

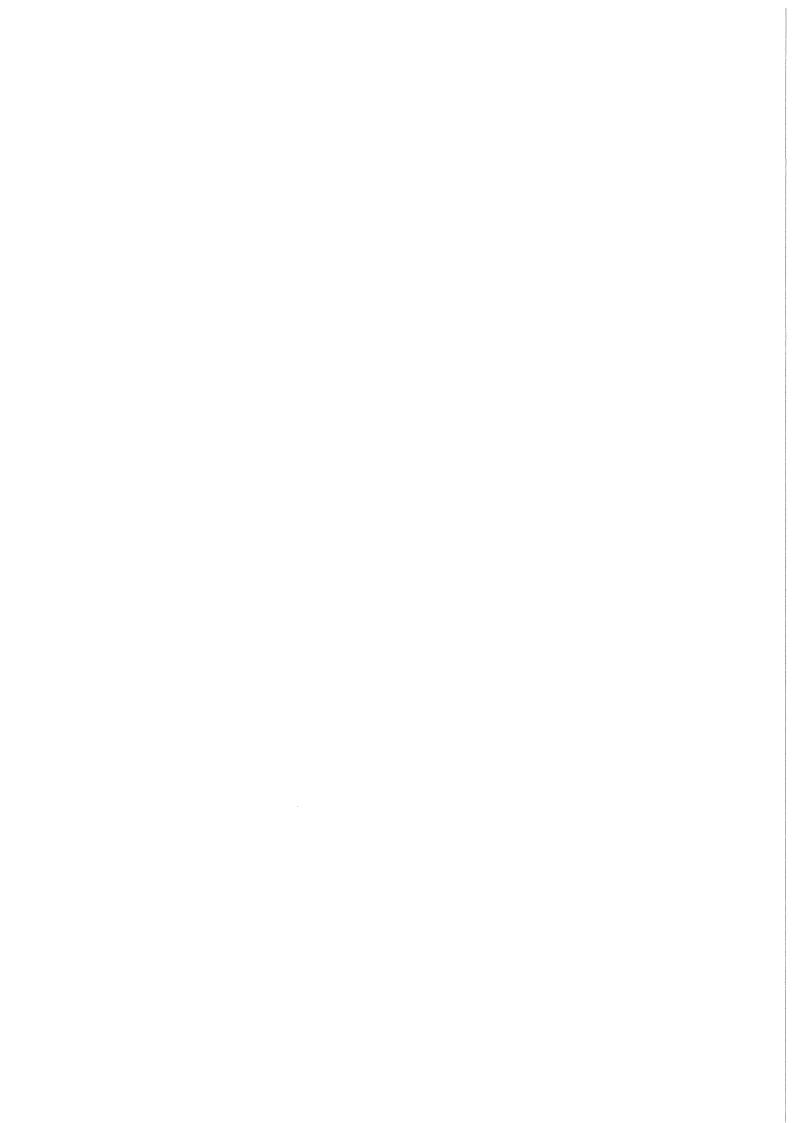
# **DEMONA**

Jahresbericht 1984

Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik Eidgenössisches Institut für Reaktorforschung Battelle Institut e. V. Kraftwerkunion AG Gesellschaft für Reaktorsicherheit mbH

zusammengestellt von W. Schöck Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH

Kernforschungszentrum Karlsruhe



KfK 3942 BF-R 65.523-30-3 EIR-553 GRS-A-1078 KWU-R-917/85/103 Juni 1985

# **DEMONA**

# Jahresbericht 1984

mit Beiträgen von:

H. Bunz, W. Schöck, KfK/LAF D. Haschke, A. Fromentin, R. Taubenberger, EIR-EU T. Kanzleiter, T. Schröder, Battelle Institut M. Peehs, H. Ruhmann, M. Fischer, KWU H. Jahn, G. Weber, GRS

zusammengestellt von: W. Schöck, KfK/LAF











Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH ISSN 0303-4003

DEMONA ist ein Versuchsprogramm, das gemeinschaftlich durchgeführt wird von:

- Kernforschungszentrum Karlsruhe, Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik I in Zusammenarbeit mit der Projektleitung des Projektes Nukleare Sicherheit
- Battelle-Institut e.V.
- Eidgenössisches Institut für Reaktorforschung
- Kraftwerkunion
- Gesellschaft für Reaktorsicherheit.

Finanziell unterstützt wird das DEMONA-Programm durch das Bundesministerium für Forschung und Technologie, das Kernforschungszentrum Karlsruhe, das Eidgenössische Institut für Reaktorforschung und den Schweizerischen Nationalen Energieforschungsfond.

Alle Arbeiten im DEMONA-Programm werden von der DEMONA-AG koordiniert. Die DEMONA-AG bewertet auch die erzielten Ergebnisse und führt den Vergleich mit den Voraus- und Nachrechnungen durch. Mitglieder der DEMONA-AG sind:

- J.P. Hosemann, KfK/PNS
- H. Bunz, W. Schikarski, W. Schöck, KfK/LAF I
- D. Haschke, EIR
- T. Kanzleiter, T. Schröder, Battelle Institut e.V.
- M. Fischer, K. Hassmann, M. Peehs, H. Ruhmann, KWU
- H. Erlenwein, H. Jahn, GRS
- J.A. Gieseke, Battelle Columbus Laboratories

#### Zusammenfassung

Das DEMONA-Programm dient der <u>Demonstration nuklearen Aerosolverhaltens durch</u> Experimente im großen Maßstab. Es soll zeigen, daß der NAUA-Code als Gesamtmodell in der Lage ist, das typische störfallbedingte Aerosolverhalten im Containment eines DWR realistisch und genügend genau zu beschreiben. Wegen der engen Kopplung von Thermodynamik und Aerosolverhalten wird das DEMONA-Programm auch zur Zusammenfassung der Aerosol-(NAUA) und Thermodynamik-(COCMEL)-Codes einen Beitrag leisten.

Die Experimente werden im Modellcontainment des Battelle Instituts in Frankfurt durchgeführt. Das Modellcontainment ist eine Nachbildung von Biblis A im Maßstab 1:4 und zeichnet sich durch geometrische und thermodynamische Eigenschaften aus, die eine sehr realistische Simulation der Bedingungen beim Kernschmelzunfall ermöglichen.

Im Berichtsjahr 1984 wurden 21 Versuche zur Optimierung der Aerosolerzeugung und vier Langzeitexperimente zum Aerosolabbau durchgeführt. Zwei der Langzeitexperimente erfüllen die Zielsetzung der in der DEMONA-Testmatrix spezifizierten Experimente "Trockenversuch" und "Basisversuch". Die experimentellen Ergebnisse sind in sehr guter Übereinstimmung mit den Voraus- und Nachrechnungen mit den Codes COCMEL und NAUA. Dieser Bericht beschreibt die durchgeführten Versuche und die wesentlichen Ergebnisse.

#### DEMONA

### Annual Report 1984

#### Abstract

The DEMONA program is conducted to <u>demonstrate nuclear aerosol</u> behaviour in large scale experiments. It is to be shown that the NAUA aerosol code is capable of describing sufficiently well the typical aerosol behaviour during accidents in PWRs. DEMONA also will improve the coupling of aerosol (NAUA) and thermodynamic (COCMEL) codes.

The experiments are carried out in the model containment facility at Battelle Frankfurt which is a quarter scale model of the Biblis A containment. The geometric and thermodynamic properties of the model containment allow a realistic simulation of the conditions during core melt accidents.

In 1984 21 test were done to improve and optimize the aerosol generation techniques. Four long term aerosol removal experiments were carried out, two of which satisfy the aims of the DEMONA test matrix as dry test and base experiment. The measured aerosol behaviour was in very good agreement with pre test predictions and post test calculations with NAUA. This report describes the experiments and gives the essential results.

# Inhalt

1.	Einleitung	1
2.	Überblick DEMONA 1984 (KfK/LAF)	3
2.1	Durchgeführte Arbeiten	3
2.2	Versuchsergebnisse	5
3.	Modellcontainment (Battelle)	13
3.1	Betrieb der Anlage	13
3.2	Thermodynamische Messungen	15
4.	Aerosolerzeugung (KWU)	24
4.1	Aufbau und Optimierung des Aerosolgenerators	24
4.2	Aerosolerzeugung	29
5.	Aerosolmessungen	36
5.1	Aerosolmeßtechnik EIR	36
5.2	Meßergebnisse (EIR)	45
5.3	Sonderinstrumentierung (KfK/LAF)	57
6.	Modelltheorie	60
6.1	Thermodynamische Rechnungen (KWU)	60
6.2	FIPLOC-Rechnungen (GRS)	66
6.3	Aerosolverhaltensrechnungen (KfK/LAF)	75
7.	Voröffentlichungen im Berichtgich	77

### 1. Einleitung

Das Verhalten nuklearer Aerosole nach schweren Störfällen in Kernkraftwerken ist seit nahezu zwei Jahrzehnten intensives Forschungsthema in der Bundesrepublik Deutschland, wobei der Schwerpunkt der Arbeiten im Kernforschungszentrum (KfK) liegt. Die Untersuchungen zum nuklearen Aerosolverhalten in schweren Störfällen von LWR-Kernkraftwerken begannen Anfang der 70er Jahre. Der internationale Stand der Kenntnis auf diesem wichtigen Gebiet der Reaktorsicherheit, das insbesondere den radiologischen Quellterm entscheidend beeinflußt, wurde in zwei Berichten des Committee on the Safety of Nuclear Installation (CSNI) der OECD Nuclear Energy Agency (NEA) dargestellt /1/, /2/.

Die bisherigen Forschungsprogramme zum Aerosolverhalten im KfK wurden im Labor-bzw. Technikums-Maßstab durchgeführt. Für den Fall der schweren Störfälle bei LWR-Kernkraftwerken wurde der NAUA-Code entwickelt, der in einem PNS-For-schungsprogramm des Laboratoriums für Aerosolphysik und Filtertechnik I des KfK (NAUA-Programm) auch experimentell abgesichert wurde, wobei insbesondere der Einfluß des kondensierenden Wasserdampfes auf das Aerosolverhalten untersucht wurde. Die Version NAUA-Mod5 berücksichtigt alle wichtigen Aerosolprozesse (Sedimentation, Diffusion, Diffusiophorese, Brown'sche und Gravitationskoagulation, Kondensation).

Das DEMONA-Programm /3,4/ dient der <u>Demonstration nuklearen Aerosolverhaltens</u> durch Experimente im großen Maßstab. Es soll zeigen, daß der NAUA-Code als Gesamtmodell in der Lage ist, das typische störfallbedingte Aerosolverhalten im Containment eines DWR realistisch und genügend genau zu beschreiben. Wegen der engen Kopplung von Thermodynamik und Aerosolverhalten wird das DEMONA-Programm auch zur Zusammenfassung der Aerosol-(NAUA) und Thermodynamik-(COCMEL)-Codes einen Beitrag leisten.

Die Experimente werden im Modellcontainment des Battelle Instituts in Frankfurt durchgeführt. Das Modellcontainment ist eine Nachbildung von Biblis A im Maßstab 1:4 und zeichnet sich durch geometrische und thermodynamische Eigenschaften aus, die eine sehr realistische Simulation der Bedingungen beim Kernschmelzunfall ermöglichen.

Folgende Institutionen leisten wissenschaftliche und technische Beiträge:

- Kernforschungszentrum Karlsruhe, Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik I in Zusammenarbeit mit der Projektleitung des Projektes Nukleare Sicherheit
- Battelle-Institut, Frankfurt
- Eidgenössisches Institut für Reaktorforschung, Würenlingen
- Kraftwerk-Union, Erlangen
- Gesellschaft für Reaktorsicherheit, München

Finanziell unterstützt wird das DEMONA-Programm durch das Bundesministerium für Forschung und Technologie, das Kernforschungszentrum Karlsruhe, das Eidgenössische Institut für Reaktorforschung und den Schweizerischen Nationalen Energie forschungsfond.

Die Anlage, der Versuchsaufbau und die Zielsetzungen des DEMONA-Programms sind bereits in /3,4/ beschrieben. Der vorliegende Bericht enthält eine Zusammenfassung der wesentlichen Arbeiten und Ergebnisse aus dem Jahre 1984. Die Einzelheiten der Versuche der DEMONA-Testmatrix werden jeweils in gesonderten Berichten dokumentiert.

- /1/: Nuclear Aerosols in Reactor Safety
  A Stae-of-the-Art Report
  OECD/NEA Hrsg., Paris 1979
- /2/: Nuclear Aerosols in Reactor Safety
  Supplementary Report
  OECD/NEA Hrsg., Paris 1985
- /3/: DEMONA, Forschungsprogramm zur Demonstration nuklearen Aerosolverhaltens W.O. Schikarski Hrsg., KfK 3636, EIR 502, 1983
- /4/: J.P. Hosemann, D. Haschke
   DEMONA, Aerosol Removal Experiments
   EIR Bericht 505, 1983

## 2. Überblick DEMONA 1984

# 2.1 Durchgeführte Arbeiten

Im Vorjahr wurde bereits der Thermodynamiktest (A1 der DEMONA Versuchsmatrix) durchgeführt, der die Eignung des Modellcontainments für die vorgesehenen Versuche bestätigte. Insbesondere wurde die Leckrate mit vier unabhängigen Verfahren gemessen, sie lag unterhalb des spezifizierten Maximalwertes. Ansonsten wurden im Vorjahr im wesentlichen Einzelarbeiten in den Laboratorien der an DEMONA beteiligten Partner durchgeführt. Nach Installation der Aerosolgeneratoren und Meßsysteme am Modellcontainment konnte dann im Berichtsjahr 1984 der Versuchsbetrieb in Frankfurt aufgenommen werden. Es wurden im Laufe des Jahres 25 Einzelversuche zur Optimierung der Aerosolerzeugung durchgeführt (V 6 bis V 31), von denen vier (V 20, V 23, V 30 und V 31) als Aerosolabbauexperiment weitergeführt wurden. Die beiden letzten Versuche V 30 und V 31 gelten als Trockenversuch B2 und als Basisversuch B3 im Sinne der DEMONA-Testmatrix. Im Zuge all dieser Einzelexperimente wurden auch notwendige Verbesserungen und Weiterentwicklungen an allen Komponenten der Meßtechnik und an der Versuchsführung durchgeführt. Die durchgeführten Arbeiten und wesentlichen Ergebnisse werden in diesem Kapitel zusammengestellt. Die folgenden Kapitel enthalten ausführlichere Darstellungen zu den Einzelaufgaben.

#### Modellcontainment

Mit der thermodynamischen Instrumentierung des Battelle-Instituts werden zum einen die Randbedingungen des jeweiligen Versuchs eingestellt und überwacht, zum anderen die in der Versuchsanlage ablaufenden thermodynamischen Vorgänge erfaßt. Vornehmlich dem ersten Verwendungszeck dienen die Blendenmeßstrecken für die zugeführten Dampf- und Luftströme, die Tracergaskonzentrationsmessung zur Leckratenbestimmung sowie die Containmentdruckmessung. Für das zweite Ziel werden die folgenden Meßgrößen erfaßt: Temperaturverteilung in der Containment-atmosphäre, in den Containmentsümpfen und in den Betonstrukturen, relative Feuchte in der Containmentatmosphäre (Feststoffsensor), Sumpfwasserstand (Schwimmer- und kapazitive Meßsonden) sowie Wärmestrom und Wärmeübergangszahl an zwei speziell entwickelten Meßblöcken (Einzelheiten siehe Abschnitt 3.2). Abgesehen von einzelnen Ausfällen von Temperaturaufnehmern durch Korrosionsschäden (durch die Aerosolgeneraturenwerden u.a. 03 und NO x erzeugt) arbeiteten alle Systeme einwandfrei.

#### Aerosolgenerator

Die Entwicklung des Aerosolgenerators wird von KWU durchgeführt. Dabei zeigte sich, daß die Erwartungen, die in das von ORNL übernommene Konzept gesetzt worden waren, nicht erfüllt wurden. Es waren umfangreiche Entwicklungs- und Optimierungsarbeiten notwendig (siehe Kapiel 4), um im Versuchscontainment mit einem Volumen von 640 m³ Aerosolkonzentrationen von mehr als  $10~\mathrm{g/m^3}$ , bei Einspeisezeiten von maximal 60 min zu erzielen. Zum Beispiel war es notwendig, die ursprüngliche Auslegungseinspeiserate um den Faktor 3 zu erhöhen. Die bisher erreichten Maximalkonzentrationen betragen im Fall von Eisenoxidaerosol  $1,6~\mathrm{g/m^3}$ , bei Zinnoxidaerosol  $12~\mathrm{g/m^3}$ .

Beide Aerosolarten unterscheiden sich erheblich in bezug auf Korngröße und Ausbeute. Der Grund ist im chemischen Verhalten der beiden Metalle unter den Bedingungen der Aerosolgenerator-Reaktionskammer zu suchen. Zinnoxid liegt, im Gegensatz zu Eisenoxid in Form einer flüchtigen Modifikation (SnO) vor. Durch Abschrecken der Gasphase werden Kondensationsaerosole in hoher Konzentration mit Korngrößen kleiner als 1 µm gebildet.

Gelingt es, die Oxidation von Eisen weitgehend in der Gasphase durchzuführen (z.B. durch die Verwendung einer flüchtigen Eisenverbindung wie Eisenpentacarbonyl), so sollten sich Ausbeute und Qualität des Eisenoxidaerosols wesentlich steigern lassen. Vorversuche verliefen erfolgversprechend, ein für Eisenpentacarbonyl geeignetes Einspeisesystem wird derzeit entwickelt.

Die Erzeugung von ausreichenden Mengen Aerosol mit den gewünschten Eigenschaften gelang bis jetzt nur mit Zinn als Ausgangsmaterial. Dabei ist zu betonen, daß die aerosolphysikalischen Eigenschaften des Zinnoxidaerosols durchaus den Anforderungen der wissenschaftlichen Zielsetzung von DEMONA genügen. Nur als Aerosol für ein Demonstrationsexperiment ist Zinnoxidaerosol allein nicht typisch genug für ein Kernschmelzaerosol. Es ist daher vorgesehen, Zinn nur als eine Komponente in einem anzustrebenden Mischaerosol zu benutzen.

Die hohen Aerosolerzeugungsraten, die mit Zinn erreicht wurden, ermöglichten die Durchführung von Experimenten, die allen anderen Spezifikationen der Testmatrix entsprachen. Diese Versuche (V 23, V 30, V 31) sind vom aerosolphysikalischen Standpunkt als gelungen anzusehen.

#### Meßtechnik

Die vom EIR entwickelte Meßtechnik wurde bei den Versuchen eingesetzt und verbessert. Bis auf das Tröpfchengrößenspektrometer sind alle Geräte erprobt und verfügbar (s. Kapitel 5).

Von LAF I wurden die Generatorfotometer, das Laserfotometer und die Tröpfchenkalorimeter betrieben. Bei allen Trockenversuchen wurden außerdem Filterproben des Aerosols gezogen.

#### 2.2 Versuchsergebnisse

Bei vier Experimenten wurde der Aerosolabbau über längere Zeit gemessen. Das Ende der Meßphase war jeweils erreicht, wenn die Massenkonzentration soweit abgesunken war  $(10^{-3} \dots 10^{-4} \text{ g/m}^3)$ , daß sie nicht mehr meßbar war. Die vier Abbauexperimente waren

- V 20: Trockenversuch mit Eisenoxidaerosol
- V 23: Trockenversuch mit Zinnoxidaerosol
- V 30: Trockenversuch mit Zinnoxidaerosol, aber höhere Erzeugungsrate als bei V 23
- V 31: Naßversuch mit Zinnoxidaerosol

Die Versuche V 30 und V 31 entsprechen in allen Parametern den Versuchen A 2 und A 3 der DEMONA-Testmatrix, bis auf das Aerosolmaterial. Die Versuche erhalten daher die Bezeichnung V 30 = B 2 und V 31 = B 3, eine spätere Wiederholung mit einem Mischaerosol ist vorgesehen.

#### Versuch V 20

Der Versuch V 20 wurde mit Eisenoxidaerosol durchgeführt. Insgesamt eingesetzt wurden 2,8 kg Eisenpulver. Die erreichte maximale Aerosolkonzentration im Containment war 1,4 g/ $m^3$ . Abb. 2.1 zeigt die berechneten und gemessenen Zeitverläufe der Massenkonzentration des Aerosols im Containment. Man sieht, daß die Vorausrechnung den Aerosolabbau stark unterschätzt. Der Grund dafür liegt darin, daß die Vorausrechnung mit den spezifizierten Aerosolpartikelgrößen

durchgeführt wurde, daß aber - wie bereits erwähnt - das Eisenoxidaerosol eine große Fraktion grober Partikeln enthält, die schneller abgeschieden werden. Nachdem die aktuelle Partikelgrößenverteilung gemessen war, lieferte die Nachrechnung mit diesen Werten eine völlige Übereinstimmung mit den Messungen. Die gemessene Partikelgrößenverteilung ist untypisch für Kernschmelzaerosole; der Versuch V 20 ist somit unbrauchbar im Sinne von DEMONA, kann aber als Beispiel für die Leistungsfähigkeit von NAUA angesehen werden.

#### Versuch V 23

Der Versuch V 23 war der erste Aerosolabbauversuch mit Zinnoxidaerosol. Der Maximalwert der gemessenen Massenkonzentration war 6,5 g/m³. In Abb. 2.2 sind die berechneten und gemessenen Massenkonzentrationen dargestellt. Die Aerosolerzeugung erfolgte, bedingt durch Störungen an den Aerosolgeneratoren, in zwei Intervallen. Die größere Menge Aerosol wurde am Anfang erzeugt, eine zweite Einspeisephase nach drei Stunden brachte nochmal einen kurzzeitigen Anstieg der Massenkonzentration. Dieses diskontinuierliche Verhalten ist in der Vorausrechnung nicht berücksichtigt. Dennoch ist die Übereinstimmung zwischen Vorausrechnung und Messung sehr gut, die Abweichungen liegen innerhalb eines Faktors 2, der durch das schraffierte Band in Abb. 2.2 angegeben wird. Die Nachrechnung mit Verwendung der aktuellen Aerosolquellfunktion und der gemessenen Leckraten des Containments liegt innerhalb der Meßgenauigkeit, wie schon bei V 20.

Die Messungen mit den zehn im Containment verteilten Fotometern zeigen, daß die Atmosphäre zu allen Zeiten gemischt ist, und daß keine lokalen Konzentrations-unterschiede auftraten. Dies war bei V 20 nicht ganz der Fall, die Fraktion der groben Partikeln hatte sich bei V 20 in den unteren toten Zonen des Containments vorübergehend angereichert. Bei V 23, bei dem es keine grobe Fraktion gab, konnte ein solcher Entmischungsprozess auch nicht auftreten.

Noch ein Umstand ist hervorzuheben. Obwohl V 23 ein "Trockenversuch" ohne Dampf und bei Umgebungstemperatur war, trat vorübergehend Kondensation im Containment auf. Der Versuch fand im Juli statt bei relativ hoher Luftfeuchtigkeit. Die Aufladung des Containments auf 3 Bar mit Umgebungsluft führte zu Übersättigung im Containment und zu Kondensation an den Aerosolpartikeln. Die zeitweise Kondensation war ausreichend, die Partikeln zu kompaktieren, wie elektronenmikroskopische Aufnahmen zeigen. Die NAUA-Rechnungen konnten daher ohne Form-

faktoren durchgeführt werden; ein Umstand, der zur guten Übereinstimmung mit den Messungen beiträgt.

#### Versuch V 30 (B2)

Der Versuch V 30 wurde als Trockenversuch der DEMONA-Testmatrix durchgeführt und erhält die Bezeichnung B 2. Es wurden insgesamt 16,5 kg Zinnpulver eingesetzt, die maximal gemessene Aerosolmassenkonzentration war 12 g/m³. In Abb. 2.3 ist der Verlauf der gemessenen Massenkonzentration mit der Vorausrechnung verglichen. Die Übereinstimmung ist gut wenn auch nicht so genau wie bei V 23. Insbesondere am Anfang wurden höhere Abbauraten gemessen als vorausberechnet. Ein Teil der Diskrepanzen ist sicherlich dem Umstand zuzuschreiben, daß der Versuch – im Gegensatz zu V 23 – wirklich "trocken" war. Der Versuch V 30 fand im November statt bei sehr kalter und trockener Umgebungsluft. Kondensation im Containment trat nicht auf, die elektronenmikroskopischen Aufnahmen des Aerosols zeigen lockere weitverzweigte Aggregate. Die Formfaktoren dieser Aggregatpartikeln sind unbekannt, wodurch die Nachrechnung erschwert wird. Ein belastbarer Vergleich der Meßergebnisse ist daher nur mit der Vorausrechnung möglich, wie in Abb. 2.3 gezeigt.

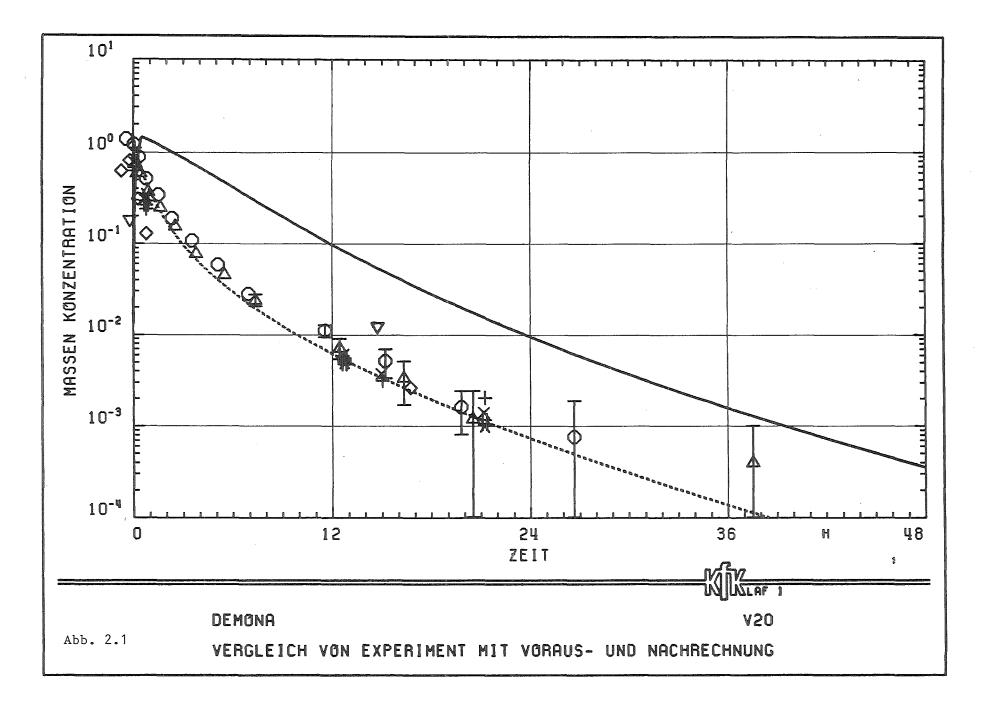
# Versuch V 31 (B 3)

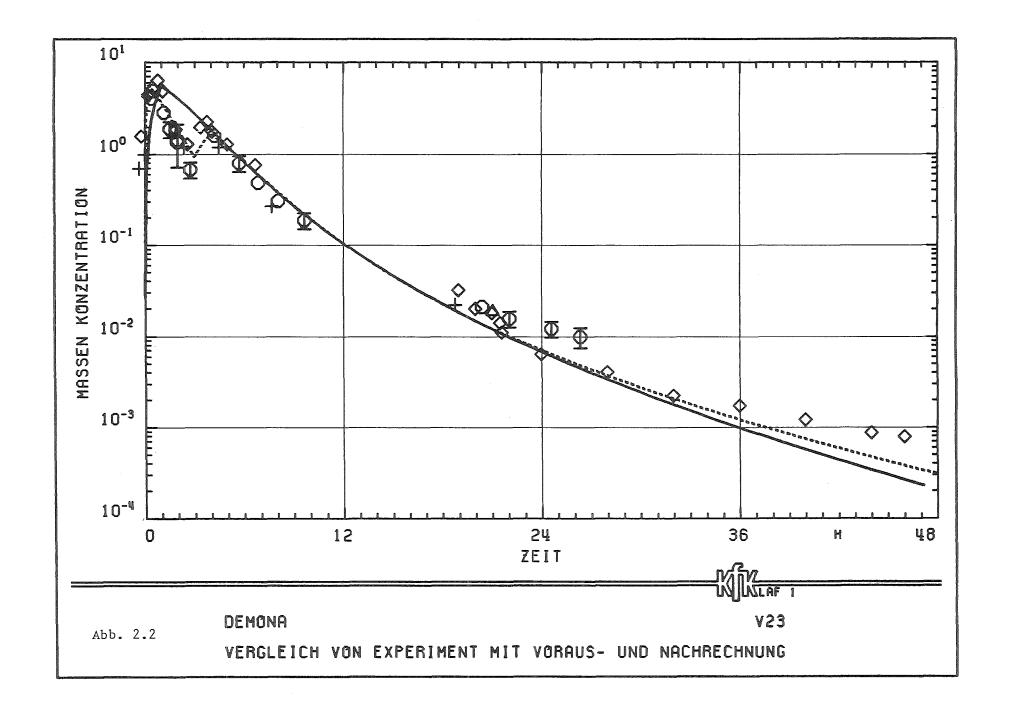
Der Versuch V 31 wurde als Basisversuch der DEMONA-Testmatrix in wasserdampfgesättigter Atmosphäre bei 115 °C durchgeführt und erhält die Bezeichnung B 3. Nach Aufheizung des Containments durch Dampfeinspeisung wurde das Aerosol erzeugt. Die eingesetzte Menge Zinnpulver war 8,8 kg, die maximal gemessene Massenkonzentration des Zinnoxidaerosols 8,4 g/m³. Diese Werte liegen niedriger als bei V 30, weil die Zeit zur Aerosoleinspeisung kürzer war. Beim Naßversuch ist der Druck im Containment zu Beginn der Aerosoleinspeisung höher (1,7 Bar) als beim Trockenvesuch (1 Bar), so daß der Enddruck (3 Bar) früher erreicht wird.

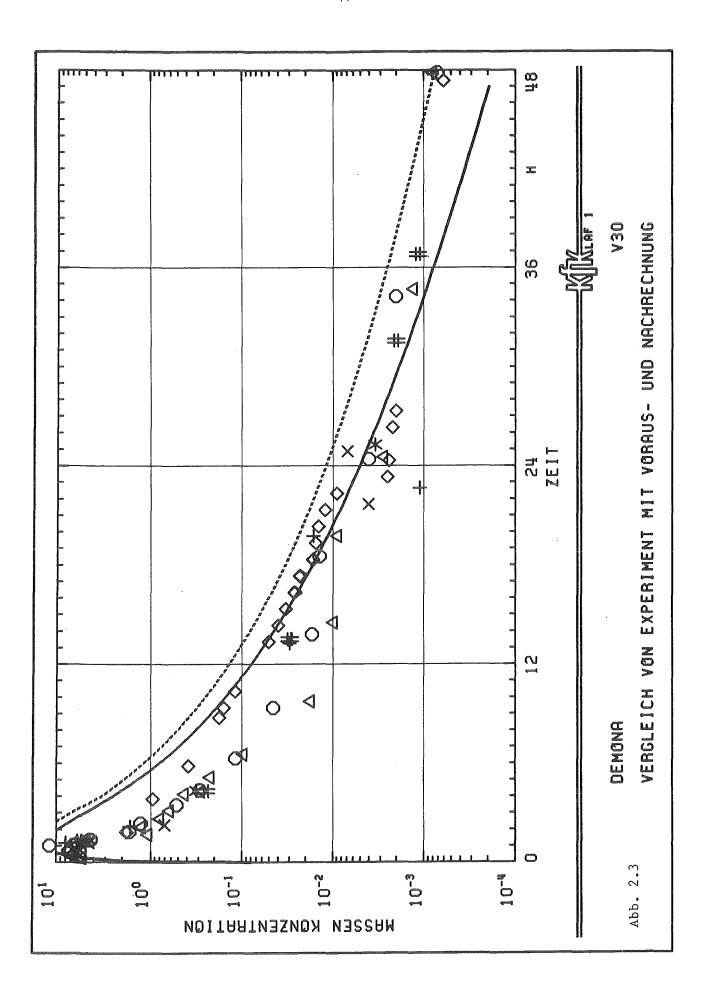
In Abb. 2.4 sind die gemessenen Massenkonzentrationen mit der Vorausrechnung verglichen. Die Übereinstimmung ist erstaunlich gut, wenn man berücksichtigt,

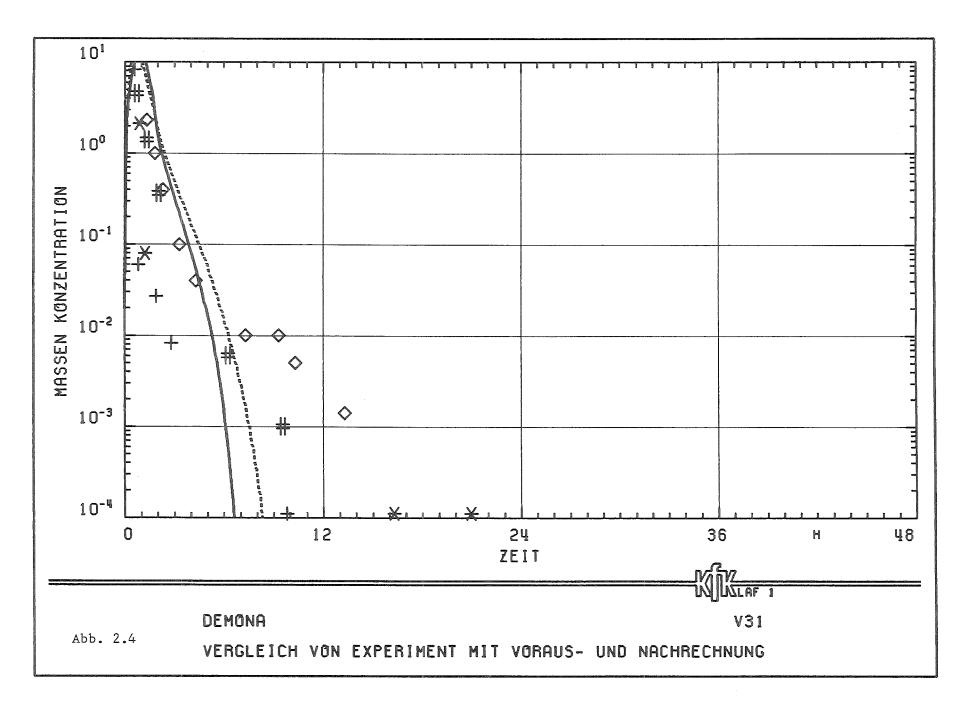
daß die aktuellen thermodynamischen Zustände von den vorausberechneten signifikant abwichen. Der Vergleich des Aerosolabbaus von V 31 mit V 30 zeigt sehr deutlich den Einfluß der wasserdampfkorrelierten Effekte Kondensation und Diffusiophorese. In kondensierender Atmosphäre ist der Aerosolabbau erheblich schneller als in trockener. Das Auftreten von Volumenkondensation am Aerosol wird durch die Messungen mit den Fotometern und Kalorimetern eindeutig belegt. Der Einsatz der Kondensation am Aerosol war etwas früher als mit COCMEL vorausgerechnet, die Volumenkondensation dauerte dann an bis zum Versuchsende. Im Kuppelraum R9 wurde ein Flüssigwassergehalt der Atmosphäre gemessen, der ziemlich konstant im Bereich von 3 bis 4 g/m³ lag.

Die elektronenmikroskopische Auswertung der Aerosolproben zeigt erwartungsgemäß kompaktierte Aggregatpartikeln, deren Durchmesser jedoch signifikant größer sind als die mit NAUA berechneten. Dies kann nur durch lokal erhöhte Konzentration bei gleichzeitiger Kondensation erklärt werden, ein Zustand, wie er an der Einspeisestelle für Aerosol und Dampf im Raum R 1-3 denkbar ist.









#### Modellcontainment

Das aus konventionellem Stahlbeton gebaute Modellcontainment ist in seiner DEMONA-Konfiguration in Abb. 3.1 dargestellt. Sein Inneres, das ursprünglich entsprechend der DWR-Anlage Biblis A im Volumenmaßstab 1:64 in neun Räume unterteilt war, wurde für die ersten DEMONA-Versuche durch Entfernen aller beweglichen Komponenten und vollständiges Öffnen sämtlicher vorhandener Verbindungsquerschnitte einer Einraum-Geometrie angenähert. Die Einspeiseorte für Aerosol und Dampf liegen nahe der Containmentachse auf Höhe +1,7 m und +0,2 m (bei Versuch B3, geändert gegenüber früherem Versuch A1).

#### 3.1. <u>Betrieb der Anlage</u>

#### 3.1.1. <u>Trockenversuche</u>

In Abb. 3.2 sind die wichtigsten Versuchsparameter der Trockenversuche V20, V23 und V30 zusammengestellt. V30 stellt den Hauptversuch B2 des DEMONA-Versuchsprogramms dar, V20 und V23 waren Vorversuche zur Aerosolerzeugung.

Bei den genannten Trockenversuchen wurde das in heißer Luft (ca. 350 °C; Erhitzung im Aerosolgenerator) suspendierte Eisen- bzw. Zinnoxidaerosol in das nicht vorgeheizte, luftgefüllte (ca. 1 bar/15 °C) Containment eingespeist. Dabei stieg der Containmentdruck kontinuierlich an, und die Atmosphärentemperatur erhöhte sich in den oberen Zonen auf rund 40 °C, in den unteren Zonen dagegen nur auf etwa 20 °C. Bei den Versuchen V20 und V23 mußte die Aerosoleinspeisung wegen Störungen an den Generatoren mehrfach unterbrochen werden.

Mit dem Ende der Aerosoleinspeisung beginnt die Aersolabbau-Meßphase. Der Containmentdruck sinkt von seinem Maximalwert aus langsam ab (Folge der Containmentleckage). Die Containmentatmosphärentemperatur sinkt dagegen relativ schnell ab und erreicht nach rund 30 min wieder etwa ihren Anfangswert (ca. 15°C; Wärmeübergang an die kalten Strukturen).

#### 3.1.2. Dampfversuche

Die wichtigsten Versuchsbedingungen der Dampfversuche V5 (= Al; Kalibrierversuch <u>ohne</u> Aerosol) und V31 (= B3; erster Dampfversuch mit  $SnO_2$ -Aerosol) sind in Abb. 3.3 zusammengestellt.

Bei den Dampfversuchen erfolgt der Aerosolabbau in einer kernschmelzunfalltypischen Sattdampf-Luft-Atmosphäre von ca. 115 °C und 3 bar. Die Containmentstrukturen werden zuvor durch weitgehend luftfreien Sattdampf (gleichmäßige Temperatur!) vorgeheizt. Dies bedingt einen Versuchsablauf in folgenden
Phasen (vgl. Abb. 3.3):

- Phase 1: Ausspülen der anfangs im Containment enthaltenen Luft durch eingespeisten Dampf. (Dauer ca. 7 h).
- Phase 2: Aufheizen der Containmentstrukturen mittels Sattdampfatmosphäre (1,7 bar/115 °C; laufende Dampfnachspeisung) bis zum Erreichen stationärer Verhältnisse (Dauer ca. 42 h).
- Phase 3: Einspeisen von in Luft suspendiertem Aerosol. Dabei Aufbau eines zusätzlichen Luftpartialdrucks von 1,3 bar (Gesamtdruck steigt von 1,7 bar auf 3,0 bar; Dauer ca. 1 h).
- Phase 4: Aerosolabbauphase bei thermodynamisch annähernd stationären Versuchsbedingungen, mit Dampfnachspeisung zur Deckung der stationären Wärmeverluste; wegen der Containmentleckage nimmt der Luftpartialdruck in dieser Phase langsam ab (Dauer ca. 22 h).

#### 3.2. <u>Thermodynamische Messungen</u>

Die verwendeten Meßsysteme sind in Kapitel 2.1 :Modellcontainment , bzw. in Tabelle 3.I zusammengestellt.

Aus thermodynamischer Sicht interessante Ergebnisse liegen vor allem von den Dampfversuchen vor:

- Obwohl laufend leicht überhitzter Dampf eingespeist wird, liegen in der Containmentatmosphäre meist Sättigungsbedingungen vor. Ausnahmen:
  - -- Überhitzte (= ungesättigte) Dampf-Luft-Atmosphäre in den mittleren und oberen Containmentzonen während der Aerosoleinspeisung (wegen hoher Luft- und Aerosol-Einspeisetemperatur von z.B. ca. 330 °C im Versuch B3)
  - -- Intensive Nebelbildung zu Beginn der Phase 1 und möglicherweise während der ersten Stunde von Phase 4 (im Versuch B3)
- Die Luft-Dampf-Partialdruckverteilung bzw. Temperaturverteilung in der Containmentatmosphäre während der Phase 4 (Aerosolabbau) kann - je nach der vorliegenden Konfiguration - homogen oder inhomogen sein:
  - Dampfeinspeiseorts (H = 2,0 m) und durch verschlossene Verbindungsquerschnitte im "Trümmerschutzzylinder", bildete sich trotz vorhergehender gleichmäßiger Strukturaufheizung eine mit der Zeit zunehmende, stabile Temperaturschichtung aus, siehe Abb. 3.4 oben. Diese ergibt sich aus einem Zusammenspiel diffusiophoretischer Effekte (Auskondensieren von Dampf und damit Anstieg der lokalen Luftkonzentration in der Nähe der wärmeabführenden Außenwänden und Sumpfoberflächen) mit der Dampfnachspeisung in Containmentmitte.
  - -- Da die ersten Aerosolabbauversuche des DEMONA-Programms bei möglichst einfachen Randbedingungen (also auch bei homogener Containmentatmosphäre) durchgeführt werden sollten, wurden für den Versuch V31 = B3 die
    Dampfeinspeisestelle tiefer gelegt (auf Höhe +0,2 m) und alle Verbindungsquerschnitte im Innern des Modellcontainments geöffnet. Diese

relativ geringfügigen geometrischen Änderungen erbrachten den gewünschten Effekt: Die Atmosphäre im Modellcontainment war während der Phase 4 des Versuch B3 annähernd homogen, siehe Abb. 3.4 unten.

Die Messung des (kondensierenden) Wärmeübergangs zwischen der stagnierenden Containmentatmosphäre (ca. 115 °C) und der um ca. 4-10 K kühleren Oberfläche eines Meßblocks ergab eine eindeutige Korrelation zwischen der Atmosphären-(Luft-/Dampf-)Zusammensetzung und der Wärmeübergangszahl, vgl. Abb. 3.5 oben und unten. Die gefundenen Werte entsprechen den Meßwerten von Sagawa\*, welche der bekannten Uchida-Wärmeübergangskorrelation zugrunde liegen, siehe Abb. 3.6.

<sup>\*)</sup> Sagawa, N.: An Experimental Determination of Transient Condensing Heat Transfer with Heat Absorption in Circular Cylinders. Buletin ISME II (1968)

Anzahl der Meßkanäle	Meßgröße	Meßsystem		
2	Durchsatz Dampfleitung	Meßblende, $\Delta$ p-Messung mit Druckkorrektion		
je l	Druck und Temperatur in Dampfleitung	p-Umformer bzw. Thermoelement		
1	Durchsatz Luftleitung	Meßblende, $\Delta$ p-Messung, Druck- und Temperaturkorrektion		
je l	Druck und Temperatur in Luftleitung	p-Umformer bzw. Thermoelement		
2	Temperatur in Aerosoleinspeiserohr	Thermoelement		
1(8)	Tracergas-(CH <sub>4</sub> -)Konzentration im Containment (Leckagemessung)	Flammenionisationsdetektor, 8 Probeentnahmeleitungen		
2	Containmentdruck	p-Aufnehmer auf DMS-Basis		
31	Temperatur in Containment-Atmosphäre	Widerstandsthermometer Pt 100 bzw. NiCrNi-Thermoelement		
12	Temperatur in Containment-Sumpf	Thermoelement		
15	Temperatur in Containment-Struktur	Thermoelement		
1	Rel. Feuchte in Containment-Atmosphäre	Festkörpersensor		
6	Wasserstand in Containment–Sumpf	Kapazitive- bzw. Schwimmer-Sonde		
2	Wärmestrom, Wärmeübergangszahl	Wärmeübergangsmeßblock mit 13 bzw. 8 Thermoelementen		

Tabelle 3.I: Thermodynamische Instrumentierung

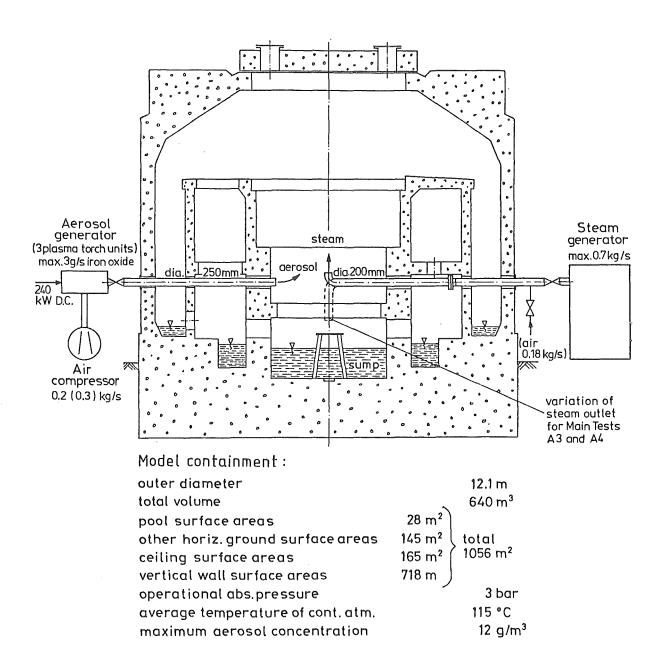
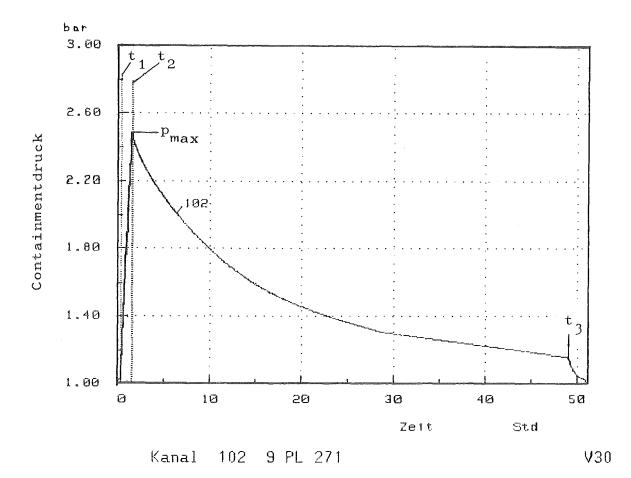


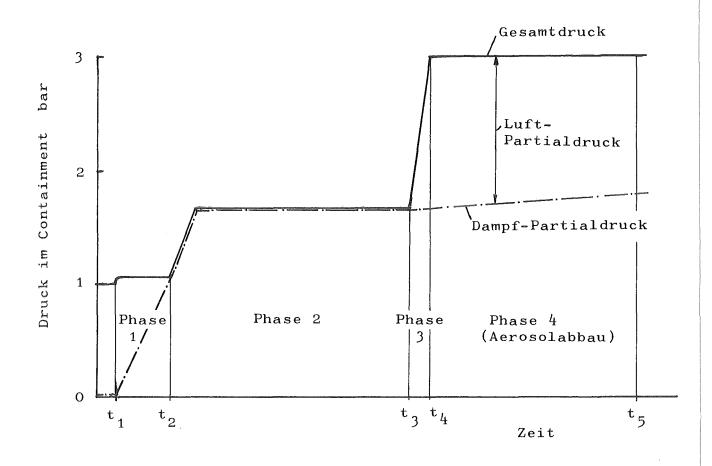
Abb. 3.1 DEMONA-Versuchsanlage

Beispiel: Versuch V30 = B2



Versuch Nr.	V 20		V 23	V 30 = B 2	
Versuchsbeginn (t=0	14.05.84		05.07.84	13.11.84	
	Uhrzeit	18	: 43	12:45	10:22
Aerosoleinspeisung:	(2 Perioden)		(3 Perioden)		
Beginn t <sub>l</sub>	min	31;	99	2; 75; 239	16
Ende t <sub>2</sub>	min	76;	113	17; 138; 321	86
Dauer t <sub>2</sub> -t <sub>1</sub>	min	45;	14	15; 63; 82	70
Versuchsende t <sub>3</sub>	h	44	, 3	56	49,1
eingespeiste Luftmenge kg		ca. 1050		ca. 1310	1085
max. Containmentdru	ck				
$p_{max}$	bar	2,	4 4	2,71	2,48
max. Aerosolkonzenti	ration				
c <sub>max</sub>	g/m³	1,4	(Fe <sub>3</sub> 0 <sub>4</sub> )	6,5 (SnO <sub>2</sub> )	12 (Sn0 <sub>2</sub> )
Containment-Leckrate	9				
bei 2 bar	%/d		65	85	85
		ļ .			

Abb. 3.2: Trockenversuche V20, V23 und V30=B2



Versuch Nr.	V 5 = A 1	V 31 = B 3
Versuchsbeginn (t=0): Datum	27.09.83	26.11.84
Uhrzeit	12:48	14:13
Phase l (Luft-Ausspülen)		
Beginn t <sub>l</sub> h	0,2	0,4
Phase 2 (Aufheizen)		
Beginn t₂ h	7,0	7,1
Phase 3 (Luft-+Aerosoleinspeisung)	(nur Luft)	
Beginn t <sub>3</sub> h	48,8	48,4
Dauer t₄−t₃ min	69	55
Phase 4 (Aerosolabbau)		·
Beginn t <sub>4</sub> h	49,9	49,3
Ende t <sub>5</sub> h	69,8	71,1
eingespeiste Dampfmenge:		
in Phase 3 kg/s	0,05	Mittel: 0,05
in Phase 4 kg/s	0,065	0,085
eingespeiste Luftmenge:		
(in Phase 3) kg/s	0,18	0,24
Containmentdruck	į.	
(in Phase 4) bar	3,01	3,03
Dampfpartialdruck		
(Beginn Phase 4) bar	Mittel: 1,29	1,50
max. Aerosolkonzentration c <sub>max</sub> -		
(Beginn Phase 4) g/m <sup>3</sup>	kein Aerosol	8,4 (SnO <sub>2</sub> )
Containment-Leckrate		_
(in Phase 4) %/d	70	40

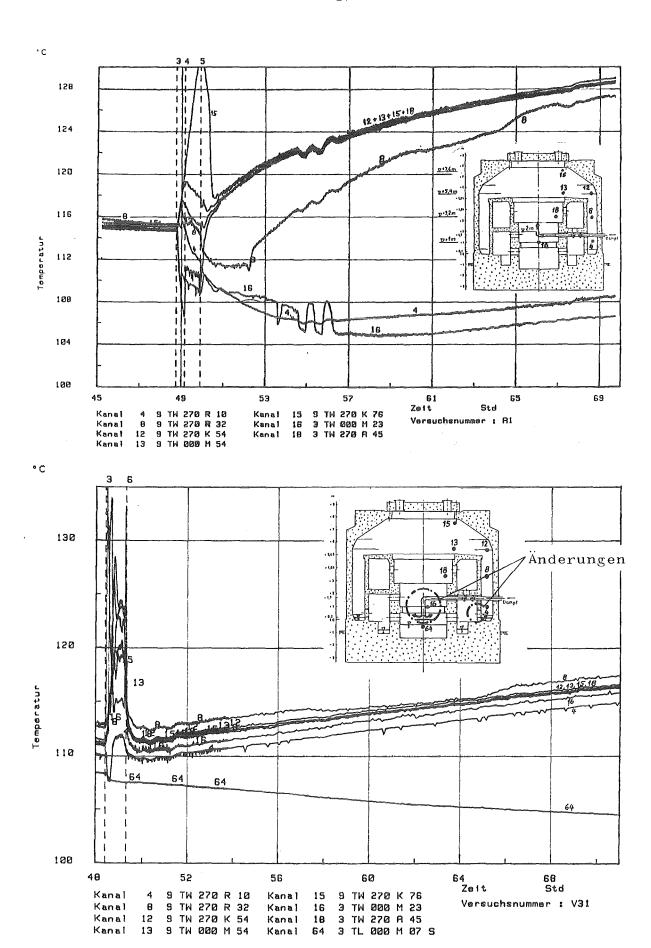


Abb. 3.4 Temperaturverteilung in der Containmentatmosphäre während der Aerosolabbauphase oben: Versuch A1; unten: Versuch B3

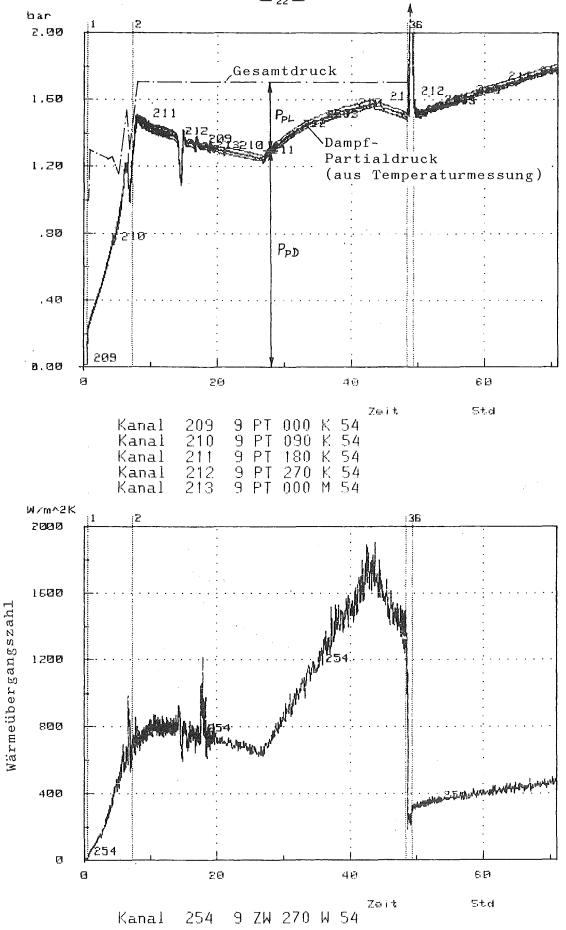


Abb. 3.5 Korrelation Atmosphärenzusammensetzung/Wärmeübergangszahl (Messungen aus Versuch B3)

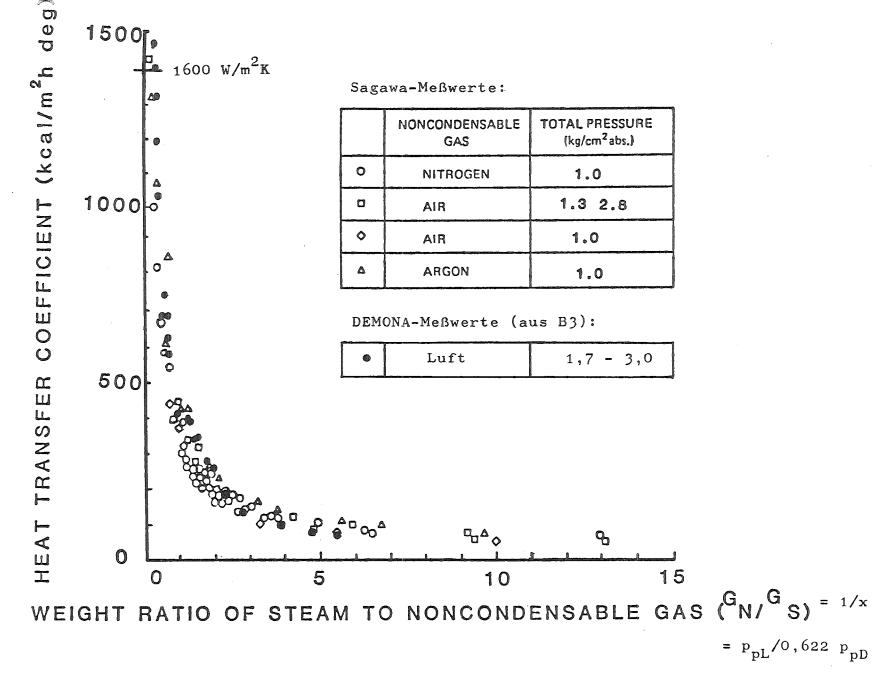


Abb. 3.6 Meßwerte von Sagawa, ergänzt um Meßwerte aus DEMONA-Versuch B3

## 4. Aerosolerzeugung

# 4.1 Aufbau und Optimierung des Aerosolgenerators

Nach einem Vorschlag von ORNL sollte es möglich sein, Kondensationsaerosole durch Einspeisen von Metallpulvern in ein Edelgasplasma und anschließende Rekondensation des Metalldampfes in Sauerstoff als Metalloxidaerosole zu erhalten.

Es zeigte sich, daß nach diesem Verfahren zwar prinzipiell Metalloxidaerosole erzeugbar sind, die Ausbeute und die Korngrößenverteilung der Aerosole jedoch stark von der Hochtemperaturchemie der eingesetzten Metalle bestimmt werden. Mit Eisenpulver als Einspeisematerial war weder die erzielbare Aerosolmenge, noch die Korngrößenverteilung der Aerosole den Anforderungen entsprechend (10 g/m³, Korngröße der Primärpartikel kleiner 1 µm).

Die von der KWU entwickelte Konzeption des Generators ist in Abb. 4.1 dargestellt. Sie zeichnet sich durch folgende Merkmale aus:

- Die Pulverzufuhr erfolgt so nah wie möglich an der Mündung der Brennerdüse. In der Plasmafackel treten starke räumliche Temperaturgradienten auf. Deshalb wurde eine Einspeiseposition gewählt, die eine möglichst lange Aufenthaltsdauern der Metall-Pulverteilchen in den heißesten Bereichen der Plasmafackeln ermöglicht.

Voraussetzung für diese Einspeiseposition war die Beherrschung thermischer Probleme am Einspeiserohr, die durch einen Kupferkühlring mit thermischem Kontakt zur Brennerdüse erreicht wurde. Durch diesen Kühlring wird außerdem über sechs Düsen Sauerstoff in den Brennerhals eingespeist.

- Eine Brennkammer aus Magnesiumoxid (thermische Belastung > 2000 °C). Durch eine selbsttragende Ausführung wurde eine Kühlung durch Umspülen mit Luft ermöglicht. Die Optimierung des Innendurchmessers der Brennkammer erfolgte in drei Schritten. Als endgültiges Brennkammervolumen wurde V = 389 cm³ gewählt. Bei diesem Volumen liegen die Wandtemperaturen knapp unterhalb der Schmelztemperatur des Magnesiumoxids (T≈2500 °C).
- Besondere Bedeutung hat die thermisch stabile Ausführung der Einspeiserohre (Pulver, Sauerstoff) am Brennkammerhals. Durch einen Kühlring aus Kupfer, welcher in gutem thermischen Kontakt zur Brenneranode steht (vgl. Abb. 4.1) wird die Temperatur an den Einspeiserohren auf ca. 700°C begrenzt. Die Wärmeabfuhr erfolgt über den Kühlkreislauf der Plasma-Brenner-Anode.

Die technische Ausführung des DEMONA-Aerosolgenerators ist in Abb. 4.2 dargestellt. Es wurden drei Generatorbrennkammern installiert, die in eine gemeinsame Zuleitung zum Modellcontainment (Durchmesser 250 mm, Länge 6 m) münden. Die Generatoren können für Wartungs- bzw. Reparaturzwecke mit Keilplatten-Schiebern abgeschottet werden. Die Mündung des Einspeiserohres befindet sich im Zentrum des Modellcontainments.

Die Abbildungen zeigen weiterhin die am Modellcontainment installierte kommerzielle Plasmaanlage der Firma Metco: 3 Brenner Typ 10 MB jed. Leistung max. 3 x 80 kW bei Ar/He des Primärgases.

Die Pulverzufuhr erfolgt durch einen modifizierten kommerziellen Pulverförderer (Fa. Metco Typ 6 MP Dual). Förderprinzip: Metallpulver werden durch ein Dosierrad mit definierter Rate in einem Trägergasstrom (entspricht dem Primärgas der Plasmabrenner) dispergiert und über flexible Schlauchleitungen bzw. Cu-Rohre den Brennerköpfen zugeführt.

# Inbetriebnahmeversuche und Optimierung des Aerosolgenerators

Im Zeitraum Februar bis Dezember 1984 wurden zahlreiche Versuche zur Generatorentwicklung durchgeführt. Sie hatten das Ziel, einen stabilen 60-min. Betrieb der Generatoren mit einer maximalen Aerosolausbeute zu erreichen. Der überwiegende Anteil der Vorversuche wurde mit Eisenpulver als Einspeisematerial durchgeführt.

- Versuche zum thermischen Verhalten von Brennkammer und Leitungssystem: (V 6, V 7, V 10, V 13, V 14)

Werkstoff 1.4571

max. Auslegungstemperatur: 550 °C max. Betriebstemperatur: 350 °C

Bei einer Kühlluftmenge von 0,07 kg/s wurden am Rohrsystem Temperaturen von 280 °C (Dauerbetrieb 1 h) gemessen. Die Temperaturen im Brennkammerhals liegen bei 500 °C.

Temperatur des Aerosol-Luft-Gemisches 250 - 300 °C. (on-line Registrierung Kanal 83 der BF-Datenerfassung).

Standzeitoptimierung der Aerosolgeneratoren
 (V 10, V 13, V 16, V 17, V 18).
 Die Standzeit wird durch das verwendete Einspeisematerial
 (Metallpulver), seine Korngröße und durch die Strömungsverhältnisse an der Einspeisestelle im Brennkammerhals
 bestimmt.

Die Ergebnisse sind in Tabelle 4.1 zusammengefaßt.

Diese Ergebnisse wurden bei optimalen Strömungsbedingungen an der Einspeisestelle im Brennkammerhals erzielt. Zur Optimierung der Strömungsverhältnisse wurde variiert:

- 1. Druck des Pulverfördergases
- 2. Querschnitt und Länge des Pulvereinspeiserohres
- 3. Geometrie des Brennkammerhalses
- Optimierung der Aerosolausbeute:
   (V 8, V 9, V 11, V 12, V 14, V 16, V 18, V 19, V 20, V 21, V 22, V 28, V 29, V 30, V 31).

Mit Eisenpulver (Metco 92 F) bzw. Sn (Ecka AS 51/001) als Einspeisematerialien wurden folgende Maximalkonzentrationen im Modellcontainment bestimmt:

Fe V 20 I,4 
$$g/m^3$$
 Ausbeute: 24 % Sn V 30 I2  $g/m^3$  Ausbeute: 82 %

Die Einspeiserate betrug bei V 20 23 g/min bei V 30 261 g/min (vgl. Tab.  $4\cdot ^2$ ). Die Korngrößenverteilung des erzeugten Eisenaerosols entsprach jedoch nicht den Anforderungen (bimodale Verteilung, Hauptanteil  $d_m = 5 \mu m$ ).

Feine Eisenoxidaerosole wurden durch die Verwendung von Stickstoff als Plasmaprimärgas erzielt. Allerdings war beim Betrieb der Plasmabrenner am Modellcontainment unter Gegendruckbedingungen eine maximale Elektrodenstandzeit von lediglich 15 min möglich (V 27).

Die Unterschiede in der maximal erzielbaren Ausbeute von Eisenoxid- bzw. Zinnoxidaerosol werden durch unterschiedliche Aerosolbildungsmechanismen verursacht:

Die Bildung von Metalloxidaerosolen in einer durch ein Edelgasplasma und eine Reaktionskammer mit Sauerstoffatmosphäre gekennzeichnete Anordnung erfolgt in den folgenden Schritten:

- Verflüssigung und Verdampfung des Metallpulvers in den heißesten Bereichen der Plasmafackel
  - Bildung eines bei den Temperaturen der Brennkammer flüchtigen Oxides durch eine exotherme Reaktion im Sauerstoffüberschuß
  - Ein schnelles Abkühlen (Quenchen) und Verdünnen der Gasphase zur Bildung von Kondensationsaerosolen (Vermeidung von Tröpfchenbildung aus Agglomeraten).

Dieser Mechanismus bedingt:

- die Existenz einer bei hoher Temperatur (T≈2000 K) stabilen Modifikation des flüchtigen Metalloxides des Einspeisematerials.
- Die Nichtexistenz von Reaktionen, die bei den gegebenen Temperaturen zur Bildung von flüssigen oder festen Reaktionsprodukten in erheblichem Ausmaß führen.

System  $Fe/O_2$ :

bei 
$$T = 1800 - 2000 \text{ K existierende Phasen:}$$
  $(\text{Fe})_{\text{fl}}$ ,  $(\text{Fe-Oxide})_{\text{fl}}$ ,  $(\text{Fe})_{\text{g}}$ ,  $O_2$ .

Unter diesen Bedingungen besteht die Gasphase aus Sauerstoff und Eisen. Es existiert kein Eisenoxid in der Gasphase (thermische Zersetzung).

System 
$$Sn/O_2$$
:  
bei  $T = 1800 - 2000$  K existierende Phasen:  $(Sn)_{fl}$ ,  $(SnO_2)_{fl}$ ,  $(SnO)_g$ ,  $(Sn)_g$ ,  $O_2$ .

In der Gasphase tritt bei den vorhandenen Bedingungen stabiles, durch Disproportionierung aus SnO<sub>2</sub> gebildetes Zinnmonoxid neben dampfförmigem Zinn und Sauerstoff auf.

Die Abschreckung der Gasphase am Ausgang der Reaktionskammer führt im Falle von Eisen zu geringen Mengen an Eisenoxidaerosol (geringe Eisenkonzentration). Im System Zinn/Sauerstoff zu Zinnoxidkondensationsaerosolen hoher Konzentration bedingt durch die hohe Konzentration an SnO in der Gasphase.

Der Unterschied in der Aerosolausbeute wird durch das unterschiedliche, chemische Verhalten der Materialien bei den Temperaturen der Brennkammer bedingt.

Eine Erhöhung der Aerosolausbeute im System  $\mathrm{Fe/O}_2$  ist nur durch eine Erhöhung der Fe-Konzentration in der Gasphase möglich z. B. durch die Verwendung einer flüchtigen, thermisch instabilen Eisenverbindung wie Eisenpentacarbonyl.

Es wurden Vorversuche mit Eisenpentacarbonyl durchgeführt (V 21) die diese Annahme bestätigten.

# 4.2 Aerosolerzeugung

In Tabelle 4.2 sind die generatorspezifischen, experimentellen Daten für die Vorversuche V 20, V 23 V 30 (B 2) und V 31 (B 3) zusammengestellt.

Ablauf V 20: Die Aerosoleinspeisung erfolgte in Einzelabschnitten. Brenner 2 lief während der gesamten Einspeisung. Parallelbetrieb von drei Brennern 12 min.

Ablauf V 23: Die Aerosoleinspeisung was diskontinuierlich (Revisionsphasen).

Ablauf V 30: Kontinuierlicher Betrieb von drei Aerosolgeneratoren. Nach 40 min Erhöhung der Einspeiserate. Der zeitliche Verlauf der Aerosoleinspeisung ist in Abb. 4.3 dargestellt. Ablauf V 31: Kontinuierliche Aerosoleinspeisung mit drei Generatoren. Das Ende der Aerosoleinspeisung wurde durch das Erreichen von 3 bar Gesamtdruck im Modellcontainment bestimmt. Der zeitliche Ablauf der Aerosoleinspeisung ist aus Abb. 4.3 ersichtlich.

Tab. 4.1 Ergebnisse der Standzeitoptimierungsversuche

Einspeisematerial	Mittlere Korngröße	Einspeiserate pro Brenner	Mittlere Standzeit
Eisencarbonylpulver (Fluka 44 890)	5 μm	30 g/min	5 min
Eisenpulver (Metco 92)	F) 50 - 100 μm	30 g/min	32 min
Zinn (Ecka AS 51/011)	50 - I50 μm	100 g/min	60 min

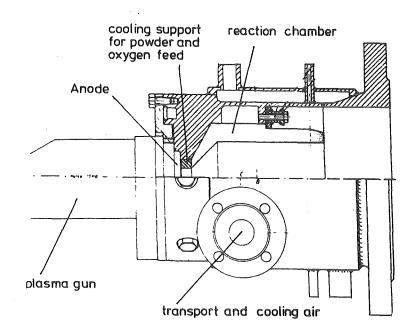
Tab. 4.2

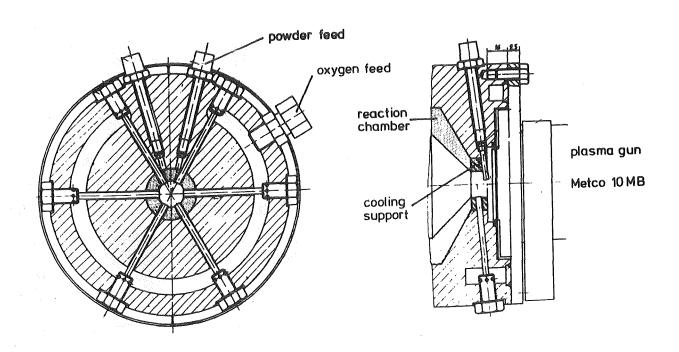
# Aerosol-Generator-Daten

	V 20	V 23	V 30 (B 2)	V 31 (B 3)	
Einspeisematerial	Fe (Metco 92 F)	Sn (ECKA AS 51)	Sn (ECKA AS 51/001)	Sn (ECKA ASS51/001)	
Einspeisezeiten/min	Brenner I 20 + 30 Brenner 2 77 Brenner 3 I2	30 + 9 4 25 + 5 + 12	67 60 62	46 39 40	
eingespeiste Masse/g	Brenner 1 782 Brenner 2 1819 Brenner 3 220		5900 4998 5583	3273 2663 2880	
Einspeiserate g/min	Summe/kg 2,82  Brenner I 24 Brenner 2 24 Brenner 3 18	n. best.	16,48 88* 83 90	8,82   32   32   32   33   33   33   33	
Ausbeute/%	24	<del>-</del>	82	-	

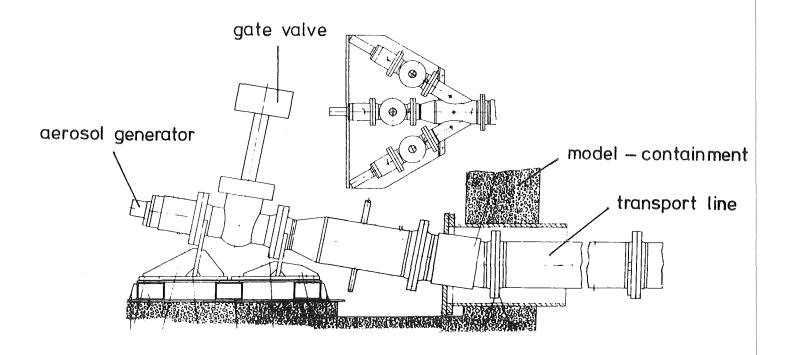
<sup>\*</sup> mittlere Förderrate, über die gesamte Betriebszeit gemittelt.

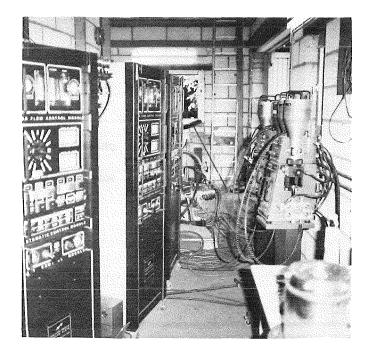












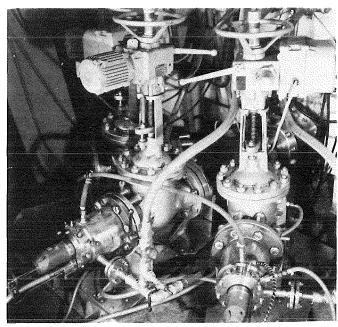
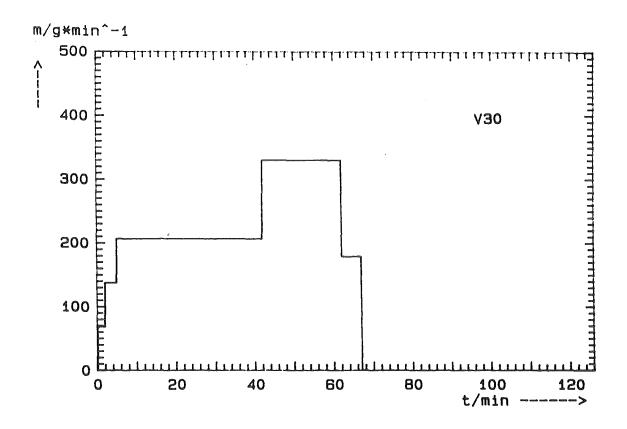


Abb. 4.2 DEMONA-Aerosolgenerator





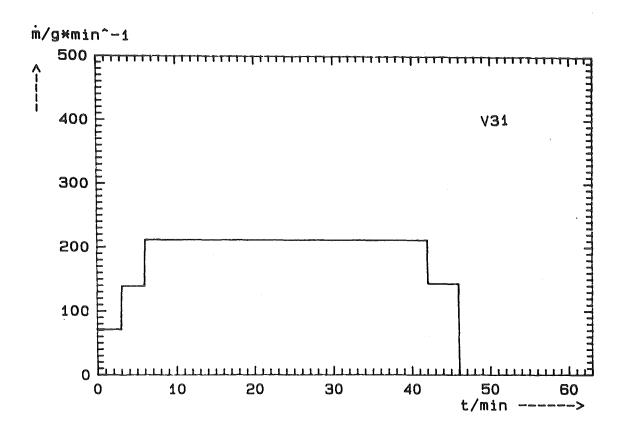


Abb. 4.3 Einspeiserate m als Funktion der Zeit bei V 30 und V 31

#### 5. AEROSOLMESSUNGEN

### 5.1.) Aerosolmesstechnik:

Während des Experimentes müssen Messungen unter erschwerten Einsatzbedingungen (Temperatur ca. 120 - 130°C, Druck ca. 3 bar) der folgenden Grössen durchgeführt werden:

- Massenkonzentration von festen (und flüssigen) Partikeln
- Grössenverteilung von festen (und flüssigen) Partikeln
- Räumliche Verteilung und zeitlicher Abbau.

Da die Messysteme während der Versuchsdauer nicht zugänglich sind und wegen der hohen Versuchskosten, müssen entweder möglichst verlässliche Messysteme zum Einsatz kommen, oder, sofern die nötige Zuverlässigkeit nicht gewährleistet werden kann, redundante Systeme verwendet werden.

Unter diesen Gesichtspunkten wurde ein Aerosolmessystem, bestehend aus den folgenden Komponenten, aufgebaut.

- Filterstationen (4 Stück), mit je 5 Filtern
- Fotometer (11 Stück)
- Andersen Mark II-Impaktoren (2 Stück)
- β-Absorptionsmessgerät FAG Typ FH62IT
- Automatic Particle Analyzer (APAC), California Measurements, gemeinsam mit Nebenkessel
- Kondensatmessstation: Je eine für jede Filterstation sowie 3 Wand- und 2 Bodenkondensatwaagen (Mettler) mit Luftmengenmessung (Hastings und Gaszähler)
- Hilfssysteme für Spül- und Steuerluftbereitstellung und Regelung
- elektrische Anlage zur Spannungsversorgung, Heizungsregelung und Ventilsteuerung
- Datenerfassung mit Analog- bzw. Digitalaufzeichnung

Die Verteilung der einzelnen Messysteme im Modellcontainment ist auf Abbildung 5.1.1. ersichtlich.

Hauptkomponenten des Systems sind 4 Filterstationen mit je 5 Filtern. Sie messen an 4 Stellen während 5 Zeitpunkten Aerosolmassenkonzentrationen. Die Filterboxen sind aus rostfreiem Stahl gefertigt und mit geregelter Heizung ausgestattet, um unerwünschte Kondensation sicher zu vermeiden. Jedes Filter ist zusätzlich mit einem Spülluftsystem

versehen, dessen Druck dem Containmentdruck um etwa 0.1-0.2 bar vorausfährt. Damit ist Sauberkeit des Messystems unter allen Containmentbetriebsbedingungen sichergestellt.

Das prinzipielle Schema einer Filtermessstrecke (ohne Spülluftsystem) ist auf Abbildung 5.1.2. gezeigt. Die durch das Filter gezogene Containmentatmosphäre wird über einen Kondensator, Seperator und eine Kondensatwaage sowie einen Gasdurchflussmesser erfasst. Auf Foto 5.1.1. ist eine geöffnete Filterstation gezeigt. Links im Foto sind die pneumatisch betätigten Einlassventile zu erkennen sowie die Frontplatte mit einem Filtergehäuse.

Als grössenklassierende Instrumente im Containment werden 3 "Inspec"-Impaktoren von Prodi, die speziell aus rostfreiem Stahl aufgebaut wurden, und in einer "Station" zusammengefasst sind sowie zwei Anderson Mark II-Impaktoren in einer weiteren Station eingesetzt. Der Betrieb der Inspec-Impaktoren erfordert einen geschlossenen Luftkreislauf, der über zusätzliche Einlass- bzw. Auslassventile Containmentatmosphäre den Inspec zuführt. Die Andersen-Impaktoren werden analog wie Filter betrieben. Das Kreislaufschema für beide Insrumente ist in Abbildung 5.1.3. dargestellt.

Fotometer mit einstellbaren Messdistanzen von 25 - 280 mm werden eingesetzt, um einerseits die räumliche Verteilung der Aerosolkonzentration im Containment zu verfolgen und andererseits den Plasmageneratorbetrieb zu verfolgen. Weiters zeigte sich, dass die Fotometer das Auftreten von Volumenkondensation im Containment gut anzeigen können. Eine Prinzipskizze eines Fotometers ist auf Abbildung 5.1.4. gezeigt. Auf Foto 5.1.2. ist ein komplettes Fotometermessystem abgebildet. Wesentliche Entwicklungsarbeit war hier erforderlich, um eine ausreichend stabile Analogsignalübertragung über Lichtleiter zu erreichen. Ein Spülluftsystem, dessen Druck etwa 0.1 bar über dem Containmentdruck geregelt ist, hält die optischen Oberflächen des Fotometers frei von Aerosolablagerungen.

Zur on-line Ueberwachung der Aerosolkonzentration wurde ein  $\beta$ -Absorptions-Staubmessgerät FH62IG von FAG Kugelfischer eingesetzt, das über eine offene und geheizte Verdünnungsstrecke betrieben wird, um den Messbereich des Gerätes genügend weit in den Bereich hoher Konzentrationen auszuweiten.

An einem Nebenkessel, der über ein Schleusensystem mit dem Containment verbunden ist, wird ein elektronischer Teilchengrössenanalysator (APAC) von California Measurements betrieben, der über eine Frequenzverschiebung von Schwingquarzen die in insgesamt 10 Kaskaden abgeschiedene Aerosolmasse misst.

Die folgenden Fotos vermitteln einen Eindruck über die Versuchsbedingungen bei den Versuchen V30 und V31. Fotos 5.1.3., 5.1.4. und 5.1.5. zeigen einen Blick in den zentralen Raum des Modellcontainments nach dem Versuch V30, die Filtersation II und das darunter mon-

tierte Fotometer III, sowie ein im oberen Kuppelraum plaziertes Fotometer. Zum Vergleich ist die analoge Situation für den Versuch V31 auf den Fotos 5.1.6., 5.1.7. und 5.1.8. gezeigt.

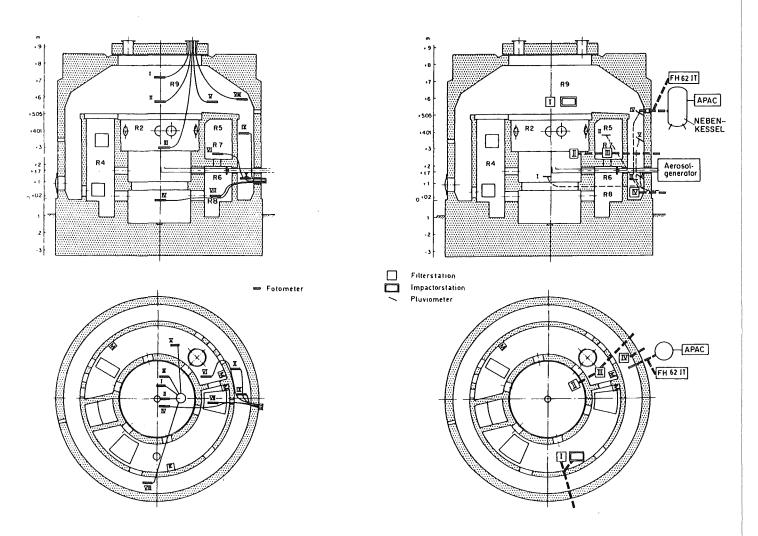


Abbildung 5.1.1: Im Modellcontainment installierte Messysteme: Fotometer, Filter, Impaktoren, Kondensatmessstellen,  $\beta$ -Absorptionsgerät (FH62IT), Elektronischer Kaskadenimpaktor CAPAC.

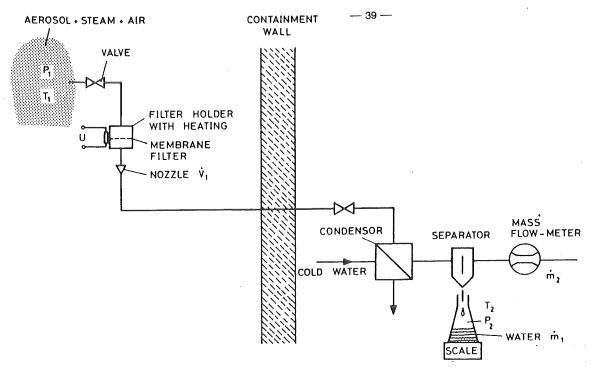


Abbildung 5.1.2: Prinzipschema einer Filtermessstrecke mit Heizung, Kondensator, Kondensat- und Luftdurchsatzmessung. Nicht gezeigt ist das ebenfalls vorhandene Spülluftsystem.

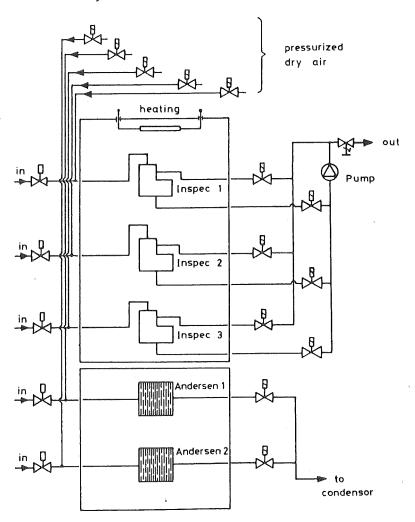


Abbildung 5.1.3: Kreislaufschema für Impaktoren.

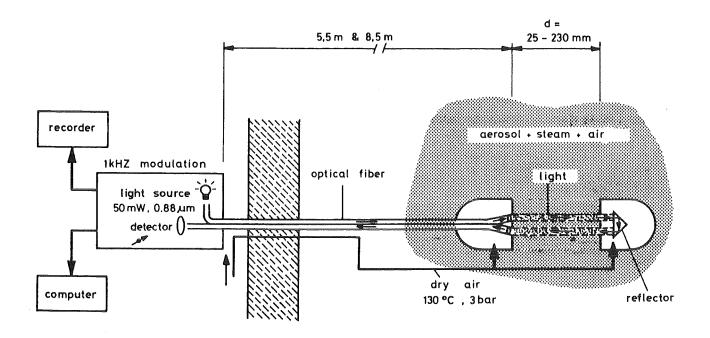


Abbildung 5.1.4: Prinzipieller Aufbau eines Fotometers.



Foto 5.1.1: Filterstation geöffnet. Links Frontplatte mit pneumatisch betätigten Einlassventilen und einem Filtergehäuse. Rechts Box mit weiteren vier Filtergehäusen.

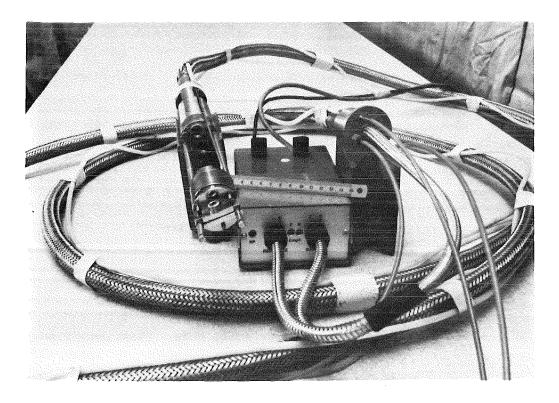


Foto 5.1.2: Fotometer: Messkopf, Lichtleiter, Sender-Empfangselekt-ronik und Zuführungsleitung für Spülluft.

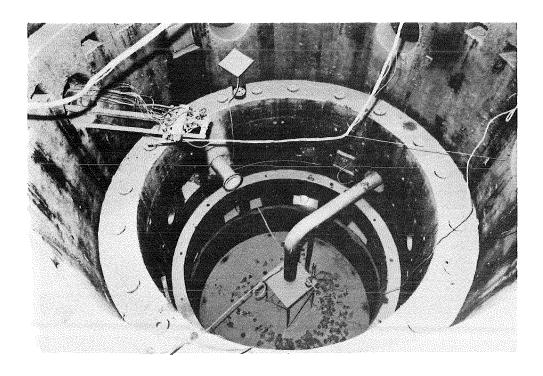


Foto 5.1.3: Blick in den zentralen Raum des Modellcontainments nach Versuch V30. Sichtbar ist die Filterstation II sowie Fotometer III sowie die darunter liegende Aerosoleinspeisung. Ebenso deutlich erkennbar Aerosolablagerung.

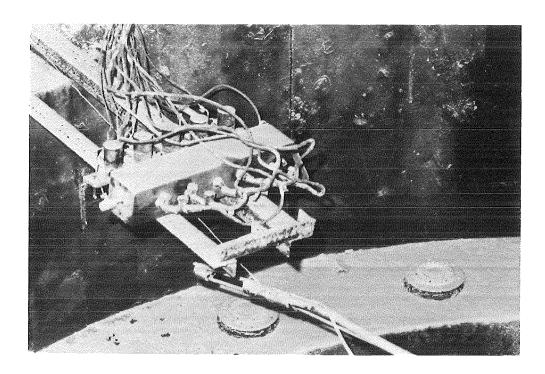


Foto 5.1.4: Nahaufnahme der Filterstation II und Fotometer II nach Versuch V30.

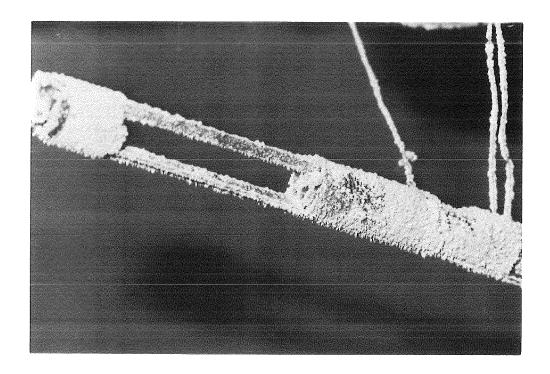


Foto 5.1.5: Fotometer im Kuppelraum nach Versuch V30. Das optische System ist trotz starker Aerosolablagerung am Fotometer funktionsfähig.

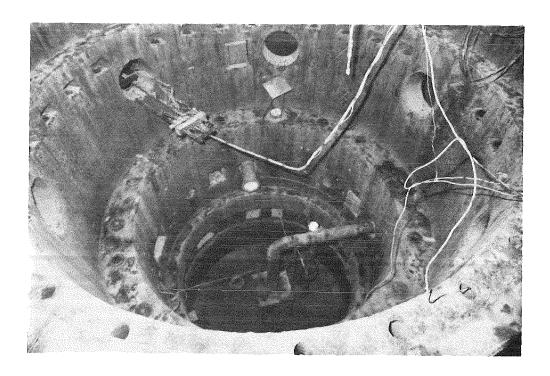


Foto 5.1.6: Zentraler Raum des Modellcontainments nach Versuch V31.

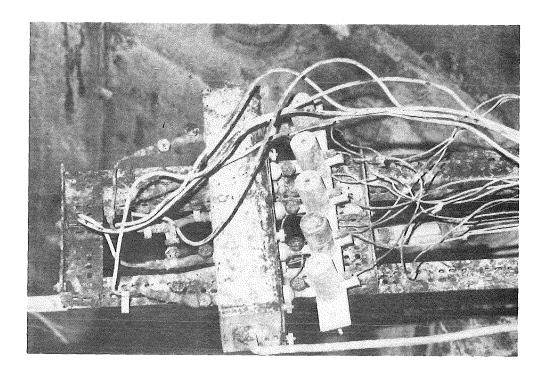


Foto 5.1.7: Nahaufnahme der Filterstation II und Fotometer III (rechts unterhalb der Ventile teilweise sichtbar) nach Versuch V31.

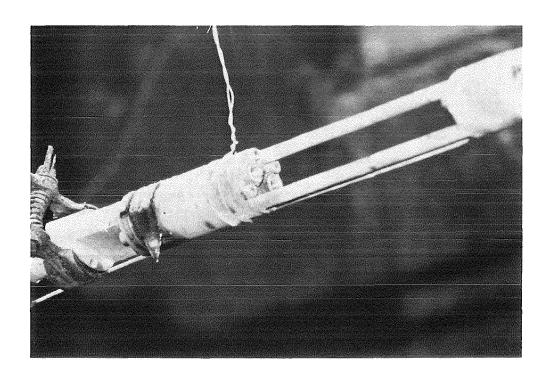


Foto 5.1.8: Fotometer im Kuppelraum nach Versuch V31. Obwohl die Ablagerungen weniger eindrücklich aussehen als im Foto 5.1.4, sind die Einsatzbedingungen (Druck, Temperatur) bei V31 wesentlich härter als bei V30. Trotz erkennbarer Korrosion an Fotometerteilen ist das optische System voll einsatzfähig.

## 5.2.) Messergebnisse:

### 5.2.1. Elektronenmikroskopische Auswertungen

Abbildung 5.2.1. und 5.2.2. zeigen Aerosolaufnahme kurz nach Brennerschluss und ca. 14 Stunden nach Brennerschluss für V19. Deutlich erkennbar ist der Aufbau der Teilchen aus Primärpartikel mit Durchmesser ca. 0.1 -0.2  $\mu$ .

Für Versuch V20 sind auf Abbildung 5.2.3. und 5.2.4. Aerosole kurz nach Brennerschluss und ca. 22 h später gezeigt. Die Aufnahme oben links zeigt nicht näher identifizierbare Partikel, die vereinzelt gefunden wurden und vermutlich aus der Oxidationskammerwand (MgO) des Plasmabrenners stammen. Die weiteren Aufnahmen zeigen fast regelmässig kugelförmige Form der Partikel, was auf hohe Luftfeuchte im Containment während des Versuches hinweist.

Abbildungen 5.2.5. und 5.2.6 zeigen die amoebenartige Struktur der aus trockener Containmentatmosphäre auf die Filter deponierten  $snO_2$ -Aerosole bei Versuch V30, jeweils ca. 30 h und 36 h nach Brennerschluss. Aufbau der Aerosolketten aus Primärpartikel von ca. 0.2 -0.3  $\mu$  Durchmesser.

Abbildung 5.2.7. und 5.2.8 zeigen Aerosole, die bei V31 aus kondensierender Atmosphäre auf die Filter deponiert wurden. Primärpartikeldarchmeser ist wie bei V30 ca. 0.2 – 0.3  $\mu$ , die Partikel praktisch kugelförmig.

#### 5.2.2. Teilchengrössenspektra:

Aerosolmassenverteilung für Versuch V19 ca. 1 Stunde nach Brennerschluss ist auf Abbildung 5.2.9. gezeigt. Die Verteilung weist 2 Maxima auf, eines für Partikel 1 und eines für Partikel zwischen 2 und 4 –5  $\mu$ , was auf einen relativ grossen Grobanteil des Aerosols hinweist.

Durch Auszählung der Filterbelegung (Filter 3.4 und Filter 3.5) gewonnene Teilchenspektren sind auf den Abilldungen 5.2.10 und 5.2.11 für Versuch V30 und 30 bzw. 36 Stunden nach Brennerschluss gezeigt. Maximale Teilchenpopulation ist in den Durchmesserklassen von 0.2 bis  $1.0~\mu$  vorhanden. (Die Auszählung von Filterproben hat sich als notwendig erwiesen, da die im Containment installierten Impaktoren sowohl bei V30 als auch V31 keine auswertbaren Resultate ergeben haben.)

Abbildung 5.2.12 zeigt Teilchengrössenverteilung für V31 (Filter 1.4) ca. 2.5 Stunden nach Brennerschluss mit maximaler Teilchenpopulation in der Grössenklasse von 0.8 -1.6  $\mu$ .

#### 5.2.3. Fotometersignale:

Bei den Versuchen V30 und V31 wurden erstmals genügend hohe Aerosolkonzentrationen erreicht, um eine praktisch volle Aussteuerung der Fotometermessbereiche zu bewirken. Stellvertretend für die jeweils acht die Versuche überlebenden (von insgesamt 10 eingesetzten) Fotometer sind auf Abbildung 5.2.13 die Signale von Fotometer VI für V30 und Fotometer II und X für V31 gezeigt.

Bei V30 ist deutlich der Effekt der Erhöhung der Pulverzuführungsrate (Aerosolerzeugungsrate) zu erkennen. Eine quantitative Interpretation des Signales hinsichtlich des zeitlichen Verlaufes der Aerosolkonzentration ist jedoch nicht ohne weiteres möglich, da die Fotometerextinktion sowohl von der Partikelkonzentration als auch von der Partikelgrösse abhängt und beide Parameter in der Anfangsphase des Versuches rasch variieren können.

Die Fotometersignale bei Versuch V31 zeigen verzögertes Ansprechen von Fotometer 2 (Verzögerungszeit ca. 15 Minuten), was qualitiativ mit dem visuell beobachteten Ausbreiteverhalten der Aerosolschwaden kurz nach Brennerstart übereinstimmt. Im weiteren Verlauf ist das Einsetzen von Volumenkondensation ca. 20 Minuten nach Brennerschluss zu erkennen.

#### 5.2.4. Aerosolabbau- und Kondensatmessung:

Der gemessene Aerosolabbau für die Versuche V19 und V20 ist auf der Abbildung 5.2.14 gezeigt. Die Filtermessungen an der oberen und unteren Schleuse wurden von KfK/LAF I durchgeführt, die anderen Messpunkte stammen vom EIR. Generell ist eine gute Uebereinstimmung der Messresultate der beiden Institute festzustellen. Abweichende Messresultate sind beim APAC festzustellen, die auf den Betrieb über den Hilfskessel zurückzuführen sind sowie bei V20 für das  $\beta$ -Absorptionsmessgerät, dessen Düse in der ersten Versuchsphase teilweise blockiert war.

Auf Abbildung 5.2.15 sind die Messresultate der Versuche V30 und V31 gegenübergestellt und gleichzeitig mit den Vorausrechnungen verglichen. Während sich bei V30 eine gute Uebereinstimmung zeigt, streuen die Messresultate bei V31 relativ stark, was insbesondere auf die bereits erwähnten Schwierigkeiten mit den den Filtereinlass steuernden Quetschventilen zurückzuführen ist. Die dadurch betroffenen Messungen sind mit einenm Fragezeichen markiert.

Während des Versuches V31 wurde der Kondensatmassenstrom an der Containmentaussenwand (Position ca. 200 ° links vom Mannloch) auf drei unmittelbar übereinanderliegenden Messflächen von je 1 m² Flächeninhalt bestimmt. Die Resultate sind auf Abbildung 5.2.16 wiedergegeben und zeigen eine starke Höhenabhängigkeit des Kondensatmassenstroms, sowie die erwartete stetige Abnahme während der Aufheizphase, das Zu-

sammenbrechen des Kondesnatmassenstroms während der Aerosoleinspeisung (28.11., ca. 15 h) und ein nachfolgendes Wiederansteigen, das zeitlich konsistent mit dem auf den Fotometersignalen erkennbaren Einsetzen von Volumenkondensation ist.

Abbildung 5.2.1: Versuch V19, Fe $_2$ O $_3$ -Aerosole ca. 1 h nach Brennerschluss auf Filter 3.1. Primärpartikel erkennbar auf dem rechten Foto mit Durchmesser ca. 0.1 - 0.2  $\mu m$ .

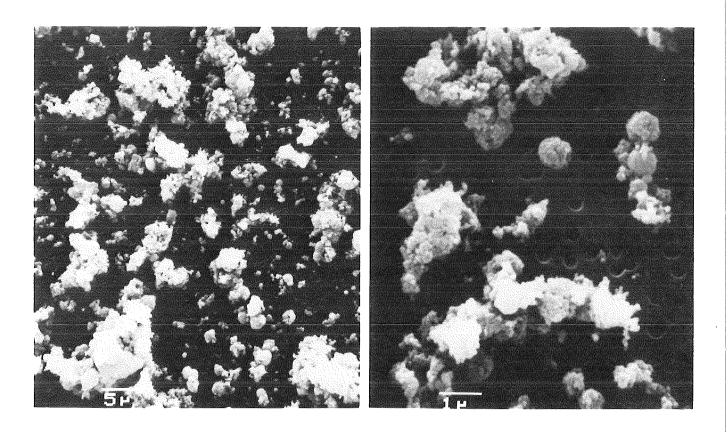


Abbildung 5.2.2: Versuch V19,  $Fe_2O_3$  Aerosole ca. 14 h nach Brennerschluss auf Filter 3.5.

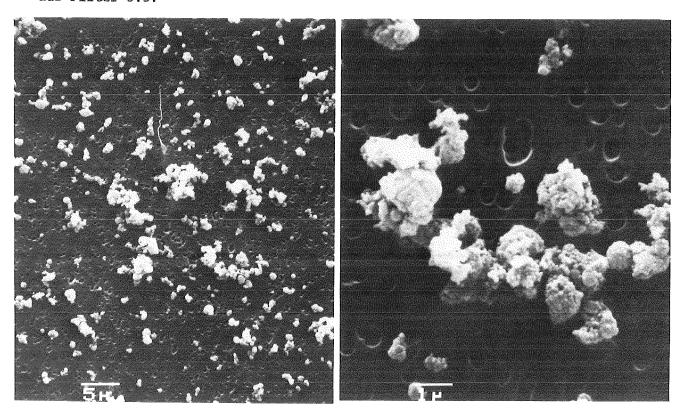


Abbildung 5.2.3: Versuch V20, Fe $_2$ O $_3$ -Aerosole ca. 20 Min. nach Brennerschluss auf Filter 3.1.

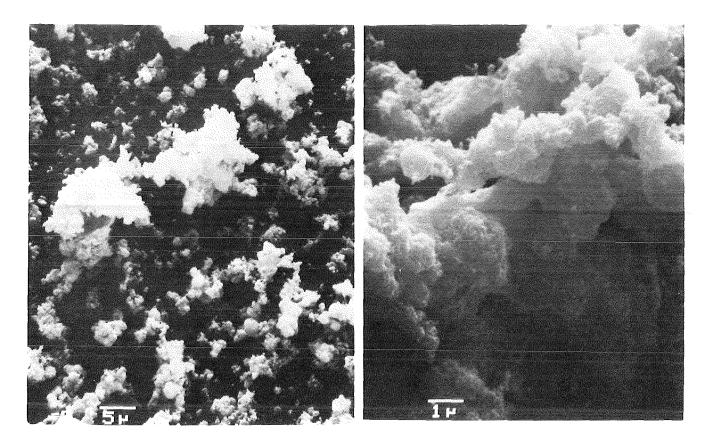


Abbildung 5.2.4: Versuch V20, Fe $_2$ O $_3$ -Aerosole ca. 22 h nach Brennerschluss auf Filter 3.5.

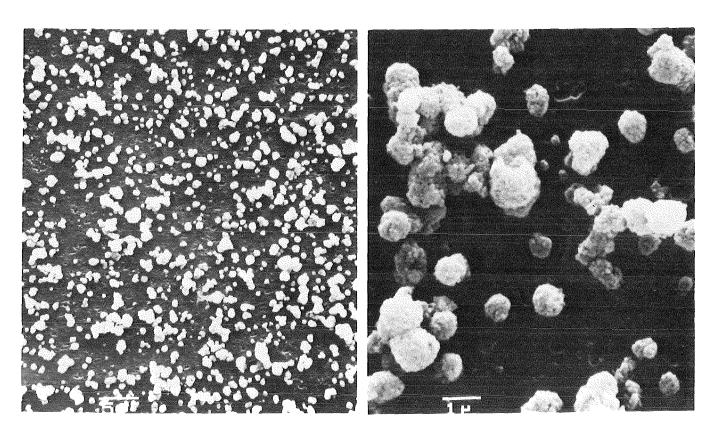


Abbildung 5.2.5: Versuch V30,  $SnO_2$ -Aerosole ca. 3 h nach Brennerschluss auf Filter 4.2.

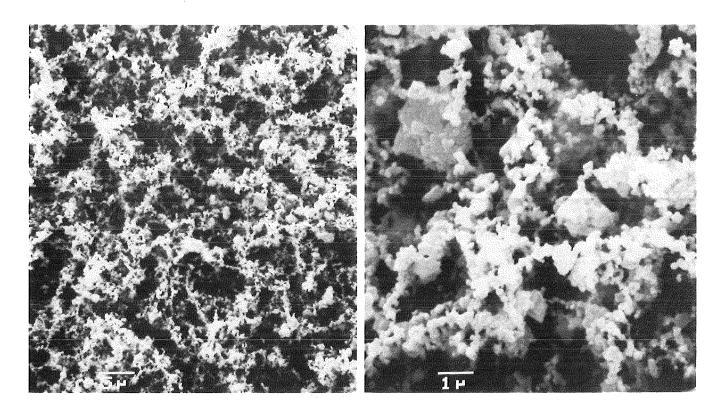
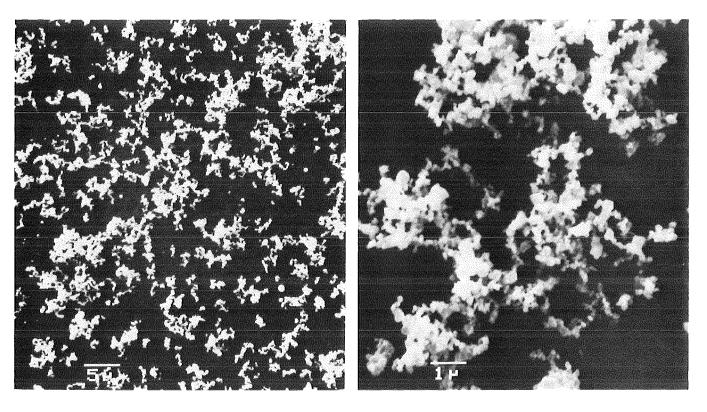


Abbildung 5.2.6: Versuch V30, SnO<sub>2</sub>-Aerosole ca, 36 h nach Brenner-schluss auf Filter 3.5.



<u>Abbildung 5.2.7:</u> Versuch V31,  $SnO_2$ -Aerosole ca. 15 Min.nach Brennerschluss auf Filter 4.1.

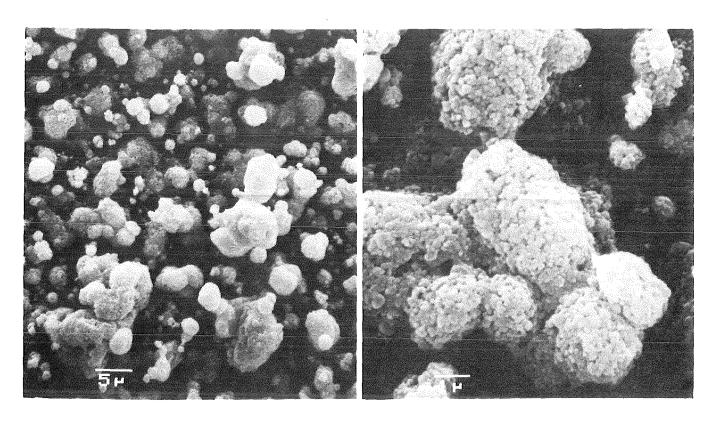
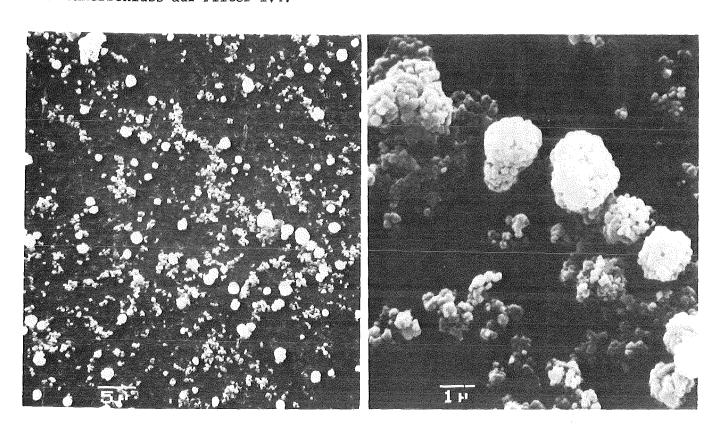


Abbildung 5.2.8: Versuch V31,  $SnO_2$ -Aerosole ca. 2 h 30 Min. nach Brennerschluss auf Filter 1.4.



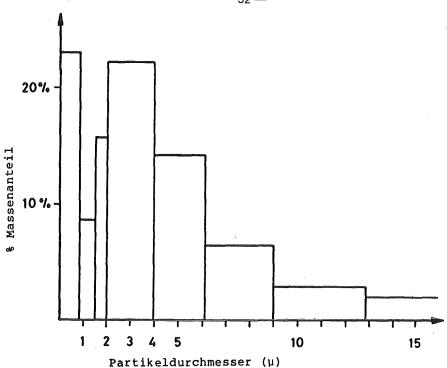


Abbildung 5.2.9; Aerosolmassenverteilung für Versuch V19 ca. 1 h nach Brennerschluss. Aerosolkonzentration ca. 0.3 g/m³. Mittlerer Partikeldurchmesser (aed) ca. 2.4  $\mu$ . Verteilung zeigt zwei Maxima; Für Partikel < 1  $\mu$  und Partikel zwischen 2  $\mu$  und 4 - 5  $\mu$ .

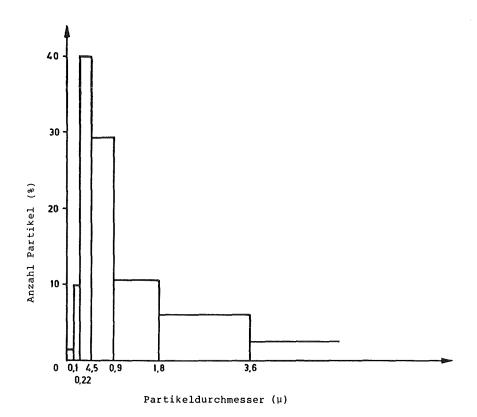


Abbildung 5.2.10: Versuch V30, Partikelgrössenverteilung für Filter 3.4, ca. 30 h nach Brennerschluss, Die Verteilung wurde durch Auszählung bestimmt, Da sich die Aerosolpartikel als amoebenartige Gebilde mit grossen Formfaktoren präsentieren, wurde der Teilchendurchmesser als Quadratwurzel aus der auf das Filter projizierten Teilchenfläche definiert.

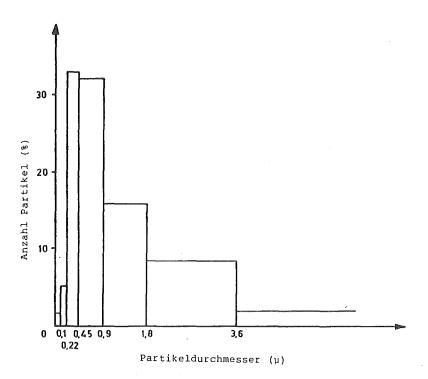


Abbildung 5.2.11: Versuch V30, Partikelgrössenverteilung für Filter 3.5, ca. 36 h nach Brennerschluss.

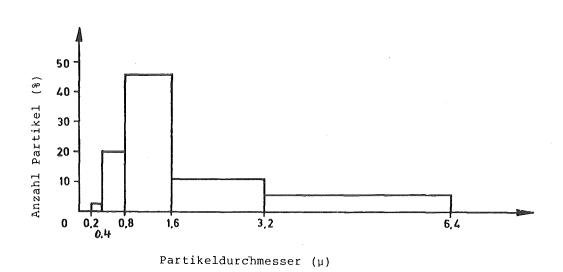
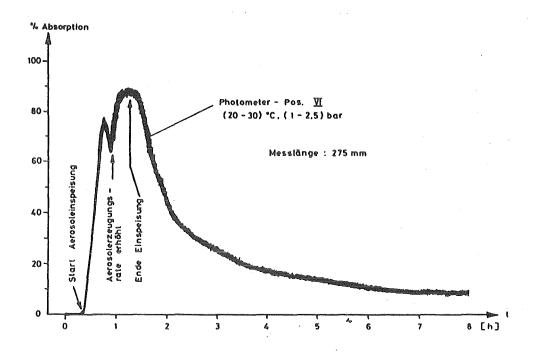


Abbildung 5.2.12: Versuch V31, Partikelgrössenverteilung ca. 2.5 h nach Brennerschluss. Auszählung von Filter 1.4. Umrechnung auf Massenanteile unter Annahme einer von der Partikelgrösse unabhängigen mittleren Dichte.



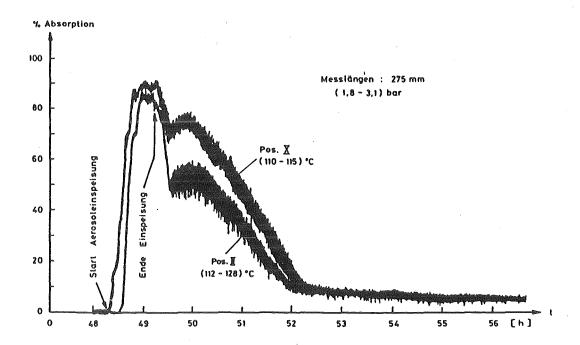
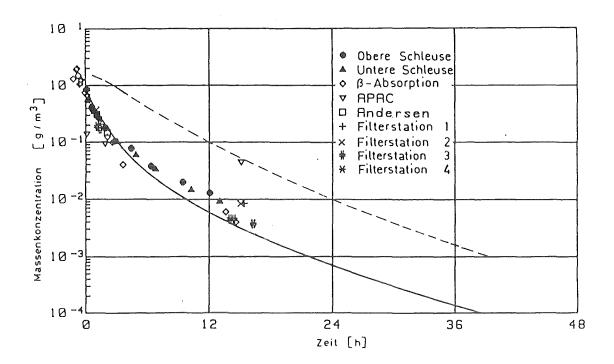


Abbildung 5.2.13: Fotometersignale beim Trockenversuch V30 (oben) und Nassversuch V31 (unten). Deutlich ist die Betriebsweise der Aerosolgeneratoren erkennbar, bei V31 zusätzlich der Effekt von Volumenkondensation während der Aerosolabbauphase. Weiter ist verzögertes Ansprechen von Fotometer II nach Aerosoleinspeisung ersichtlich,



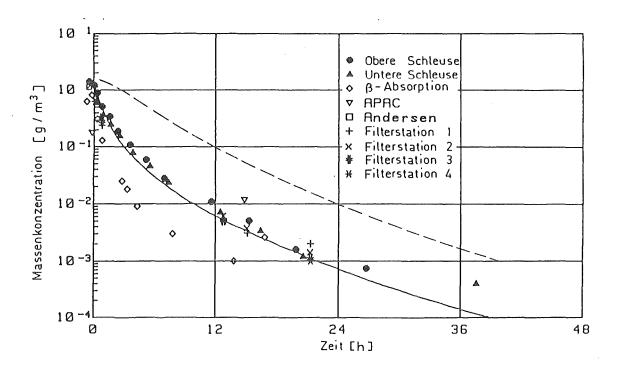


Abbildung 5.2.14: Versuchsergebnisse der Tests V19 (oben) und V20 (unten). V19 erreichte eine maximale Massenkonzentration nach Brennerschluss von 0.8 g/m³, V20 erreichte 1.2 g/m³. Gestrichelt ist die NAUA-Vorausrechnung unter Annahme von Kondensationsaerosol mit Primärpartikeldurchmesser ca. 0.2  $\mu$ . Ausgezogen ist die beste NAUA-Nachrechnung mit bimodaler Primärpartikelverteilung.

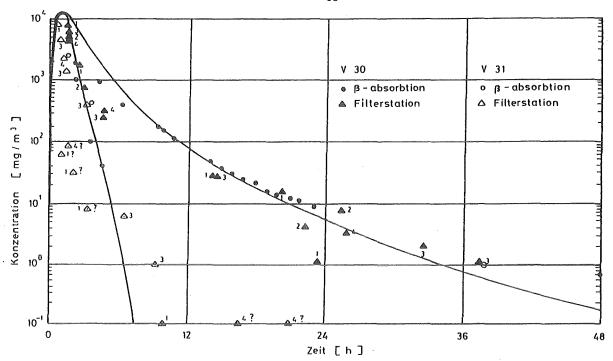


Abbildung 5.2.15: Aerosolabbau bei Versuch V30 ("Trockenversuch") und V31 ("Nassversuch") mit  $SnO_2$  als Aerosol. Maximal erreichte Aerosolkonzentration war bei V30 ca.12 g/m³ und bei V31 ca. 8 g/m³. Die starke Streuung der Messresultate bei V31 ist durch die messtechnischen Schwierigkeiten bei den herrschenden extremen Einsatzbedingungen verursacht.

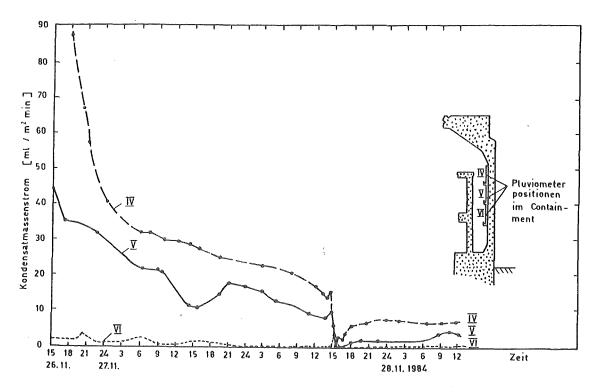


Abbildung 5.2.16: Kondensationsratenmessung an der Containmentaussenwand (Position ca.  $200^{\circ}$  links vom Mannloch) während des Versuchs V31. Containment-Aufheizphase ist bis ca. 14 h 30 am 28.11., danach Aerosoleinspeisung.

# 5.3 Sonderinstrumentierung KfK/LAF

Von KfK/LAF I wurden die Generatorfotometer, das Laserfotometer und die Tröpfchenkalorimeter betrieben.

Die Generatorfotometer zur Überwachung der Funktion der drei Aerosolgeneratoreinheiten erwiesen sich als nützlich in der Erprobungszeit, sollen aber in Zukunft nicht mehr eingesetzt werden. Das Laserfotometer mit seinen beiden optischen Weglängen von 2 und 20 m im Modellcontainment erwies sich als wertvoll
zur on-line-Kontrolle der Aerosolkonzentration in späteren Phasen der Experimente, wenn die Infrarotfotometer des EIR mit maximal 0,3 m optischer Weglänge
nicht mehr anzeigen.

Erstmals eingesetzt wurden beim Versuch V 31 die Kalorimeter zur Messung der Tröpfchenmassenkonzentration. Mit ihnen wird direkt und unabhängig von der Konzentration fester Aerosolpartikeln der Flüssigwassergehalt der Atmosphäre gemessen. Bis auf geringe Isolationsprobleme arbeiteten die Kalorimeter einwandfrei.

Es wurden zwei Kalorimeter im Modellcontainment montiert, das erste im Kuppelraum R9 in 5,4 m Höhe und das zweite im Raum R6 in 0,3 m Höhe (Höhenangaben für
Eintrittsöffnung). Die Abbildungen 5.3.1 und 5.3.2 zeigen die Meßergebnisse
über die Versuchsdauer von 5 Tagen. Dazu ist zu bemerken, daß bei diesem ersten
Versuch noch sehr viele Optimierungsversuche stattfanden, auch vor dem
Hintergrund der Tatsache, daß über die zu erwartende Tröpfchenkonzentration
Unklarheit bestand. Der unruhige Verlauf der Messungen sei dadurch erklärt.

In den Abbildungen sind die ausgerechneten Tröpfchenkonzentrationen gezeigt. Berücksichtigt man die durch Verstellen der Heizleistungen und Volumenströme ausgelösten Transienten, so bleiben letztlich die schraffierten Bereiche als belastbare Meßergebnisse übrig.

Generell ist zu erkennen, daß (erwartungsgemäß) die Tröpfchenkonzentrationen in R6 immer geringer sind als in R9. Im einzelnen kann man folgende Ereignisse im Verlauf identifizieren:

- Nach dem Einschalten der Dampfzufuhr am ersten Tag zeigt das Kalorimeter 1 Tröpfchenkonzentrationen im Bereich von  $1...2 \text{ g/m}^3$ .
- Am dritten Tag um 14 Uhr wurde das Aerosol eingespeist, außerdem wurden die Arbeitspunkte verstellt. Ab ca. 16 Uhr sind die Transienten abgeklungen. Das Kalorimeter 1 zeigt nun Tröpfchenkonzentrationen von 3...4 g/m³, das Kalorimeter 2 nach einem Anfangspeak stark abfallende Werte.
- Am vierten Tag ab 6 Uhr traten auf den Temperaturmeßleitungen Störungen auf. Ab 15 Uhr war das Experiment beendet, die weiteren Werte sind nicht mehr von Bedeutung.

Insgesamt bleibt festzustellen, daß im wesentlichen nur das Kalorimeter 1 Nebel gemessen hat. An dem entlegenen Meßort des Kalorimeters 2 trat Nebel nur kurz nach der Aerosoleinspeisung auf. Die gemessenen Tröpfchenkonzentrationen lagen wesentlich unterhalb der spezifizierten Obergrenze des Meßbereiches (100 g/m³) der Kalorimeter. Interessant ist ferner, daß die Tröpfchenkonzentration am Kalorimeter 1 am 3. und 4. Tag, nach der Aerosoleinspeisung, unabhängig von der starken Abnahme des festen Aerosols, ca. 20 Stunden lang ungefähr konstant blieb. Es hatte sich offenbar ein thermodynamisch stationärer Zustand ausgebildet, der von der Konzentration der festen Aerosolpartikeln nicht merklich abhing.

Die Demontage und Inspektion der Kalorimeter nach dem Versuch (am 10. Tag nach Versuchsbeginn) zeigte erhebliche Aerosolablagerungen im Gerät, sowie Korrosion an allen Teilen.

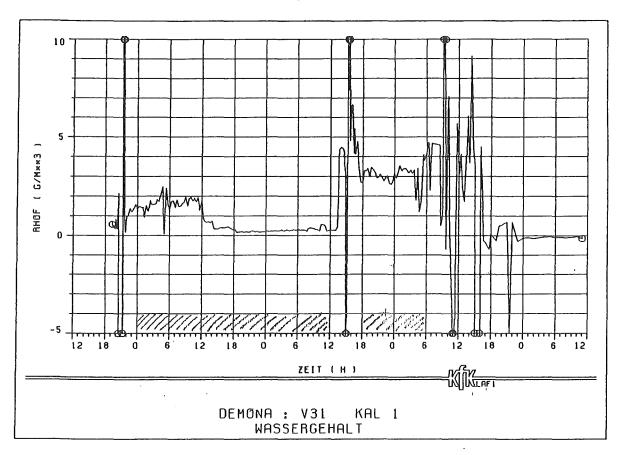


Abb. 5.3.1: Tröpfchenkonzentration bei V 31, Kalorimeter 1 in Raum R9

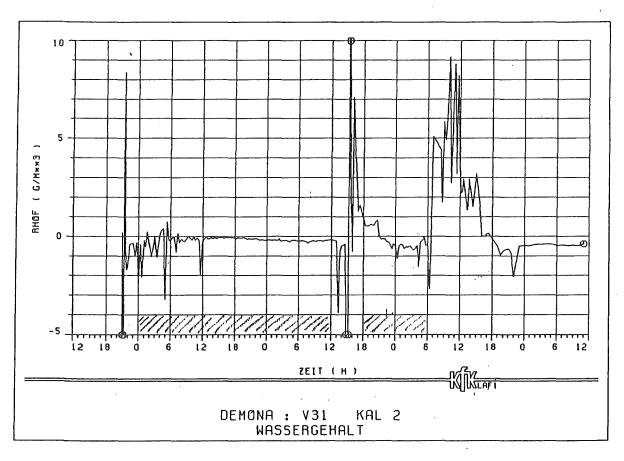


Abb. 5.3.2: Tröpfchenkonzentration bei V 31, Kalorimeter 2 in Raum R6

### 6. Modelltheorie

### 6.1 Thermodynamische Rechnungen (KWU)

Die Ablagerung luftgetragener Aerosole ist bekanntermaßen stark vom Zustand der Containmentatmosphäre (Temperatur, Feuchte, Kondensationsrate) abhängig. Die Simulation dieses Verhaltens mit Hilfe des Programms NAUA erfordert deshalb die Vorausberechnung des Zeitverlaufs der thermodynamischen Zustandsgrößen. Hierfür stehen im Rahmen des DEMONA-Projektes von Seiten der KWU die Codes COCMEL (Ein-Raum) und WAVCO (Mehr-Raum) zur Verfügung. Wegen der annähernd homogen angenommenen Verteilung des Aerosols im Gesamtvolumen wurde eine Ein-Zonen-Abbildung (COCMEL) angestrebt. Für den Fall möglicherweise zu beobachtender Inhomogenitäten der Aerosolverteilung könnte auf eine Kopplung zwischen WAVCO und NAUA zurückgegriffen werden. Solche Inhomogenitäten sind bisher jedoch nicht beobachtet worden.

### 6.1.1 Kurzbeschreibung des Programmes COCMEL

Der KWU-Code COCMEL wurde für die Berechnung der thermodynamischen Zustände im Sicherheitsbehälter bei hypothetischen Störfällen entwickelt und basiert auf einem universell anwendbaren Ein-Raum-Thermodynamik-Modell mit separater Behandlung des Gas- und Sumpfraumes. Der zeitliche Verlauf der Zustandsgrößen für diese beiden Teilbereiche ergibt sich durch Lösen der entsprechenden Massen-, Stoff- und Energiebilanzen. Es wird sowohl die Kopplung zwischen Gas- und Wasserphase als auch der Wärmeaustausch mit Wänden sowie eine etwaige Massen- und Energiezufuhr berücksichtigt. Die Berechnung der Wasser/Dampf-Zustände in der Atmosphäre und im Sumpf erfolgt nach realer Zustandsgleichung, wodurch alle möglichen Kombinationen von überhitzten, gesättigten und unterkühlten Zuständen möglich sind. Zur numerischen Lösung des Gleichungssystems wird ein explizites Rechenverfahren verwendet.

Für die spezifischen Anforderungen des DEMONA-Versuchsablaufs wurde das COCMEL um einige Modelle erweitert, die vor allem eine realistische Aufteilung des in der Atmosphäre gebildeten Wassers in einem luftgetragenen bzw. an den Wänden kondensierten Anteil beinhalten.

# 6.1.2 Modellierung von Geometrie und Versuchsablauf

Aufgrund der Tatsache, daß im COCMEL der Gas- und Sumpfraum als in sich homogen betrachtet werden, erfordert die Abbildung der komplizierten Strukturen des Versuchscontainments vereinfachende Annahmen. Diese betreffen insbesondere Anzahl und Lage der Wände sowie Anordnung und Position des Sumpfbereiches. In Abbildung 6.1.1 ist schematisch das für die COCMEL-Rechnung verwendete Modell des Battelle-Containments dargestellt. Die Daten der Wandflächen entsprechen den in /\* / angegebenen Werten, lediglich die mit Sumpf bedeckte Bodenfläche wurde mit 100 m² etwa doppelt so groß gewählt wie angegeben, um zum einen die größere Kontaktfläche der Wasserphase mit den Wänden durch den Wasserfilm an Strukturen und Außenwänden pauschal zu erfassen, zum anderen, um die bei Langzeitprozessen wichtige Kühlkapazität auch des direkt unter den Einbauwänden befindlichen Betonbodens (ca. 75 m²) nicht zu vernachlässigen.

Sämtliche bisher durchgeführten DEMONA-Experimente lassen sich vom thermodynamischen Standpunkt in vier aufeinanderfolgende Phasen aufteilen. Dementsprechend wurde die durchzuführende COCMEL-Rechnung ebenfalls in vier Abschnitte aufgeteilt, wobei die Kopplung zwischen diesen über den Austausch von RESTART-Daten erfolgte.

- Phase A (Ausblasen der Luft, Druckerhöhung auf 1,7 bar)
- Phase B (Aufheizen der Strukturen);

  Durch Regelung der Dampfeinspeisung wird ein konstanter Druck von

  1,7 bar eingestellt. Die hierzu erforderliche Dampfzufuhr nimmt mit zunehmender Aufheizung der Strukturen von anfänglich 0,4 kg/s auf 0,05 kg/s
  ab. Nach Ende der Phase B sind für den Erhalt des quasistationären Zustandes ca. 110 kW an Dampfleistung erforderlich.
- Phase C (Aerosoleinspeisung);
  Mit Hilfe eines über die Generatoren geleiteten Trägergasstromes von ca.
  0,2 kg/s wird das Aerosol in das Containment eingebracht. Die Eintrittstemperatur des Gemisches hängt hierbei neben der thermischen Generatorleistung auch von den zeitabhängigen Verlusten im Zuleitungsrohr ab.
- Phase D (Aerosolabbau);
  In dieser eigentlichen Meßphase ist zur Kompensation der Verluste weiterhin eine kontinuierliche Dampfzufuhr erforderlich, wodurch mit dem
  Dampf-Partialdruck, wegen des gesättigten Atmosphärenzustandes, auch die
  mittlere Temperatur ansteigt.

### \* T. Kanzleiter

Auslegung der Demona-Versuchsanlage Abschlußbericht BIeV-R-65.413-1, Battelle Institut e.V., 1983

### 6.1.3 Ergebnis der Versuchsnachrechnungen

### Versuch A1 (Leckagetest)

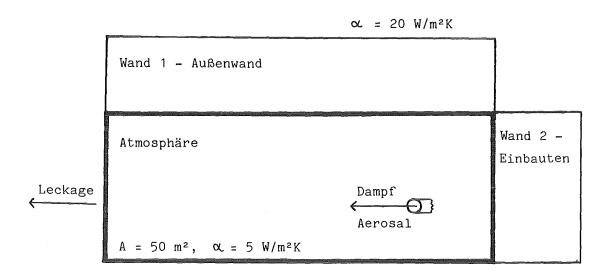
Die bei der Nachrechnung erhaltenen Resultate zeigten eine insgesamt gute Übereinstimmung mit dem Versuchsablauf (Abbildung 6.1.2, 6.1.3). Die im Containment beobachteten Schichtungseffekte können vom COCMEL wegen der Ein-Raum-Betrachtung nicht abgebildet werden. Die Rechenergebnisse (Temperatur, Feuchte) entsprechen dem in 4 m Höhe gemessenen Zustand. Die zeitabhängig zur Druckregelung eingespeiste Dampfrate ist ein Maß für die Verluste durch Leckage und Kondensation. Deren Vergleich mit den errechneten Werten (Abbildung 6.1.4) zeigt eine insgesamt gute Übereinstimmung. Das COCMEL liefert somit trotz beobachteter Inhomogenitäten eine hinreichend genaue Abbildung der thermodynamischen Vorgänge im Containment in Form von räumlichen Mittelwerten.

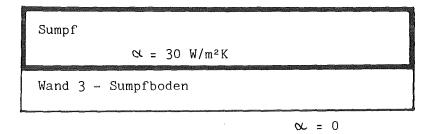
#### Versuch B3 (Naßversuch)

Für den Versuch B3 wurde zur Festlegung der Fahrweise im Hinblick auf das Vermeiden einer thermischen Überlastung der Meßgeräte, eine COCMEL-Vorausrechnung durchgeführt. Die zugrunde gelegten Annahmen waren bewußt konservativ gehalten und wichen zudem in einigen Punkten von der späteren Versuchsführung ab. Daraus lassen sich die während der Aerosoleinspeisung vorhergesagten zu hohen Temperaturwerte jedoch nur teilweise erklären. Die Ergebnisse zeigen vielmehr, daß das bisher benutzte Wärmeübergangsmodell für die mit turbulenter Konvektion einhergehende Einspeisephase deutlich zu niedrige Werte liefert. Eine in diesem Punkt modifizierte Nachrechnung ergab eine bessere Übereinstimmung mit dem Experiment (Abbildungen 6.1.5, 6.1.6). Die in diesem Versuch erstmals gemessenen Wärmeübergangszahlen deuten auf die Anwendbarkeit der empirischen Uchida-Relation hin. Da diese auch im COCMEL optional zur Verfügung steht, kann bei zukünftigen Nachrechnungen mit realistischeren Werten operiert werden.

# 6.1.4 <u>Fazit</u>

Im Hinblick auf die aus dem Demonstrationscharakter des DEMONA-Programms folgende Akzeptanz auch vereinfachender Modellbeschreibungen läßt sich feststellen, daß der COCMEL-Code für die Gewinnung der thermodynamischen Ausgangsdaten für das NAUA derzeit als ausreichend genaues Werkzeug angesehen werden kann.





# Aufbau der Wände

Wand-Nr.	Fläche	Dicke			
1	300 m²	0,5 m	)	λ	= 2 W/mK
2	650 m²	0,2 m	}	3	$= 2400 \text{ kg/m}^3$
3	100 m²	2,5 m	J	ср	= 880 J/kgK

# Abb. 6.1.1

Modellierung der geometrischen Struktur des Battelle-Containments für die Rechnung mit dem Ein-Raum Code COCMEL



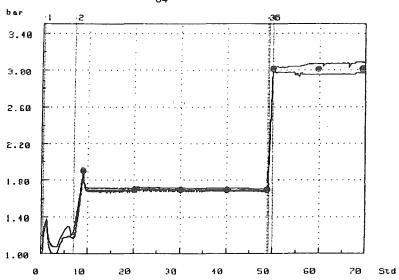


Abb. 6.1.3

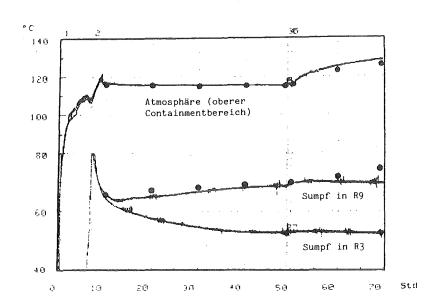
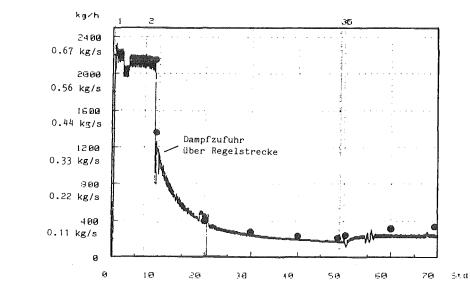
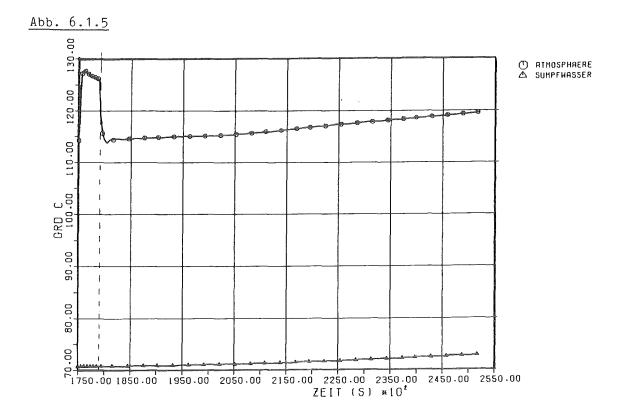
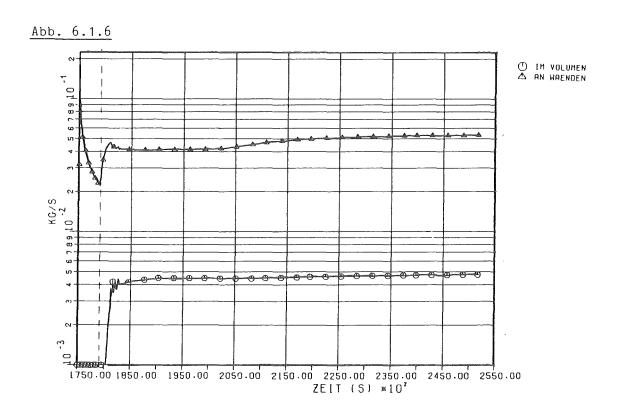


Abb. 6.1.4



Vergleich zwischen gemessenen und berechneten (♠) Werten für Druck, Temperatur und Dampfzufuhrrate während Versuch A1





Berechneter Verlauf von Temperatur und Kondensationsrate während und nach der Aerosoleinspeisung im Naßversuch B3

## 6.2 FIPLOC-Rechnungen (GRS)

## 6.2.1 Kurzbeschreibung des Rechenprogramms FIPLOC

FIPLOC ist ein integriertes Spaltprodukttransport- und Verhaltensmodell für unterteilte Containments. Für Rechnungen wird das betrachtete Containment - entsprechend der verwendeten Lumped-Parameter-Technik - in eine größere Anzahl (bis zu 50) räumlicher Zonen aufgeteilt, die untereinander über Strömungspfade verbunden sind (Abb. 1). Folgende Transportvorgänge werden zwischen den Zonen berücksichtigt: Freie und erzwungene Konvektion, Diffusion und der Transport von gelösten Komponenten mit dem Kondensat. Der Aerosoltransport von Zone zu Zone wird wie der Transport der gasförmigen Komponenten behandelt. Mit Ausnahme von kleinen Strömungsgeschwindigkeiten in vertikalen Verbindungen wird kein Schlupf berücksichtigt.

Eine Ablagerung von Aerosolen wird in allen Zonen mit Boden- und/oder Wandflächen berücksichtigt. Folgende Depositionsprozesse werden modelliert: Sedimentation, Brown¹sche Diffusion, Thermophorese und Diffusiophorese. In der derzeit verfügbaren FIPLOC-Version werden repräsentative mittlere Partikelgrößen als zeitliche Funktion für alle Zonen

einheitlich vorgegeben. Die Aerosol-Massenbilanz wird dann simultan mit den Fluid- und Thermodynamikgrößen berechnet.

Im Rahmen des DEMONA-Projekts wurden mit FIPLOC eine Reihe von Rechnungen durchgeführt, die (1) zur Versuchsauslegung, (2) zur Interpretation der Versuchsergebnisse mit dem Schwerpunkt der Analyse von fluid- und thermodynamische Einflüssen auf das Aerosolverhalten und (3) zur Verifikation von FIPLOC dienen.

Für die Rechnungen wurden zwei unterschiedliche Versionen verwendet: FIPLOC-MOD1/83 mit den Annahmen thermodynamischen Gleichgewichts zwischen Atmosphäre und Kondensatoberflächenschicht und Sättigungsbedingung für Dampf

FIPLOC-MOD2/83 bzw. /85 Version für thermodynamisches Nichtgleichgewicht bei gleichzeitiger Sättigung als bzw.

Dampfüberhitzung in unterschiedlichen Bereichen.

## 6.2.2 Nachrechnung des Leckagetests A1

Bei dem Versuch A1 wurde weder ein Aerosol noch ein Tracergas eingespeist und gemessen. Der Schwerpunkt der FIPLOC-Rechnungen lag auf einer adäquaten Beschreibung des thermohydraulischen Zustandes der Containmentatmosphäre während der vier Phasen: (1) Ausspülen der Luft mit Dampf, (2) Aufheizen der Containmentstrukturen mit Dampf, (3) Luftrückgabe und (4) kontinuierliche Dampfeinspeisung.

Es wurde eine Diskretisierung mit 24 Zonen, 55 Verbindungen und 44 Heat Slabs gewählt. Drei der Zonen simulierten die freie Umgebung, das anschließende Gebäude und den Boden. Ein besonderes Augenmerk galt der adäquaten Modellierung der Sümpfe, in denen sich das ablaufende Kondensat sammelte. Erstmals wurden auch vertikale Temperaturprofile für die Sümpfen berechnet, da erhebliche Temperaturdifferenzen zwischen dem Inneren (ca. 50 °C) und der Sumpfoberfläche (ca. 115 °C) gemessen wurden.

Die Rückgabe der Luft führte zu erheblichen Temperatur- und Konzentrationsunterschieden zwischen dem oberen und unteren Containmentbereich. Der Aufbau dieser den vertikalen Atmosphärenaustausch hemmenden Schichtungen konnte mit FIPLOC einwandfrei analysiert werden (Abb. 2).

Die Konzentration des leichteren Mediums Wasserdampf stieg in die Kuppel an, während der Luftpartialdruck im unteren Containmentbereich anstieg. Dies hätte bei einer Aerosoleinspeisung zu ausgeprägten Konzentrationsunterschieden zwischen den verschiedenen Räumen des Containments geführt.

## 6.2.3 Vorausrechnung des Trockenversuches B2

Zur Durchführung des Trockenversuches B2 wurde eine Vorausrechnung mit der Code-Kombination FIPLOC-MOD2/83 - HAA-3 durchgeführt. Eine Rechnung mit dem HAA-Code lieferte die zu erwartetende mittlere Partikelgröße, die für die FIPLOC-Rechnung vorgegeben wurde.

Für diese FIPLOC-Vorausrechnung waren keine vergleichbaren Versuche bekannt, noch lagen zur Abstützung andere Rechnungen vor. Zudem waren einige Versuchsbedingungen nur grob spezifiziert. Die Vorausrechnungen sind daher als "doppelt blind" anzusehen.

Mit Einspeisung des Aerosols mit der heißen Trägerluft (ca. 320 °C) stiegen die Temperaturen von etwa 14 °C auf maximal 45 °C an, um nach dem Abschalten der Luft relativ rasch (in etwa 2 Stunden) auf den ursprünglichen Wert zurückzukehren. Während der Einspeisephase bildeten sich ausgeprägte Temperaturunterschiede innerhalb des Containments aus. Diese wurden von der FIPLOC-Rechnung in großen Bereichen des Containments sehr genau vorhergesagt. Die Abbildung 3 zeigt einige der berechneten und gemessenen lokal unterschiedlichen Temperaturverläufe.

Der berechnete Aerosolabbau im Containment stimmt gut mit der gemessenen Kurve überein (Abb. 4). Die geringe Abweichung nach Einspeiseende ist vermutlich auf eine höhere tatsächliche Aerosoleinspeiserate zurückzuführen. Für t > 30 Stunden wird die Konzentrationsabnahme von der Rechnung überschätzt. Vermutlich simuliert für diesen Bereich der hier verwendete HAA-Code, der nach der Momenten-Methode arbeitet, die Veränderungen des Partikelgrößenspektrums nicht mehr hinreichend genau. Einschränkend muß bei dem Vergleich Rechnung-Experiment für den Aerosolabbau berücksichtigt werden, daß keine Meßwerte zur Partikelgrößenverteilung vorliegen.

In der FIPLOC-Rechnung wurden nur sehr geringe Aerosolkonzentrationsunterschiede im Containment unter den trockenen Bedingungen vorhergesagt. Dies wird durch die Meßwerte bestätigt (Abb. 4).

## 6.2.4 Voraus- und Nachrechnung des Naßversuches B3

Bei der FIPLOC-Vorausrechnung für den ersten Naßversuch B3 standen zwei Fragen im Vordergrund: (1) die technischen Maßnahmen zur Herbeiführung homogener Verhältnisse in der Containmentatmosphäre und (2) die zu erwartenden maximalen lokalen Temperaturen. Anhand von FIPLOC-Rechnungen konnte gezeigt werden, daß das Öffnen jener Durchbrüche, die im Versuch A1 geschlossen waren, zu einer wesentlich verbesserten Durchmischung im Modellcontainment führen. Es wurde auch vorausgesagt, daß die maximal zu erwartenden Temperaturen unter den für die Aerosolinstrumentierung gefährlichen Werten von ca. 140 °C bleiben und daß dies auch ohne Einsatz der Nebelsprühung gewährleistet ist.

Für die Nachrechnung des ersten Naßversuches wurde aus Rechenkostengründen eine einfache Diskretisierung (7 Zonen, 12 Verbindungen und 10 Heat-Slabs) gewählt. Das besondere Interesse galt dabei dem gleichzeitigen Auftritt von lokalen überhitzten Dampfzuständen und gesättigten bzw. leicht übersättigten Zuständen in anderen Bereichen des Containments. Die thermodynamischen Meßwerte ermöglichten eine Überprüfung der neuen Version FIPLOC-MOD2/85. Im Zentralraum wurde eine maximal auftretende Atmosphärentemperatur von 136 °C vorausgesagt. Dies stimmt mit den Meßwerten sehr gut überein. Die Rechnung zeigte weiters, daß es dort zu einer deutlichen Überhitzung gekommen ist. Einzelheiten, wie sie in der Messung beobachtet wurden (nur zögernde Ausbreitung des eingespeisten Aerosols) konnte anhand dieser vereinfachten Rechnung noch nicht erfaßt werden; dazu sind Rechnungen mit einer verfeinerten Diskretisierung erforderlich.

## 6.2.5 Diskussion der FIPLOC-Ergebnisse

Die FIPLOC-Rechnungen sind bislang die einzigen Multicompartment-Rechnungen zu DEMONA-Versuchen. Die differenzierte Analyse der Vorgänge in der Containmentatmosphäre während der verschiedenen Versuchsphasen lieferte nicht nur einen wesentlichen Beitrag zur Interpretation der Meßergebnisse, sondern stellte auch die gewünschte Unterstützung bei der Versuchsplanung bereit.

In Anbetracht des "doppelt blinden" Charakters der Vorausrechnung zum Trockenversuch sind die Ergebnisse als sehr gut zu bewerten. Erstmals konnte analytisch vorhergesagt werden, daß die konvektiven Transportvorgänge unter den gegebenen Bedingungen eine homogene Aerosolverteilung im Containment garantieren und daß die lokalen Maximaltemperaturen in vertretbaren Grenzen bleiben.

Auf nasse Bedingungen in Gegenwart von Wasserdampf, der an Strukturen und im Volumen kondensiert, sind noch keine unmittelbaren Rückschlüssen möglich. Es wird jedoch erwartet, daß hierzu mit dem weiter verbesserten Modell FIPLOC-2/85 ebenfalls gute Vorhersagen getroffen werden können.

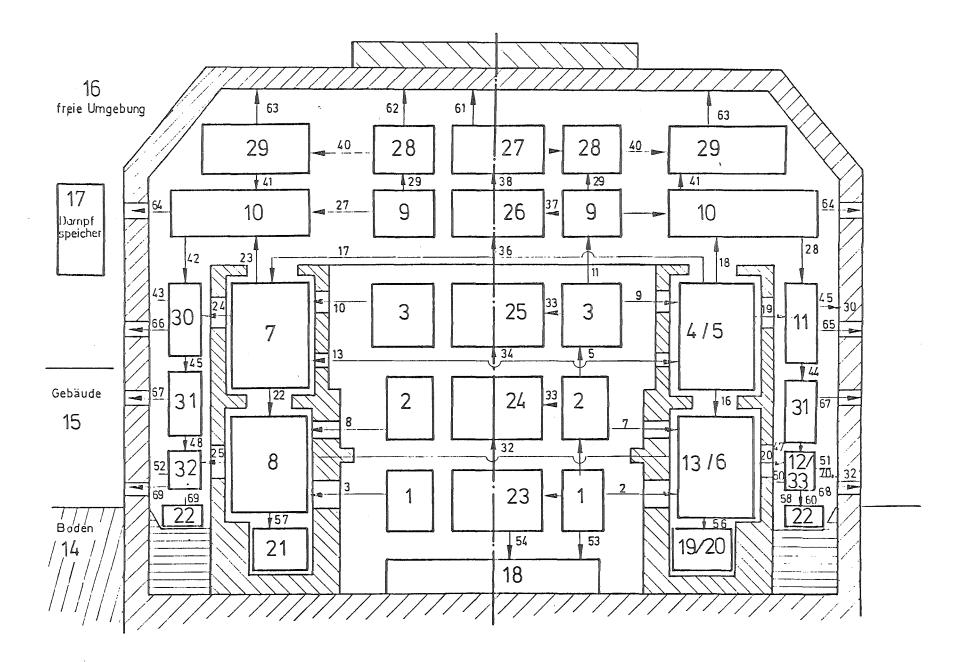
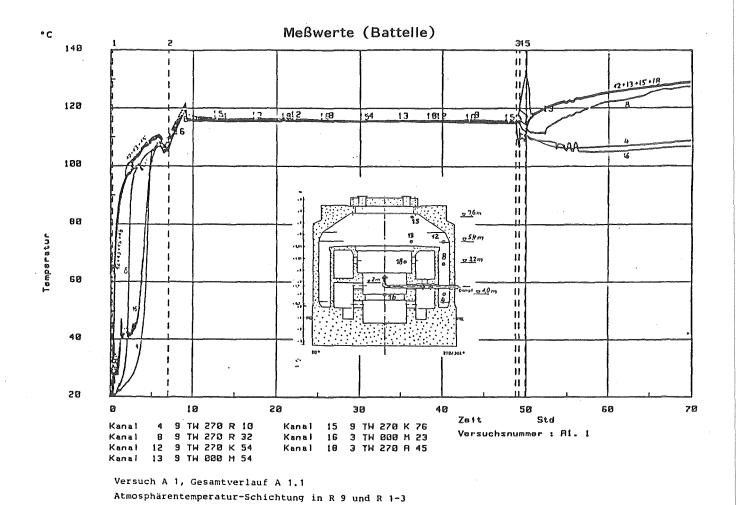


Abbildung 1: Diskretisierung des Battelle-Modellcontainments für FIPLOC-Rechnungen



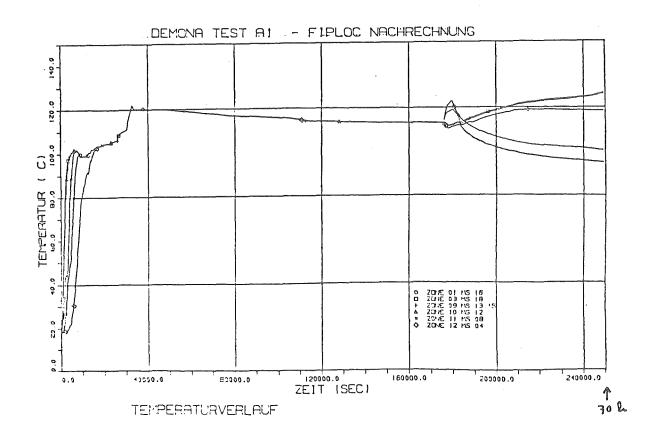


Abbildung 2: Versuch A1, gemessene und gerechnete lokale Temperaturverläufe

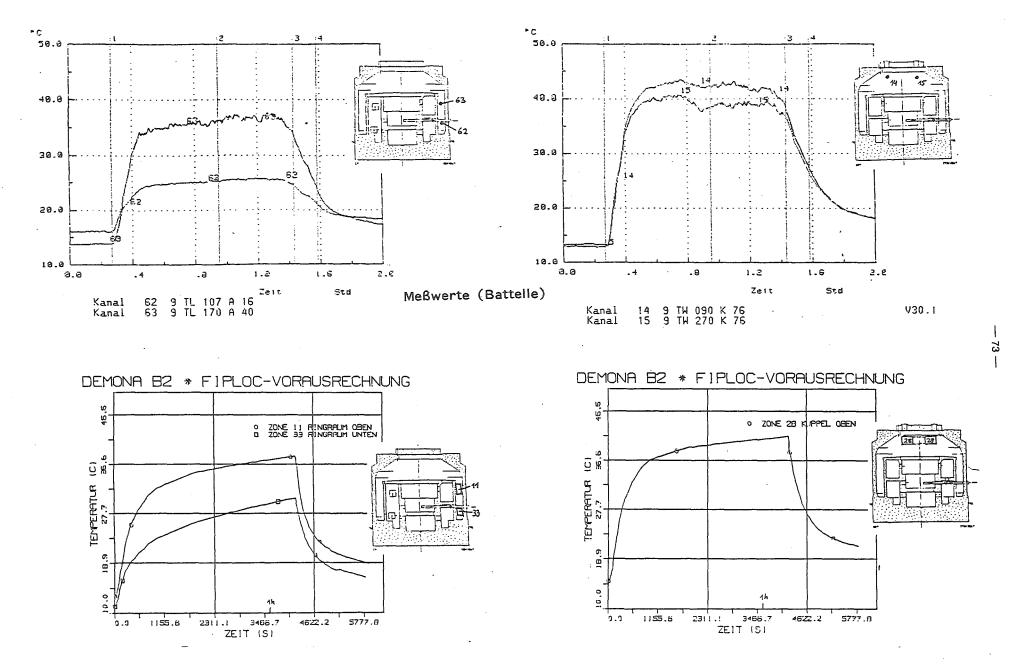


Abbildung 3: Versuch B2, gemessene und vorausgerechnete Temperaturen während der Einspeisephase



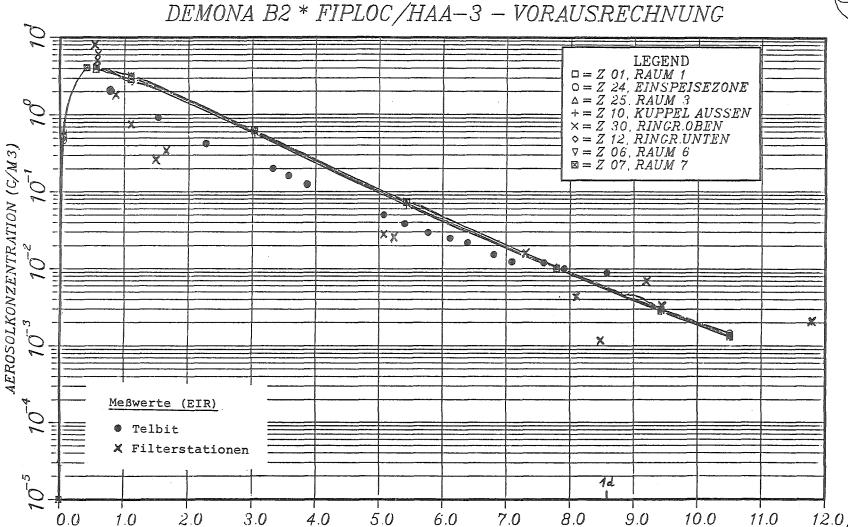


Abbildung 4: Versuch B2, Vergleich der vorausgerechneten und gemessenen Aerosolkonzentrationen

ZEIT (S)

#### 6.3 Aerosolverhaltensrechnungen

Für die bislang vorliegenden vier auswertbaren Experimente wurden sowohl Vorausrechnungen als auch Nachrechnungen durchgeführt. Da aufgrund der Erfahrungen mit dem Aerosolgenerator bei den Vorversuchen die Aerosolerzeugungs rate nicht genau vorherbestimmbar ist, wurde die Aerosolerzeugungsrate in dem durch die Vorversuche gegebenen Rahmen variiert und dann nach dem Versuch die Rechnungen ausgewählt, deren Eingangsdaten den experimentellen Daten am nächsten kommen. Für die Versuche V30 und V31 konnte die Bandbreite der Variationen allerdings dann reduziert werden aufgrund der erheblich verbesserten Zuverlässigkeit des Aerosolgenerators bei Verwendung von Zinnpulver als Eingangsmaterial. Für den Versuch V31 als ersten Naßversuch kommen als weitere wichtige Einflußparameter die Kondensationsraten an den Wänden und im Volumen sowie die Partialdrucke der Luft und des Wasserdampfes und die Gastemperatur hinzu, deren Berechnung bereits in den Abschnitten 6.1 und 6.2 beschrieben wurde. Bei den Trockenversuchen dagegen beschränkt sich der Einfluß der Gastemperatur und -zusammensetzung auf die Veränderung der Gasviskosität, die im Rahmen der bei den Versuchen in Frage kommenden Variationen vernachlässigbar ist.

Der erste Trockenversuch V20 wurde mit Eisenoxidpartikeln durchgeführt. Dabei ergeben sich eine Reihe von Schwierigkeiten mit dem Aerosolgenerator, wobei zum einen die Erzeugungsrate und -dauer erheblich unter den Erwartungen blieb und zum anderen die Korngrößen der meisten erzeugten Partikeln im Vergleich zu Experimenten mit anderen Materialien sehr groß waren. Daraus ergibt sich eine verhältnismäßig große Abweichung zwischen Experiment und Vorausrechnung. Bei Verwendung der gemessenen Partikelgrößen zur Nachrechnung des Experiments ergibt sich dann wieder eine sehr gute Übereinstimmung (s. Abb. 2.1).

Eine Reihe von Generatortests zeigten dann, daß Zinnoxid erheblich besser zur Aerosolerzeugung geeignet ist und daß auch die Erzeugungsraten sehr viel besser den Erwartungen entsprechen als bei Eisenoxid. Dies spiegelt sich dann auch sofort in einer besseren Übereinstimmung zwischen Experiment und Voralls auch Nachrechnung wider (Versuche V23 und V30). Die etwas größere Abweichung der Nachrechnung bei Versuch V30 erklärt sich durch die Verwendung der direkt bestimmten Aerosolgeneratordaten, was zeigt, daß entweder ein Teil

der erzeugten Partikeln nie luftgetragen wurde oder aber während der Erzeugungsphase bereits abgeschieden wurde, etwa durch turbulente Naturkonvektion aufgrund des hohen Wärmeeintrags während der Erzeugungsphase.

Beim Versuch V31 kommt als dominierender Einfluß die Kondensation von Wasserdampf sowohl im Volumen als auch an der Wand hinzu. Der steilere Abfall der Aerosolmassenkonzentration, wobei nur Feststoffanteil aufgetragen ist, bei der Vorausrechnung erklärt sich durch die im mehr als einen Faktor 2 größere Volumenkondensationsrate aus der thermodynamischen Vorausrechnung im Vergleich zum Wert bei der Nachrechnung. Ansonsten kann aber die Übereinstimmung sowohl der Voraus- als auch der Nachrechnung mit den experimentellen Daten als ausreichend bezeichnet werden, insbesondere, wenn man die Schwierigkeiten mit der Meßtechnik bei den vorliegenden thermodynamischen Bedingungen wie hoher Druck und Temperatur und hohe Feuchte in Betracht zieht.

Die bislang vorliegenden Experimente zeigen somit, daß der NAUA-Code in der Lage ist, das Verhalten eines hochkonzentrierten Aerosolsystems in einem Containment mit ausrecheichender Genauigkeit zu beschreiben.

## 7. Veröffentlichungen im Berichtszeitraum 1984

D. Haschke, J.P. Hosemann, H. Ruhmann,
Review of DEMONA results
Topical Meeting on Fission Product Behavior and Source Term Research
Snowbird UT, July 15-19, 1984

W. Schöck, H. Bunz, W. Schikarski, J.P. Hosemann, D. Haschke, T.F. Kanzleiter, T. Schröder, M. Fischer, K. Hassmann, M. Peehs, H. Ruhmann The DEMONA Project: Objectives, Results and Significance to LWR Safety Fifth International Meeting on Thermal Nuclear Reactor Safety Karlsruhe, Sep. 9-13, 1984; KfK 3880/3, 1984, S. 1458

# H. Bunz, W. SchöckComparison of aerosol behavior measured during DEMONA experiments toNAUA code predictionsCSNI Specialists Meeting on Nuclear Aerosols in Reactor Safety

Karlsruhe, Sep. 4-6, 1984; KfK 3800, CSNI 95, Feb. 1985, S. 448

## J. Eyink, M. Fischer Predetermination of the Thermodynamical State in the DEMONA Facility during Aerosol Injection with the Improved Containment Code COCMEL ebd., S. 268

G. Friedrich, A. Fromentin, O. Mercier, R. Taubenberger, W. Schöck Aerosol Measurement System for the DEMONA Experiment ebd., S. 329

### T.F. Kanzleiter

Thermal-Hydraulic Behavior of a Containment Atmosphere Measured in the DEMONA Aerosol Experiments ebd., S. 260

## H. Ruhmann, M. Peehs

Development and Performance Testing of an Aerosol Generator System for DEMONA ebd., S. 319

H. Bunz, W. Schöck, R. Taubenberger Spatial distribution of an aerosol in a large structured building 1st International Aerosol Conference Minneapolis MN, September 17-21, 1984

#### T. Kanzleiter

DEMONA-Versuche, Ergebnisse des Kalibrierversuchs A 1 Technischer Fachbericht BIeV-R 65,523-30-1 Battelle-Institut Frankfurt, Februar 1984

Th. Schröder

DEMONA-Versuche, Ergebnisse des Trockenversuchs B 2 Technischer Fachbericht BIeV-R 65.523-30-2 Battelle-Institut Frankfurt, Mai 1985

#### T. Kanzleiter

DEMONA-Versuche, Ergebnisse des Basisversuchs B 3 Technischer Fachbericht BIeV-R 65.523-30-3 Battelle-Institut Frankfurt, April 1985