h_w - h_b}{T_w - T_b} \quad (1)$$

Koshizuka und Oka [4] führten eine rein numerische Analyse für den Wärmeübergang durch. Verwendet wurden unter anderem das Jones-Lauder's k-ε Modell, Kontinuitätsgleichungen sowie Transportgleichungen für k, ε und die Enthalpie. Ergebnis dieser Untersuchung war eine Korrelation (Gl. 2) mit folgendem Gültigkeitsbereich: Massenstromdichte 1000-1750kg/(m²s), Enthalpie 0.1-3.3MJ/kg und einer Wärmestromdichte 0-1800kW/m².

$$Nu = 0.015 Re^{0.85} Pr^c \quad c = 0.69 - \frac{81000}{DHF} + f_c q \quad DHF = 200 * G^{1.2} \quad f_c = \begin{cases} 2.9E - 08 + \frac{0.11}{DHF} \dots 0 \leq h \leq 1500kJ / kg \\ -8.7E - 08 + \frac{0.65}{DHF} \dots 1500 \leq h \leq 3300kJ / kg \\ -9.7E - 07 + \frac{1.30}{DHF} \dots 3300 \leq h \leq 4000kJ / kg \end{cases} \quad (2)$$

Jackson [5] empfiehlt die Verwendung eine abschnittsweise definierte Korrelation (Gl. 3) vom Dittus-Boelter Typ, die für den Bereich Massenstrom 700-3600kg/(m²s), q<602 G und Durchmesser 1.6-20mm angegeben wird.

$$Nu = 0.0183 * Re_b^{0.82} * Pr_b^{0.5} * \left(\frac{\rho_w}{\rho_b} \right)^{0.3} * \left(\frac{c_p}{c_{pb}} \right)^n \quad (3)$$

$$n = 0.4 \dots \text{für} \dots T_b < T_w \leq T_{pc} \dots \text{und für} \dots 1.2T_{pc} \leq T_b < T_w$$

$$n = 0.4 + 0.2 \left[\left(\frac{T_w}{T_{pc}} \right) - 1 \right] \dots \text{for} \dots T_b \leq T_{pc} < T_w$$

$$n = 0.4 + 0.2 \left[\left(\frac{T_w}{T_{pc}} \right) - 1 \right] \left[1 - 5 \left[\left(\frac{T_b}{T_{pc}} \right) - 1 \right] \right] \dots \text{für} \dots T_{pc} \leq T_b < 1.2T_{pc} \dots \text{und} \dots T_b < T_w$$

Petukov [6] ermittelte in seinen Untersuchungen eine Korrelation (Gl. 4), die sowohl den gewöhnlichen als auch den verschlechterten Wärmeübergang berücksichtigt. Gültigkeitsbereiche wurden hier nicht angegeben.

$$Nu = Re_b * Pr_b * \frac{\left(\frac{f}{8} \right)}{\left(1 + \frac{900}{Re_b} + 12.7 * \left(\frac{f}{8} \right)^{0.5} * (Pr^{2/3} - 1) \right)} \quad f = \left(1.82 * \log_{10} \left(\frac{Re_b}{8} \right) \right)^{-2} * \left(\frac{\rho_w}{\rho_b} \right)^{0.4} \quad (4)$$

AUSWERTUNG

Beim HPLWR werden Massenstromdichten bis zu 1000kg/(m²s) und Wärmestromdichte bis zu 1400kW/m² erwartet [1]. Die dargestellten Korrelationen decken mit ihrem Gültigkeitsbereich diese Werte ab; allerdings existieren keine experimentellen Daten für diese relativ hohen Wärmestromdichten. Nachfolgend werden die oben genannten Wärmeübergangskorrelationen anhand von Experimenten verifiziert. Dabei werden Messdaten verwendet, die nicht von den genannten Autoren stammen, was dann auch Hinweise auf die Übertragbarkeit der Korrelationen auf andere Randbedingungen (innerhalb der Gültigkeit der verwendeten Gleichungen) gibt. Die verwendeten experimentellen Daten stammen von Griem [7] und Yamagata [8].

Die Wärmeübergangskorrelationen (Gl. 1-4) wurden für die jeweiligen Experimente getestet. Die Abb. 1 und Abb. 2 zeigen die Temperatur der Innenwand als Funktion der Bulkenthalpie. Eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen Werten, bei relativ geringen Wärmestromdichten von 698kW/m², ist in Abb. 1 durch die Korrelationen von Bishop und Jackson gegeben. Die Korrelation von Koshizuka-Oka gibt das Experiment bis 1700kJ/kg gut wieder. Darüber werden Wandtemperaturen um bis zu 20°C unterschätzt. Die Petukhov Korrelation überschätzt die Wandtemperatur im unteren Bulkenthalpiebereich deutlich und unterschätzt sie bei höheren Werten. Von allen 4 Korrelationen ist sie die schlechteste.

In Abb. 2 sind ebenfalls von Yamagata gemessene Wandtemperaturen aufgetragen, hier allerdings für eine höhere Wärmestromdichte (930kW/m²). Jackson gibt die experimentellen Daten im untersuchten Bulkenthalpiebereich gut wieder; er überschätzt die Wandtemperatur um max. 10°C.

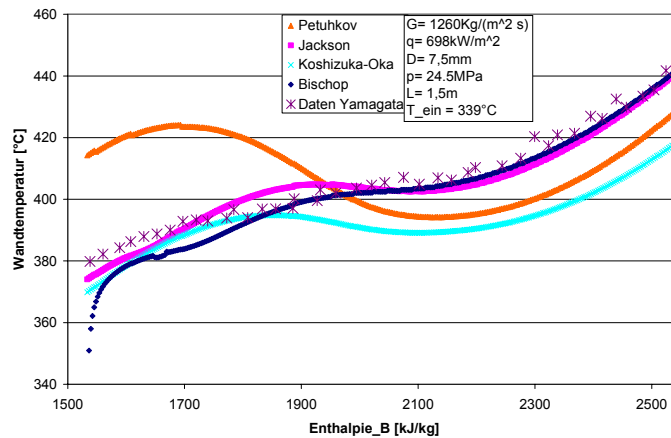


Abb. 1: Korrelationsvergleich mit experimentellen Daten von Yamagata (698kW/m²)

Die Bishop Korrelation beschreibt die Wandtemperaturen recht gut; im unteren Bulkenthalpiebereich mit einer maximalen Unterschätzung von ca. 15°C. Mit der Koshizuka-Oka Korrelation werden bis 1800kJ/kg die Temperaturen leicht unterschätzt, darüber hinaus weicht sie um ca. 25°C von den Werten ab. Die Petuhkov Korrelation scheint ungeeignet zur Berechnung der Wandtemperaturen dieses Versuchs.

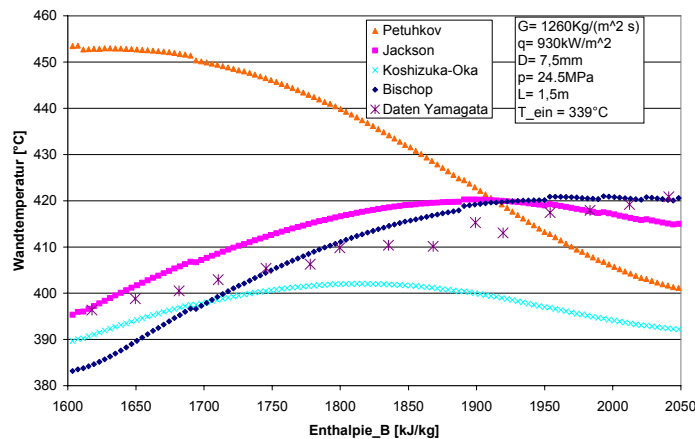


Abb. 2: Korrelationsvergleich mit experimentellen Daten von Yamagata (930kW/m²)

Im Unterschied zu den bisherigen Abbildungen zeigt Abb. 3 den Wärmeübertragungskoeffizient als Funktion der Bulkenthalpie. Die experimentellen Daten sind mit annähernd gleicher Wärmestromdichte wie in Abb. 1 aber deutlich höheren Massenstromdichten wie auch bei größerem Rohrdurchmesser gemessen worden. Die Jackson Korrelation zeigt über den gesamten gemessenen Bereich den Trend richtig voraus. Doch ist sie bei diesen Parametern, genauso wie Bishop und Koshizuka-Oka, sehr optimistisch bezüglich des zu erwarteten Wärmeübergangskoeffizienten. Petuhkov ist von Beginn an konservativ, vermag es aber nur bis zu einer Enthalpie von 1900kJ/kg den Trend richtig wiederzugeben. Koshizuka-Oka weicht hier am weitesten ab.

SCHLUSSFOLGERUNG

Der Vergleich mit Wärmeübertragungskorrelationen mit experimentellen Daten zeigt, dass eine gute Übereinstimmung bei kleinen Rohrdurchmessern (Abb.1 und 2)

erreicht werden kann. Bei größeren Durchmessern (Abb. 3) sind teilweise deutliche Abweichungen ersichtlich.

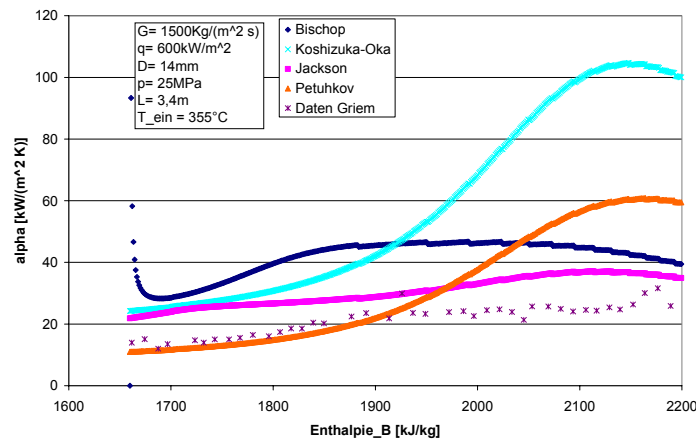


Abb. 3: Korrelationsvergleich mit experimentellen Daten von Griem

Diese Unsicherheit zeigt, dass diese Korrelationen für Stabbüdel, wie sie im HPLWR vorkommen, nur mit äußerster Vorsicht angewendet werden dürfen. Der Vergleich belegt eindeutig die Notwendigkeit von Experimenten zur Bestimmung von Wärmeübergangskorrelationen an durchströmten Rohrbündeln in überkritischem Wasser. Keine der untersuchten Korrelationen scheint uneingeschränkt geeignet zu sein, den Wärmeübergang bzw. die Wandtemperatur mit ausreichender Genauigkeit für reaktortypische Bedingungen zu bestimmen.

Wir danken Framatome ANP für die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit.

- [1] D. Squarer, T. Schulenberg et. al.; "High Performance Light Water Reactor", Nuclear Engineering and Design, 221 (2003), 167-180
- [2] I.L. Pioro, H.F. Khartbil, R.B. Duffey; "Heat transfer to supercritical fluids flowing in channels – empirical correlations (survey)"; Nuclear Engineering and Design; 230 (2004) 69-91
- [3] A.A. Bishop, R.O. Sandberg, L.S. Tong; "Forced convection heat transfer to water at near-critical temperatures and supercritical pressures", Report WCAP-2056, Part IV, Westinghouse Electric Corp, Pittsburgh, USA
- [4] S. Koshizuka, Y. Oka; "Computational Analysis of Deterioration Phenomena and Thermal-hydraulic Design of SCR"; SCR-2000, Paper 302, Nov. 6-8. Tokyo
- [5] J.D. Jackson; "HTFS Design Report No.34 – Heat Transfer to supercritical pressure fluids. Part 1 – Summary of design recommendation and equations"; 1975
- [6] B.S. Petuhkov, V.A. Kurganov; "Heat transfer and flow resistance in the turbulent pipe flow of a fluid with near-critical state parameters", Teplofizika Vysokikh Temperature, Vol.21, No.1, pp. 92-100
- [7] H. Griem; "A new procedure for the prediction of forced convection heat transfer at near- and supercritical pressure"; Heat and Mass Transfer 31 (1996) 301-305
- [8] K. Yamagata, K. Nishikawa, S. Hasegawa, T. Fuji, S. Yoshida; "Forced convective heat transfer to supercritical water flowing in tubes", Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 15, pp.2575-2593, 1972

COUPLED MCNP AND SUB-CHANNEL CODE FOR ANALYSES OF A HIGH PERFORMANCE LIGHT WATER REACTOR FUEL ASSEMBLY

Christine Waata¹, Thomas Schulenberg, Xu Cheng
Forschungszentrum Karlsruhe, Institute for Nuclear and Energy Technologies,
Hermann-von-Helmholtz-Platz 1, 76344 Eggenstein-Leopoldshafen, Germany

Phone: +49(0)7247824150, Fax: +49(0)7247824837, E-Mail:
christine.waata@iket.fzk.de

ABSTRACT

The use of water at super-critical pressure as coolant and moderator introduces a challenge in the design of a HPLWR fuel assembly. At super-critical pressure ($p=25\text{MPa}$), the thermal-hydraulics behaviour differs strongly from that at sub-critical pressure due to a rapid variation of the thermal-physical properties across the pseudo-critical line. Because of the strong link between the water moderation density and neutron spectrum, a coupling of neutronics and thermal-hydraulics is a necessity for this application. Furthermore, the effect of the coupling on the local parameters in a fuel assembly is required for accurate design studies. For this purpose, the Monte Carlo code MCNP and the sub-channel code STAFAS (Sub-channel Thermal-hydraulics Analysis of a Fuel Assembly under Supercritical steam conditions) have been coupled. The MCNP code is used for neutronics analyses and for the prediction of power profiles of individual fuel pins. The sub-channel code STAFAS for the thermal-hydraulics analysis takes into account the coolant properties beyond the critical point as well as separate moderator channels. These two codes are combined into a coupled system and enable the consistent prediction of power, water density and temperature distributions of any fuel assembly design. The coupled system has been applied for analysis of a recently developed fuel assembly for HPLWR. The coupling method and results from this analysis will be presented and discussed.

¹ Corresponding Author

COUPLED MCNP AND SUB-CHANNEL CODE FOR ANALYSES OF A HIGH PERFORMANCE LIGHT WATER REACTOR FUEL ASSEMBLY

Christine Waata, Thomas Schulenberg, Xu Cheng, Joerg Starflinger

Forschungszentrum Karlsruhe, Institute for Nuclear and Energy Technology,
D-76344 Karlsruhe, Germany
Phone: +49(0) 724 7824150, Fax: +49(0) 7247824837,
Email: christine.waata@iket.fzk.de

INTRODUCTION

The high performance light water reactor (HPLWR) is an innovative light water reactor concept operating at supercritical steam conditions. It shall offer the advantage of higher thermal efficiencies and lower capital cost compared with a conventional PWR or BWR [1]. Due to the strong variation of water density with enthalpy at supercritical conditions, the design of a HPLWR fuel assembly requires the coupling of neutronics with thermal-hydraulics analysis. The first coupled approaches with a deterministic code (KARBUS/KARPOS) and with a system code (RELAP) by Broeders et al. [2] show already a strong interaction of power and density. Here, a detailed pin-wise and sub-channel wise study is presented for a more accurate design. To investigate in further detail the coupling of neutronics with thermal-hydraulics, a new coupled system is developed. The Monte-Carlo code MCNP is applied for neutronics analysis and to predict the power distribution in individual fuel pins of a fuel assembly. A sub-channel code STAFAS (Sub-channel Thermal-hydraulics Analysis of a Fuel Assembly under Supercritical Conditions) developed by Cheng et al. [3] is used to calculate the thermal-hydraulics in individual flow channels of a fuel assembly. The STAFAS code takes into account coolant properties beyond the critical point, separate moderator channels, both upward and downward flow, heat transfer on the cladding and other structural materials, pressure drop and the mixing in the sub-channels. The two codes are combined into a coupled system to predict consistently the distribution of both neutronics and thermal hydraulics, allowing for analyses of local effects on individual sub-channel, moderator flow channels and pin-wise power distribution, therefore predicting an accurate behavior of a HPLWR fuel assembly.

COUPLING METHOD

The method described in Fig. 1 shows how the Monte Carlo code MCNP is coupled with the STAFAS code. From MCNP neutronics analyses an axial energy distribution in individual fuel pins of a fuel assembly is calculated. The energy distribution, together with the total power defined in STAFAS input is converted into power distribution and used as the heat source for thermal-hydraulics calculation. From the STAFAS analyses, the coolant and moderator density in each sub-channel, and the fuel temperature distribution in each fuel pin is calculated and fed back into MCNP input to continue the calculation. The feedback of energy distribution, water density distribution and fuel temperature distribution is repeated until a converged stated is achieved. An under-relaxation factor is applied on the fuel temperature, coolant and moderator density distribution before they are provided in MCNP input to accelerate the coupling convergence.

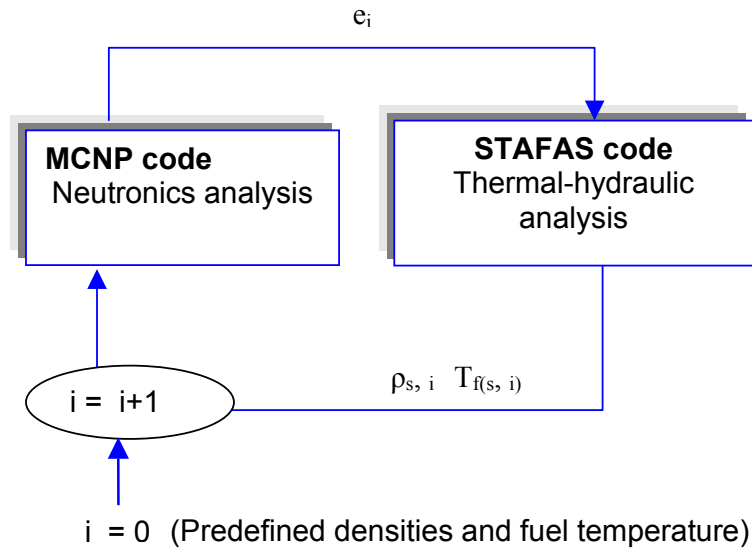


Fig.1: Coupling method of MCNP/STAFAS code

FUEL TEMPERATURE

The temperature for processing data in MCNP is defined in the material card via the cross section identifier and with the use of the “Tmp. Card”. Due to lack of cross section data for different temperatures in the MCNP library, a mixture of two materials at temperatures with existing cross section data is used to account for the calculated fuel temperature from STAFAS.

ANALYSES OF HPLWR FUEL ASSEMBLY

The coupled system is applied for analyses of a square fuel assembly developed in [4] for the HPLWR. It consists of 7x7 fuel rod arrays and a single water tube at the centre, displacing 9 fuel rods. Due to symmetry, only one-eighth of the fuel assembly shown in Fig.2, with 7 fuel rods and 9 sub-channels is analysed. It contains fuel rods at a diameter of 8mm with uranium dioxide fuel at 5% enrichment, a helium gap of

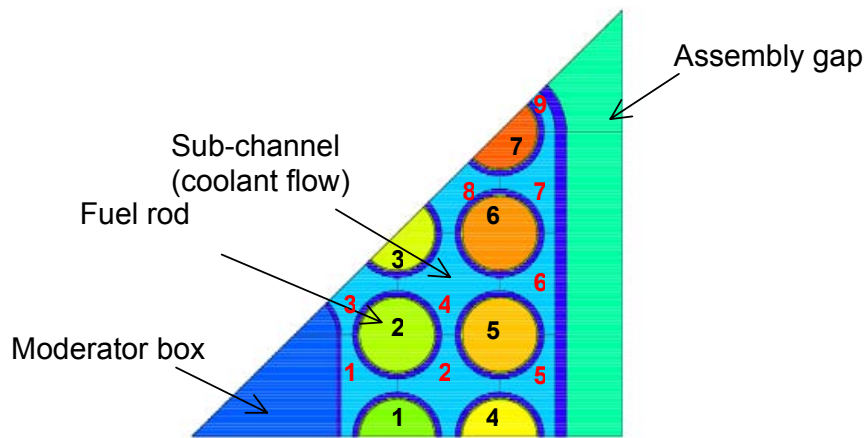


Fig. 2: One-eighth of a square fuel assembly

0.15mm between the cladding and inner fuel pin, cladding material alloy 316 at 0.5mm thickness, an active height of 4200mm, a top and bottom water reflector and a gap of 10mm between two fuel assemblies. For the axial variation, the active height is divided into 21 axial cells in MCNP. The analysis is carried out for a fresh core;

control rods or burnable poison are not considered. The coupling calculation is started in MCNP with constant conditions for fuel temperature, moderator density and coolant density. The boundary conditions are set to a total mass flow rate and total power in STAFAS for one sub-assembly at 167 kg/s and 327.5 kW respectively. With these conditions an exist temperature of about 507 °C is computed. A power density of 104 MW/m³ is evaluated, which is higher than the power density of a typical PWR.

RESULTS

With constant density and fuel temperature as initial conditions in MCNP, the power distribution produced follows the shape of a cosine, with a maximum in the middle. A converged state of the coupled analysis was achieved after eight iterations with an under-relaxation factor of 0.2. The converged results shows a power distribution in the fuel pins with two power peaks, one higher close to the bottom part and a lower peak close to the top as shown Fig. 3. A uniform power distribution is achieved in the different fuel pins with exception of the pin 7, which has a slightly higher power as it is exposed to more moderation than the others. This corner pins is usually treated as the hot pin.

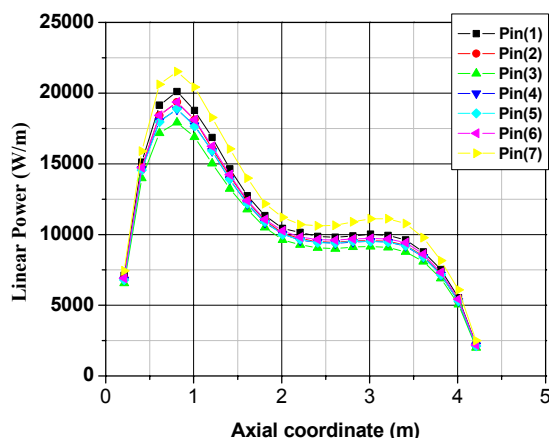


Fig. 3: Linear power distribution

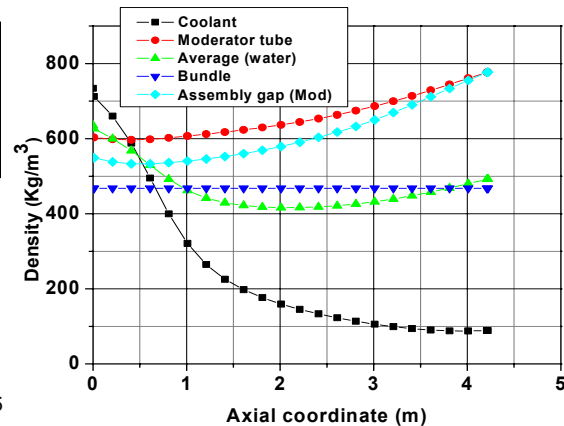


Fig. 4: Average water density distribution

Fig. 4 shows the average water density in the sub-channels, moderator tube, in the gap between assemblies and over the entire cross section of the fuel assembly using the power profiles shown in Fig.3. The straight horizontal line in the x-axis shows the average density over the entire fuel assembly volume to be 476 kg/m³. The coolant density decreases significantly as the pseudo-critical temperature (384 °C) is approached. The water density in the moderator and assembly gap decreases in the flow direction (downwards). The average water density in the entire cross section of the fuel bundle is highest at the inlet and decreases along the height and then increases again due to the moderator effect at the top.

The cladding surface temperature illustrated in Fig. 5 is calculated with the heat transfer coefficient from Bishop's correlation, as recommended by Cheng and Schulenberg [5]. At the pseudo-critical line, where the heat transfer coefficient has a maximum, the temperature drops and then increases again above the pseudo-critical line with decrease in heat transfer coefficient. The maximum cladding temperature computed in SC (9) exceeds the allowable limit of 620 °C for the HPLWR. This is due to the hot pin effect and the low heat transfer coefficient predicted.

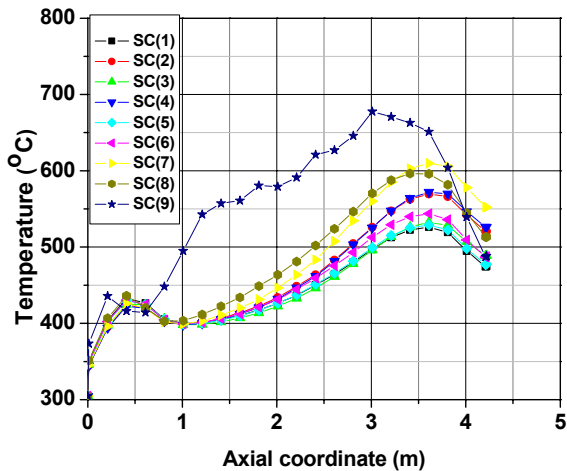


Fig.5: Cladding temperature distribution

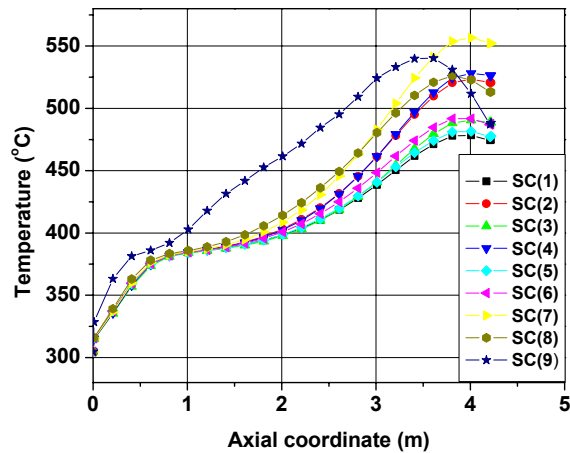


Fig.6: Coolant temperature distribution

Fig. 6 shows the coolant temperature distribution in different sub-channels. A uniform temperature distribution is observed in the sub-channels (SC (1) – SC (8)) in the lower part. A higher coolant temperature is predicted in the corner sub-channel SC (9). A temperature spread of about 100 °C at the exit is observed in the different sub-channels.

CONCLUSION

A coupled system of MCNP and a sub-channel code STAFAS is developed. It has been successfully applied for analyses of a fuel assembly design of the HPLWR. The converged coupled analysis shows a power distribution with two peaks, one close to the bottom part and the other one close to the top, as the average water density is higher at the inlet and decreases along the height and increases again due to moderator flow downwards from the top. The benefit of this coupled system is the capability to study local effects of the power distribution pin -wise and water density distribution sub-channel wise. As a results the hot pin regions and hot sub-channels were identified which indicate the areas for design modification to meet the permitted cladding temperature of 620 °C.

ACKNOWLEDGEMENT

The authors like to thank Framatome ANP for their financial support of this work.

REFERENCE

1. Squarer, D., Bittermann, D., Schulenberg, T., Oka, Y., Aksan, N., Maraczy, C., Kyrki-Rajamaki, C, Souyri, A., Dumaz, P and Struwe, D. "High Performance Light Water Reactor" Nuclear Engineering and Design 221 (2003) 167 - 180
2. Broeders, C.H.M., Sanchez., V., Stein, E and Travleev, A. "Validation of coupled neutron physics and thermal-hydraulics analysis for HPLWR". ICAPP, Cordoba, 2003
3. Cheng, X., Schulenberg, T., Bittermann, Rau. P; "Design analysis for supercritical pressure condition" Nuclear Engineering and Design 223(2003) 279-294.
4. Hofmeister, J. "Optimization of a Fuel Assembly for a HPLWR", Nuclear KTG Annual Technology 2005 Nuremberg.
5. Cheng, X., Schulenberg, T;" Heat transfer at supercritical pressure- literature review and application to an HPLWR" Scientific report FZKA 6609

IMPACT OF BASIC CROSS-SECTIONS AND THERMAL SCATTERING LAW DATA ON NEUTRONICS PARAMETERS OF HPLWR'S

A. Conti
IKE, University of Stuttgart, Germany

The High Performance Light Water Reactor (HPLWR) operating with supercritical water is one of the favourites of the Generation IV reactor concepts. Several design concepts were investigated for the HPLWR, especially the main neutronics parameters. Since the supercritical state of the water (250 bar and 300 – 500 °C) is different from the liquid water of the present PWR and BWR, the question of the validity of the available thermal scattering law data arises. To get an overview over the impact of the scattering law data on important parameters of a HPLWR 2D burn up calculations have been performed on two significant combinations of temperature and density of moderator and coolant, in order to evaluate the influence of the coolant's local thermodynamic conditions on the fuel's performance. Considering the square HPLWR geometry proposed by Bittermann, each of the two above-mentioned simulations has been carried out using thermal cross section sets prepared at IKE for hydrogen considered respectively as free gas, bound to the molecule of liquid H₂O and bound to the molecule of H₂O in form of vapour.

The different results obtained in dependence on the chemical-physical model assumed for the moderator testifies the urgency of precise data for the supercritical state's thermalization properties.

IMPACT OF BASIC CROSS-SECTIONS AND THERMAL SCATTERING LAW DATA ON NEUTRONICS PARAMETERS OF HPLWR'S

A. Conti
IKE, University of Stuttgart, Germany

Introduction

The basic concept of the High Performance Light Water Reactor (HPLWR) is the cooling by means of water at a supercritical pressure of around 25 MPa, having inlet and outlet temperatures respectively of about 300 °C and about 500 °C.

Not only does the wide coolant's temperature variation guarantee a high plant efficiency, but the utilisation of supercritical water would also allow important plant simplifications, compared to the conventional PWR and BWR schemes.

In fact, as the coolant doesn't change phase, the implementation of a direct cycle would be feasible without the support of steam separators and recirculation hardware.

On the other hand, some new issues arise which need to be addressed by a substantial effort of R&D.

In particular, the uncertainty on the thermalization properties of supercritical water and the influence of the coolant's local thermodynamic state on the reactivity of the fuel assembly's single layer are object of a preliminary evaluation in the present study.

In order to achieve a sufficient high moderation ratio and to flatten the axial power profile, most of the fuel assembly designs proposed so far feature the presence of water rods, through which part of the feeding water should flow downwards, whereas the rest should descend the downcomer, merge with the water coming out of the moderator channels and then flow upwards around the fuel rods, acting as coolant.

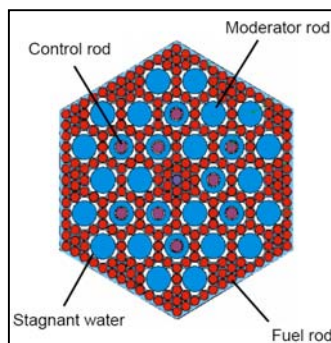


Fig. 1: Hexagonal arrangement by Dobashi et al. [1]

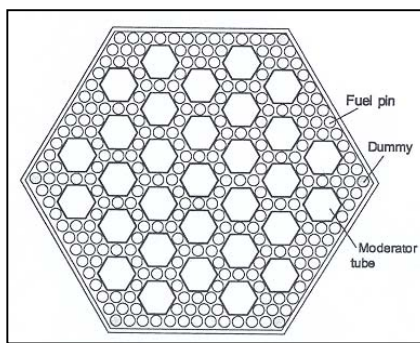


Fig. 2: Hexagonal arrangement by Bittermann [2]

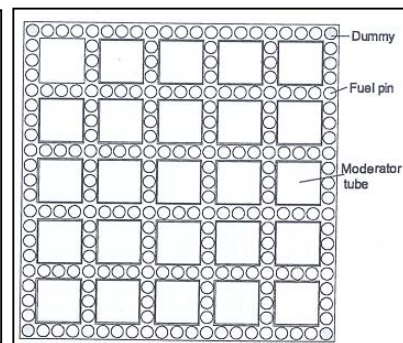


Fig. 3: Square arrangement by Bittermann [2]

Some arrangements of fuel, moderator and coolant are shown in Figs. 1-3.

2D parametrical study of a HPLWR assembly's burn up

The present study has been conducted referring to the square geometry of Fig. 3, which has been implemented according to the „reference parameters“ reported by Chang et al. [3], but with the following modifications:

- temperature and density of moderator (T_m, ρ_m) and coolant (T_c, ρ_c) fixed over all the cross section of the fuel bundle
- identical initial enrichment for all the pins, which doesn't offer the uniform radial power distribution assumed in [3]

Considering the axial profiles of T_m, ρ_m, T_c, ρ_c estimated in [3] for $P=25\text{MPa}$, the goals of this study are:

- to evaluate the influence of T_c, ρ_c on the performance of the assembly's single layer and its dependence on the burn up.
- to study the impact of different thermal neutron scattering data models for hydrogen bound in H_2O on the most important parameters related to this design's safety.

In practice the coupling of minimum foreseen T_m with, alternatively, the maximum and minimum foreseen T_c have been implemented as shown in table 1.

Table 1: Parameter combinations for the 2D burn up calculations

	$T_{\text{coolant}}, \rho_{\text{coolant}}$	$T_{\text{moderator}}, \rho_{\text{moderator}}$
Case 1 (top)	497 °C, 88 Kg/m ³	282 °C, 774 Kg/m ³
Case 2 (~bottom)	297 °C, 749 Kg/m ³	282 °C, 774 Kg/m ³

These two combinations represent the configurations at the top and, approximately, at the bottom layers of the assembly.

Two-dimensional burn up simulations have been carried out for the two above-mentioned cases, coupling ORIGEN2 [4] and MCNPX [5] in order, respectively, to perform the depletion calculations and to provide step-by-step updated cross sections and power distribution.

The lack of literature on neutron scattering dynamics in supercritical water gives rise to a certain degree of uncertainty regarding its thermalization properties.

To cope with the absence of definitive data for the supercritical state, each of the two above-mentioned simulations has been carried out in three independent versions, using thermal cross sections sets developed at IKE by Keinert et al. [6] for H in H_2O considered respectively as:

- Free gas
- Bound in the molecule of H_2O in liquid phase
- Bound in the molecule of H_2O in the form of vapour

maintaining of course the original T_m, ρ_m, T_c, ρ_c of the supercritical water.

For the supercritical state no measured thermal scattering cross section data were available.

The influence of the physical model adopted for the moderating means is testified for example by the different spectra (Fig. 4) and reaction rates (Fig. 5) arising in the fuel in dependence of the thermal cross section set used.

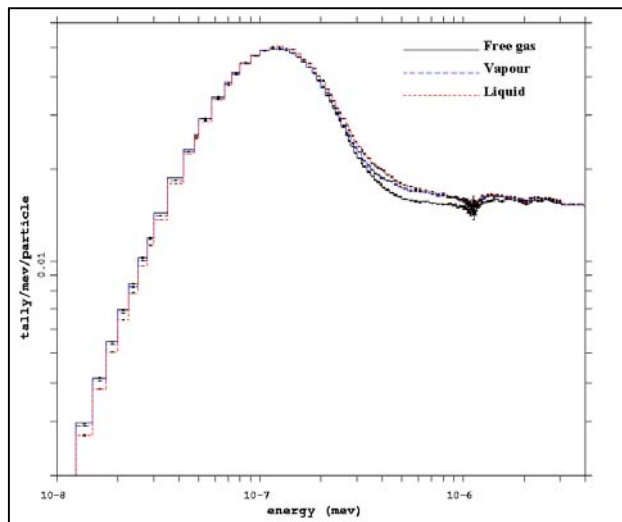


Fig.4: Spectra detected by MCNPX in fresh fuel using the three different models for H₂O. Coolant temperature = 297 °C (bottom layer).

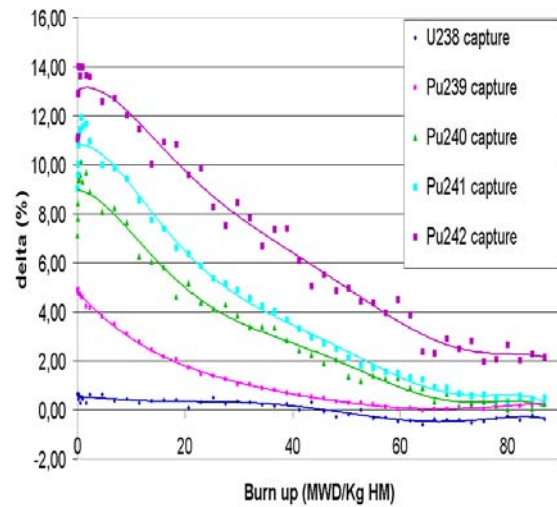


Fig.5: For the major actinides, the difference (expressed in %) between the capture rates obtained using the liquid and the free gas models is represented. Coolant temperature = 297 °C (bottom layer).

The intuitive idea that a neutron hitting the nucleus of a H atom bound in a molecule of H₂O scatters against a body much more massive than the H atom itself, can give a rough explanation to the harder spectra found for liquid water and vapour, in that a more massive body has a lower thermalization capacity.

This finds confirmation in a lower K_{inf} (see Fig. 7) and in higher reaction rates for the isotopes of Pu found for the liquid (see Fig. 5) and vapour cases.

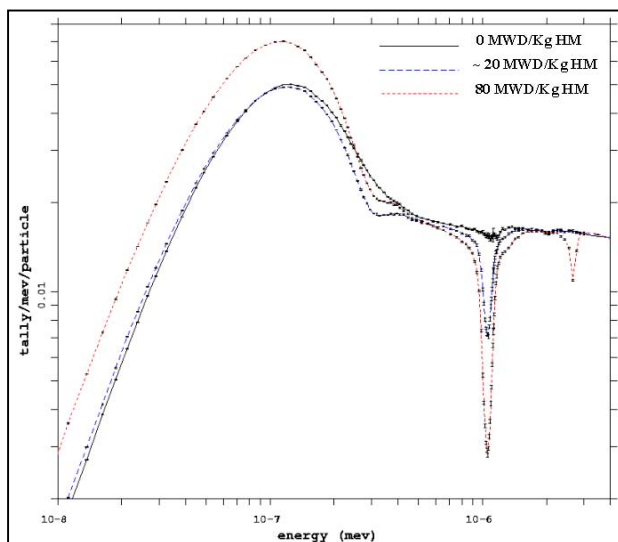


Fig. 6: Spectra in the fuel tallied at 0, around 20, and 80 MWD/Kg HM. The negative peaks at about 1E-6 MeV and 3E-6MeV correspond to resonances in the capture cross sections respectively of Pu240 and Pu242. Coolant temperature = 297 °C (bottom layer).

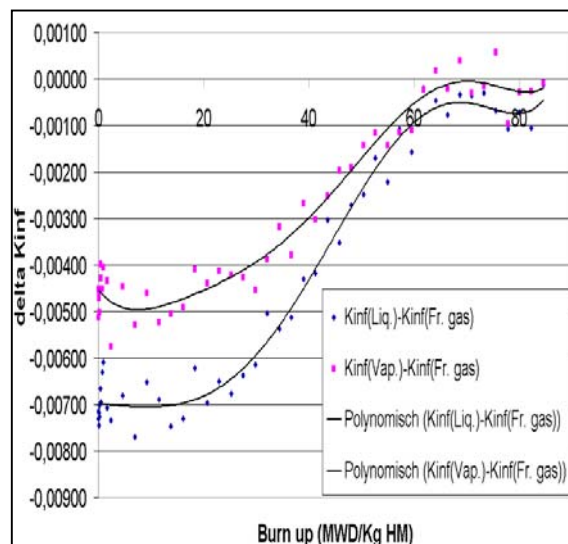


Figure 7: The diagram reports the differences $K_{inf}(\text{Liquid})-K_{inf}(\text{Free gas})$ and $K_{inf}(\text{Vapour})-K_{inf}(\text{Free gas})$ and their dependence on the burn up. Coolant temperature = 297 °C (bottom layer).

The molecule of H₂O in form of vapour, contrary to the liquid case, is free to translate and to rotate. These additional degrees of freedom give the molecule a larger capac-

ity to absorb energy than in the liquid case, giving it a moderating capacity in the middle between the liquid model and the free gas approximation.

This explains the fact that the results found for vapour are qualitatively the same as for liquid water, but of minor magnitude.

The fact that the influence of the scattering law is less important for high burn up, as apparent in Fig. 7, suggests that some compensation effects must arise during the irradiation. In this sense, self-shielding of Plutonium resonances (Fig. 6) is certainly a factor to take into account.

The far higher temperature and the lower density of the coolant in the second considered case result in a lower moderating efficiency of the water around the fuel rods. This explains the initial lower reactivity of the configuration and the higher production of Pu which, in turn, contributes to a larger reactivity at higher burn up.

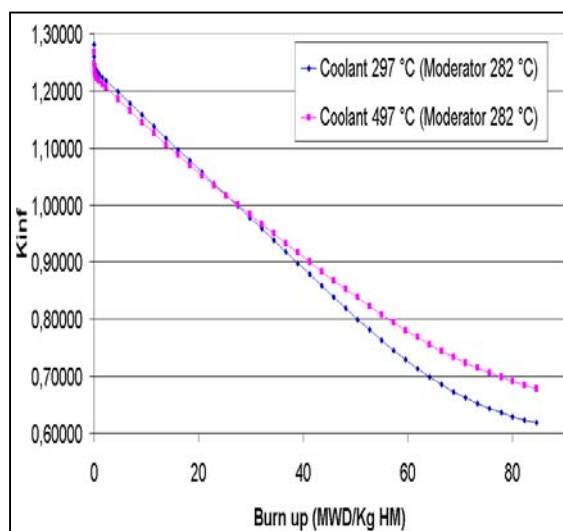


Fig. 8: Reactivity in the bottom and top layers in function of the burn up.

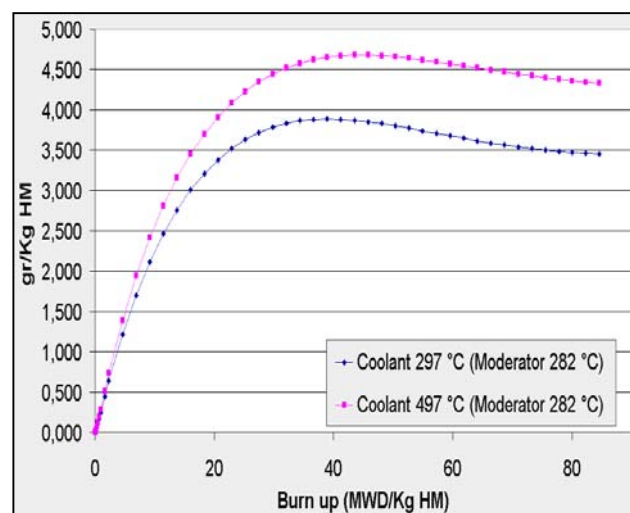


Fig. 9: Concentration of Pu239 in the fuel as a function of the burn up

Conclusions

Although the presence of the moderator channels, the wide difference of coolant's density between top and bottom of the assembly is cause of concrete differences in the spectra, reactivity and reaction rates between different layers of the same assemblies.

The magnitude and the sign of these discrepancies is going to vary according to the burn up which the assembly has undergone.

In particular, where the coolant's density is lower, a harder spectrum will be responsible, at the end of the fuel's life, of significantly higher concentration of Plutonium and consequent higher reactivity.

On the other hand, the results of transport simulations are not determined only by the moderator's and coolant's densities but also by the thermal scattering model adopted for the H bound to the molecule of H₂O.

In this sense, the free gas approximation is certainly inadequate.

Nevertheless, keeping in count that definitive, precise estimations of the temperatures' profiles still have to be obtained, it seems reasonable, for the present state of development of the HPLWR, to rely on thermal cross section sets for H prepared for liquid water or vapour.

Only experimental investigations could clarify which model is closest to reality, and give the feedback needed to develop data sets specifically conceived for the supercritical fluid.

Acknowledgment

Diese Arbeit wurde im Rahmen des Virtuellen Institut "Kompetenzerhalt in der Kerntechnik" der Helmholtz Gemeinschaft Deutsches Forschungszentrum e.V. durchgeführt.

References

- [1] Dobashi, K., Oka, Y., Koshizuka, S., 1998. Conceptual design of a high temperature power reactor cooled and moderated by supercritical light water. ICONE6, May 10-15, 1998.
- [2] Bittermann, D., 2001. General plant characteristics. HPLWR project report, FIKI-CT-2000-00033-D3, European Commission, September 2001.
- [3] Cheng, X., Schulenberg, T., Bittermann, D., Rau, P., 2003. Design analysis of core assemblies for supercritical pressure conditions. In: Nuclear Engineering and Design 223, August 2003, Elsevier
- [4] A. G. Croff, A User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code, ORNL/TM-7175
- [5] MCNPX™ USER'S MANUAL, Version 2.4.0, September 2002
- [6] Keinert, Dr. J. Institut für Kernenergetik und Energiesysteme, University of Stuttgart (private communication).

Kopplung numerischer Modelle für Neutronik und Thermohydraulik zur Simulation von Transienten beim HTR

Timo Rademer

Institut für Kernenergetik und Energiesysteme der Universität Stuttgart
Pfaffenwaldring 31, 70569 Stuttgart, Germany
Tel: +49-(0)711-6852145 ; Fax: +49-(0)711-6852010; e-mail: rademer@ike.uni-stuttgart.de

Kurzfassung – *In dieser Arbeit wird das Konzept der Kopplung von numerischen Neutronik- und Thermohydraulik-Modellen durch Verwendung des von SIEMENS-INTERATOM entwickelten 2D-Neutronen-Diffusions-Codes RZKIND und dem Thermohydraulik-Code THERMIX-KONVEK beschrieben. Beide Programme sind konzipiert für die Simulation von Hochtemperatur Kugelhaufenreaktoren (HTR). Die Codes dienen dazu die Transienten für alle denkbaren Störfallbedingungen zu untersuchen. Für Betriebstransienten steht dafür ein homogenes Wärmeleitmodell für die Brennelemente zur Verfügung. Die Simulation hypothetischer Störfällen mit sehr schnellen Reaktivitätsänderungen oder Leistungsexkursionen wird unter anderem durch den Gebrauch eines sehr detaillierten, doppelt heterogenen Wärmeleitmodells für das Brennelement und die Brennstoffpartikel möglich. Um den Einfluss dieser sehr schnellen Transienten, die in der Größenordnung der Relaxationszeit (~ 10 ms) des Temperaturausgleiches für die Brennstoffpartikel und den Moderatorgraphit liegen, zu studieren, werden Rechnungen mit dem homogenen und dem heterogenen Wärmeleitmodell verglichen. Sie zeigen eine Überschätzung der maximalen Leistung für das homogene Modell von etwa einer Größenordnung, da der Dopplereffekt mit den homogenisierten und nicht mit den realen Brennstofftemperaturen, berechnet wird.*

Kopplung numerischer Modelle für Neutronik und Thermohydraulik zur Simulation von Transienten beim HTR

Timo Rademer*

* Institut für Kernenergetik und Energiesysteme (IKE), Universität Stuttgart
Pfaffenwaldring 31, 70569 Stuttgart, Germany

EINFÜHRUNG

In dieser Arbeit wird die Kopplung [1] von numerischen Neutronik- und Thermohydraulik-Modellen für Hochtemperatur-Kugelhaufenreaktoren beschrieben [2]. Merkmale dieser Reaktoren sind die Verwendung von Helium als Kühlmittel, die hohen Ein- und Austrittstemperaturen des Reaktorkühlmittels und die besondere Form des Brennstoffs. Der Brennstoff wird in kleine Brennstoffkügelchen ($\varnothing=0,92$ mm) (Coated Particles;CP) eingeschlossen und diese wiederum in einer Kugel aus Moderatorgraphit ($\varnothing=6$ cm). Unter allen Störfallbedingungen, selbst bei dem Verlust des kompletten Kühlmittels, bleibt die Integrität der Brennstoffkügelchen erhalten, da die maximale Brennstofftemperatur im CP 1600 °C nicht überschritten wird.

Aktuell wird der Entwurf des ursprünglich von SIEMENS entwickelten HTR-MODUL-Reaktors (200 MW_{th}) durch die erweiterten Projekte von PBMR (PTY.) LTD. in Südafrika [3;4] und von INET in China [5] verwirklicht. Beide genannten Staaten streben eine kommerzielle Vermarktung dieser Reaktoren an, allerdings mit erheblich höheren Leistungen als beim HTR-MODUL, um die Wirtschaftlichkeit zu verbessern. In der Praxis bedeutet das, dass das ursprüngliche Zylinder-Core des HTR-MODUL durch ein Ring-Zonen-Core ersetzt wird. Dieser Ring-Zonen-Core kann entweder eine feste Innensäule aus Graphit (fix column) oder eine Innensäule aus wandernden Graphitkugeln (movable column) haben. Im Rahmen der Generation IV arbeiten auch andere Staaten, wie die USA, Japan und Frankreich an VHTR (Very High Temperature Reactor) Reaktoren [6].

Im Mittelpunkt dieser Arbeit steht aber nicht der Aufbau solcher neuartiger Reaktoren, sondern die Fragestellung nach der Kopplung von numerischen Modellen der Neutronik und der Thermohydraulik. Die Modelle dienen zur Berechnung von Betriebs- und Störfalltransienten einschließlich hypothetischer, sehr schneller Reaktivitätstransienten. Für die Sicherheitsanalysen wird ein ursprünglich von SIEMENS entwickeltes Programmsystem verwendet und erweitert. Es besteht aus dem modularen Reaktorprogramm ZIRKUS, welches stationär und quasistationär rechnet, dem 2D-Transienten-Code RZKIND und dem 2D-Thermohydraulik Programm THERMIX-KONVEK.

Für die Kopplung dieser Programme wurden Schnittstellen definiert und entwickelt, um die Wechselwirkung zwischen Neutronik und Thermohydraulik realistischer darstellen zu können.

Methodik

Die Kopplung der Neutronik-Codes ZIRKUS und RZKIND mit dem Thermohydraulik-Code THERMIX-KONVEK dient zur besseren Beschreibung der physikalischen Vorgänge im Reaktor, z.B. von Naturkonvektionsvorgängen und Druckverlust oder

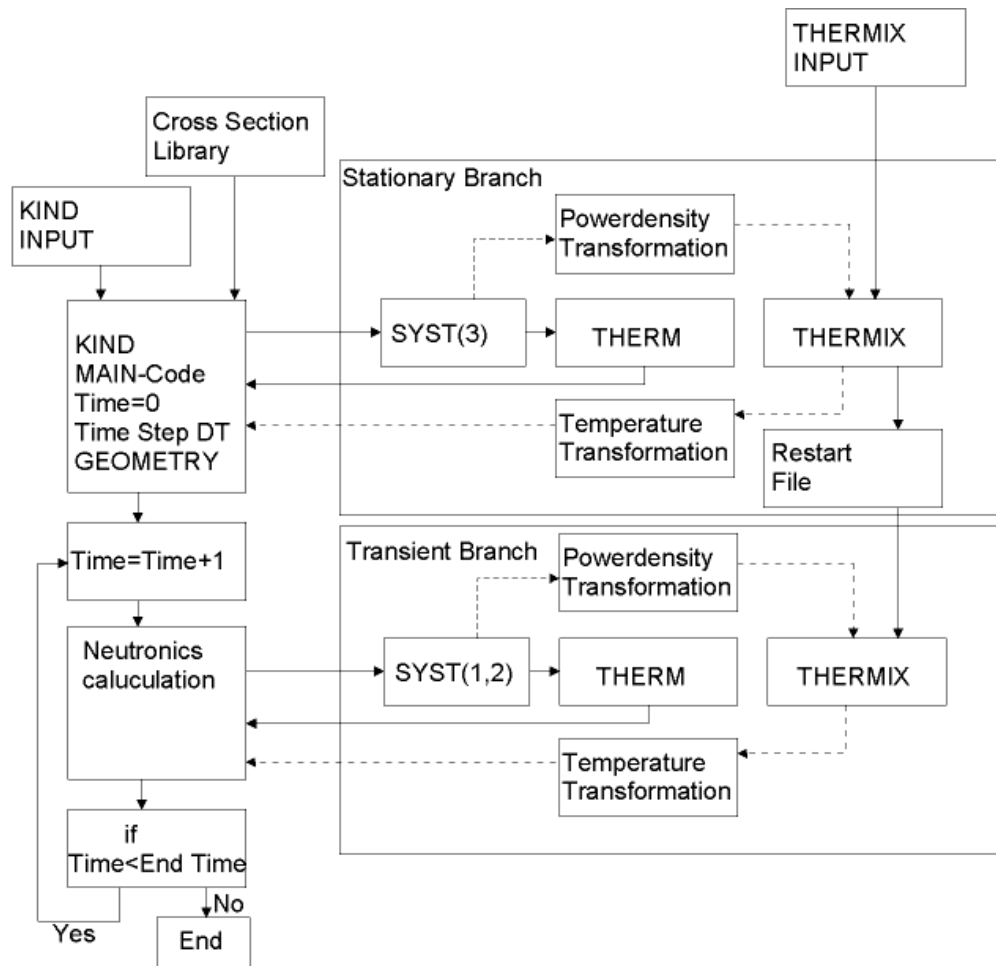


Abbildung 1: Das Ablaufdiagramm der gekoppelten Version von THERMIX und RZKIND. Die schwarzen Linien beschreiben den originalen Ablaufpfad unter Verwendung von THERM und die gestrichelten Linien den durch die Kopplung geänderten Pfad unter Nutzung von THERMIX-KONVEK

der Behandlung sehr schneller Transienten durch ein verbessertes Modell für die Wärmeleitfähigkeit im Coated Particle. Damit ergibt sich eine Erweiterung der möglichen Störfallanalysen. Das modulare und stationäre Reaktorphysikprogramm ZIRKUS dient bei den Rechnungen in erster Linie dazu, die Informationen über den Kern zum Zeitpunkt des Beginns der Transienten zur Verfügung zu stellen, z.B. den Abbrandzustand des Kerns, die Fahrweise des Reaktors und den Beladezustand des Kerns. Ferner werden Wirkungsquerschnitte bereitgestellt, die Temperatur- und Spektraleinflüsse durch Neutronengifte (XENON) und Steuerelemente (Stäbe und KLAks) erfassen. Der 2D Kinetik und Dynamik RZKIND bestimmt dann mit seinem Neutronik- und seinem Thermohydraulik-Modell den Transientenverlauf infolge von Reaktivitäts- und Temperaturänderungen oder Leistungsexkursionen beim Betrieb.

Wie in Abbildung 1 beschrieben, wird das 2D Transientenprogramm RZKIND mit einer erweiterten Thermohydraulik gekoppelt, da in der ursprünglichen Programmfassung nur ein vereinfachtes, mit Einschränkungen versehenes Modell namens THERM implementiert war.

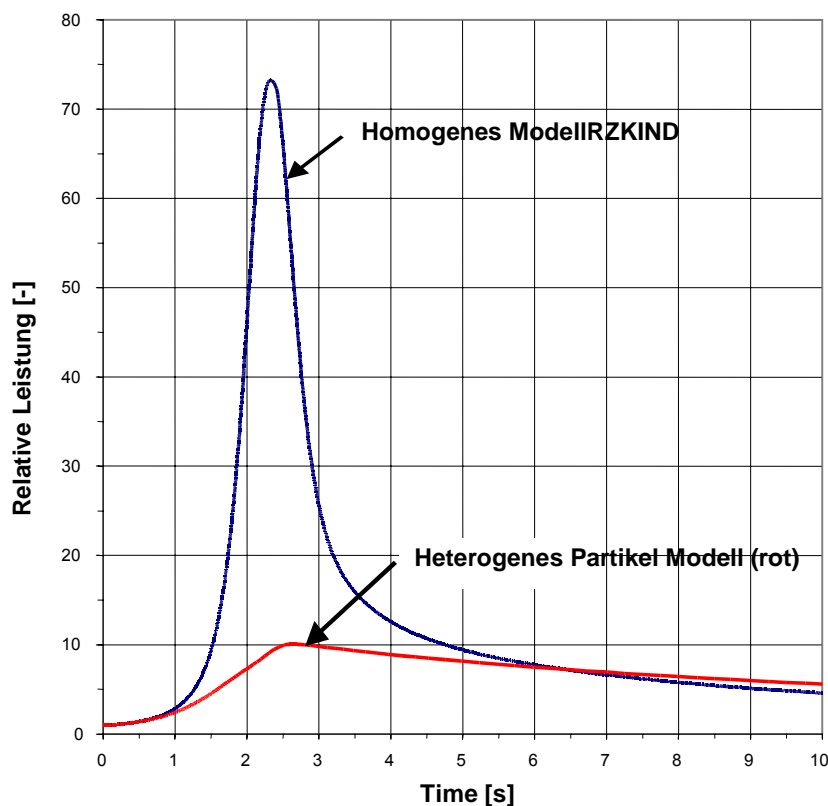


Abbildung 2: Relative Leistung und Vergleich zwischen den Ergebnissen bei Verwendung des homogenen (blau) und des heterogenen (rot) Modells.

Dieses setzte u.a. einen minimalen Massenstrom von 5-10% des nominellen Massenstroms voraus und konnte so Störfälle, bei denen Naturkonvektion vorherrscht, nicht behandeln. Bei der Kopplung von RZKIND zu THERMIX werden die Leistungsdichtefelder der RZKIND-Rechnung über eine erweiterte Fortran Schnittstelle nach THERMIX-KONVEK transferiert. In THERMIX werden die passenden Temperaturfelder berechnet und unter Beachtung der unterschiedlichen Gitternetze wieder an RZKIND zurückgegeben. Bei dieser Art der Kopplung der Programme behält das Neutronik-Programm die Steuerung und entscheidet, wann ein neues Temperaturfeld berechnet werden muss. Mit den neuen Temperaturfeldern werden dann neue Leistungsdichtefelder berechnet.

Auch wird der 2D-RZKIND-Code, um ein verbessertes, heterogenes Modell zur Beschreibung des Wärmeaustausches zwischen den Brennstoff-Partikeln (coated particles) und dem Graphit Moderator erweitert. Das in RZKIND und THERMIX-KONVEK implementierte homogene Modell ist für sehr schnelle Transienten, bei denen die Reaktivitätsänderung in der Größenordnung der Relaxationszeit (~ 10 ms) liegt, nicht geeignet. Es überschätzt die tatsächlichen Leistungen, da der Doppler-Effekt mit den homogenisierten und nicht den realen Brennstofftemperaturen berechnet wird und somit die Annahme, dass das stationäre Temperaturprofil im Brennelement über die Transiente erhalten bleibt, keine Gültigkeit mehr hat. Abbildung 2 zeigt den Vergleich zwischen den beiden Modellen. Zukünftig soll es, durch Verwendung eines 3D-Diffusionscodes, der mit einem 3D-Thermohydraulik-

Code gekoppelt wird, möglich sein, azimutale Effekte bei nicht zentralem Kugelabzug, der Verschiebung einzelner Steuerstäbe oder der Veränderung des KLAK Füllstandes zu untersuchen. Hierbei werden RZKIND und THERMIX-KONVEK ersetzt. Zur Diskussion steht hierbei der CFD Code CFX5. Eine Kopplung würde dann die Möglichkeit liefern, 3D-Effekte infolge von räumlich-asymmetrischen Reaktivitätsänderungen zu studieren, insbesondere im Hinblick auf die neuen Ring-Zonen-Reaktoren. Um realistische Randbedingungen wie Druck, Temperatur, Massenstrom zu erhalten, werden die Programme über spezielle Schnittstellen an ein Kreislaufmodell angeschlossen.

Zusammenfassung und Ausblick

Die Erweiterung des Neutronik Programms RZKIND durch Kopplung mit THERMIX-KONVEK erweitert die Störfallanalyse für HTR Reaktoren u.a. auf LOFCA Störfälle (Loss of forced coolant accidents) mit Naturkonvektion und eliminiert eine Reihe der Einschränkungen, denen die Thermohydraulikroutine THERM unterlegen war. Ebenso ist die Nutzung des doppelt-heterogenen Wärmewiderstandmodells für die Simulation sehr schneller Reaktivitätstransienten unbedingt erforderlich. Da RZKIND und THERMIX letztlich zweidimensionale Modelle verwenden, um Positionsänderungen der Regelstäbe oder Änderungen am Befüllungsgrades der KLAK Säulen (Mit Borkugeln befülltes zweites Abschaltssystem) zu beschreiben, werden diese, eigentlich räumlichen, Effekte über den Reaktor zylindersymmetrisch verschmiert angenommen und können somit die lokalen Wirkungen nicht adäquat beschreiben. Deshalb ist eine Erweiterung der Modelle vorgesehen, die das Manko, nur globale 3D Effekte darstellen zu können, beseitigt. Auf der Neutronikseite soll der 2D Diffusionscode durch eine 3D Variante ersetzt werden und auf der Thermohydraulikseite THERMIX-KONVEK durch einen 3D-CFD Code (evtl. CFX5).

Danksagung: Diese Arbeit wurde unterstützt durch das Virtuelle Institut VI "Kompetenzerhalt in der Kerntechnik" im Rahmen der Helmholtz Gemeinschaft.

Referenzen

- [1] Rademer, Timo; Bernnat, Wolfgang; Lohnert, Günter: Coupling of Neutronics and Thermal-Hydraulics Codes for the Simulation of Transients of Pebble Bed HTR Reactors; 2nd International Topical Meeting on HIGH TEMPERATURE REACTOR TECHNOLOGY, Beijing, China, September 22-24, 2004; #C22
- [2] Kugeler, Kurt; Schulten, Rudolf: *Hochtemperaturreakorteknik*, Springer-Verlag Berlin; 1989; ISBN3-540-51535-6
- [3] PBMR (PTY.) LTD. <https://www.pbmr.co.za>
- [4] Reitsma, Frederik; Strydom, Gerhard; de Haas, Han; Ivanov, Kostadin; u.a.: *The PBMR Steady State and Coupled Kinetics Core Thermal-Hydraulics Benchmark Test Problems*; 2nd International Topical Meeting on HIGH TEMPERATURE REACTOR TECHNOLOGY, Beijing, China, September 22-24, 2004; #C17
- [5] Jing, Xingqing; Yang, Yongwei: *Physical Designs and Calculations for the first Full Power Operation of the 10 MW High Temperature Gas-Cooled Reactor-Test Modul (HTR(10))*; 2nd International Topical Meeting on HIGH TEMPERATURE REACTOR TECHNOLOGY, Beijing, China, September 22-24, 2004; #C01
- [6] „A Technology Roadmap for Generation IV Nuclear Energy Systems“, Issued by the U.S. DOE Nuclear Energy Research Advisory Committee and the Generation IV International Forum; December 2002; GIF-002-00

THERMOFLUIDDYNAMISCHE MODELLE UND ANALYSEN FÜR DEN HTR: BETRIEBSVERHALTEN UND PASSIVE NACHWÄRMEABFUHR-TRANSIENTEN

Nader Ben Said

Institut für Kernenergetik und Energiesysteme (IKE)

Universität Stuttgart

Pfaffenwaldring 31, D-70569 Stuttgart

Tel.: +49-711-685 2121

e-mail: bensaid@ike.uni-stuttgart.de

Abstract

Das modulare Konzept für den Hochtemperaturreaktor (HTR) beruht auf der Idee, diesen HTR als inhärent sicher auszulegen. Insbesondere so, daß die maximale Brennstofftemperatur in keinem Störfall eine vorgegebene Grenze überschreitet, welche den sicheren Rückhalt der Spaltprodukte im Brennstoff garantiert. Die Absicht höhere Leistungen bei gleichzeitiger Erfüllung dieser Bedingung zu erreichen, hat zu Designs mit Ringkern geführt.

Gegenstand des Beitrags ist die thermohydraulische Beschreibung des modularen Kugelhaufen-HTR im Betrieb und insbesondere im Störfall.

Ein Modell eines HTR für das Ringkern-Design sowie für den zylindrischen Kern wurde auf Basis des am FZ-Jülich entwickelten zweidimensionalen Computercodes THERMIX erstellt.

Beispiele für Ergebnisse zu Störfallanalysen und Optimierungsuntersuchungen werden gezeigt und diskutiert. Die passiven Nachwärmeabfuhrstörfälle für den Reaktor unter Druck und druckentlastet werden analysiert. Verschiedene Designvarianten wurden betrachtet.

Die Untersuchungen zeigten, daß das Instrumentarium für ein breites Spektrum von Aufgabenstellungen und Designs im Rahmen von Sicherheitsuntersuchungen geeignet ist.

THERMOFLUIDDYNAMISCHE MODELLE UND ANALYSEN FÜR DEN HTR: BETRIEBSVERHALTEN UND PASSIVE NACHWÄRMEABFUHR-TRANSIENTEN

Nader Ben Said
Institut für Kernenergetik und Energiesysteme(IKE)
Universität Stuttgart
Pfaffenwaldring 31, D-70569 Stuttgart
Tel.: +49-711-685 2121
e-mail: bensaid@ike.uni-stuttgart.de

1. Einleitung

Der **Hoch-Temperatur-Reaktor (HTR)** basiert auf einer Technologie mit besonders günstigen Sicherheitseigenschaften. Das modulare Konzept für den HTR beruht auf der Idee, den HTR als inhärent sicher auszulegen [1]. Insbesondere so, daß die maximale Brennstofftemperatur in keinem Störfall eine vorgegebene Grenze überschreitet, was den sicheren Rückhalt der Spaltprodukte im Brennstoff garantiert. Die Erfüllung dieser Bedingung bei möglich hoher Leistung, hat zu Ringkern-Designs geführt [2].

Für die thermohydraulische Beschreibung des Kugelhaufen-HTR im Betrieb (stationäre Kernausslegung und Betriebstransiente) und insbesondere im Störfall (z.B. Ausfall der Nachwärmeabfuhr, mit oder ohne Druckentlastung) ist es notwendig, das gesamte In-Vessel-System inklusive der Wechselwirkung mit der Betonwand und ihrem Flächenkühler zu betrachten und zu modellieren.

Das Modell eines HTR wurde auf Basis des am FZ-Jülich entwickelten zweidimensionalen Computercodes THERMIX [3] erstellt. Modellergänzungen und Ansätze für erweiterte Beschreibungen werden angesprochen, soweit sie für die neuen Designs zweckmäßig sind. Beispiele für Ergebnisse zu Störfallanalysen und Optimierungsuntersuchungen werden gezeigt. Hierbei wird verdeutlicht, daß man über ein Instrumentarium verfügt, das für ein breites Spektrum von Aufgabenstellungen und Designs im Rahmen von Sicherheitsuntersuchungen geeignet ist.

2. Das mathematisch-physikalische Modell

Das physikalische Modell in THERMIX besteht im wesentlichen aus einem Wärmeleitansatz für den Feststoff (Index s) über das gesamte System:

$$(\rho c_p)_s \frac{\partial T_s}{\partial t} = \text{div}(\lambda_{\text{eff}} \text{grad}(T_s)) - \dot{q}_{\text{konv}} + \dot{q}_{\text{nu}}.$$

Für die durchströmten Bereiche macht man den folgenden (quasi)stationären Ansatz für das Fluid (Helium, Index f)

$$\text{div}(\rho \vec{v}) = 0,$$

$$\text{grad}(p) = -\vec{R} + \rho \vec{g},$$

$$c_p \text{div}(\rho \vec{v} T_f) = \text{div}(\lambda_f \text{grad}(T_f)) + \dot{q}_{\text{konv}}.$$

Feststoff- und Gastemperatur sind über den konvektiven Wärmeaustausch

$$\dot{q}_{konv} = \alpha A_{ob} (T_S - T_f)$$

gekoppelt.

Die hier angeführten Größen λ_{eff} , \bar{R} , α und λ_f sind aus geeigneten zusätzlichen konstitutiven Gleichungen zu bestimmen. Das Hauptproblem der Modellierung besteht darin, Bestimmungsgleichungen auszusuchen, die für die HTR-Bedingungen validiert sind. Für die effektive Wärmeleitfähigkeit der Kugelschüttung wird z.B. auf das Modell von Zehner-Schlünder [4] zurückgegriffen. Für den Druckverlust (oder die Reibungskraft \bar{R}) in der Schüttung eignet sich ein Darcy/Ergun-Ansatz mit modifizierten Faktoren. Die KTA-Regeln zum HTR beinhalten einen Satz konstitutiver Gleichungen, der bis heute hauptsächlich zur Anwendung kam. Allerdings stößt die Gültigkeit in den neuen Anwendungsfällen an Grenzen. So werden z.B. Beispiel die Reynoldszahlen bei den neuen Designs immer höher (höhere Leistungen/Massenströme und kleinere Querschnittsflächen) und kommen dem oberen Rand des Bereiches sehr nahe, für den die existierenden Druckverlustkorrelationen validiert sind. Der Effekt der Randgängigkeit (Channeling effect) hat für das Design mit fester mittlerer Säule eine viel höhere Bedeutung als für Designs mit Zylinderkern (vor allem bei der stationären Kernauflegung). Dieser Effekt wird mit einem Mehrzonenmodelle in Wandnähe in der Schüttung behandelt.

3. Beispiele für Störfallanalysen

In diesem Kapitel werden Resultate aus Störfallanalysen kurz vorgestellt. Es wurde ein breites Spektrum an Fällen (Designsvarianten und Störfälle) untersucht, um die Anwendungsbreite zu demonstrieren und mögliche Problempunkte aufzuspüren.

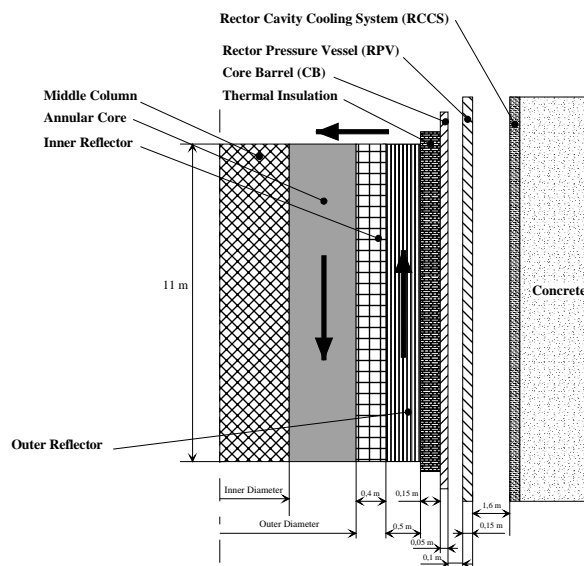


Abbildung 1: Skizze der wesentlichen abgebildeten Komponenten bei Ringkern-Design

Auf das Betriebsverhalten kann hier nicht detailliert eingegangen werden. Das stationäre (Betriebs-) Temperaturfeld ist aber als wesentliches Ergebnis immer zu berechnen, da es die Anfangsbedingung für die untersuchten Störfälle mit Kernaufheizung darstellt.

3.1. Passive Nachwärmeabfuhr-Transiente bei Druckentlastung für einen Ringcore mit fester mittlerer Säule

Als Benchmark-Design wird hier ein HTR mit einem Ringkern und fester mittlerer Säule definiert. Die wesentlichen Daten sind in der Tabelle 1 zusammengefasst.

Die Dimensionierung der Reaktorstrukturen lehnt sich an aktuell diskutierte Designs an (Abb. 1).

Für den **Depressurized Loss Of Cooling Accident (DLOCA)** wird postuliert, daß die Kühlmittelumwälzung unterbrochen wird und der Reaktor seinen Druck unmittelbar verliert. Aufgrund der geringen Fluidichte beim Druck von ca. 1 bar im Reaktor während des Störfalls spielt die Strömung keine Rolle. Mit abgeschalteter Kettenreaktion heizt sich der Reaktor mit der Nachzerfallswärme auf. Die einzige Wärmesenke ist der Flächenkühler. Weil die Nachzerfallsleistung die über den Flächenkühler abgeführte Leistung über-

Thermische Leistung	425 MW
Effektive Höhe des Cores	11 m
Äußerer Kernradius	1,85 m
Innerer Kernradius	1 m
Helium-Eintrittstemperatur	500 °C
Helium-Austrittstemperatur	900 °C
Druck	90 bar

Tabelle 1: Die gewählten Hauptauslegungsdaten des HTR mit Ringkern

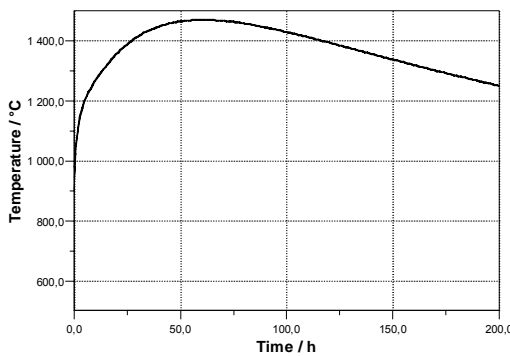


Abbildung 2: Zeitliche Entwicklung der maximalen Temperaturen im DLOCA Störfall für das Benchmark-Design

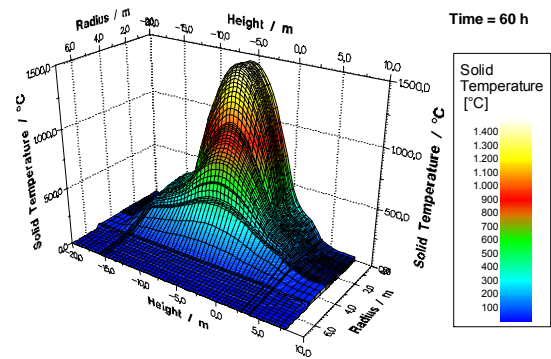


Abbildung 3: Temperaturfeld zur Zeit des Eintrittes der maximalen Störfalltemperatur beim DLOCA für das Benchmark-Design

steigt, steigt die Temperatur in einer ersten Phase bis ein Maximum erreicht ist (Abb. 2). Dabei verschiebt sich die heißeste Stelle vom unteren Bereich des Kernes zur Mitte hin, wo die Nachzerfallsleistungsverteilung ihr Maximum hat (Abb. 3). In der zweiten Phase sind die Temperaturen der Reaktorstrukturen (speziell die des Druckbehälters) so weit gestiegen und die Nachzerfallsleistung so weit gefallen, daß die abgeführte Leistung die Nachzerfallsleistung übersteigt. Der Reaktorkern beginnt sich abzukühlen und die maximale Temperatur fällt.

Da in diesem Störfall die maximale Temperatur überhaupt erreicht wird, liefert er (für ein gegebenes Design) eine Begrenzung der Reaktorleistung, wenn eine vorgeschriebene Brennstofftemperaturgrenze nicht überschritten werden darf. Diese liegt für den heutigen Brennstoff bei 1600°C.

3.2. Passive Nachwärmeabfuhr-Transiente unter Druck für einen Ringcore-Design mit mittlerer Säule aus Graphitkugeln

Als zweiter Störfall wird der **Pressurized Loss Of Cooling Accident (PLOCA)** bei einem Ringkern-Design mit einer mittleren Säule aus Graphitkugeln betrachtet. Die Auslegungs- und geometrischen Daten sind identisch mit dem oberen Fall. Der Unterschied ist, daß der Reaktor unter Druck (90 bar) bleibt.

In diesem Fall beeinflusst die Umverteilung der Wärme durch die sich einstellenden Naturkonvektionströmung den Verlauf der maximalen Störfalltemperatur wesentlich (Abb. 4). Mit den Änderungen im Strömungsmuster, wie sie in Abb. 5 zu sehen sind, läßt sich der Verlauf erklären. Bedingt durch die starken radialen Temperaturprofile (Anfangsbedingungen/Betriebsbedingungen)

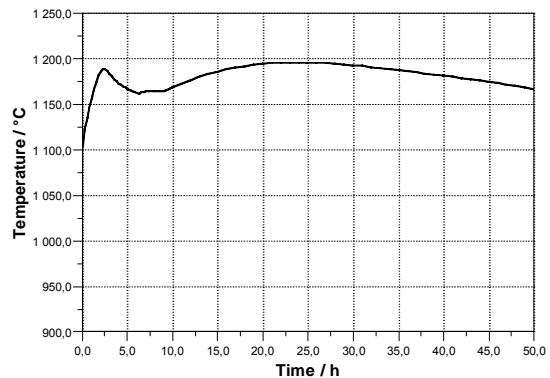


Abbildung 4: Zeitliche Entwicklung der maximalen Temperaturen beim PLOCA Störfall für das Design mit Ringkern aus Graphitkugeln

setzt eine starke Naturkonvektionsströmung unmittelbar ein. Helium steigt im warmen aktiven Kernbereich hoch und heizt die oberen Bereiche auf. In der kalten mittleren Säule strömt es nach unten und gibt den Rest seiner Wärme dort ab. Als Ergebnis wandert der heißeste Bereich (Hotspot) vom unteren Kernbereich in den oberen. Während das radiale Temperaturgefälle zwischen Kern und mittlerer Säule sukzessive abgebaut wird, entsteht aufgrund der Kühlung von außen ein Gefälle im Kern selbst und damit ein zweiter Konvektionsloop (Abb. 5 Mitte). Die über beide Loops umverteilte Wärmeleistung wird schließlich größer als die absinkende lokale Nachzerfallsleistung im Hotspot-Bereich. Die Temperatur erreicht ein erstes Maximum und fängt später an zu fallen. Aufgrund der Aufheizung der mittleren Säule verschwindet der erste Konvektionsloop schließlich (Abb. 5 Rechts). Die maximale Temperatur steigt daher in einer zweiten Phase wieder an, um anschließend nach weiterer gesunkener Nachzerfallsleistung und gesteigerter Wärmeabgabe an den Flächenkühler wieder zu fallen.

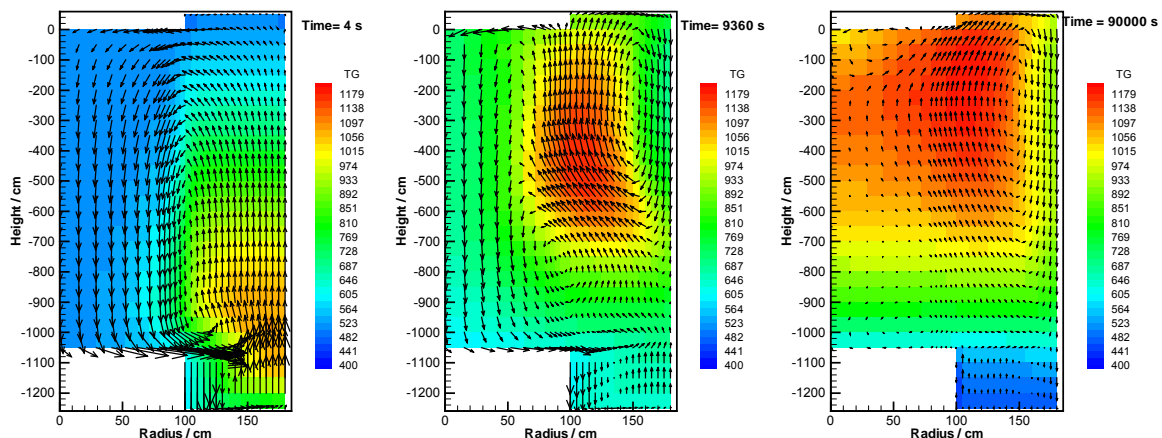


Abbildung 5: Helium-Geschwindigkeitsfelder (Pfeile) und Temperaturfelder (Konturfärben) für 3 Zeitpunkte beim PLOCA Störfall für das Design mit Ringkern aus Graphitkugeln

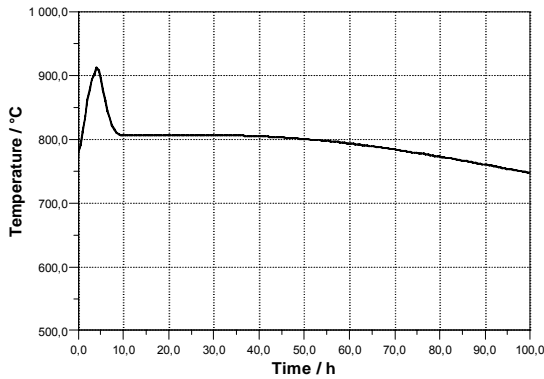


Abbildung 6: Zeitliche Entwicklung der maximalen Temperatur im PLOCA Störfall für das Zylinderkern-Design mit $\varnothing= 4\text{m}$

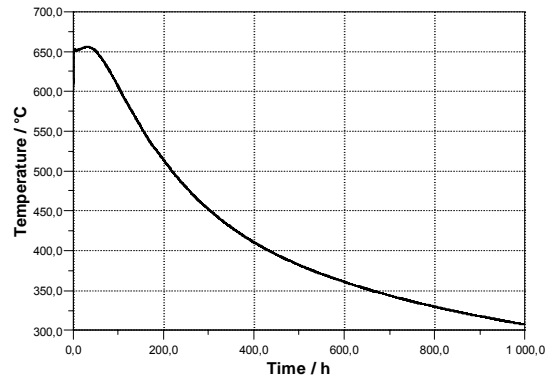


Abbildung 7: Zeitliche Entwicklung der mittleren Kerntemperatur im PLOCA Störfall für das Zylinderkern-Design mit $\varnothing= 4\text{m}$

3.3. Langzeitabkühlverhalten bei einer passiven Nachwärmeabfuhr-Transiente unter Druck für einen Zylindercore-Design

Hier wird das Verhalten bei einer passiven Nachwärmeabfuhr-Transiente unter Druck (DLOCA) am Beispiel eines Zylinderkerns mit einem Durchmesser von 4m analysiert. Die Reaktor Leistung ist 300 MW.

Die maximale Störfalltemperatur steigt aufgrund der zuerst hohen Nachwärmeleistung am Anfang rapide an (Abb. 6). Dabei verschiebt sich analog zum oberen Fall der Hotspot-Bereich von unten nach oben. Ein thermischer Ausgleichprozeß findet im Kern statt durch die Umverteilung der Wärme aufgrund der Naturkonvektionströmung. Die Hotspot-Temperatur fällt, obwohl der Kern sich im Mittel eigentlich weiter erwärmt (Abb. 7).

In einer zweiten Phase kühlt sich der Kern insgesamt, weil die an den Flächenkühler abgegebene Leistung die erzeugte übersteigt. Für längere Zeiten zeigt die mittlere Temperatur ein asymptotisches Verhalten.

4. Untersuchungen zur Optimierung der Designs

Aus den bisherigen Untersuchungen läßt sich ableiten, daß Designs mit Ringkern im Vergleich zu denen mit zylindrischem Kern für die Nachwärmeabfuhr durch Leitung günstiger sind. D. h., es sind höhere Leistungen ohne Überschreiten einer definierten Temperaturgrenze (hier gewählt wie die in Paragraph 3.1 erhaltene max. Temp. von 1470°C) im Störfall möglich.

Bei beiden Varianten ist ein Optimierungspotential vorhanden, um die thermische Leistung zu maximieren. Dies wird durch die Abbildungen 8 und 9 aufgezeigt. Abb. 8 stellt die machbare Leistung bei Ein-

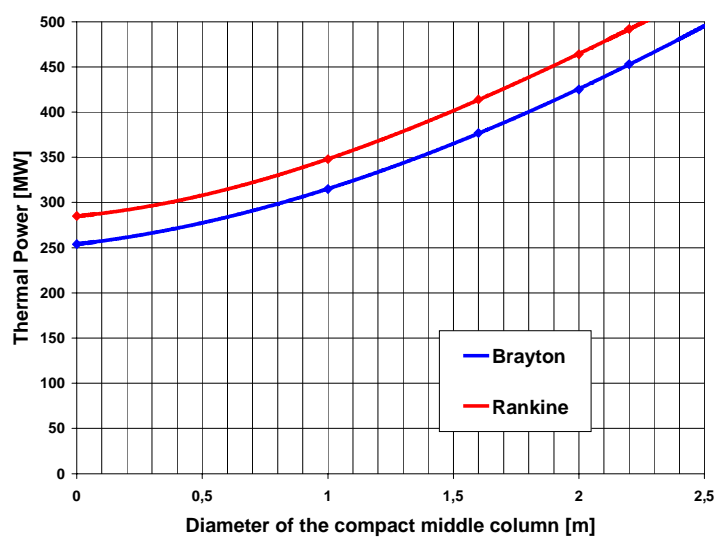


Abbildung 8: Reaktorleistung in Abhängigkeit vom Innendurchmesser des Kerns (Außendurchmesser = 3,7 m) unter Einhaltung der Temperaturbegrenzung beim DLOCA Störfall fürs Ringkern-Design mit fester mittlerer Säule

haltung der o. a. Temperaturkriterium dar, wenn bei dem Benchmark-Design (mit fester mittlerer Säule) der Innendurchmesser des Kernes variiert wird. Die rote Kurve stellt das Ergebnis dar, wenn ein Rankine-Prozess für Energiewandlung angesetzt wird (gekennzeichnet durch die Eintritts- / Austrittstemperaturen von 250°C / 750°C) und die blaue für den Brayton-Prozeß (Eintritts- / Austrittstemperaturen von 500°C / 900°C). Abb. 8 zeigt für ein Zylinderkern-Design, bei dem der Kerndurchmesser variiert wird, entsprechende Resultate bezüglich des Rankine-Prozesses. Die Temperaturgrenze und die übrigen Reaktorstrukturen sind für beide Fälle identisch.

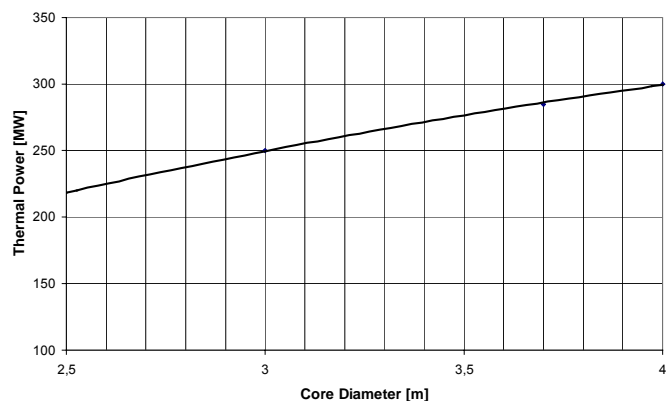


Abbildung 9: Reaktorleistung in Abhängigkeit von Kerndurchmesser unter Einhaltung der Temperaturbegrenzung beim DLOCA Störfall fürs Zylinderkern-Design

Im Fall des Zylinderkern-Designs ist

die höchst mögliche Leistung durch den Kerndurchmesser begrenzt. Demgegenüber führt die Variation des Durchmessers der Säule im Ringkern-Design zu einer umso größeren Leistung, je größer der Kerninnendurchmesser wird, d.h. je dünner der Ringspalt wird. Allerdings ergeben sich natürlich technische Einschränkungen, die letztlich auf ein optimales Design führen. Der immer steiler steigende Druckverlust über den Kern ist eine der wesentlichen Einschränkungen. Andere Grenzen sind die für den Brennelement maximale Leistungsdichte, die Strahlungsbelastung des Reflektors etc. .

5. Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

Das modulare Konzept beim HTR ist eine vielversprechende Technologie, nicht zuletzt wegen der günstigen Sicherheitseigenschaften. Das HTR-Design mit Ringkern ist eine Möglichkeit, die Wirtschaftlichkeit zu verbessern. Es erlaubt höhere Reaktorleistungen und damit niedrigere spezifische Investitionskosten.

Mit dem Code THERMIX wurde ein Modell sowohl für Zylinderkern- als auch Ringkern-Designs (mit Kugel- und fester Säule) erstellt. Die wesentlichen Komponenten bis zum Flächenkühler wurden abgebildet. Schwierigkeiten mit der Numerik bei den Naturkonvektionsfällen konnten überwunden werden.

Die Wahl geeigneter konstitutiver Gleichungen stellt eine weitere Hauptschwierigkeit dar. Hierzu sind Erweiterungen zu den ursprünglichen Modellen, wie z.B. die explizite Berücksichtigung des Einflusses des Randes auf die Strömung (Channeling-Effekt) notwendig (besonders relevant bei Ringkernen mit geringer Breite). Dieser Effekt beeinflusst den Druckverlust über den Kern wesentlich, der für die Auslegung des Energiewandlungsprozesses von großer Bedeutung ist.

Zahlreiche Analysen für den modularen HTR wurden mit dem Ziel durchgeführt, die Anwendbarkeit und Aussagefähigkeit zu überprüfen. Weitgehende Interpretation und Plausibilitätsüberprüfungen der Ergebnisse haben das Hauptziel das Grundverständnis für das thermofluidynamische Verhalten zu verbessern und das Vertrauen in den Aussagen zu erhöhen, gerade bei physikalisch komplizierten Fällen. Erste Erkundungen zur Design-Optimierung wurden durchgeführt.

Neben dem Einsatz von THERMIX für neue Designs wird am IKE eine Implementierung dieses Modells auf Basis kommerzieller CFD-Codes angestrebt, die auch 3D-

Anwendung erlaubt. Die Kopplung dieser Modelle mit Neutronik-Programmen stellt einen weiteren Arbeitsschwerpunkt dar.

6. Literatur

- [1] H. Reutler, G.H. Lohnert: Der modulare HTR – Ein neues Konzept für den Kugelhaufenreaktor; Atomwirtschaft 27 (Januar 1982).
- [2] A. Koster, H.D. Matzner, D.R. Nichols: PBMR design for the future; Nuclear Engineering and Design 222 [231-245] (2003).
- [3] K. Petersen: Zur Sicherheitskonzeption des Hochtemperaturreaktors mit natürlicher Wärmeableitung aus dem Kern im Störfall; Dissertation RWTH-Aachen (März 1983).
- [4] E.U. Schlünder, E. Tsotas: Wärmeübertragung in Festbetten, durchmischten Schüttgütern und Wirbelschichten; Georg Thieme Verlag (1988).
- [5] N. Ben Said, M. Buck, W. Bernnat, G. Lohnert: The Impact of Design on the Decay Heat Removal Capabilities of a modular Pebble Bed HTR; The 2nd International Topical Meeting on HTR Technology Beijing, China (2004).

Entwicklung von webbasierten Werkzeugen zur Simulation von HTR-Anlagen

Alexander Schulz

Institut für Kernenergetik und Energiesysteme (IKE)
Universität Stuttgart, Pfaffenwaldring 31, 70596 Stuttgart
Tel.: +49-(0)711-6852130; Fax: +49(0)711-6852010; email: schulz@ike.uni-stuttgart.de

Abstract

Mit der Einführung neuer Technologien eröffnen sich neue Perspektiven für die Simulation. Gerade bei der Simulation von Hochtemperaturreaktoren sieht man sich mit komplexen Systemen konfrontiert. Dadurch entstehen gleichermaßen hohe Anforderungen an die Fachleute des Anwendungsgebiets und an die Softwareentwickler bezüglich der Dateneingabe, der Modellierung und der Interpretation der Ergebnisse.

Für die Simulation von Hochtemperaturreaktoren können zwei Bereiche identifiziert werden. Dabei handelt es sich um die Simulation von Detailproblemen (Kernphysik, Thermodynamik) und die Simulation der Gesamtanlage. Von besonderem Interesse ist im Bereich der Sicherheitsanalysen das gekoppelte Durchführen verschiedener Simulationen, um realistischere Beschreibungen des Anlagenverhaltens und damit aussagekräftigere Ergebnisse zu erhalten. Um solche Gesamtsysteme zu implementieren existieren im Wesentlichen zwei Ansätze. Dabei handelt es sich zum einen um das „Code Coupling“, und zum anderen um den Ansatz der „Integrierenden Plattformen“.

Durch die Implementierung von Simulationen als *Web-Service* entstehen Vorteile sowohl seitens der Anbieter als auch seitens der Nutzer. Komplexe Systeme können aus Einzelkomponenten effizient aufgebaut werden, wobei bei der Definition der Komponentenschnittstellen zu untersuchen ist, wie diese gewählt werden müssen, um die physikalischen Prozesse adäquat zu beschreiben und um ein performantes Gesamtsystem zu erhalten. Die Kommunikation über *Web-Services* ist unabhängig von Hersteller, Plattform und Programmiersprache.

Entwicklung von webbasierten Werkzeugen zur Simulation von HTR-Anlagen

Alexander Schulz

Institut für Kernenergetik und Energiesysteme (IKE)
Universität Stuttgart, Pfaffenwaldring 31, 70596 Stuttgart
Tel.: +49-(0)711-6852130; Fax: +49(0)711-6852010; email: schulz@ike.uni-stuttgart.de

Compact

1. Einleitung

Über die Jahre hat sich der Begriff „Web“ als Kurzform für das „World Wide Web“ durchgesetzt. Ursprünglich wurde damit ein Hypertext-System bezeichnet, das über das Internet aufgerufen werden kann. Im Laufe der Jahre wurden jedoch die Begriffe „Web“ und „Internet“ immer öfter bedeutungsgleich verwendet. Deswegen ist die Bedeutung des Begriffs „webbasiert“ etwas schwammig. Aus diesem Grund wird in diesem Compact zwischen „webbasierten Benutzeroberflächen“ und *Web-Service* unterschieden.

2. Begriffsklärung

Um eine Kommunikation zwischen Benutzer und Anwendung zu realisieren, kann eine „webbasierte Benutzeroberfläche“ eingesetzt werden. In diesem Zusammenhang impliziert der Begriff „webbasiert“ die Verwendung der folgenden drei Standards:

- HTTP (Hypertext Transfer Protokoll) als Protokoll
- HTML (Hypertext Markup Language) als Dokumentenbeschreibungssprache
- URL (Unified Resource Locator) als eindeutige Adresse bzw. Bezeichnung einer Ressource

Bei der Kommunikation zwischen zwei Anwendungen können *Web-Services* Verwendung finden [1]. Diese basieren auf den folgenden Standards:

- SOAP zur Kommunikation / Datenaustausch

- XML-RPC (XML – Remote Procedure Call) zur Kommunikation / Datenaustausch
- WSDL (Web Services Description Language) zur Beschreibung
- UDDI (Universal Description, Discovery and Integration) als Verzeichnisdienst zur Registrierung

Etwas vereinfacht könnte man sagen, dass die Inanspruchnahme eines *Web-Service* in etwa dem Aufruf einer Berechnungsfunktion über das Internet entspricht. In Abbildung 1 ist der grundsätzliche Aufbau, und das Zusammenspiel von „webbasierten Benutzeroberflächen“ und *Web-Services* dargestellt.

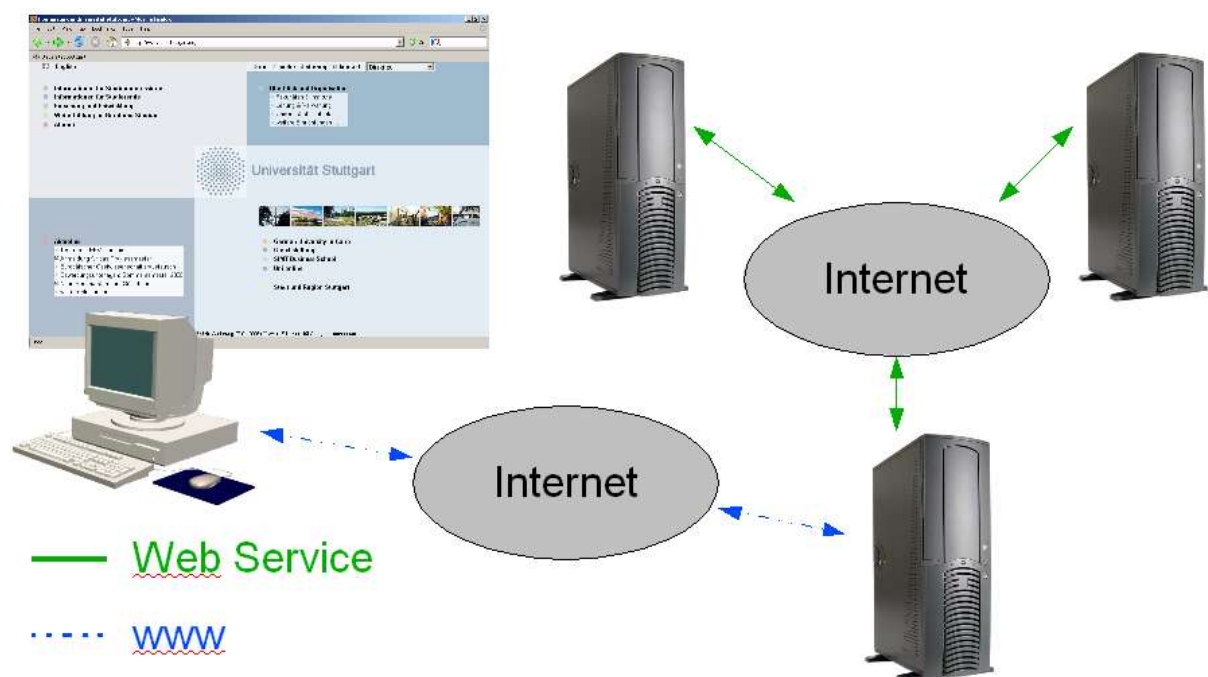


Abbildung 1: Grundlegender Aufbau

3. Anforderungen von HTR Simulationen im Anwendungsgebiet Sicherheitsanalysen

Bei der Simulation von Hochtemperaturreaktoren lassen sich typischerweise zwei Aufgabenfelder identifizieren:

- Simulation von Detailproblemen (Kernphysik, Thermodynamik)
- Simulation des Gesamtsystems

Von besonderem Interesse ist im Bereich der Sicherheitsanalysen das Durchführen gekoppelter Simulationsprogramme, um realistischere Beschreibungen des Anlagenverhaltens und damit aussagekräftigere Ergebnisse zu erhalten[2].

4. Realisierungsansätze

Um solche Gesamtsysteme zu implementieren existieren im wesentlichen zwei Ansätze:

1. „Code Coupling“: dabei werden zwei Anwendungen direkt im Quellcode miteinander verbunden [3].
2. „Integrierte Plattformen“: dabei wird versucht mit einem Gesamtkonzept den Anforderungen zu begegnen [4].

Das Wesentliche bei einem Ansatz mit *Web-Services* ist die Nutzung einer einheitlichen Kommunikation. Darauf aufbauend können Schnittstellen definiert werden, die über das Internet identifiziert und genutzt werden können. Komplexe Systeme können aus Einzelkomponenten effizient aufgebaut werden, wobei bei der Definition der Komponentenschnittstellen zu untersuchen ist, wie diese gewählt werden müssen, um die physikalischen Prozesse adäquat zu beschreiben und um ein performantes Gesamtsystem zu erhalten.

Die Implementierung von Simulationssystemen als *Web-Services* muss die bisherigen Ansätze nicht ersetzen, sondern kann diese erweitert, sofern eine Möglichkeit gefunden wird bestehende Simulationssysteme als *Web-Service* zu implementieren. Dabei würde die grundsätzliche Funktionalität der Simulationssysteme erhalten bleiben. Sie würden lediglich um eine standardisierte Kommunikationsschnittstelle erweitert.

5. Eigenschaften Web-Services

Die Vorteile eines *Web-Service* sind:

- Entkopplung Benutzeroberfläche – Anwendung
- Zentrale Ressourcen, Wartung, Update
- Nutzung über das Internet
- Standardisiert: unabhängig von Betriebssystem, Hersteller, Programmiersprache
- ein *Web-Service* kann einen oder mehrere *Web-Services* in Anspruch nehmen

Die Nachteile eines *Web-Service* sind:

- Anwendungen können nicht lokal modifiziert werden
- Aufwendige Autorisierung und Authentifizierung

Durch die Verwendung von *Web-Services* wird es möglich, Simulationen als Dienstleistung dezentral zu nutzen. Eine Institution kann einen *Web-Service* z.B. zur Be-

rechnung eines Reaktorkerns zur Verfügung stellen, der dann von Dritten genutzt werden kann.

Bei der Umsetzung müssen die folgenden Punkte diskutiert werden:

- Granularität: Wie fein wird ein Simulationssystem in *Web-Services* aufgespalten?
- Integrationsgrad: Wie viele Einzelaufgaben soll ein *Web-Service* durchführen?
- Legacy Code: Mit welchen Strategien kann man bestehende Programme sinnvoll weiter verwenden?

Granularität und Integrationsgrad sind entscheidende Faktoren, um das Zusammenspiel der verschiedenen physikalischen Prozesse adäquat abzubilden.

6. Zusammenfassung

Web-Service bieten eine standardisierte Kommunikation, die eingesetzt werden kann, um Simulationssysteme zu implementieren. Der entscheidende Faktor ist die Definition der Schnittstellen, die sowohl die physikalischen Prozesse adäquat abbilden müssen, als auch ein performantes Gesamtsystem ermöglichen sollen.

Web-Services eröffnen im Simulationsbereich neue Perspektiven: Simulationen können als Dienste über das Internet genutzt werden. Dadurch entstehen sowohl für den Anbieter als auch für den Nutzer dieser Dienste Vorteile. Die standardisierte Kommunikation ermöglicht die reibungslose Entkopplung zwischen Anwendung und Benutzeroberfläche.

Quellen

- [1] Web Services Activity
W3C (2005). <http://www.w3.org/2002/ws/>
- [2] Michel Gonnet, Alain Haulbert, Michel Canac. *Nuclear Plant Simulation Using Three-Dimensional Core Modeling*. SNA 2003.
- [3] Osamu Hazama, Zhihong Guo. *Practical Integrated Simulation Systems For Coupled Numerical Simulations In Parallel*. SNA 2003.
- [4] Kiyoshi Matsubara, Kumi Itai, Nobutaka Nishikawa, Akifumi Kato. *Development Of Integrated Platform For Computational Material Design*. SNA 2003

System modeling and simulation of HTR circuits with Brayton cycle for operational and accidental conditions

Ayelet Walter

Institute of Nuclear Technology and Energy Systems (IKE),
University of Stuttgart, Pfaffenwaldring 31, 70569 Stuttgart, Germany
Tel: +49-(0)711-6852145 ; Fax: +49-(0)711-6852010; e-mail: walter@ike.uni-stuttgart.de

Abstract

The Pebble Bed Modular Reactor (PBMR) plant is a promising concept for inherently safe nuclear power generation. This paper presents two dynamic models for the core of a High Temperature Reactor (HTR) power plant with a helium gas turbine. Both the PBMR and its power conversion unit (PCU) based on a three-shaft, closed cycle, recuperative, inter-cooled Brayton cycle have been modeled with the network simulation code Flownex.

Flownex is a thermal-hydraulic network analysis code that can calculate both steady state and transient flows. The code allows for the design of complex systems such as power plants and thermal-fluid networks. An important feature of the Flownex code is its ability to allow the integration of an external program into it by means of a memory map file.

In this paper two different reactor models were integrated into a complete cycle, with a PCU modeled in Flownex. The first model, which is already incorporated in the Flownex software package, describes a core based on a zero-dimensional point-kinetics approach. The second model is based on multi-dimensional neutronics and thermal-hydraulics and represents a state-of-the-art approach for the solution of the neutron diffusion equations coupled to a thermal-hydraulic part.

Two representative transients for both operational and accidental conditions of the total plant were modeled. A load rejection transient demonstrates the abilities of Flownex as part of the operational behavior of the plant. Additionally, a hypothetical fast increase of reactivity was simulated to demonstrate the features of the external program as an accidental transient.

System modeling and simulation of HTR circuits with Brayton cycle for operational and accidental conditions

Ayelet Walter

Institute of Nuclear Technology and Energy Systems (IKE),
 University of Stuttgart, Pfaffenwaldring 31, 70569 Stuttgart, Germany
 Tel: +49-(0)711-6852145 ; Fax: +49-(0)711-6852010; e-mail: walter@ike.uni-stuttgart.de

1 Introduction

For future reactor concepts, inherently safe reactors such as the high temperature gas cooled reactor have been recently of great interest. The main field attracting attention has been that of the high temperature gas cooled reactors with a direct helium gas turbine. This led the South African utility Eskom to initiate the pebble bed modular reactor (PBMR) project. The latter aims at representing a key milestone on the way to achievement of a new generation of High Temperature Reactor design objectives [1].

This high temperature gas cooled reactor is based on the recuperative inter-cooled closed loop Brayton cycle using helium as coolant [2]. As left side of figure 1 shows, it is made up of a pebble bed reactor, high pressure turbine (HPT), low pressure turbine (LPT), power turbine, recuperator, Pre-cooler, low pressure compressor (LPC), inter-cooler and high pressure compressor (HPC). The entropy-temperature diagram of the circuit is depicted on the right side on the figure.

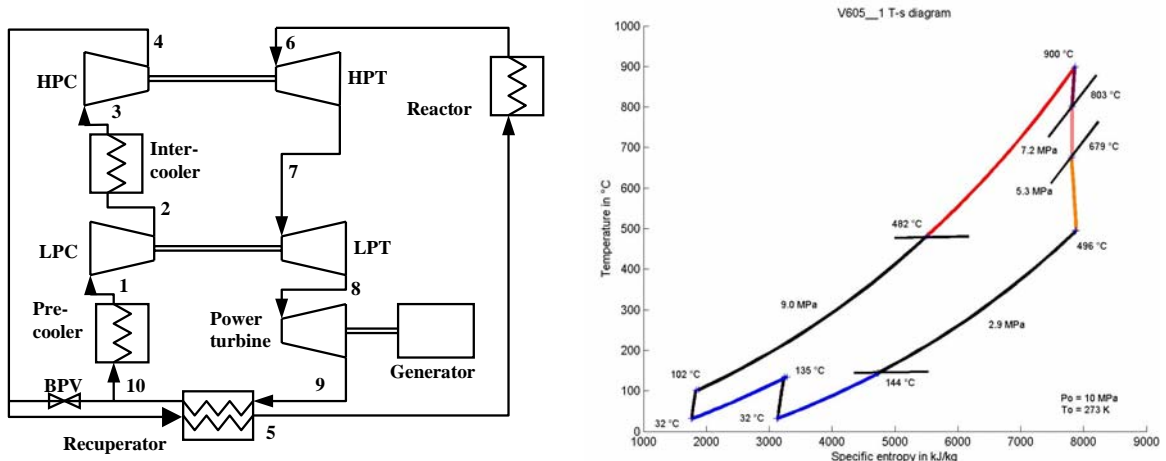


Fig 1. Schematic diagram of the PBMR high temperature gas cooled reactor Brayton cycle [2] and its T-s diagram accordingly.

The complexity associated with the thermal-flow design of the cycle requires the use of a variety of analysis techniques and simulation tools. One of the most prominent codes that provides a suitable compromise, is the thermal-flow network simulation code Flownex [3].

2 Description of Flownex

The approach followed in Flownex is to model the coolant system as a network of interconnected components such as pipes, diffusers, compressors, turbines, orifices, valves, and control valves. The code features a model builder that enables users to create advanced discretized re-usable models of complex components such as heat

exchangers and gas-cooled nuclear reactors. Components are connected to nodes at their upstream and downstream ends. Any number of components can be connected at one node. This allows to create any arbitrary network. Fast simulation speed allows real time simulations to be performed even on standard desktop computers.

The overall network solution algorithm is based on the implicit pressure correction method (IPCM). This enables time step variations, which allows the simulation of slow and fast transients. With this method, the nodal pressures and temperatures are iteratively adjusted at each time step to simultaneously satisfy the continuity and energy equations at each node, as well as the pressure drop/flow rate relationship to each element.

Furthermore, the software can be directly linked with other external computational codes, which can be externally coupled to it. Such link was realized by coupling the Power Conversion Unit (PCU) utilized in Flownex to the WKIND core model, a one-dimensional neutronics thermal-hydraulics code [4]. This external model can substitute the nuclear reactor model of Flownex.

3 Results

3.1 Load rejection

A load rejection transient results from the loss of electrical load during power operation. In order to prevent the generator from over speeding it is necessary to quickly reduce the power output of the power turbine. This should be prevented by opening the Gas Cycle Bypass Valve (GCBV). Closing the valve again will assure that the Brayton cycle remains functioning.

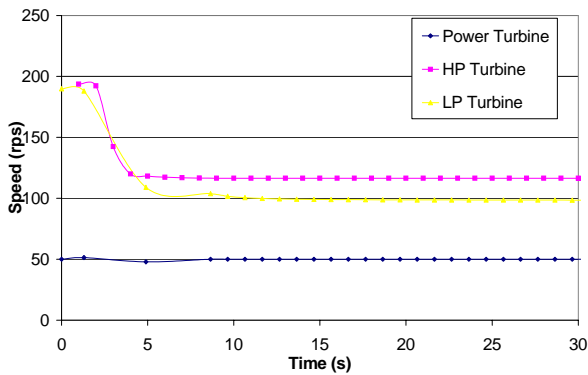


Fig 2. Turbo units speed during load rejection.

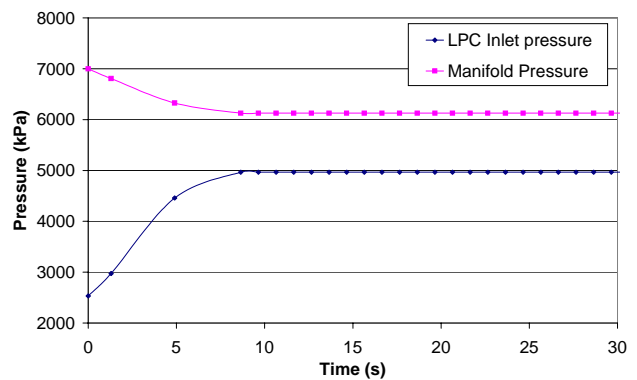


Fig 3. System pressure after load rejection.

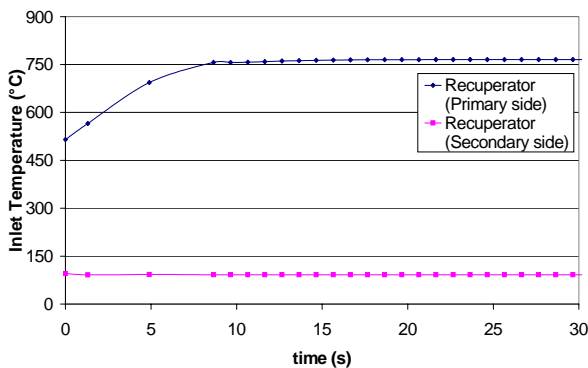


Fig 4. Recuperator inlet temperatures after load rejection.

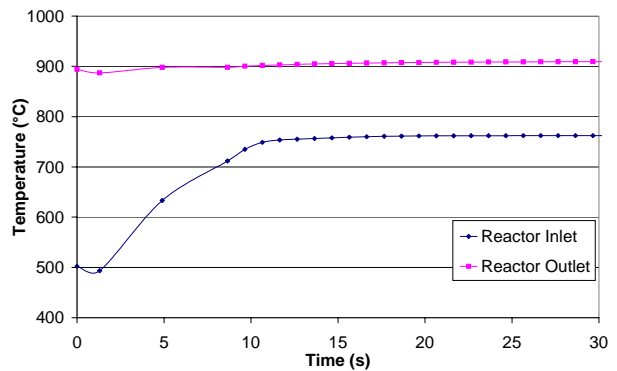


Fig 5. Reactor temperatures after load rejection.

Figure 2 above shows that the controller managed successfully to reduce the power turbine over speed and stabilize it at the normal operation conditions at 50 Hz. The GCBV, which connects the points of the highest and lowest pressure within the system, reduces the overall system pressure ratio and thus also the power output. Figure 3 shows that the pressure at the low pressure side of the system increases to a value of approximately 5000 kPa, whereas the pressure at the high pressure side of the system decreases to a value of just above 6000 kPa. From figure 4 it can be seen that the inlet temperature of the primary side of the recuperator experiences a strong increase, a result of short circuiting the power turbine which causes the hotter helium gas to enter the primary side of the recuperator. Such an increase can lead to high thermal stresses, which should be considered in the design on the recuperator. The temperature of the secondary side is on the other hand maintained, due to the large thermal mass of the recuperator. From figure 5 it can be seen that the reactor inlet temperature rises to more than 750°C. This change occurs due to the high level of interdependence between the recuperator and the reactor. However, the reactor outlet temperature remains almost constant because of the rapid feedback from the fuel temperature to reactivity by which the output power is adjusted to match the cooling capacity of the reduced helium flow.

3.2 Withdrawal of all control rods and load rejection

The withdrawal of all control rods at the speed of 1 cm/s is initiated at a predefined time (5s) and is simulated by the external WKIND model. It was specified that a complete shut down by control rods would be initiated as soon as a power level of 120% has been reached. This causes an immediate decrease in reactor power at about 22 seconds. Simultaneously a load rejection is initiated in Flownex, in order to maintain a stable operation of the power turbine.

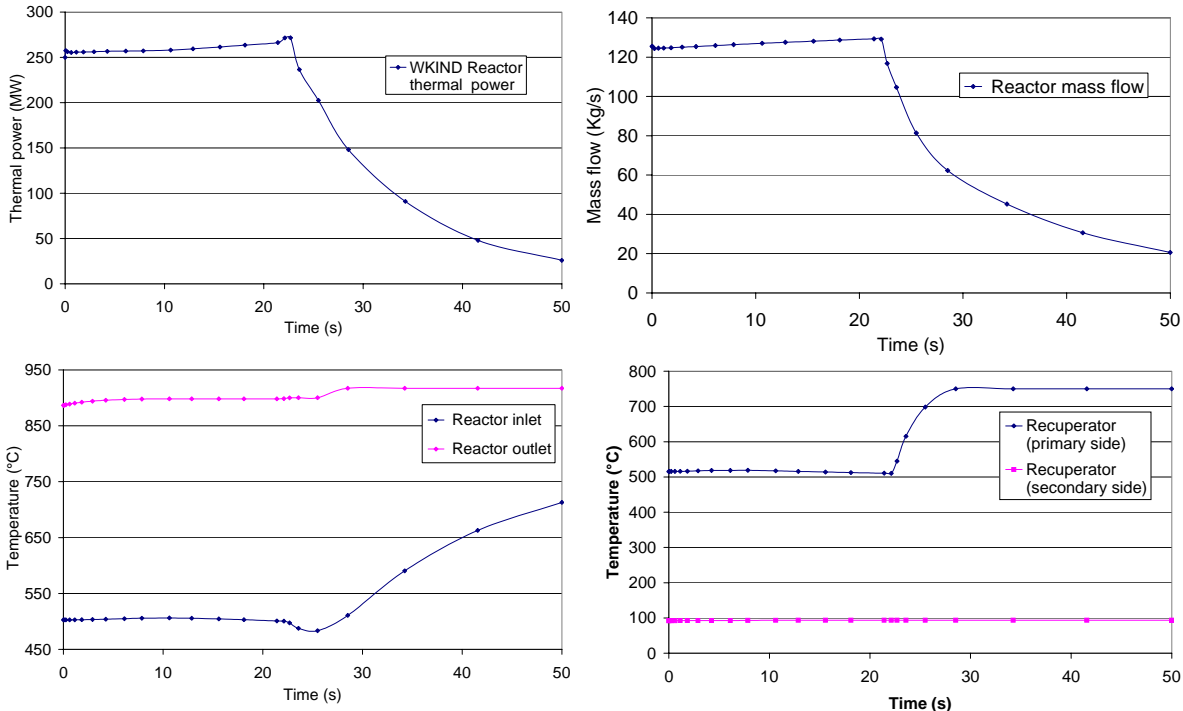


Fig 6. Reactor power, reactor mass flow, reactor temperatures and recuperator inlet temperatures after a control rods withdrawal and load rejection.

Regarding the PCU state variables the results are consistent to the ones obtained in the first transient. However, due to the shut down the reactor power decreases until a level of approximately 10% of its nominal values at about 50 s, as can be seen from figure 6, top left. Additionally, a reduction in reactor mass flow due to the load rejection initiated by the opening of the bypass valve (top right). It can be seen that despite of the shutdown in the reactor, the PCU has not experienced any remarkable changes. the reactor outlet temperature maintains an almost constant value, whereas the reactor inlet temperature shows an increase of approximately 200°C (bottom left). As for the recuperator (bottom right), the primary side inlet temperature increases significantly until it stabilizes at about 750°C, and the secondary side inlet temperature remains almost constant, at 100°C.

4 Conclusions and Discussion

In this paper two different models for the reactor core were incorporated within a Flownex PCU, thereby creating a complete plant model. The first model is the Flownex core model and the second is the WKIND core model. The control system implemented in the PCU has been kept straightforward throughout the transients, and focused on keeping the shaft speed within bounds. It was demonstrated that transients such as load rejection and reactivity can be modeled.

In the first transient a load rejection (a generator trip) is simulated and it can be shown that both models agree well. In the second transient the control rods are withdrawn at the speed of 1 cm/s. In this case there was a need to simultaneously initiate a load rejection in Flownex to maintain a stable operation. The realization of an external transient is demonstrated here, yet the coupling methodology should be further improved. Instead of the Flownex element assimilating a heat source which utilized in the current coupling, a more sophisticated coupling model should be implemented in order to improve this. It could be demonstrated that the control system of the PCU plays an important role in the whole plant behavior and is extremely important for the simulation of transient and accidental cases. As it is necessary to model the process behavior in a larger operating region, and to include the establishment of start-up and shut-down simulations in the investigations, the control strategies have to be further improved.

The comparison between the results of Flownex and WKIND showed good agreement for low reactivity insertion rates. For a hypothetical high reactivity insertion rates only the WKIND model can provide realistic results since it represents a detailed heat transfer from fuel zone in the coated particle to the graphite matrix and finally to the coolant gas. As the fuel temperature is mainly responsible for the negative reactivity feedback, a homogeneous model under-estimates the fuel temperature and correspondingly over-estimates the power increase for fast reactivity transients.

Currently, improvements of the applied models are a part of an ongoing work at IKE, which aims towards the application of a multidimensional core neutronics in the reactor models, thus allowing for more possibilities to simulate the thermal-hydraulics and analyze the natural convection in the core. Additionally, the synchronization of the time step and the control interaction that characterize the present coupling are in progress. Nevertheless, the results can be considered acceptable for a conceptual study of the system. The various transients demonstrated have shown satisfactory results to prove that a successful realization of the coupling has been accomplished.

References

1. Ion, S, Nicholls, D, Matzie, R, Matzner, D, "Pebble bed modular reactor the first generation 4 reactors to be constructed", World Nuclear Association Annual Symposium, London, 3-5 September, 2003.
2. Greyvenstein, GP, Rousseau, PG, "Basic principles of HTR thermal-hydraulics", HTR/ECS 2002 High Temperature Reactor School, Cadarache, France, November 4-8, 2002.
3. Coetzee, RV, der Merwe, V, Rousseau, PG, FLOWNEX Version 6 USER MANUAL, M-Tech Industrial, Potchsfstroom, South Africa, 2003.
4. A, Walter, A, Schulz, G, Lohnert, "Comparison of two models for a pebble bed modular reactor core coupled to a Brayton cycle", The 2nd International Topical Meeting on HTR Technology, Beijing, INET China September 22-24, 2004.

NUCLEAR HYDROGEN GENERATION AND STORAGE METHODS

Marcin Ossowski

Institute of Nuclear Technology and Energy Systems (IKE), University of Stuttgart
Pfaffenwaldring 31, 70569 Stuttgart

E-mail: ossowski@ike.uni-stuttgart.de
Phone: +49-711-685 2125; Fax: +49-711-685-2010

Hydrogen is considered to be the energy carrier of the future, mainly for the transportation sector. The reason therefore is due to the high amount of CO₂ but also other emissions, emitted by using fossil fuels, i.e. petrol and diesel. A solution could be the use of fuel-cell driven cars, using hydrogen as fuel. CO₂ is not emitted, the exhaust gas contains only nitrogen oxides and water. The two key problems here are hydrogen generation and its on-board storage.

Hydrogen can be produced from all primary energies. Today, steam reforming, partial oxidation and coal gasification are the common processes, however, requiring fossil fuels. But hydrogen can also be generated by electrolysis, using water and electricity, e.g. by nuclear power plants and thus CO₂-free. Another possibility of CO₂-free hydrogen generation can be achieved by using the high temperature heat of thermonuclear processes, which in addition provide electricity. For on-board hydrogen storage, there are some solutions at hand: as pressurised gas (today 70 MPa stores are investigated, 35 MPa stores are state-of-the-art), liquefied at 20 K, and chemically bond in solids, e.g. as metal hydrides. The presentation will describe hydrogen generation and storage methods in detail, with a short description of other possible applications beside fuel-cells.

NUCLEAR HYDROGEN GENERATION AND STORAGE METHODS

Marcin Ossowski

Institute of Nuclear Technology and Energy Systems (IKE), University of Stuttgart
Pfaffenwaldring 31, 70569 Stuttgart

E-mail: ossowski@ike.uni-stuttgart.de
Phone: +49-711-685 2125; Fax: +49-711-685-2010

INTRODUCTION

Hydrogen is the first element of the periodic table of the elements. Its atom consists of one proton and one electron. It is also the most abundant element in the universe and the third one on the Earth. The majority of the hydrogen on the earth is chemically bound in the form of water and hydrocarbons [1]. Since hydrogen has to be recovered from water or hydrocarbons, it can be treated only as an energy carrier. Despite the highest heating value per mass of all chemical fuels, hydrogen is not the major fuel nowadays.

Considering the historical development of the energy carriers since in 1792 Thomas Newcomen discovered the steam engine, humans are using more and more hydrogen-reach fuels.



The series of energy carriers development is going from the solid to the liquid and then finally to the gaseous energy carriers. **The necessity to reduce the carbon dioxide emission implies that the last position of this chain should belong to hydrogen generated by applying nuclear energy.**

The world energy demand increased from 5×10^{12} kWh/year in 1860 to 1.2×10^{14} kWh/year today. About 80% of the used energy is based on fossil fuels. Such a high consumption of fossil fuels is responsible for the increase of the carbon dioxide in the atmosphere of about 3×10^{12} kg CO₂/year [2]. This huge amount of discharged carbon dioxide affects the increase of the average global temperature, the so called greenhouse effect. About 2×10^{12} kg CO₂/year are dissolved in the water of the oceans. Since the solubility of carbon dioxide in water decreases with increasing temperature by about 3% per K, less CO₂ will be dissolved in the oceans, and therefore an additional amount of the greenhouse gas will be introduced in to the atmosphere.

In order to cover the increasing world energy consumption and to decrease simultaneously the greenhouse effect, the nuclear technology is the only reasonable alternative to fossil fuels. Moreover, the clean production of hydrogen should be combined with nuclear technology, a method which can become very attractive for the future.

GENERATION METHODS OF HYDROGEN

Today, the majority of hydrogen is produced from hydrocarbons by steam reforming of natural gas and partial oxidation of heavy oil or coal. A second method is electrolysis of water by applying electricity. Both methods are proven technologies today. The typical capacity of industrial plants for steam reforming is in the order of 100 000 Nm³ H₂/h, and the production cost of 1 Nm³ are approximately 10 cents.

A very promising option for hydrogen generation is the combination with nuclear technology. Presently, there are three main concepts based on nuclear High Temperature Gas Reactors (HTGR):

- HTGR combined with a reforming steam process,
- “Water-splitting”; the Sulphur–Iodine (S-I) process and
- High Temperature Electrolysis (HTE) of steam.

Besides those three methods, a very interesting option is to increase the production of electricity by employing nuclear power plants for Peakshaving. Off-peak electricity can be utilised for hydrogen generation applying conventional water electrolysis.

HTGR – Reforming Process

Steam reforming is a thermochemical process including two reactions. The first step, the reforming, is an endothermic reaction accelerated by catalyst at temperatures of 800 to 900 °C:



The second step, the shift reaction, is an exothermic reaction:



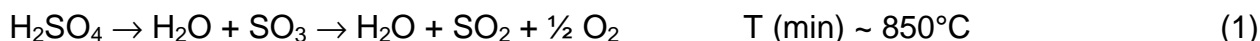
The chemical processes are followed by separation process. The CO₂ is removed by an alkaline absorber with an amine solution or a regenerative caustic solution. Finally, the hydrogen rich gas is cooled down and further purified.

The heat required for the endothermic process is supplied by the HTGR. In this case, the reformer is not of the traditional furnace type [3]. The heat generated by the nuclear side is transferred to the methane-steam mixture via a heat exchanger type reactor.

HTGR-Water-Splitting, Sulphur-Iodine Process

The most promising method of “nuclear hydrogen generation” being currently investigated is the thermochemical water-splitting using the Sulphur – Iodine (S-I) cycle [4]. The process consists of three chemical sub-reactions.

First, the sulphuric acid is thermally decomposed at high temperature to water, oxygen and sulphur dioxide:



At this point the oxygen is removed from the cycle whilst the sulphur dioxide is later on utilised for regeneration of the sulphuric acid and hydrogen iodine.

Second, the hydrogen is generated by the endothermic decomposition of hydrogen iodine at a temperature of 450°C:



The equilibrium of this reversible reaction depends on the temperature and the pressure. At the process temperature of 450°C about 16% of hydrogen is released from hydrogen iodine and removed from the cycle. The rest of hydrogen iodine remains in the cycle. Third, the hydrogen iodine and the sulphuric acid are regenerated from iodine (from reaction 2), sulphur dioxide (from reaction 1) and water which is added at this point to the cycle. The reaction (Bunsen reaction) to be carried out requires an excess of iodine:



The reaction heat is removed at 120°C. The sulphuric acid and the hydrogen iodine are separated and fed back to the process.

The overall balance of those three reactions leads to a dissociation of water where the inputs are water and heat and the outputs are hydrogen and oxygen:



The sulphur iodine process requires a minimum temperature of about 850°C. Since the existing HTGR operates at about 850°C it can be applied for this process. The efficiency of the S-I process depends strongly on the temperature (~50% at 950°C and ~40% at 850°C). In order to meet these requirements some new reactor concepts are discussed including the Very High Temperature Reactor (VHTR) and the Molten Salt Reactor. The new reactors can operate at higher temperatures, e.g. generating heat at 950°C.

Another option is the use of an inorganic membrane to separate the reaction products from reaction (1) which shifts the reaction equilibrium toward the products (Le Chatelier-Braun's principle). Thereby, a relative high conversion rate of 50 % is kept at lower temperatures of about 700°C. This has the decisive advantage that the existing technology of HTGR can be applied with a very good efficiency.

HTGR – High Temperature Electrolysis

Due to the limitations of the present energy conversion efficiency of conventional power plants (e.g. Clausius – Rankine cycle), only approximately 45% of the heat can be converted into electricity. This is the reason why the standard electrolysis is not efficient enough and should be improved, e.g. by “adding” some part of energy in form of heat to split the water.

The high-temperature electrolysis (HTE) or steam electrolysis, is a combination of the conventional electrolysis and the thermolysis process [5]. A substantial amount of the energy needed to split the water is added as heat instead of electricity, thus reducing the electric energy and so improving the process efficiency. This heat can be provided by

the HTGR reactor. The HTE process, conceptually the same as conventional electrolysis, differs in its hydrogen production mechanism. In the HTE high-temperature steam is separated at the anode and the ions of oxygen pass through an ion-conducting membrane (such as doped zirconium oxide). The input stream to the electrolyser is about 50% steam and 50% hydrogen. The output from the electrolyser is typically 75% hydrogen and 25% steam by volume. The hydrogen can then be separated from the steam in a condensing unit. Additional steam is added after removal of about 1/3 of the hydrogen to produce again a 50:50 gas stream for reintroduction to the electrolyser.

HYDROGEN STORAGE METHODS

Hydrogen can be stored in different forms. However, there are basically three most important technical methods:

- hydrogen compressed and stored in pressure vessels,
- hydrogen cooled to liquid state and kept cold in insulated tanks and
- hydrogen stored in solid compounds.

An overview and more details about the basic storage methods are listed in Table 1.

Hydrogen Pressure Vessels

The most common storage system is the high-pressure gas cylinder [6]. For the steel vessel the optimum pressure is about 300 bar which corresponds to 4 wt.% stored hydrogen (wt.% - ratio mass of hydrogen to mass of whole system). The new lightweight composite vessels made of carbon fibres have been designed for pressures of 800 bar. The low mass of the vessel results in a hydrogen storage capacity of about 10 wt.%. Safety aspects due to the relatively high pressures together with the relatively high energy consumption for compressing of hydrogen are important drawbacks of this system.

Hydrogen Cryogenic Tanks

Storage capacity of 20 wt.% (related to the tank) can be obtained by hydrogen liquefaction. Liquefied hydrogen is kept in very well isolated cryogenic tanks at 21.2 K at ambient pressure. Hydrogen is liquefied by applying the Joule-Thompson cycle. The gas is first compressed and then cooled down in a heat exchanger, before it expands through a throttle valve. The cooled gas is separated from the liquid and fed back to the compressor through a heat exchanger. However, since the inversion temperature of hydrogen is about 202 K, the hydrogen before expansion has to be pre-cooled, e.g. using liquefied nitrogen. Possible applications for liquefied hydrogen are very strongly limited because of the relatively large amount of energy required for the liquefaction (15.2 kWh/kg) and the continuous boil-off (~ 0.4% per day for tank of 50m³) [6].

Hydrogen solid compounds

Currently a intensively investigated technology for storing of hydrogen is the physical adsorption on surfaces. Carbon nanotubes and carbon nanofibres are mainly applied as adsorbent [6]. The adsorption of hydrogen on the surface is caused by Van der Waals interactions. The amount of stored hydrogen increases with the specific surface area. The advantages of this method are the low system pressure and the low cost of the

adsorbent. However, the low storage capacity of about 2 wt.% together with the low temperatures preclude the hydrogen storage system based on physisorption [7].

A hydride is a compound which contains hydrogen and one or more elements, mainly metal or intermetallic compounds. The hydrogen atoms are placed at the interstitial sites of the metallic matrix. The typical crystal structure is tetrahedral and octahedral or a combination of both. Such a type of structure has the limiting composition MH, MH₂ or MH₃.

The hydrogenation is a multistage process including following steps [8]:

- physisorption of hydrogen molecules on the particle surface,
- dissociation of hydrogen molecules to the atomic form and chemisorption on the surface,
- penetration of hydrogen atoms to the subsurface layer in the hydride,
- bulk diffusion of the hydrogen atom through the hydride phase and
- and finally hydride formation.

During the last stage, if the hydrogen to metal ratio (H/M) is less than 0.1, the metal lattice expands proportionally to the hydrogen concentration by approximately 2 to 3 Å³ per hydrogen atom. For large hydrogen concentrations, in the host metal (H/M>1) a strong H-H interaction due to the lattice expansion becomes important and the hydride phase nucleates and grows. The volume expansion between the coexisting metal and metal hydride phase is in many cases 10 – 20 % of the initial metal lattice.

The thermodynamics of hydrogenation or dehydrogenation is well described by the Pressure Concentration Isotherm (PCI). In the region where both, metal and metal hydride phases coexist, the isotherms show a plateau for an equilibrium pressure of the hydrogenation or dehydrogenation (see Fig. 1). The length of the plateau can be interpreted as the maximum amount of stored hydrogen. The relationship between temperature and equilibrium pressure is proportional and is related to the changes of enthalpy ΔH and entropy ΔS described by the Van 't Hoff equation:

$$\ln\left(\frac{p_{\text{eq}}}{p_{\text{eq}}^0}\right) = \frac{\Delta H}{R} \frac{1}{T} - \frac{\Delta S}{R}$$

Since the entropy change corresponds mostly to the transformation from molecular hydrogen gas to dissolved solid hydrogen, its value is approximately the same for all metal hydrides ($\Delta S \sim 30 \text{ J/Kmol H}_2$).

During hydrogenation the heat is released. For the desorption of hydrogen, the same amount of heat has to be provided. If the dehydrogenation is carried out below ambient temperature, the heat can be supplied directly from the environment. Based on this some systems of metal hydrides can be even applied as thermodynamic machines for refrigeration or air conditioning.

The metal hydride systems are very promising hydrogen storage methods. They can store even up to 7 wt.% of hydrogen (related to the mass of the hydride) at 200°C with quite good hydrogenation and dehydrogenation rates. Good cycle stability and high safety are very important properties of metal hydrides which make them attractive for automotive and portable applications.

REFERENCES

- [1] L. Schlapbach, A Züttel, Hydrogen-storage materials for mobile applications, Nature, pp. 353–358 (2001).
- [2] T. Watson, Climate change 2001, synthesis report. Published for the Intergovernmental Panel on Climate Change IPCC, Cambridge University Press, Cambridge, UK (2001).
- [3] JAERI, High-Temperature Engineering Test Reactor (HTTR) Used for R&D on Diversified Application of Nuclear Energy.
- [4] L. Brown, et al., Nuclear Production of Hydrogen Using Thermochemical Water-Splitting Cycles. International Congress on Advanced Nuclear Power Plants (ICAPP) Embedded Topical Meeting, June 9–13, 2002, Hollywood, Florida.
- [5] S. Herring, High-Temperature Electrolysis; Unlocking Hydrogen’s Potential with Nuclear Energy, Idaho National Engineering and Environmental Laboratory.
- [6] A. Züttel, Materials for hydrogen storage, Materialstoday, 10.2003.
- [7] A. Züttel, et. al., Hydrogen storage in carbon nanostructures, Int. J. Hydrogen Energy, pp. 203–212, (2002).
- [8] L. Schlapbach, Surface properties and activation, Springer, Berlin Heidelberg New York, pp.15–95, (1992).

FIGURES AND TABLES

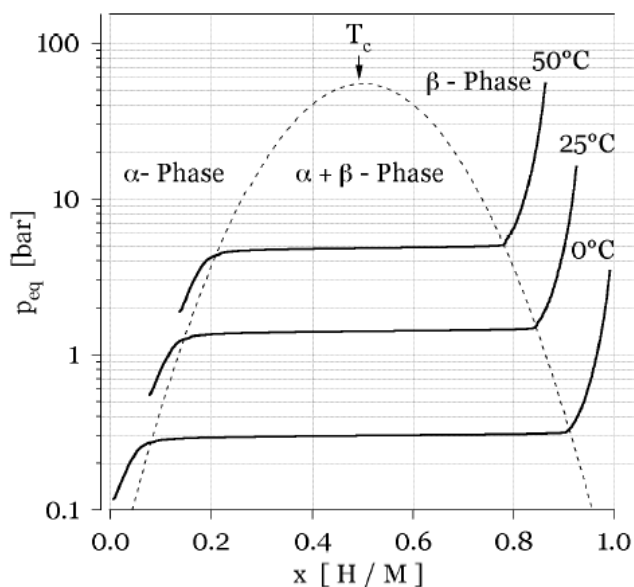


Fig. 1. Typical Pressure Concentration Isotherms (PCI) for the hydrogen absorption in a typical intermetallic compound (α and β are metal and hydride phases, respectively).

Table 1. Comparisons of different hydrogen storage systems.

	Storage method	Material	Capacity wt.% H ₂	Energy demand	Typical conditions	Advantages	Disadvantages	
Directly	Gas	-	2 – 4 (12) ¹⁾	Medium	200-700 bar	- simple construction - very fast charging - ambient temperature	- low capacity - safety	
	Liquid	-	20	High	-252°C	- high capacity - very fast charging	- high costs - 1% boil-off	
Indirectly	Physically	Physisorption	Carbon Nanotubes	~ 2 (12) ¹⁾	Low	- safety - ambient conditions	- low capacity - sensitive on impurities	
	Chemically	Metallic hydrides	LaNi ₅ H ₆	< 2	Low	- thermodynamic properties	- low reversible gravimetric capacity	
		Covalent hydrides	Mg ₂ NiH ₆ and other Mg-alloys	3 – 7	Medium	250–300 °C	- high capacity	- unfavourable thermodynamics
		Alkali metal alanates	NaAlH ₄ Na ₂ LiAlH ₆ Mg(AlH ₄) ₂ LiBH ₄	3.5 – 14.5	Low	~ 100 °C ~ 100 bar	- high capacity - thermodynamic properties	- low reversible gravimetric capacity - poor kinetic
		Chemical reaction	H ₂ O	11	High		- high capacity	- very high costs of electrolysis

Comments:
¹⁾ – advanced technology