

KfK 3785
Oktober 1984

**Kalorimeter zur Bestimmung
nuklearer Wärmequellen in
MAW-Abfallfässern mit
zementierten Hülsen- und
Strukturteilen von LWR-
Brennelementen aus der
Wiederaufarbeitung**

H. Kapulla
Hauptabteilung Ingenieurtechnik
Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
Hauptabteilung Ingenieurtechnik
Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

KfK 3785

PWA - 57/84 -

Kalorimeter zur Bestimmung nuklearer Wärmequellen in
MAW-Abfallfässern mit zementierten Hülsen- und Struktur-
teilen von LWR-Brennelementen aus der Wiederaufarbeitung

H. Kapulla

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Für die Bestimmung der Leistung nuklearer Wärmequellen von Aktivabfällen, die in 125 l - Fässern in Zementstein eingelagert werden, wurde ein Kalorimeter entwickelt. Das Kalorimeter wurde für integrale Wärmeleistungen bis zu 10 W ausgelegt.

Zur Beschreibung des Temperaturverlaufs im Kalorimeter wurde ein Mehrzonenmodell angewendet. Es enthält alle physikalisch wichtigen Größen des Systems.

Im Gegensatz zu einem Punktmodell beschreibt das gewählte Modell die Temperaturverhältnisse im Kalorimeter so gut, daß aus dem gemessenen Temperaturverlauf die Faßleistung nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate lange vor Erreichen des Temperaturgleichgewichtszustandes und ohne diesen abwarten zu müssen, ermittelt werden kann. Durch diese Auswertmethode läßt sich die Meßzeit um den Faktor 10 verkürzen!

Für die Kalibrierung des Kalorimeters wurde ein elektrisch beheiztes Faß verwendet.

Für die Empfindlichkeit des Kalorimeters wurde $0.51 \text{ K}\cdot\text{W}^{-1}$ gefunden.

Um die Streuung im Temperaturverlauf in der Anfangszeit einer Messung zu verringern und die Meßzeit zu reduzieren, sollte das Meßobjekt vor seinem Einsatz in das Kalorimeter in einem Vortempergefäß aufbewahrt werden.

Die Vortemperatur ist entbehrlich, wenn die Auswertung der Kalorimetermessung über die zeitaufwendigere Bestimmung der erreichten Gleichgewichtstemperatur erfolgt.

Das Kalorimeter wurde im heißen Betrieb in den Heißen Zellen der HDB eingesetzt. Die nukleare Wärmeleistung wurde in sieben Abfallfässern kalorimetrisch bestimmt. Vier Fässer enthielten die Hülsenabfälle von kompletten KWO-Brennelementen mit Abbränden zwischen 25 und 40 Gwd/t. Verglichen mit KORIGEN-Rechnungen wurde in ihnen eine zwischen 20 und 30% niedrigere Leistung gemessen. Da nur ca. 80% der γ 's im Faß absorbiert werden, ist die Übereinstimmung zufriedenstellend.

Die Strukturteile des KWO-BE 250, das einen Abbrand von 29.4 Gwd/t erreichte, wurden in der WAK getrennt nach Hülsen, Kopf- und Fußteile, Führungsrohre und Abstandshalter in drei Einsatztrommeln gepackt und betoniert. Während in den Fässern mit den Endstücken bzw. den Führungsrohren die gemessenen Wärmeleistungen unter den mit KORIGEN berechneten Werten lagen (12 bis 28%), wurde im Hülsenfaß eine höhere Wärmeleistung gemessen, als gemäß KORIGEN-Abschätzungen zu erwarten war.

Calorimeter for the Determination of Nuclear Heat Sources in Intermediate Level Radioactive Waste Barrels - Containing Pieces of PWR Cladding and Fuel Assembly Structural Members in a Cement Matrix from Reprocessing.

A calorimeter was developed for the determination of the power of nuclear heat sources in radioactive waste. The waste is stored in concrete in 125 l barrels. The calorimeter was optimized for an integral power of 10 W.

A multizone model was used to describe the temperature response of the calorimeter. It contains all the physically relevant parameters of the system. In contrast to a point model the model used in this paper describes the temperature response quite accurately. So accurately that it is possible to determine the power of the barrel from a least square fit of the initial temperature response well before the temperature has reached a steady state. By this method the measuring time can be reduced by a factor of ten.

For the calibration of the calorimeter an electrically heated barrel was used.

The sensitivity of the calorimeter was determined to be $0.51 \text{ K}\cdot\text{W}^{-1}$.

To reduce the scattering in the initial temperature response and to reduce the measurement time it is necessary to preheat the barrel.

Preheating is not necessary if the evaluation of the calorimeter measurement is done by the more time consuming determination of the equilibrium temperature.

The calorimeter was tested in the hot cells of HDB. The nuclear heating of 7 barrels was determined using the calorimeter. Four barrels contained the cladding from entire KW0-fuel elements with burn-ups between 25 and 40 GWd/t. Compared to KORIGEN-calculations the measured values are 20 to 30% lower.

The structural parts of KW0-fuel element 250 with a burn-up of 29.4 GWd/t were cast in concrete in 3 different barrels. The parts were segregated in cladding, top and bottom end-pieces and spacers and guide tubes.

In the first barrel there were only 98 of the 180 cladding tubes deposited. Only in this cladding barrel the measured power was higher than the values estimated by KORIGEN. On the other hand the measured power of the barrels with end-pieces or guide tubes was lower (12 to 28%).

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Kalorimeterprinzipien	2
3. Modell eines isothermen Wärmeflußkalorimeters	3
4. Modell eines adiabatischen Kalorimeters	11
5. Auslegung des isothermen Wärmeflußkalorimeters	13
6. Eigenschaften des adiabatischen Kalorimeters	20
7. Vergleich beider Kalorimeterprinzipien	22
8. Untersuchung der Parametereinflüsse auf die kalorimetrischen Messungen	23
9. Aufbau des Kalorimeters	25
10. Aufbau des Abfallfaß-Simulators	27
11. Meßwerterfassung	28
12. Kalorimeterkalibrierung	29
13. Untersuchung der Auswirkung nuklearer Hot-spots im Faß	36
14. Untersuchungen zur Meßzeitverkürzung	36
15. Untersuchung des Einflusses der Vortemperatur	38
16. Kalorimetrische Messung der Wärmeleistung nuklearer Wärmequellen in 200 l MAW-Abfallfässern	40
17. Diskussion	47
18. Literaturhinweise	51
19. Abbildungsverzeichnis	52
Anhang (Abbildungen 2 bis 39)	

1. Einleitung

Die Temperaturverteilung und die maximale Temperatur, die sich in zylindrischen Salzkavernen bzw. in Bohrlöchern im Salzstock bei der Einlagerung zementfixierter MAW-Abfälle einstellt, wird unter anderem von der Wärmeleitfähigkeit des heterogenen Einlagerungsproduktes und von den nuklearen Wärmequellen der Aktivabfälle bestimmt (1). Die MAW-Feedabfälle (BE-Hülsenabschnitte, abgetrennte BE-Kopf- und Fußstücke, Festklärschlamm, etc) werden z.Zt. in der WAK in 125 l-Einsatztrommeln mit Zementmilch vergossen. Nach dem Abbinden werden die 125 l-Behälter in 200 l-Rollreifenfässer gepackt und einer Zwischenlagerung zugeführt.

Die nuklearen Wärmeleistungsdichten sind im Prinzip berechenbar, wenn die Betriebsgeschichte der Brennelemente und die Zusammensetzung und Konzentration der Nuklide, die nach der Auflösung des Brennstoffes an dem Hüllenmaterial haften blieben, bekannt sind (2). Die so gefundenen Daten sind jedoch nur Mittelwerte, die mit mittleren Flüssen, angewendet auf homogene Materialverteilungen, gewonnen werden. Für das einzelne Faß insbesondere für die einzelnen BE-Komponenten ergeben sich naturgemäß Unsicherheiten in der Abschätzung der nuklearen Wärmeleistungsdichten, die durch eine kalorimetrische Messung behoben werden könnten. Durch kalorimetrische Messungen ließe sich auch beurteilen, obkünftig durch eine Vorsortierung eine Trennung von BE-Teilen hoher von Teilen mit niedriger Wärmeleistungsdichte sinnvoll sein könnte. Darüberhinaus ließen sich genauere Aussagen über reaktorspezifische Parameter (z.B. wirksame Flußverteilungen) gewinnen.

Im folgenden wird die Auslegung, der Aufbau, die Kalibrierung und die heiße Erprobung eines Kalorimeters beschrieben, das für die Messung der nuklearen Wärmeleistung in 200 l MAW-Fässern geeignet ist.

2. Kalorimeterprinzipien

Von den zahlreichen bekannten Kalorimeterprinzipien (siehe z.B. (3)), sind für unser Problem (großvolumige nukleare

Wärmequelle mit niedrigem Leistungsniveau) nur zwei sinnvoll einsetzbar:

- das isotherme Wärmeflußkalorimeter und
- das adiabatische Kalorimeter.

Beim isothermen Wärmeflußkalorimeter wird die äußere Berandung des Kalorimeters auf konstanter Temperatur gehalten und ein Gleichgewichtszustand abgewartet, bei dem die Wärmeverluste (Wärmefluß durch eine Wärmedämmschicht) von den inneren Wärmequellen (nukleare Wärmequellen) gerade kompensiert werden.

Das adiabatische Kalorimeter wird so aufgebaut und betrieben, daß ein Wärmefluß durch seine Grenzflächen unterbunden wird. Dies kann auf verschiedene Weise bewerkstelligt werden:

- Minimierung der Temperaturdifferenz zwischen dem Kalorimeterkörper und seiner Umgebung
- Minimierung des Wärmeübergangskoeffizienten
- Minimierung der für Wärmetransportprozesse zur Verfügung stehenden Zeit.

Eine erste Problemanalyse zeigte, daß zur Berechnung der zeitabhängigen Temperaturfelder im Kalorimeter ein Punktmodell nicht ausreichend ist und zwar unabhängig davon, welches Kalorimeterprinzip für unsere Meßaufgabe verfolgt werden soll, weil die spezifische Wärme des Prüfkörpers und der inneren Kalorimeterwand, die Temperaturverteilung im Prüfkörper zu Beginn der Messung und die Wärmeübergänge durch Luftspalte zwischen Prüfkörper, Rollreifenfaß und inneren Kalorimeterwand nicht vernachlässigt werden können. Sie haben einen starken Einfluß auf die zeitliche Temperaturentwicklung im Kalorimeter und somit auch auf die Interpretation der Messungen.

3. Modell eines isothermen Wärmeflußkalorimeters

Das Kalorimeter einschließlich des Untersuchungsobjektes wird als ein zylindersymmetrisches Problem unter Vernachlässigung azimuthaler und axialer Abhängigkeiten von Stoffwerten und Temperaturen behandelt. Für die Zeitabhängigkeit der Temperaturen streben wir analytische Lösungen an, um einige wesentliche Kalorimeterdaten mit Hilfe von Least-square-fits aus Eichmessungen extrahieren zu können (s. auch Abschnitt 2). Die Abbildung 1 zeigt die Konstanten, die in unser Modell eingehen.

Es sind dies die geometrischen Daten r_1 , r_2 , r_3 und r_4 (r_1 = Radius der nuklearen Wärmequelle; r_2 und r_3 = Innen- und Außenradius des Kalorimeterinnenbehälters; r_3 und r_4 = Innen- und Außenradius der Wärmedämmschicht) und

die Materialdaten c_F , λ_F , ρ_F , α , c_C , ρ_C , λ_I (c = spezifische Wärme, λ = Wärmeleitfähigkeit, α = Wärmeübergangszahl der Luftschicht, ρ = Dichte. Bedeutung der Indizes: F = Untersuchungsobjekt, c = Cu-Innenbehälter, I = Wärmedämmschicht).

L ist die spezifische Wärmeleistungsdichte im Untersuchungsobjekt.

Die Differentialgleichung für den Wärmetransport in einem zylindersymmetrischen System hat unter den eingangs gemachten Voraussetzungen die Form:

$$(1) \quad c_F \cdot \rho_F \cdot \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda_F \left(\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial T}{\partial r} \right) + L$$

Zu ihrer numerischen Lösung teilen wir den Bereich $0 \leq r \leq r_4$ wie folgt in vier Zonen (s. Abb. 1):

$$\text{Zone 1} \quad 0 \leq r \leq \frac{r_1}{2}$$

$$\text{Zone 2} \quad \frac{r_1}{2} < r \leq r_1$$

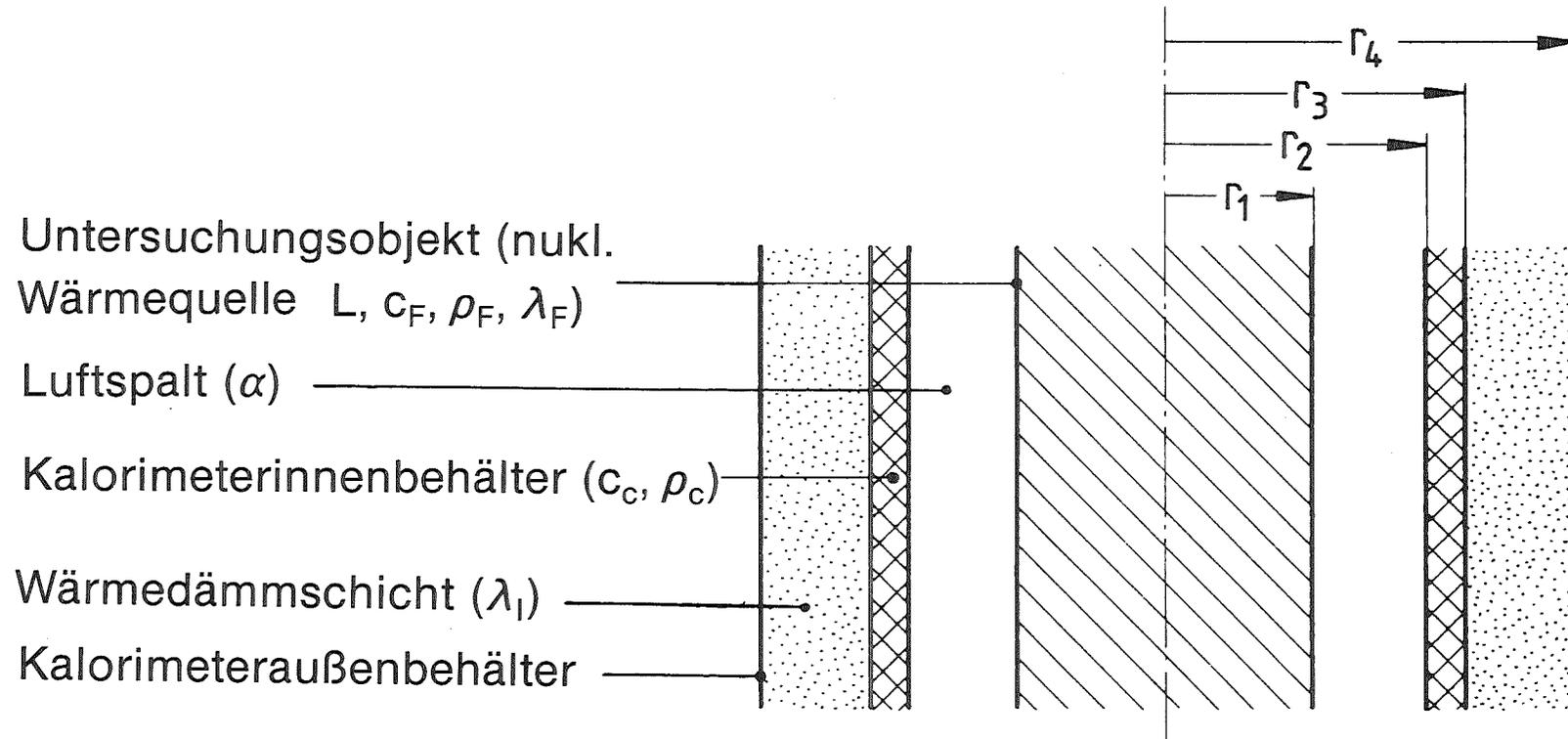


Abb. 1 Kalorimetermodell

Zone 3 $r_1 < r \leq r_3$

Zone 4 $r_3 < r \leq r_4$

Durch Aufstellung der Wärmebilanzen an den Zonengrenzen erhält man die Differentialgleichungen, die zur Bestimmung der für die Messungen wesentlichen Temperatur $T_2(t)$ im Kalorimeterinnenbehälter notwendig sind.

Für die innerste Zone ($0 \leq r \leq \frac{r_1}{2}$) läßt sich die Differentialgleichung (1) numerisch erst nach einer Umformung lösen. Da $\frac{\partial T}{\partial r}$ bei $r = 0$ Null ist, ergibt $\frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r}$ einen unbestimmten Ausdruck.

Durch Taylorentwicklung findet man jedoch:

$$(2) \quad \lim_{r \rightarrow 0} \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} = \frac{\partial^2 T}{\partial r^2}$$

so daß aus (1) die Differentialgleichung für die innerste Kalorimeterzone

$$(3) \quad c_F \rho_F \cdot \frac{\partial T}{\partial t} = 2\lambda_F \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + L$$

wird.

Der Übergang zu Differenzenquotienten auf der rechten Gleichungsseite ergibt:

$$(4) \quad c_F \cdot \rho_F \cdot \frac{dT_0}{dt} = \frac{4\lambda_F}{r_1} (T_1 - T_0) + L$$

Multipliziert man (4) mit dem Volumen der Zone 1, so wird die Bedeutung der Summanden deutlich:

$$\pi \cdot \left(\frac{r_1}{2}\right)^2 \cdot c_F \rho_F \cdot \frac{dT_0}{dt} \quad : \quad \text{zeitliche Änderung des Wärmeinhalts der innersten Zone}$$

$$\pi \cdot \lambda_F \cdot (T_0 - T_1) \quad : \quad \text{die pro Zeiteinheit aus der inneren in die äußere Zone des Fasses abfließende Wärmemenge}$$

$$\pi \cdot \left(\frac{r_1}{2}\right)^2 \cdot L \quad : \quad \text{in der Zone 1 absorbierte nukleare Wärmeleistung}$$

Aus der Wärmebilanz am Faßrand wird die Differentialgleichung für die Randtemperatur T_1 gewonnen:

$$\pi \left[r_1^2 - \left(\frac{r_1}{2}\right)^2 \right] c_F \rho_F \frac{dT_1}{dt} \quad : \quad \text{zeitliche Änderung des Wärmeinhalts der Faßrandzone}$$

$$- 2\pi\alpha r_1 (T_1 - T_2) \quad : \quad \text{durch den Luftspalt transportierte Wärmemenge aus der Faßrandzone zum Kalorimeterinnenbehälter, dessen Temperatur } T_2 \text{ sei.}$$

Die Zusammenfassung ergibt:

$$(5) \quad c_F \cdot \rho_F \cdot \frac{dT_1}{dt} = \frac{\lambda_F}{0.75r_1^2} (T_0 - T_1) - \frac{2\alpha}{0.75r_1} (T_1 - T_2) + L$$

Im Falle des isothermen Kalorimeters wird die Temperatur T_3 des Kalorimeteraußenbehälters während der Messung konstant gehalten.

Der Wärmefluß durch die Wärmedämmschicht vom Kalorimeterinnen- zum Kalorimeteraußenbehälter ist der Temperaturdifferenz $T_2 - T_3$ proportional:

$$\frac{2\pi\lambda_I}{\ln \frac{r_4}{r_3}} \cdot (T_2 - T_3)$$

Die zeitliche Änderung des Wärmeinhalts des Kalorimeterinnenbehälters ist durch

$$\pi (r_3^2 - r_2^2) \cdot c_c \cdot \rho_c \cdot \frac{dT_2}{dt}$$

gegeben. Die Wärmebilanz für die Kalorimeterinnenwand wird somit:

$$(6) \quad c_c \cdot \rho_c \cdot \frac{dT_2}{dt} = \frac{2\alpha r_1}{(r_3^2 - r_2^2)} \cdot (T_1 - T_2) - \frac{2\lambda_I}{(r_3^2 - r_2^2) \cdot \ln \frac{r_4}{r_3}} \cdot (T_2 - T_3)$$

Mit den Gleichungen (4), (5) und (6) haben wir ein System linearer Differentialgleichungen mit konstanten Koeffizienten vorliegen, das wir mit den Substitutionen:

$$(7a) \quad T_0' = \frac{dT_0}{dt} \quad ; \quad T_1' = \frac{dT_1}{dt} \quad ; \quad T_2' = \frac{dT_2}{dt}$$

$$(7b) \quad a_0 = - \frac{4\lambda_F}{c_F \cdot \rho_F \cdot r_1^2} \quad ; \quad a_1 = \frac{\lambda_F}{0.75 \cdot c_F \cdot \rho_F \cdot r_1^2} \quad ; \quad a_2 = 0$$

$$(7c) \quad b_0 = - a_0 \quad ; \quad b_1 = \frac{\lambda_F + 2\alpha \cdot r_1}{0.75 c_F \rho_F r_1^2} \quad ; \quad b_2 = \frac{2\alpha r_1}{(r_3^2 - r_2^2) \cdot c_c \cdot \rho_c}$$

$$(7d) \quad c_0 = 0 \quad ; \quad c_1 = \frac{2\alpha}{0.75c_F \rho_F r_1} \quad ; \quad c_2 = - \frac{2(\lambda_I + \alpha r_1) \ln \frac{r_4}{r_3}}{(r_3^2 - r_2^2) \cdot c_C \cdot \rho_C \cdot \ln \frac{r_4}{r_3}}$$

$$(7e) \quad d_0 = \frac{L}{c_F \cdot \rho_F} \quad ; \quad d_1 = d_0 \quad ; \quad d_2 = \frac{2\lambda_I \cdot T_3}{(r_3^2 - r_2^2) \cdot c_C \rho_C \cdot \ln \frac{r_4}{r_3}}$$

auf die Form:

$$(8) \quad T_0' = a_0 T_0 + b_0 T_1 + d_0$$

$$T_1' = a_1 T_0 + b_1 T_1 + c_1 T_2 + d_1$$

$$T_2' = b_2 T_1 + c_2 T_2 + d_2$$

bringen.

Aus dem Gleichungssystem (8) wird eine lineare Differentialgleichung 3. Ordnung für T_0 gewonnen:

$$(9) \quad a \cdot T_0'''' + b \cdot T_0''' + c \cdot T_0'' + d \cdot T_0' + e = 0$$

mit:

$$a = 1$$

$$b = - (a_0 + b_1 + c_2)$$

$$(10) \quad c = a_0 (a_1 + c_2) + b_1 (a_0 + c_2) - b_2 c_1$$

$$d = a_0 (b_2 c_1 - a_1 c_2 - b_1 c_2)$$

$$e = d_0 (b_2 c_1 - a_0 c_2) - b_1 c_2 d_0 + a_0 c_1 d_2$$

Die inhomogene Differentialgleichung (9) für T_0 wird gelöst, indem zu einer partikulären Lösung der inhomogenen die allgemeine Lösung der homogenen Differentialgleichung

$$(11) \quad aT_0'''' + bT_0''' + cT_0'' + dT_0' = 0$$

addiert wird.

Die allgemeine Lösung von (11) hat die Form

$$(12) \quad T_0 = A_0 \cdot e^{w_0 t} + A_1 e^{w_1 t} + A_2 e^{w_2 t}$$

wobei w_0, w_1, w_2 die Wurzeln der charakteristischen Gleichung

$$(13) \quad aw^3 + bw^2 + cw + d = 0$$

der Differentialgleichung (11) sind.

Die Wurzeln der kubischen Gleichung (Gl. (13)) lassen sich in geschlossener Form angeben.

Eine partikuläre Lösung der inhomogenen Differentialgleichung (9) ist

$$T_{op} = -\frac{e}{d}$$

zusammen mit (12) erhält man für die allgemeine Lösung von (9)

$$(14) \quad T_0(t) = -\frac{e}{d} + A_0 e^{w_0 t} + A_1 e^{w_1 t} + A_2 e^{w_2 t}$$

An einer analytischen Lösung für T_2 waren wir von Anfang an interessiert, weil nur sie eine Näherung der experimentellen Temperaturverläufe nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate durch geeignete Parameteranpassung ermöglicht.

Bei der physikalischen Modellierung des Kalorimeters haben wir uns auf ein Dreizonensystem beschränkt, um den mathematischen Aufwand für die Least-square-fits nicht allzu groß werden zu lassen.

Zur Bestimmung von T_1 und T_2 geht man von der Lösung T_0 (s. Gl. (14)) der Differentialgleichung (9) aus, die man in die erste Differentialgleichung in (8) einsetzt und nach T_1 auflöst. Anschließend werden T_0 und T_1 in die zweite Differentialgleichung in (8) eingesetzt und diese nach T_2 aufgelöst.

Auf diese Weise erhält man:

$$(15) \quad T_1(t) = \frac{1}{a_0} \cdot \sum_{i=0}^2 (a_0 - w_i) A_i e^{w_i t} - \frac{a_0 e}{d} + d_0$$

und endlich die Funktion, der unser eigentliches Interesse gilt:

$$(16) \quad T_2(t) = \frac{1}{a_0 \cdot c_1} \cdot \left\{ \sum_{i=0}^2 [(a_0 - w_i)(w_i - b_1) - a_0 a_1] A_i e^{w_i t} + \frac{a_0 a_1 e}{d} + b_1 \left(\frac{a_0 e}{d} - d_0 \right) - a_0 d_0 \right\}$$

$T_2(t)$ beschreibt die Zeitabhängigkeit der Temperatur des Kalorimeterinnenbehälters.

Die drei Integrationskonstanten A_i werden aus den Anfangsbedingungen für $T_0(0)$ und $T_2(0)$ berechnet.

Das lineare Gleichungssystem zur Bestimmung der A_i lautet dann:

$$\sum_{i=0}^2 A_i \cdot [(a_0 - w_i)(w_i - b_1) - a_0 a_1] = a_0 c_1 T_2(0) + a_0 d_0 - \frac{a_0 a_1 e}{d} - b_1 \left(\frac{a_0 e}{d} - d_0 \right)$$

$$(17) \sum_{i=0}^2 A_i (a_0 - w_i) = a_0 \cdot T_1(0) + \frac{a_0 e}{d} - d_0$$

$$\sum_{i=0}^2 A_i = T_0(0) + \frac{e}{d}$$

Die aus (17) gewonnenen Integrationskonstanten A_i werden in (16) eingesetzt.

4. Modell eines adiabatischen Kalorimeters

Es werden die gleichen Bezeichnungen gewählt wie beim isothermen Kalorimeter. Beim adiabatischen Kalorimeter wird durch eine Regelung dafür gesorgt, daß die Temperatur T_3 des Kalorimeteraußenbehälters sehr genau der Temperatur T_2 des Kalorimeterinnenbehälters nachgeführt wird. Damit verliert die Wärmedämmschicht ihre Funktion, der Wert von λ_I ist ohne Belang.

Zum Differentialgleichungssystem für das adiabatische Kalorimeter gelangt man, indem man in dem System für das isotherme Kalorimeter $d_2 = 0$ setzt. Man muß außerdem berücksichtigen, daß $c_2 = -b_2$ ist und wegen $c_1 + a_1 + b_1 = 0$ auch $d = 0$ wird.

Damit erhält man für T_0 die Differentialgleichung

$$(18) \quad a \cdot T_0'''' + b \cdot T_0''' + c \cdot T_0'' + e = 0$$

Die Ordnung des homogenen Teils dieser Differentialgleichung läßt sich durch Einführung der Substitution

$$(19) \quad T_0 = \int \tilde{T}_0 dt + f$$

um 1 erniedrigen:

$$(20) \quad a \tilde{T}_0'' + b \tilde{T}_0' + c \tilde{T}_0 = 0$$

Die weiteren Lösungsschritte sind ähnlich den, die in Gl. (10) bis (17) beschrieben wurden. Man erhält:

$$(21) \quad T_2(t) = \sum_{i=0}^1 A_i \cdot \frac{e^{w_i t}}{c_1} \quad (w_0 - b_1) \left(\frac{1}{w_i} - \frac{1}{a_0} \right) - \frac{a_1}{w_i} \\ + t \cdot \frac{e}{c} - \frac{1}{c_1} \cdot \left(\frac{e}{c} + d_0 \right) \left(\frac{b_1}{a_0} + 1 \right) \\ - \frac{1}{c_1} \cdot (a_1 + b_1) \cdot f$$

w_0 und w_1 sind die Wurzeln der charakteristischen Gleichung des homogenen Teils der Differentialgleichung in (18):

$$(22) \quad a \cdot w^2 + bw + c = 0$$

Die Integrationskonstanten A_0 , A_1 und f gewinnt man durch Berücksichtigung der Anfangsbedingungen, die ein lineares Gleichungssystem liefern. Die Prozedur ist ähnlich der, die zum Gleichungssystem (17) geführt hat.

5. Auslegung des isothermen Wärmeflußkalorimeters

Das Kalorimeter soll für die Bestimmung der nuklearen Wärmeleistung in 200 l-Abfallfässern eingesetzt werden und den Leistungsbereich bis 10 W abdecken. Diese Einschränkung ist sinnvoll, da ein für höhere Wärmeleistungen geeignetes Kalorimeter anders zu optimieren wäre. Beim isothermen Wärmeflußkalorimeter sollte sich das Temperaturgleichgewicht auf einem möglichst niedrigen Niveau einstellen, um die ohnehin langen Zeitkonstanten nicht unnötig zu erhöhen. Unser Konzept sieht vor, daß eine nukleare Wärmeleistung von 10 W eine Temperaturdifferenz zwischen Kalorimeterinnen- und außenmantel von etwa 5 K verursachen sollte. Unterstellt man, daß als untere Grenze eine Temperaturdifferenz von 0,05 K verläßlich meßbar ist, so ließe sich mit einem solchen Instrument noch eine minimale nukleare Wärmeleistung von 0.1 W nachweisen.

Der Innendurchmesser der Kalorimeterinnenwand ist durch die Abmessungen des 200 l-Rollreifenfasses vorgegeben. Er kann minimal 625 mm sein. Unter Berücksichtigung eines notwendigen Spiels wurde er auf 650 mm festgelegt. Als Material kommt Kupfer in Frage. Die Wandstärke des Kalorimeterinnenbehälters wurde aus

konstruktiven Gründen 5 mm gewählt. Eine weitere Materialreduktion war an dieser Stelle auch mit Rücksicht auf azimutale und axiale Leistungsunsymmetrien im Faß, die auf die Kalorimeterinnenwand rückwirken könnten und dort möglichst ausgeglichen werden sollten, nicht sinnvoll. Eine Schwächung der Materialstärke auf z.B. 1 mm hätte die Kalorimeterzeitkonstanten nur wenig verkleinert (s. Abb. 7). Als Wärmedämmmaterial ist für den Niedrigleistungsbereich ($L \leq 10 \text{ W}$) Vermiculit vorgesehen. Vermiculit ist ein blättriges Mineral (Tonerde, Eisen-Magnesiumsilikat), das nach einer Erwärmung auf ca. 1000°C auf ein Vielfaches seines ursprünglichen Volumens expandiert (15-20-fach). Man erhält so ein temperatur- und strahlenbeständiges Granulat, in dem zahlreiche Luftschichten im Kern eingeschlossen sind. Hierauf beruhen seine hervorragenden isoliertechnischen Eigenschaften. Mit ihm läßt sich die Wärmedämmschicht leicht aufbauen. Die Wärmeleitfähigkeit liegt bei ca. $8 \cdot 10^{-4} \frac{\text{W}}{\text{cm} \cdot \text{K}}$. Der genaue Wert muß experimentell bestimmt werden (s. Abschnitt 12).

Der Wärmetransport vom Faß zur Kalorimeterinnenwand erfolgt durch zwei separate Luftschichten. In unserem Modell wird er mit einer Wärmeübergangszahl α beschrieben. Eine grobe Abschätzung ergab für α Werte zwischen $2 \cdot 10^{-4}$ und $3 \cdot 10^{-4}$. Wir werden für die Auslegungsrechnungen

$$\alpha = 2.5 \cdot 10^{-4} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2 \text{K}}$$

benutzen und später versuchen, genauere Daten aus den Kalibrierexperimenten zu gewinnen.

Das Abfallfaß hat ein Volumen von $V_F = 125$ Litern (Füllmenge bis zum Rand). Wir nehmen an, daß die nuklearen Wärmequellen in ihm homogen verteilt sind.

Die Temperaturdifferenz $T_2 - T_3$ die sich in der Wärmedämmschicht im Gleichgewicht einstellt, wird proportional der spezifischen Wärmequellendichte L sein. Da jedoch ein Teil der im Faß absorbierten nuklearen Leistung über die Stirnflächen des Fasses an die gegenüberliegenden Stirnflächen der Kalorimeterinnenwand übertragen wird, steht für die Ausbildung von $T_2 - T_3$ nicht die gesamte Leistung $Q = L \cdot V_F$ zur Verfügung, sondern angenähert nur

$$(23) \quad L_{\text{eff}} \cdot V_F = L \cdot V_F \cdot \frac{h}{h+r_1}$$

h ist die Höhe, r_1 der Radius des Fasses. Mit $h = 72$ cm, $r_1 = 23,5$ cm erhält man

$$(24) \quad L_{\text{eff}} = L \cdot \frac{h}{h+r_1} \sim 0,75 \cdot L \quad \text{oder allgemeiner:}$$

$$L_{\text{eff}} = k \cdot L$$

Wir werden im Abschnitt 12 ein Verfahren kennenlernen, das uns erlaubt, aus den Eichmessungen mit dem adiabatischen Kalorimeter, die Konstante k genauer zu fixieren.

Bei einer im Faß absorbierten nuklearen Wärmeleistung von 10 W, die wir für die Auslegungsrechnungen zugrunde legen wollen, wäre die effektive spezifische Wärmeleistungsdichte

$$L_{\text{eff}} = 6 \cdot 10^{-5} \frac{\text{W}}{\text{cm}^3}$$

Unterstellen wir, daß kompaktierte Hüllen eingelagert werden, so muß nach (1), (4) und (5) für den Faßinhalt mit $\lambda_F = 0.035 \frac{\text{W}}{\text{cm} \text{ grad}}$,

$$c_F = 0.5 \frac{\text{Ws}}{\text{g} \text{ grad}} \quad \text{und} \quad \rho_F = 2.2 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3} \quad \text{gerechnet werden.}$$

Das Material von Abfallfaß (Einsatztrommel) und Rollreifenfaß (beide aus Eisen) schlagen wir dem Faßinhalt zu. Dadurch werden die Werte von c_F und ρ_F etwas geändert:

$$c_F = 0.49 \frac{\text{Ws}}{\text{g K}}$$

$$\rho_F = 2.63 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$$

In der Abbildung 2 ist die Temperaturdifferenz $\Delta T_\infty = T_2(\infty) - T_3$ im Gleichgewicht als Funktion von $\Delta r = r_4 - r_3$ dargestellt.

ΔT_∞ ergibt sich aus Gl. (16). Das zeitunabhängige Glied:

$$(25) \quad T_2(\infty) = \frac{a_1 e}{c_1 \bar{d}} + b_1 \left(\frac{e}{c_1 \bar{d}} - \frac{d_o}{a_o c_1} \right) - \frac{d_o}{c_1}$$

ist die Temperatur, gegen die die Kalorimeterinnenwand nach langen Wartezeiten strebt.

Bei einer Wandstärke der Wärmedämmschicht von 9 cm, kann eine Temperaturdifferenz von ca. 5 K erwartet werden.

Wir legen die Wandstärke konservativ auf rund 10 cm fest.

Damit sind alle Daten zusammengetragen ("Standarddatensatz Nr. 1"), um die Kalorimeterfunktionen berechnen zu können.

Wir fassen zusammen:

- spezifische Wärmeleistungsdichte

$$L_{\text{eff}} = 6 \cdot 10^{-5} \frac{\text{W}}{\text{cm}^3}$$

- spezifische Wärme von Faßinhalt und Faßmaterial

$$c_F = 0.49 \frac{\text{Ws}}{\text{g K}}$$

- Wärmeleitfähigkeit im Faß

$$\lambda_F = 0.035 \frac{\text{W}}{\text{cmK}}$$

- Dichte von Faßinhalt und Faßmaterial	$\rho_F = 2.63$	$\frac{g}{cm^3}$
- Wärmeübergangszahl	$\alpha = 2.5 \cdot 10^{-4}$	$\frac{W}{cm^2 \cdot K}$
- Faßdurchmesser	$2r_1 = 47.0$	cm
- Faßhöhe	$h_F = 72.0$	cm
- Faßvolumen	$V_F = 1.25 \cdot 10^5$	cm ³
- Innendurchmesser der Kalorimeterinnenwand	$2 \cdot r_2 = 65.0$	cm
- spezifische Wärme der Kalorimeterinnenwand	$c_c = 0.419$	$\frac{Ws}{g \cdot K}$
- Dichte der Kalorimeterinnenwand	$\rho_c = 8.3$	$\frac{g}{cm^3}$
- Außendurchmesser der Kalorimeterinnenwand	$2r_3 = 66.0$	cm
- Wärmeleitfähigkeit der Wärmedämmschicht	$\lambda_I = 8 \cdot 10^{-4}$	$\frac{W}{cm \cdot K}$
- Innendurchmesser der Kalorimeteraußenwand	$2 \cdot r_4 = 86.0$	cm

Eine weitere wichtige Kenngröße eines Wärmeflußkalorimeters ist die Zeitkonstante, die sein Langzeitverhalten beschreibt. Neben dieser spielen noch zwei weitere Zeitkonstanten eine Rolle, wie man leicht der Gl. (14) entnehmen kann. Sie bestimmen die Temperaturentwicklung jedoch nur zu Beginn der Messung. Mit fortschreitender Meßdauer können sie mehr und mehr vernachlässigt werden.

Wie die Zeitkonstanten $\tau_i = \frac{1}{w_i}$ von den Kalorimeterdaten c_F , ρ_F , λ_F , c_C , ρ_C , λ_I , r_1 , r_2 , r_3 und r_4 abhängen, ist nicht einfach zu übersehen. Dies wird deutlich, wenn man die analytischen Ausdrücke für die w_i näher betrachtet. Für die größte Zeitkonstante $\tau_0 = \frac{1}{w_0}$ erhält man z.B. mit:

$$q = \frac{b^3}{27} - \frac{b \cdot c}{6} + \frac{d}{2}$$

$$(26) \quad w_0 = -\frac{b}{3} + 2 \cdot \text{sign}(q) \cdot \sqrt{\left| \frac{3c - b^2}{9} \right|} \cdot \left[\left(\frac{b^3}{27} - \frac{b \cdot c}{6} + \frac{d}{2} \right) / \left(\text{sign}(q) \cdot \left| \frac{3c - b^2}{9} \right|^{3/2} \right) \right]^{1/3}$$

In (26) wären noch die Substitutionen der Gleichungen (7) und (10) einzuführen! Der einzige Weg, die Abhängigkeit der Zeitkonstanten von den Kalorimeterdaten zu erkennen, besteht in der numerischen Berechnung der τ_i . Dazu variieren wir - ausgehend vom Standarddatensatz - jeweils einen Kalorimeterparameter unter Beibehaltung der Werte der verbleibenden Parameter. Die Abbildungen 3 bis 8 zeigen die so erhaltenen Ergebnisse. Wir finden, daß τ_0 von λ_F und r_2 nur wenig, von c_F , λ_I , α und r_4 dagegen sehr stark abhängt. In den Abbildungen sind die Standardwerte unseres Wärme flu ß kalorimeters eingetragen. c_F und λ_F , die spezifische Wärme und die Wärmeleitfähigkeit des Meßobjektes, sind vorgegebene Größen.

Eine Schwächung der Wandstärke der Kalorimeterinnenwand (s. Abb. 7) erniedrigt die Zeitkonstanten τ_0 nicht nennenswert. Die Wärmeübergangszahl α spielt nur unterhalb von $2.5 \cdot 10^{-4}$ eine beherrschende Rolle (s. Abb. 5). "Freie" Parameter sind nur die Wärmeleitfähigkeit λ_I der Wärmedämmschicht und ihr Außenradius r_4 .

Die folgende Tab. 1 enthält für einige Werte von $\Delta r = r_4 - r_3$ die zugehörigen Zeitkonstanten τ_i .

Δr in cm	τ_0 in h	τ_1 in h	τ_2 in h	$t_{0.9}$ in h
10	-53.44	-1.72	-1.01	120
8	-46.72	-1.62	-1.01	
6	-39.68	-1.47	-1.01	
4	-32.39	-1.26	-0.99	90
2	-24.82	-1.07	-0.51	60
1	-21.00	-1.04	-0.48	50

Tabelle 1: Zeitkonstanten des Kalorimeters

Wir beobachten die erwartete Tendenz: die Zeitkonstanten werden mit abnehmender Dicke der Wärmedämmschicht kleiner. Dem Wunsch des Experimentators nach einer möglichst kleinen Zeitkonstanten τ_0 steht die Forderung nach einer ausreichenden Empfindlichkeit des Kalorimeters entgegen. Hier muß ein Kompromiß geschlossen werden. In diesem Sinne sind die 5 K Temperaturdifferenz, die bei 10 W nuklearer Leistung über der Wärmedämmschicht abfallen sollten, bereits eine untere Schranke für die Kalorimeterempfindlichkeit (s. Abb. 2). Bisher haben wir nur den Einfluß des Wärmedämm-Materials (seine Wärmeleitfähigkeit und die Schichtdicke) auf die Zeitkonstante τ_0 untersucht und festgestellt, daß eine günstigere Parameterwahl nicht möglich ist.

Anders ist die Situation bei einem Kalorimeter, das für absorbierte nukleare Wärmeleistungen zwischen 10 und 100 W ausgelegt wird. In diesen Fällen würde nach Abb. 2 eine Schichtdicke von ca. 1 cm genügen, damit sich in ihr bei 100 W eine Temperaturdifferenz ΔT von ca. ~ 5 K ausbildet. Die Zeitkonstante τ_0 würde dann nur noch 21 Stunden betragen, so daß die Meßzeit wesentlich kürzer sein könnte.

Für solche Leistungen wären aber auch andere Wärmedämmstoffe geeignet. Polystyrolgranulat ist z.B. ausreichend strahlenbeständig und ebenso wie das von uns eingesetzte VERMICULIT leicht einzufüllen und zu erneuern. Bei einer Wärmeleitfähigkeit von $0.0016 \frac{\text{W}}{\text{cm grad}}$ wäre eine Schichtdicke von 2 cm ausreichend, damit in ihr die Temperatur um 6 K abfällt. Die Zeitkonstanten eines solchen Systems sind:

$$\tau_0 = -20.9 \text{ h} \quad \tau_1 = -1.04 \text{ h} \quad \text{und} \quad \tau_2 = -0.47 \text{ h}$$

Die größere Schichtdicke wäre der kleineren vorzuziehen. Sie schafft weniger Probleme bei der Realisierung einer möglichst konstanten Wärmedämmschicht am Kalorimeterumfang.

Die Abbildung 9 zeigt den auf ΔT_∞ normierten, zeitlichen Verlauf der Temperaturdifferenz $\Delta T = T_2(t) - T_3$. $T_2(t)$ wurde mit Gl. (16) berechnet. Der Abb. 9 wurde die Zeit entnommen, nach der ΔT 90% der Temperaturdifferenz im Gleichgewicht ΔT_∞ erreicht (s. letzte Spalte in der Tabelle auf Seite 19)

$$\Delta T(t_{0.9}) = 0.9 \Delta T_\infty$$

6. Eigenschaften des adiabatischen Kalorimeters

Nachdem die Daten des isothermen Wärmeflußkalorimeters festgelegt worden sind, bleibt zu untersuchen, welche Eigenschaften dieses Kalorimeter hat, wenn es adiabatisch betrieben wird.

Beim adiabatischen Kalorimeter ist die Temperaturänderungsgeschwindigkeit $\frac{dT_2}{dt}$, die sich im Gleichgewicht einstellt, ein Maß für die Wärmeleistung des Fasses.

Die beiden Zeitkonstanten in Gl. (21) $\tau_0 = \frac{1}{w_0}$ und $\tau_1 = \frac{1}{w_1}$ sind beide negativ, so daß für ausreichend lange Wartezeiten $\frac{dT_2}{dt} = \frac{e}{c}$ wird.

Wir untersuchen ähnlich wie beim isothermen Kalorimeter die Abhängigkeit der Temperaturänderungsgeschwindigkeit

$\frac{dT_2}{dt}$ von den Kalorimeterparametern. Für den Standarddatensatz

ist - bezogen auf ein Watt Faßleistung - $\frac{1}{\dot{Q}} \frac{dT_2}{dt} = 0.0144 \frac{K}{h \cdot W}$.

$\frac{dT_2}{dt}$ ist - außer selbstverständlich von der Faßleistung - nur noch von c_F und etwas von der Dicke der Kalorimeterinnenwand abhängig wie die Abb. 10 und 11 zeigen. Alle anderen Parameter lassen $\frac{1}{\dot{Q}} \frac{dT_2}{dt}$ unverändert. Die starke Abhängigkeit der Temperatur-

änderungsgeschwindigkeit von der effektiven spezifischen Wärme c_F des Fasses macht eine Leistungsbestimmung allein aus der Temperaturänderungsgeschwindigkeit beim adiabatischen Kalorimeter etwas problematisch. Sie ist nur dann eindeutig, wenn c_F für das jeweilige Meßobjekt bekannt ist bzw. für verschiedene Meßobjekte nur wenig streut.

In der Abb. 12 ist für eine Faßleistung von 10 W $T_2(t) - T_2(0)$ in der Abb. 13 $\frac{dT_2}{dt}$ als Funktion von t dargestellt. Wir erkennen, daß nach ca. 15 Stunden die Steigung sich praktisch nicht mehr ändert. In beiden Abbildungen sind die typischen Unterschiede gegenüber einem Kalorimeterpunktmodell mit $c_F = 0$ erkennbar: die Temperaturdifferenz $T_2(t) - T_2(0)$ wächst nicht unmittelbar von 0 ausgehend mit konstanter Steigung an, vielmehr bedarf es erst einer "Anlaufzeit" von ca. 15 h bis sich konstante Verhältnisse einstellen.

7. Vergleich beider Kalorimeterprinzipien

Aus dem Vorausgegangenen erkennen wir die Vor- und Nachteile der beiden Kalorimeterprinzipien:

Vorteil des isothermen Kalorimeters: ΔT_{∞} wird - für vorgegebene Materialdaten und geometrische Daten des Kalorimeters lediglich von der im Faß entbundenen Wärmeleistung bestimmt. ΔT_{∞} ist der Wärmeleistung proportional. Für den Standarddatensatz erhalten wir

$$\Delta T_{\infty} = 0.548 \frac{\text{K}}{\text{W}}$$

Offensichtlicher Nachteil des isothermen Kalorimeters ist die verhältnismäßig lange Zeit, die das Kalorimeter bis zur Einstellung des Temperaturgleichgewichtes benötigt.

Vorteil des adiabatischen Kalorimeters: die konstante Steigung $\frac{dT_2}{dt}$ stellt sich nach relativ kurzer Meßzeit (ca. 10-15 h) ein (s. Abb. 13). Ist die spezifische Wärme für alle Meßobjekte die gleiche, kann sie eingeeicht werden, $\frac{dT_2}{dt}$ ist dann der im Faß entbundenen Wärmeleistung direkt proportional. Für den Standarddatensatz erhalten wir:

$$\frac{1}{Q} \frac{dT_2}{dt} = 0.0144 \frac{\text{K}}{\text{hW}}$$

Der Nachteil des adiabatischen Kalorimeters ist die Abhängigkeit des Meßeffectes ($\frac{dT_2}{dt}$) sowohl von der Leistungsdichte L als auch von der spezifischen Wärme c_F des Meßobjektes. Sie läßt eine Auswertung der Messung nur zu, wenn c_F in engen Grenzen (z.B. $< \pm 10\%$) variiert, oder noch besser, konstant ist. Ob c_F für alle Abfallfässer in diesem Sinne als "konstant" angenommen werden kann, muß erst experimentell überprüft werden.

8. Untersuchung der Parametereinflüsse auf die kalorimetrischen Messungen

Für eine kritische Wertung der Messungen ist es wichtig zu wissen, wie stark sich Parameterfehler auf die Meßergebnisse auswirken und ob der Fehlereinfluß während der ganzen Meßzeit konstant oder im Verlauf einer Messung zu verschiedenen Zeiten unterschiedlich groß ist. Eine Funktion $f(a,t)$, die angibt, um wieviel Prozent sich der Meßwert $y(t)$ ändert, wenn ein Parameter a mit einem Fehler von 1% gegenüber seinem Auslegungswert behaftet ist, würde diese Information liefern.

Die Funktion $f(a,t)$ kann leicht konstruiert werden:

$$(27) \quad f(a,t) = \frac{\Delta y(t)}{y(t)} \cdot 100 \approx \frac{dy}{da} \cdot \frac{\Delta a}{y(t)} \cdot 100$$

voraussetzungsgemäß sollte $\Delta a = \frac{a}{100}$ sein. Damit wird:

$$(28) \quad f(a,t) = \frac{dy}{da} \cdot \frac{a}{y}$$

Für die isothermen Messungen ist $y(t)$ durch $T_2(t) - T_3$ aus Gl. (16) gegeben, bei den adiabatischen Messungen steht $y(t)$ für $\frac{dT_2(t)}{dt}$:

$$y(t) = \frac{dT_2(t)}{dt}$$

das man durch Differentiation der Gleichung (21) erhält.

Folgende Parameter wurden in Gl. (28) für a eingesetzt:

$T_0(0)$, $T_1(0)$, c_F , λ_F , α , c_C und λ_I .

(λ_I natürlich nur für den isothermen Betrieb)

Die Abb. 14a bis 14g bzw. 15a bis 15f zeigen die Verläufe von $f(a,t)$ für das isotherme bzw. adiabatische Kalorimeter.

Wir diskutieren die Ergebnisse für beide Systeme getrennt.

Isothermes Kalorimeter:

- Mit Ausnahme von λ_I nimmt der Parametereinfluß auf den Meßeffect mit wachsender Meßzeit ab und geht gegen 0.
- Der Einfluß der verschiedenen Parameter ist sehr unterschiedlich. So muß z.B. λ_F nicht mit großer Genauigkeit bekannt sein. Eine Änderung in λ_F um 14% würde die Temperaturdifferenz um lediglich 1% ändern und das auch nur innerhalb des Zeitbereiches zwischen 6 und 10 h nach Beginn der Messung (s. Abb. 14b)!
- Sehr groß ist der Einfluß einer Vortemperatur des Meßobjektes auf den zu erwartenden Meßeffect, wie man den Abb. 14f und 14g entnehmen kann. Für Meßzeiten, die länger sind als z.B. 100 h wird die Bedeutung von T_0 und T_1 für den Verlauf der Messung immer geringer. Es ist klar, daß die Größe des Temperaturabfalls $T_2(t) - T_3$ über der Wärmedämmschicht im Gleichgewicht ($t \rightarrow \infty$) lediglich von λ_I bestimmt wird.

Will man zur Verkürzung der Meßzeiten die Messung vor Erreichen des Gleichgewichtes abbrechen und mit geeigneten Verfahren (z.B. Least-square-fit) auswerten, dann muß der starke Einfluß von T_0 und T_1 auf das Meßergebnis berücksichtigt werden.

T_0 und T_1 hängen von der Größe der nuklearen Wärmequelle, der Umgebungstemperatur und der Faßschichtung im Lager ab und sind im allgemeinen nicht ausreichend genau bekannt.

Um sich von den wechselnden Bedingungen zu befreien, wird es daher notwendig sein, die Meßobjekte vor der eigentlichen kalorimetrischen Messung in einem temperaturkonstanten Gefäß lange genug aufzubewahren, damit sich in ihnen ein nur von der Leistung des Fasses abhängiges Temperaturniveau einstellt. Kalorimetereichung und spätere Kalorimetermessung sollten möglichst mit demselben Vortempergefäß erfolgen.

Adiabatisches Kalorimeter:

- Beim adiabatischen Kalorimeter wird die Temperaturänderungsgeschwindigkeit nach ausreichend langen Zeiten lediglich von c_F und c_C (spezifische Wärme des Kalorimeterinnenbehälters) bestimmt (s. Abb. 15a und 15d).
- Alle anderen Parameter machen sich zu Meßbeginn unterschiedlich stark bemerkbar; wie beim isothermen Kalorimeter nimmt ihr Einfluß mit wachsender Meßdauer ab.
- Auch beim adiabatischen Kalorimeter wird zu Beginn der Messung die Größe des Meßeffektes (hier Temperaturänderungsgeschwindigkeit) von der Anfangstemperaturverteilung (T_0, T_1) im Faß beherrscht. Die Einstellung eines nur von der nuklearen Leistung abhängigen Temperaturniveaus im Faß vor jeder Messung ist daher auch hier angebracht. Würde man sich bei der Leistungsbestimmung des Fasses nur auf solche Meßwerte beschränken, die 20 h nach Meßbeginn gesammelt wurden, könnte auf die Vortemperung verzichtet werden.

9. Aufbau des Kalorimeters

Nach der Festlegung der Abmessungen und der einzusetzenden Materialien wurde das Kalorimeter konstruiert und gebaut. Die Abb. 16 zeigt stark vereinfacht die Konstruktion. Der Kalorimeteraußenbehälter ist doppelwandig. Er hat einen Durchmesser von 90 cm und eine Höhe von ca. 130 cm. Das Material ist Cu, die Wandstärke beträgt jeweils 5 mm. Der Kalorimeteraußenbehälter wird mit einem Thermostaten (Haake N3T) auf konstanter Temperatur gehalten. Der Außenbehälter wird oben mit einem doppelwandigen, thermostatisierbaren Deckel verschlossen.

Zur Verminderung des Wärmeaustausches zwischen dem Kalorimeteraußenbehälter und der Umgebungsatmosphäre, die zu Temperaturgradienten in der Mantelfläche hätte führen können, wurde das Kalorimeter mit einer 10 cm starken Isolierschicht aus Glaswolle umgeben. Diese Isolation war auch mit Rücksicht auf den adiabatischen Kalorimeterbetrieb erforderlich. Auf den Boden des Kalorimeteraußenbehälters wurde eine kreisrunde 12,5 cm starke Styroporplatte gelegt. Dann wurde der Kalorimeterinnenbehälter eingesetzt und mit Lehren zentriert. Der Kalorimeterinnenbehälter ist ein Gefäß aus Kupfer mit den Abmessungen $\varnothing = 66$ cm, $H = 95$ cm. Seine Wandstärke beträgt 5 mm. Der Raum zwischen Innen- und Außenbehälter wurde mit Vermiculit verfüllt. Dieses Isolationsmaterial kann leicht aus dem Zwischenraum wieder ausgesaugt und - falls erforderlich - erneuert, oder gegen ein anderes Isolationsmaterial ausgetauscht werden. Auch der Innenbehälter bleibt auswechselbar, so daß bei vorgegebenem Außendurchmesser die Wandstärke und die Art des Wärmedämm-Materials künftig verändert werden können.

Der Kalorimeterinnenbehälter kann mit einem Cu-Deckel (innerer Deckel) verschlossen werden. Der Raum zwischen dem äußeren und dem inneren Deckel wird wieder mit einer vorgefertigten Styroporplatte ausgefüllt. Auf der Außenfläche des Kalorimeterinnenbehälters und der Innenfläche des Kalorimeteraußenbehälters ist eine Reihe von Pt 100-Widerstandsthermometern zur Messung des Temperaturabfalls in der Wärmedämmschicht montiert.

Die Widerstandsthermometer vom Typ Pt 100 sind in Vierleiter-technik verschaltet. Die Abb. 17 zeigt das Bestückungsschema und die Meßstellenbezeichnungen in einer Mantelabwicklung.

In Abb. 18 sehen wir das Kalorimeter vor dem Anbringen der äußeren Wärmeisolation. Die Abb. 19 gibt einen Blick in das Innere des aufgebauten Kalorimeters vor dem Einbringen der Wärmedämmschicht. Die äußere thermische Kalorimeterisolation ist bereits angebracht.

10. Aufbau des Abfallfaß-Simulators

Verschiedene Kalorimeterdaten müssen experimentell bestimmt werden. Dazu gehören z.B. die effektive Wärmeleitfähigkeit λ_I der Wärmedämmschicht, der effektive Wärmeübergangskoeffizient α der Luftspalte, die Kalorimeterempfindlichkeit des isothermen Wärmeflußkalorimeters

$$\frac{d(T_2 - T_3)}{dQ}$$

und die spezifische Temperaturänderungsgeschwindigkeit

$$\frac{1}{Q} \cdot \frac{dT_2}{dt} \quad \frac{K}{h \cdot W}$$

beim adiabatischen Kalorimeter.

Die nuklearen Wärmequellen werden durch eine geeignete elektrische Widerstandsheizung simuliert. Sie wird in ein Abfallfaß eingesetzt und mit Zementmilch (gemäß WAK-Formel) vergossen. Die Abb. 20 zeigt das Tragkorbgerüst mit den Widerstandsdrähten. Das Tragkorbgerüst besteht aus vier konzentrischen Zylindergerüsten aus Stahl, deren Radien so gewählt wurden, daß eine möglichst homogene Wärmequellverteilung simuliert werden kann. Der Widerstand der Wicklungen und die zugehörige Stromversorgung wurde so ausgelegt, daß Leistungen zwischen 0 und 150 W im Faß entbunden werden können. Als Widerstandsdraht wurde kunststoffummantelter Cu-Draht mit einem Durchmesser von 1,4 mm verwendet. Ca. 110 m Draht wurden insgesamt verarbeitet. Der Widerstand des Systems beträgt ca. 1.6 Ω . Als Stromquelle stehen zwei leistungsfähige Netzteile hoher Konstanz der Fa. Kingshill zur Verfügung. Für den Leistungsbereich bis 10 W genügt ein Netzteil. Zur Simulation von nuklearen Hot-spots wurden an mehreren Stellen des Gerüstes gesondert zuschaltbare elektrische Wärmequellen (Heizpatronen für LötKolben) untergebracht.

Innerhalb des Abfallfaß-Simulators wurden an 19 über das Faß verteilten Stellen Pt 100-Widerstandsthermometer eingesetzt, um die Temperaturverteilung im Faß ermitteln zu können.

Für die Auswertung der Messungen mit dem Faßsimulator sind für die spezifische Wärme, die Wärmeleitfähigkeit und die Dichte die Werte

$$c_F = 0.72 \frac{\text{W sec}}{\text{g K}}$$

$$\lambda_F = 0.014 \frac{\text{W}}{\text{cm K}} \quad \text{und}$$

$$\rho_F = 3.4 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$$

zu verwenden.

11. Meßwerterfassung

Zur Registrierung und Auswertung der großen Zahl von Temperaturmeßstellen wurde ein Meßplatz mit Scanner (CDS-System) und Rechner (Commodore 3042) für den Betrieb in der Heißen Zelle aufgebaut. Die Analog-Digitalwandlung erfolgt mit einem Digitalvoltmeter der Firma DATA-PRECISION (DATA-PRECISION 3500). Das codierte Signal wird dem Rechner zugeführt und dort verarbeitet und gespeichert.

12. Kalorimeterkalibrierung

Die Kalorimetereichung ist zeitaufwendig. Sie erfolgt in mehreren Schritten:

-Experimentelle Bestimmung von $\frac{dT_2}{dt} = f(Q)$ für das adiabatische und von $\Delta T_{2\infty} = f(Q)$ für das isotherme Wärmeflußkalorimeter.

-Bestimmung einiger Kalorimeterdaten aus den Kalibrierexperimenten

Vor jeder Messung wurden stets die gleichen Anfangsbedingungen geschaffen:

Der Faßsimulator wurde ohne Zuschaltung der Heizung in das Kalorimeter eingesetzt. Der Kalorimeteraußenmantel wurde auf 30 °C temperiert. Die Regelung des Thermostaten hielt die Temperatur auf besser als ± 0.02 K konstant. Durch die gute Außenisolation des Kalorimeters wurde verhindert, daß die erheblichen Schwankungen der Zimmertemperatur im Tag-Nacht-Rythmus in Verbindung mit Langzeitdriften der Außentemperatur auf die Kalorimeteraußenwand durchschlagen konnten.

Vor jeder Messung blieb der Faßsimulator solange unbeheizt im Kalorimeter, bis sich im ganzen System (Kalorimeter und Faßsimulator) eine konstante Temperatur von 30 °C eingestellt hatte. Danach wurde die Faßheizung zugeschaltet. Es wurden vier unterschiedliche Leistungen angefahren um das erwartete Leistungsspektrum zwischen 1 und 10 W abzudecken. Für die Dauer einer Messung wurde die Leistung jeweils konstant gehalten. Bei den isothermen Messungen blieb die Temperatur des Kalorimeteraußenmantels konstant auf $T_3 = 30$ °C. Für den adiabatischen Betrieb wurde die Regelung des Thermostaten so geändert, daß die Temperatur T_3 automatisch der Temperatur des Kalorimeterinnenmantels $T_2(t)$ ohne Zeitverzögerung so nachgeführt wurde, daß die Differenz $T_2(t) - T_3 = 0$ blieb.

Dadurch wurde sichergestellt, daß die im Faß entbundene Wärme im System verblieb und kein Wärmeaustausch mit der Kalorimeteraußenwand stattfinden konnte.

Zur Bestimmung von $T_2(t)$ und $T_3(t)$ wurden jeweils 14 Temperaturmessungen am Innen- und Außenmantel des Kalorimeters (s. Abb. 17) gemittelt und über der Zeit aufgetragen.

In fünf Experimenten wurden für die adiabatischen Messungen vier Leistungen angefahren:

2.32 W, 4.55 W, 6.97 W, 9.29 W und in einer Wiederholungsmessung noch einmal 9.28 W. Die Abb. 21 zeigt die Ergebnisse.

Der Temperaturanstieg $T_2(t)$ des Kalorimeterinnenbehälters erfolgt mit einer Zeitverzögerung. Sie ist im wesentlichen durch die Wärmekapazität des Fasses und des Kalorimeterinnenbehälters und den Wärmeübergang im Luftspalt bedingt. (Am Faßrand muß die Temperatur erst zu ausreichend hohen Werten ansteigen, damit der Wärmetransport durch den Luftspalt merklich einsetzt.) Dann, nach ca. 12.5 h bleibt die Temperaturerhöhung pro Zeiteinheit $\frac{dT_2}{dt}$ konstant.

In der folgenden Tab. 2 sind die aus 5 adiabatischen Messungen gefundenen Temperaturänderungsgeschwindigkeiten mit den zugehörigen integralen Leistungen des Fasses zusammengestellt.

Q in W	$\frac{dT_2}{dt}$ in $\frac{K}{h}$
2.3	0.01842
4.57	0.03400
7.17	0.05495
9.42	0.06920
9.28	0.0650

Tabelle 2: Kalibrierung des adiabatischen Kalorimeters

Trägt man $\frac{dT_2}{dt}$ über der Faßleistung Q auf, so erhält man die Eichgerade für den Faßsimulator (s. Abb. 22).

Es ist:

$$(29) \quad \frac{1}{Q} \frac{dT_2}{dt} = 0.00748 \frac{K}{h \cdot W}$$

Mit Gl. (29) kann aus der gemessenen Steigung $\frac{dT_2}{dt}$ die unbekannte Faßleistung Q bestimmt werden.

Mit $\rho_F = 3.4$, $c_F = 0.72 \frac{Wsec}{g \cdot K}$ und $\lambda_F = 0.014 \frac{W}{cmK}$ für den Faßsimulator (Standarddatensatz Nr. 2) war für

$$\frac{1}{Q} \frac{dT_2}{dt} = \frac{e}{c} = 0.0076 \frac{K}{h \cdot W}$$

abgeschätzt worden.

Die adiabatischen Eichmessungen lassen eine weitergehende Auswertung zu.

$\frac{dT_2}{dt}$ ist eine Funktion von L_{eff} und hängt außerdem von dem Parameter c_F der spezifischen Wärme des Fasses ab.

Nach Gl. (23) ist $L_{eff} = k \cdot L = k \cdot \frac{Q}{v}$. Wir haben k zu 0.75 abgeschätzt.

Für fünf vorgegebene Faßleistungen Q wurde jeweils $\frac{dT_2}{dt}$ gemessen. Durch einen Least-square-fit kann der Parametersatz c_F und k berechnet werden, mit dem die theoretischen Werte für $\frac{dT_2}{dt}$ mit einem minimalen quadratischen Fehler an die experimentellen Werte angepaßt werden können. Die Bedeutung dieser Auswertung liegt darin, daß zwischen c_F und k , die bisher nur aufgrund von Abschätzungen bekannt waren und als zwei unabhängige Parameter behandelt wurden, jetzt durch eine Meß-

reihe eine Verbindung hergestellt werden kann.

Man erhält:

$$(30) \quad c_F = 1.02 (k-0.1)$$

Alle Wertepaare c_F , k , die die obige Bedingung erfüllen, liefern theoretisch die gleiche spezifische Empfindlichkeit des adiabatischen Kalorimeters:

$$\frac{1}{Q} \frac{dT_2}{dt} = 0.00748 \frac{K}{hW}$$

Sieht man c_F als die Größe an, deren Wert verlässlicher bekannt ist ($c_F = 0.72 \frac{Ws}{gK}$), dann ergibt sich k mit Gl. (30) zu:

$$(31) \quad k = 0.74$$

Das bedeutet, daß nur ca. 70% der Faßleistung über die Mantelfläche des Kalorimeterinnenbehälters transportiert werden.

In einer folgenden Meßreihe wurde das System als isothermes Wärmeflußkalorimeter betrieben. Vor jeder Messung wurde solange gewartet, bis sich ein konstantes Temperaturniveau eingestellt hat: $T_0(0) = T_1(0) = T_2(0) = T_3(0) = 30 \text{ }^\circ\text{C}$. Erst dann wurde die Faßheizung mit der gewünschten Leistung zugeschaltet und die Temperaturdifferenz $T_2(t) - T_3$ (bei festgehaltener Temperatur $T_3 = 30 \text{ }^\circ\text{C}$) als Funktion der Zeit gemessen. In der Abb. 23 sind die vier Messungen zusammengefaßt.

Normalerweise erfolgt die Eichung eines isothermen Wärmeflußkalorimeters so, daß die Temperaturdifferenz $T_2(t) - T_3$ nach ausreichend langen Wartezeiten bestimmt und über der bekannten Leistung der Wärmequelle aufgetragen wird: $\Delta T_{2\infty} = f(Q)$.

Die Zeitkonstanten $\tau_i = \frac{1}{w_i}$ in Gl. (16) sind negativ, so daß die drei mit den Exponentialfunktionen multiplizierten Summanden in Gl. (16) für große Zeiten verschwinden.

Die vier Eichmessungen (s. Abb. 23) wurden dazu benutzt; um die Parameter α und λ_I , die nur mit einer großen Unsicherheit bekannt waren, mit Hilfe des Least-square-fit-Verfahrens zu bestimmen. L_{eff} wurde mit $k = 0.68$ und Gl. (24) berechnet. Zusammen mit den so ermittelten Werten für α und λ_I enthält die folgende Tabelle auch $\Delta T_{2\infty}$, das mit Gl. (16) berechnet wurde:

$$(31) \quad \Delta T_{2\infty} = \lim_{t \rightarrow \infty} T_2(t) = \frac{a_1 \cdot e}{c_1 d} + b_1 \left(\frac{a_0 e}{d} - d_0 \right) - a_0 \cdot d_0$$

Q in W	L_{eff} in $\frac{W}{cm^3}$	α in $\frac{W}{cm^2 K}$	λ_I in $\frac{W}{cm K}$	$\Delta T_{2\infty}$ in K
2.3	$1.252 \cdot 10^{-5}$	$3.51 \cdot 10^{-4}$	$7.67 \cdot 10^{-4}$	1.13
4.55	$2.477 \cdot 10^{-5}$	$3.21 \cdot 10^{-4}$	$7.53 \cdot 10^{-4}$	2.28
6.9	$3.756 \cdot 10^{-5}$	$3.89 \cdot 10^{-4}$	$7.56 \cdot 10^{-4}$	3.44
9.28	$5.052 \cdot 10^{-5}$	$3.49 \cdot 10^{-4}$	$7.35 \cdot 10^{-4}$	4.76

Tabelle 3: Bestimmung der Effektivwerte der Wärmeübergangszahl α und der Wärmeleitfähigkeit $\lambda_I =$ der Isolationsschicht.

Aus den vier Messungen wurden Mittelwerte für α und λ_I berechnet, die systemspezifisch sind und künftigen Auswertungen zugrundegelegt werden:

$\bar{\alpha} = 3.53 \cdot 10^{-4} \frac{W}{cm^2 K}$
$\bar{\lambda}_I = 7.53 \cdot 10^{-4} \frac{W}{cmK}$

Die Eichkurve des isothermen Wärmeflußkalorimeters:

$$\Delta T_{2\infty} = f(Q)$$

ist in Abb. 24 dargestellt. Wegen der langen Meßzeiten, die für die Bestimmung von $\Delta T_{2\infty}$ benötigt werden, ist sie jedoch von geringer praktischer Bedeutung. Wollte man den Gleichgewichtszustand abwarten, müßte die Meßzeit auf mehr als 10 d ausgedehnt werden. Im Abschnitt 14 werden wir ein Auswerteverfahren diskutieren, das eine wesentliche Verkürzung der Meßzeiten erlaubt.

Wie gut die in Gl. (16) definierte analytische Funktion das Systemverhalten beschreibt, zeigt die Tabelle 4 auf Seite 35. Sie enthält neben den experimentellen Werten für $T_2(t) - T_3 = \Delta T_{2ex}$ (für $Q = 9.28$ W) auch die theoretisch mit $T_2(t)$ aus Gl. (16) berechneten Temperaturdifferenzen ΔT_{2theo} .

Für $\bar{\alpha}$ und $\bar{\lambda}_I$ wurden die Ergebnisse des Least-square-fits der betreffenden Messung verwendet.

Die vierte Spalte enthält die Differenzen zwischen den experimentellen und den theoretischen Werten. Die Übereinstimmung ist hervorragend. Für nur zwei Meßpunkte ist die Abweichung größer als 0,02 K! Die Unterschiede zwischen Experiment und Rechnung sind so gering, daß die Kurvenverläufe (im Maßstab der Abb. 23) zusammenfallen. Ähnlich gut fällt der Vergleich auch für die anderen Messungen aus. Die Ergebnisse lassen den Schluß zu, daß unser Kalorimetermodell alle wesentlichen Eigenschaften des realen Systems genau genug beschreibt.

Solange die Anfangsbedingungen ($T_0(0)$, $T_1(0)$, $T_2(0)$) so gut bekannt sind wie bei den hier beschriebenen Experimenten zur Kalorimetereichung, lassen sich die experimentellen Daten theoretisch durch physikalisch begründete Funktionen sehr gut fitten.

t	$\Delta T_{2ex}(t)$	$\Delta T_{2theo}(t)$	$\Delta T_{2ex}(t) - \Delta T_{2theo}(t)$
in h	in K	in K	in K
.00	.000	.000	+ .000
1.00	.006	.006	+ .000
2.00	.028	.022	+ .006
3.00	.050	.046	+ .004
4.00	.080	.076	+ .004
5.00	.118	.110	+ .008
6.00	.157	.148	+ .009
7.00	.198	.187	+ .011
8.00	.238	.229	+ .009
12.00	.402	.403	- .001
16.00	.584	.580	+ .004
20.00	.760	.754	+ .006
24.00	.917	.921	- .004
28.00	1.079	1.082	- .003
32.00	1.227	1.235	- .008
36.00	1.364	1.383	- .019
40.00	1.513	1.524	- .011
44.00	1.656	1.659	- .003
48.00	1.782	1.788	- .006
52.00	1.912	1.911	+ .001
56.00	2.029	2.029	+ .000
60.00	2.133	2.142	- .009
64.00	2.253	2.250	+ .003
68.00	2.361	2.354	+ .007
72.00	2.448	2.452	- .004
76.00	2.556	2.547	+ .009
80.00	2.641	2.638	+ .003
84.00	2.717	2.724	- .007
88.00	2.800	2.807	- .007
92.00	2.893	2.886	+ .007
96.00	2.968	2.962	+ .006
100.00	3.038	3.034	+ .004
104.00	3.113	3.104	+ .009
108.00	3.164	3.170	- .006
112.00	3.233	3.234	- .001
116.00	3.304	3.294	+ .010
120.00	3.364	3.353	+ .011
127.00	3.445	3.448	- .003
133.00	3.507	3.525	- .018
139.00	3.614	3.596	+ .018
145.00	3.673	3.663	+ .010
151.00	3.735	3.725	+ .010
157.00	3.776	3.784	- .008
163.00	3.844	3.838	+ .006
169.00	3.896	3.890	+ .006
175.00	3.932	3.938	- .006
181.00	3.960	3.982	- .022
187.00	4.029	4.024	+ .005
193.00	4.069	4.064	+ .005
199.00	4.103	4.100	+ .003
205.00	4.118	4.135	- .017

Tabelle 4: Vergleich experimentell bestimmter und theoretisch berechneter Temperaturdifferenzen im Kalorimeter.

13. Untersuchung der Auswirkung nuklearer Hot-spots im Faß

Die bisherigen Kalibrierexperimente wurden mit dem homogen beheizten Faßsimulator ausgeführt. Wie in Abschnitt 10 beschrieben, wurden im Faßsimulator mehrere Heizpatronen in verschiedenen Abständen von der Faßachse und in verschiedenen Höhen angebracht, um nukleare Hot-spots zu simulieren und ihre Auswirkung auf das Meßergebnis zu untersuchen. Aus Zeitgründen konnte nur ein Experiment durchgeführt werden, bei dem zur homogen verteilten Heizleistung von 7 W ein Hot-spot im Abstand von 40 mm vom Rand der Einsatztrommel und 360 mm vom Faßboden mit 2.3 W zugeschaltet wurde. Man stellt jedoch fest, daß selbst bei so extremer Leistungsunsymmetrie im Faß, die konstante Temperaturverteilung am Umfang des Kalorimeterinnenbehälters, die man bei homogener Wärmequellverteilung beobachtet, nicht verändert wird. Die experimentell eingestellte integrale Heizleistung betrug 9.3 W. Dem steht eine Leistung von 9.38 W gegenüber, die mit Hilfe eines Least-square-fits bezüglich L aus den Messungen t_i , $T_2(t_i)$ berechnet wurde. Die Leistungsbestimmung wird also durch die Anwesenheit lokaler Hot-spots nur unwesentlich verfälscht.

14. Untersuchungen zur Meßzeitverkürzung

Für die Bestimmung der nuklearen Wärmequellen ($N \leq 10$ W) in einem Abfallfaß mit einem isothermen Wärmeflußkalorimeter sind sehr lange Meßzeiten erforderlich. Normalerweise wird mit Hilfe der Eichkurve (Abb. 24) aus der gemessenen Gleichgewichtstemperaturdifferenz $\Delta T_{2\infty}$ auf die Faßleistung Q geschlossen.

Unser Kalorimeter erreicht 98% der Gleichgewichtstemperatur jedoch erst nach mehr als 340 h Meßzeit! So lange Meßzeiten können für einzelne Kalibriermessungen noch akzeptiert werden, für Betriebsmessungen wären sie unzumutbar.

Wir waren daher von Anfang an bestrebt, den Verlauf von $\Delta T_2(t)$ im Kalorimeter durch analytische Funktionen zu beschreiben, um die Auswertung nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate vornehmen zu können. Ein Beispiel für die erreichbare Qualität solcher Auswertungen wurde im Abschnitt 12 gegeben (s. Tabelle auf Seite 35).

Es lag nahe zu prüfen, ob es möglich ist, die Messung lange vor Erreichen des Temperaturgleichgewichtes abzurechnen und mit den bis dahin angesammelten Meßwerten ($t_i, \Delta T_{2ex}(t_i)$) die Funktion $T_2(t)$ der Gleichung (16) bezüglich der spezifischen nuklearen Wärmeleistungsdichte L , zu fitten.

Für den Test des vorgeschlagenen Verfahrens eignen sich die bereits durchgeführten Kalibriermessungen. Mit ihnen wird der Ablauf einer realen Messung mit einem Faß unbekannter Leistung dadurch nachvollzogen, daß alle bis zur Zeit t gemessenen Temperaturdifferenzen $\Delta T_{2ex}(t)$ bezüglich der Faßleistung einem Least-square-fit unterworfen werden. Durch fortschreitendes Hinzufügen eines weiteren Meßpunktes wird untersucht, welches die kürzeste Meßzeit ist, die ausreicht, um die Faßleistung auf z.B. $\pm 10\%$ genau berechnen zu können.

Der numerische, für die Auswertung notwendige Aufwand, ist groß. Es sind partielle Ableitungen von $T_2(t)$ aus Gl. (16) nach dem jeweils zu fittenden Parameter zu bilden. Dabei ist zu berücksichtigen, daß die kompakte Schreibweise der Gl. (16) erst durch zahlreiche Substitutionen zustande kam.

Die umfangreichen numerischen Rechnungen wurden von demselben Rechner ausgeführt, der auch für die Datenerfassung eingesetzt wurde.

Für die Datenerfassung und -auswertung mußte die notwendige Software geschrieben werden.

Die Abb. 26 zeigt für vier Faßleistungen das Ergebnis der Least-square-fits (punktierte Kurven) als Funktion der für die Fits berücksichtigten Meßzeit t . Wir sehen, daß bereits nach 30 Stunden Meßzeit die eingestellte Faßleistung (ausgezogene Kurven) nach dem benutzten Näherungsverfahren mit einem Fehler berechnet wird, der kleiner als 10% ist.

15. Untersuchung des Einflusses der Vortemperatur

Alle bisherigen Kalibrierexperimente (also auch die in Abb. 26) erfolgten so, daß das unbeheizte Faß in das Kalorimeter eingesetzt wurde und erst nach Einstellung eines Temperaturgleichgewichtes im Kalorimeter und im Meßobjekt (in der Regel 30 °C) die Heizung zugeschaltet und die Messung begonnen wurde. Dieses Vorgehen ist für nuklear beheizte Fässer nicht typisch. In ihnen sind die Wärmequellen von Anfang an wirksam, lange vor dem Einsatz des Fasses in das Kalorimeter. In den nuklear beheizten Fässern wird sich daher eine Temperatur einstellen, die über der Umgebungstemperatur liegt. Sie wird von der Faßleistung, der Umgebungstemperatur und der Wärmeabfuhr im Faßlager abhängen. In den Abbildungen 14f und 14g wurde gezeigt, daß die - im allgemeinen unbekannte - Temperatur, mit der das Faß in das Kalorimeter eingesetzt wird, auf das Meßergebnis $T_2(t)$ in den ersten Stunden einer Messung einen großen Einfluß besitzt.

Die Abhängigkeit der Meßergebnisse von der Umgebungstemperatur und den unterschiedlichen Wärmeabfuhrbedingungen läßt sich stark mindern, wenn das Faß vor seinem Einsatz in das Kalorimeter

in einem Vortempergefäß aufbewahrt wird, das sich auf konstanter Temperatur befindet. Das mittlere Temperaturniveau im Faß hängt dann nur noch von der Faßleistung ab.

Das Vortempergefäß liegt in der Rückleitung des Kalorimeteraußenmantels (s. Abb. 25) und wird wie dieser vom Thermostaten auf konstantem Temperaturniveau gehalten.

Zur Simulation realer Bedingungen wurde in einer weiteren Versuchsserie die Heizung mehrere Tage vor dem Beginn der kalorimetrischen Messung zugeschaltet und das Faß im Vortempergefäß bis zur Einstellung konstanter Temperaturverhältnisse aufbewahrt.

Anschließend wurde das Faß in das Kalorimeter umgesetzt und die Messung gestartet. Die Abb. 27 zeigt die Ergebnisse für zwei gefahrene Faßleistungen von 6.95 W und 9.25 W.

Ähnlich wie in der Abb. 26 ist in Abb. 28 das Ergebnis von Least-square-fits dargestellt (punktierte Kurven). Die Messungen wurden gefittet bezüglich der Parameter L , $T_0(o)$, $T_1(o)$ und $T_2(o)$ mit fortschreitend wachsender Anzahl der für den Fit berücksichtigten Punktpaare t_i , $T_2(t_i)$.

Wir entnehmen der Abb. 28, daß im Falle der Vortemperung bereits 30 Stunden nach Beginn der Messung die so berechnete Faßleistung auf besser als 10% mit der jeweils elektrisch eingestellten Leistung übereinstimmt.

Nach der drastischen Meßzeitreduktion, die durch die Vortemperung in Verbindung mit der Auswertetechnik möglich ist, dürfte das Verfahren damit auch für die betriebsmäßige Bestimmung der nuklearen Wärmeleistungsdichten in Abfallfässern geeignet sein.

16. Kalorimetrische Messung der Wärmeleistung nuklearer
Wärmequellen in 200 l MAW-Abfallfässern.

Kalorimeter, Thermostat und Vortempergefäß wurden auf eine gemeinsame Platine gesetzt. Für den heißen Betrieb in den heißen Zellen der HDB wurden die Deckel von Kalorimeter u. Vortempergefäß soweit umgerüstet, daß ein Be- und Entladen des Kalorimeters mit aktiven Abfallfässern mit Hilfe eines Schwerlastmanipulators möglich war. Die Abb. 25 zeigt schematisch den Versuchsaufbau. Die Stromversorgung für den Thermostaten und die Pt-100-Widerstandsthermometer wurde in zwei Kabelsträngen zusammengefaßt und auf fernbedienbare Stecker aufgeschaltet. Für die Heiße Zelle wurde ein spezieller Abschirmstopfen gebaut, durch den die Stromversorgung und die Meßleitungen geführt wurden, so daß der Rechner, die Meßwerterfassung und -verarbeitung außerhalb der Heißen Zelle aufgestellt werden konnten. Mit dieser Anordnung wurde die Wärmeleistung von sieben 200-l-Abfallfässern kalorimetrisch bestimmt.

Die Faßdaten können der Tabelle 5 entnommen werden. Vier Fässer enthielten ausschließlich Hülsen von kompletten KWO-Brennelementen mit jeweils unterschiedlichem Abbrand: 24.6, 28.08, 31.3 und 39.09 Gwd/t_u.

In drei weiteren Fässern wurden Hülsen und Strukturteile eines KWO-Brennelementes, das 29.4 Gwd/t_u erreichte, sortiert eingeladen:

- Hülsen (von nur 98 Brennstäben) + zugehörige Kleinteile
- Führungsrohre und Abstandshalter
- Kopf- und Fußstücke + zugehörige Kleinteile

(laufende Nr. 5 bis 7 der Tabelle 5).

Lfd. Nr.	Faß-Nr.	Chargen-Nr.	BE-Nr.	Faßinhalt	Anfangsanreicherung in %	Abbrand (GWd/t _U)	Reaktor-entladung (Datum)	WAK-Einlagerung (Datum)	Aufarbeitung (Datum)	Betoniert (Datum)
1	45073	39/40	154	Hülsen (v. einem kompletten BE)	3.1	39.05	8/74	8/75	1./2. 6.77	7.6.77
2	40299	54/55	237	"	3.1	31.3	5/76	5/77	2./3. 6.83	1.7.83
3	18424	19/20	131	"	3.1	28.08	8/74	8/75	27./28.4.77	18.5.77
4	65345	52/53	193	"	3.1	24.6	5/76	5/77	31.5./1.6.83	3.6.83
5	2966/4	62	250	Hülsen von 98 Brennstäben	3.1	29.4	5/76	5/77	17.6.83	1.7.83
6	4195/7	62	250	Strukturteile für kalorimetrische Messungen (Führungsrohre u. Abstandshalter v. 1 BE)	3.1	29.4	5/76	5/77	17.6.83	1.7.83
7	3434/9	62	250	Strukturteile für kalorimetrische Messungen (Kopf- u. Fußteil v. 1 BE)	3.1	29.4	5/76	5/77	17.6.83	1.7.83

Tabelle 5: WAK-Abfallgebinde für kalorimetrische Messungen.

Die Tabelle 6 zeigt eine Zusammenstellung der einzelnen Komponenten, der Gewichte und der verwendeten Werkstoffe eines KWO-Brennelementes. Gleichzeitig wird dort in der 2. Spalte eine Zuordnung zum Hülsen- (H), Strukturteil- (S) und Endstückfaß (E) gegeben. Die Tabelle 7 enthält die entsprechenden Daten eines Biblis-Brennelementes.

In den Abbildungen 29a bis 37a sind die Meßkurven - das sind die über 12 Positionen am Kalorimeterumfang (s. hierzu auch Abb. 17) gemittelten Temperaturdifferenzen zwischen Kalorimeterinnen- und -außenwand - als Funktion der Zeit dargestellt.

Im ersten Beispiel wurde ein Hülsen-Abfallfaß (Nr. 45073) mit Vortemperatur in das Kalorimeter eingebaut (Abb. 29a). Die Messung wurde später mit dem gleichen, jedoch nicht vortemperten Faß wiederholt (Abb. 30a), um den Einfluß der Vortemperatur auf die Meßzeitverkürzung auch im heißen Betrieb zu dokumentieren. In beiden Fällen wird ein Temperatursturz zu Beginn der Messung beobachtet, der durch das Öffnen des Kalorimeters, dessen Außenmantel auf 35°C gehalten wurde, bedingt ist. Ohne Vortemperatur sinkt die Temperatur des Kalorimeterinnenbehälters jedoch durch das Einbringen des relativ kalten Abfallfasses noch tiefer ab. Ein Vergleich beider Messungen (Abb. 29a mit 30a) zeigt, daß der Temperaturgleichstand ($\Delta T = T_2(t) - T_3 = 0$) nach der Beladung des Kalorimeters mit dem nicht vortemperten Faß erst 120 h später erreicht wird als mit dem vortemperten Faß.

Durch eine Wiederholungsmessung, die nach mehr als einem halben Jahr mit demselben Faß (Nr. 45073) durchgeführt wurde, (s. Abb. 31a) sollte die Reproduzierbarkeit der Leistungsbestimmung geprüft bzw. das Abklingverhalten der nuklearen Wärmequellen untersucht werden.

Komponenten	Faßbezeichnung	Stück	Legierung	Gesamtgewicht [kg/BE]	Gewichtskonzentration von Co in % nach (4)	Co-Gewicht in g/BE	Flußfaktor nach (4)	Co-Gewicht · Flußfaktor in g/BE nach (4)	Co-Gewicht · Flußfaktor in g/t _{SM} nach (4)
Hüllrohre	H	180	Zry-4	80.60	0.002	1.612	1.0	1.612	5.85
Brennstabfedern	H	180	1.4568	2.82	0.1	2.82	0.3	0.846	3.06
Stützrohre	H	180	1.4541	1.44	0.1	1.44	0.3	0.432	1.57
Führungsrohre	S	16	1.4541	6.19	0.1	6.19	1.0	6.19	22.36
Abstandhalter	S	8	Inc 718	6.18	0.1	6.18	1.0	6.18	22.33
Kopf	E	1	1.4541	8.75	0.1	8.75	0.1	0.875	3.16
Fuß	E	1	1.4541	7.73	0.1	7.73	0.1	0.773	2.79
Niederhaltebolzen	E	8	Inc X-750	0.62	0.1	0.62	0.1	0.062	0.22
Druckfedern	E	8	Inc X-750	0.4	0.1	0.4	0.1	0.04	0.14
Federteller	E	8	1.4541	0.04	0.1	0.04	0.1	0.004	0.01
Hülsen	E	16	1.4541	0.61	0.1	0.61	0.1	0.061	0.22
Quetschmuttern	E	16	1.4571	0.05	0.1	0.05	0.1	0.005	0.02

Tabelle 6: Komponenten, Gewichte, Legierungsbestandteile und Co-Gehalte eines DWR-Brennelementes Typ KWO.

Komponenten	Faßbezeichnung	Legierung	Gesamtgewicht [kg/BE]	Gewichtskonzentration von Co in % nach (4)	Co-Gewicht in g/BE	Flußfaktor nach (4)	Co-Gewicht · Flußfaktor in g/BE nach (4)	Co-Gewicht · Flußfaktor in g/t _{SM} nach (4)
Hüllrohre	H	Zry-4	157.4	0.002	3.148	1.0	3.148	5.90
Brennstabfedern	H	1.4568	4.916	0.1	4.916	0.3	1.475	2.77
Stützrohre	H	1.4541	6.06	0.1	6.06	0.3	1.818	3.41
Führungsrohre	S	1.4541	15.28	0.1	15.28	1.0	15.28	28.65
Abstandshalter	S	Inc. 718	8.72	0.1	8.72	1.0	8.72	16.35
Kopf	E	1.4541	14.54	0.1	14.54	0.1	1.454	2.73
Fuß	E	1.4541	13.85	0.1	13.85	0.1	1.385	2.60
Niederhaltebolzen	E	Inc X-750	2.43	0.1	2.43	0.1	0.243	0.46
Druckfedern	E	Inc X-750	1.89	0.1	1.89	0.1	0.189	0.35
Federteller	E	1.4541	0.13	0.1	0.13	0.1	0.013	0.02
Hülsen	E	1.4541	0.38	0.1	0.38	0.1	0.038	0.07
Quetschmuttern	E	1.4571	0.06	0.1	0.06	0.1	0.006	0.01
Scheiben	E	1.4541	0.06	0.1	0.06	0.1	0.006	0.01
Muttern	E	1.4541	0.28	0.1	0.28	0.1	0.028	0.05
Hülsen	E	1.4541	0.38	0.1	0.38	0.1	0.038	0.07
Ringe	E	1.4541	0.1	0.1	0.1	0.1	0.01	0.02

Tabelle 7: Komponenten, Gewichte, Legierungsbestandteile und Co-Gehalte eines DWR-Brennelementes Typ Biblis.

Die Abb. 32a bis 34a zeigen jeweils den Aufbau der Temperaturdifferenz $\Delta T = T_2(t) - T_3$ als Funktion der Zeit im Verlauf der kalorimetrischen Messung der vorgetemperten, mit Hülsen eines ganzen BE's beladenen Fässer:

Nr. 18424

Nr. 65345

Nr. 40299

Die Abb. 35a bis 37a zeigen ΔT als Funktion der Meßzeit für die 3 mit sortierten Hülsen- und Strukturabfällen beladenen Fässer

Nr. 2966/4

Nr. 4195/7

Nr. 3434/9

des KWO-BE's 250.

In den Abb. 29b bis 37b ist das Ergebnis der Auswertung der Messung von $\Delta T(t) = T_2(t) - T_3$ mit Hilfe des Least-square-fits von $T_2(t)$ aus Gl. (16) bezüglich der im Faß absorbierten nuklearen Wärmeleistung Q als Funktion der Meßzeit t dargestellt. Während die berechneten Leistungswerte Q für die nicht vorgetemperten Fässer (Abb. 30b und 31b) erst nach ca. 400 h gegen einen Grenzwert laufen, wird eine verlässliche Aussage über die Leistung in den vorgetemperten Fässer (Abb. 29b und 32b bis 37b) bereits nach ca. 50 h Meßzeit möglich. In der folgenden Tabelle 8 sind die kalorimetrisch gemessenen Wärmeleistungen der einzelnen Fässer zusammengestellt.

Faß-Nr.	Inhalt	Abbrand [GWd/t]	Wartezeit [a]	Leistung [W]	Auswertung aus Abb. Nr.
45073	80.60 kg Hülsen + 3.47 kg Brennstab- federn u. Stützrohre	39.05	7.83 7.91 8.37	2.42 2.41 2.31	29b 30b 31b
40299	80.60 kg Hülsen + 3.47 kg Brennstab- federn u. Stützrohre	31.3	7.75	2.12	32b
18424	80.60 kg Hülsen + 3.47 kg Brennstab- federn u. Stützrohre	28.08	7.92	1.6	33b
65345	80.60 kg Hülsen + 3.47 kg Brennstab- federn u. Stützrohre	24.6	7.17	1.83	34b
2966/4	43.55 kg Hülsen + 1.875 kg Brennstab- federn u. Stützrohre	29.4	7.67	1.67	35b
4195/7	6.19 kg Führungs- rohre 7.73 kg Abstands- halter	29.4	7.67	8.0	36b
3434/9	16.48 kg Kopf + Fuß 1.72 kg Kleinteile	29.4	7.67	1.44	37b

Tabelle 8: Zusammenstellung kalorimetrisch gemessener Wärmeleistungen in WAK-Hülsen- und Strukturabfallfässern.

17. Diskussion

Zur Absicherung von Planungsvorgaben für die Konditionierung von Hülse und Strukturteilen wurden gezielte kalorimetrische Messungen der in zementfixierten Abfällen freigesetzten Wärmeleistungen ausgeführt. Die Wärmefreisetzung wird durch die Absorption der von Radionukliden emittierten Strahlung im Zement-Strukturabfallgebäude verursacht.

Von Interesse war die Untersuchung der Abbrandabhängigkeit der in den Abfallfässern deponierten nuklearen Wärmeleistung und ihre Verteilung auf Strukturmaterialanteile, die sich während ihrer Einsatzzeit im Core in unterschiedlichen Flußniveaus befunden haben. In (4) wurde vorgeschlagen, den Aktivierungsrechnungen eine vereinfacht abgestufte Neutronenflußverteilung zugrunde zu legen:

- 10% für Materialien, die sich in der Corerandzone befinden, das sind im wesentlichen die Kopf- und Fußstücke und zugehörigen Kleinteile
- 30% für einen anschließenden Zwischenbereich in dem die Brennstabfedern und die Stützrohre aktiviert wurden und
- 100% für den eigentlichen Corebereich mit den Hüllrohren, Abstandshaltern und den Führungsrohren

(Flußfaktoren siehe Spalte 8 der Tabelle 6 und Spalte 7 der Tabelle 7).

Schon die ersten Abschätzungen zeigten, daß für Abklingzeiten bis zu 50 Jahren der Hauptbeitrag zur Wärmeleistung von Co^{60} herrührt, das durch Aktivierung des als Verunreinigung in den eingesetzten Werkstoffen enthaltenen Kobalts entsteht. Die Abb. 38 (aus (4)) macht diesen Sachverhalt deutlich. Für längere Wartezeiten zwischen 50 und 150 Jahren wird Ni^{63} ($\tau_{1/2} = 100$ a) und anschließend Ni^{59} ($\tau_{1/2} = 7.5 \cdot 10^4$ a) Hauptträger der nuklearen Wärmeleistung, wenn auch auf deutlich niedrigerem Niveau.

Die Legierungszusammensetzungen der Werkstoffe von DWR-Brennelementen sind in der Tabelle 9 zusammengestellt. Dabei stützt sich die Tabelle 9 auf den Datensatz in (4) ab.

Zum besseren Vergleich enthalten die Tabellen 6 und 7 u.a. für die beiden DRW-BE-Typen "KWO" und "Biblis" mit dem Flußfaktor multiplizierte Co-Gewichte der einzelnen BE-Komponenten in $g/_{BE}$ und $g/_{tSM}$.

	ZIRKALOY-4	1.4541	1.4538	INC-718	INC-X750
B	.0	.0	.0	.003	.0
C	.0	.100	.020	.050	.050
AL	.0	.0	1.500	.500	.800
SI	.0	1.000	1.000	.300	.500
P	.0	.040	.040	.010	.0
S	.0	.030	.030	.010	.010
TI	.0	.500	.0	1.000	2.500
CR	.100	18.000	17.000	18.800	15.500
MN	.0	2.000	1.000	.200	.800
FE	.210	67.830	72.040	17.800	7.000
CO	.002	.100	.100	.100	.100
NI	.0	10.500	7.200	53.000	71.400
CU	.0	.0	.0	.200	.300
ZR	98.060	.0	.0	.0	.0
NE	.0	.0	.0	4.800	.920
MO	.0	.0	.0	3.000	.0
SN	1.500	.0	.0	.0	.0
TA	.0	.0	.0	.400	.080

TABELLE 9: CHEMISCHE ZUSAMMENSETZUNG VON LEGIERUNGEN IN
DWR-BRENNELEMENTEN [AUS KFK-BERICHT 3221]
(KONZENTRATIONEN IN GEWICHTSPROZENT)

BE-Komponenten	Hülsen (H)	Abstandshalter + Führungsrohre (S)	Endstücke (E)
verwendeter Datensatz	KfK	KfK	KfK
BE-Typ BIBLIS	12.08	45.0	6.49
BE-Typ KWO	10.48	44.69	6.56

Tabelle 10: Flußfaktor gewichtete Co-Gehalte in g/_{tSM}.

Unter Berücksichtigung dieser Co-Gehalte, wurde mit dem KORIGEN-Programm die Wärmeleistung für Strukturabfälle eines BE's vom Typ "KWO" unter der Annahme eines Abbrandes von 29.4 GWd/t bei einer Wartezeit von 7.7 a berechnet, um die theoretischen Erwartungen (5) mit den kalorimetrisch gemessenen Wärmeleistungen vergleichen zu können. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 11 zusammengefaßt. Dabei ist zu beachten, daß 4% der insgesamt pro Zerfall freigesetzten Energie auf β 's und 96% auf γ 's entfallen.

Im Faß werden die β 's vollständig, die γ 's dagegen nur zu ca. 80% absorbiert, so daß nur ca. 80% ($(1 \cdot 0,04 + 0,8 \cdot 0,96) = 0,81$) der nuklearen Gesamtleistung unmittelbar im Faß verbleiben.

Zwischen den berechneten Wärmeleistungen der Komponenten eines KWO- und eines Biblis-BE's bestehen nur geringe Unterschiede, so daß die experimentellen Ergebnisse mit den Strukturbestandteilen des KWO-BE's 250 direkt auf BE's vom Typ Biblis übertragen werden können.

Für die Hülsen des KWO-BE 250 erhalten wir kalorimetrisch einen höheren Wert als die KORIGEN-Rechnungen erwarten lassen. Dieses Ergebnis hebt sich von den kalorimetrischen Messungen, die mit

den 4 anderen Abfallfässern, welche Hülsenabfälle der KWO-BE's 154, 237, 131 und 193 enthielten insofern ab, als bei ihnen die experimentell gefundenen, im Faß deponierten Wärmeleistungen stets 20-30% kleiner waren als die mit dem KORIGEN-Programm berechneten. In der Abb. 39, in der die kalorimetrisch gemessenen, und die mit KORIGEN berechneten Wärmeleistungen von Hülsenabfallfässern einander gegenüber gestellt sind, wird dieser Sachverhalt deutlich. Berücksichtigt man die Ausfließverluste (ca. 19%), dann ist die Übereinstimmung von Experiment und theoretischer Erwartung bei diesen Fässern zufriedenstellend.

Auch für das "Struktur"- und für das "Endstückfaß" liefern die kalorimetrischen Messungen kleinere Wärmeleistungen als die entsprechenden KORIGEN-Rechnungen.

BE-Typ	Wärmeleistung in W/t_{SM}		
	Hülsen	Abstandshalter + Führungsrohre	Endstücke
"BIBLIS" (KORIGEN)	10.2	39.7	5.69
"KWO" (KORIGEN)	8.8	39.7	5.88
"KWO" (kalori- metrisch)	11.08	28.89	5.20

Tabelle 11: Vergleich kalorimetrisch bestimmter mit berechneten Wärmeleistungen der Strukturteile des KWO-Brennelementes 250, Abbrand $29.4 \text{ GWd}/t_{SM}$.

18. Literaturhinweise

- (1) H. Frotscher, H. Gräbner, H. Kapulla,
Konditionierung von Hüllen bestrahlter Brennelemente
durch Walzen in Beton
EUR 7728 DE (1982)
- (2) M.J. Bell,
ORIGEN the ORNL Isotope Generation and
Depletion Code,
ORNL 4628
- (3) Defoe C. Ginnings,
Precision Measurement and Calibration
Selected NBS Papers on Heat
NBS Special Publication 300 Volume 6
- (4) H.O. Haug,
Zerfallsrechnungen verschiedener mittelaktiver
und actinidenhaltiger Abfälle des LWR-Brenn-
stoffkreislaufes,
Teil I
KfK 3221 (Oktober 1981)
- (5) U. Fischer, H.W. Wiese,
Verbesserte konsistente Berechnung des nuklearen
Inventars abgebrannter DWR-Brennstoffe auf der
Basis von Zell-Abbrand-Verfahren mit KORIGEN,
KfK 3014 (Januar 1983)

19. Abbildungsverzeichnis

- Abb. 1 Kalorimetermodell
- Abb. 2 Temperaturabfall in der Wärmedämmschicht nach Erreichen des Gleichgewichtszustandes (isothermes Wärmeflußkalorimeter)
- Abb. 3 Zeitkonstante τ_0 und τ_1 als Funktion der spezifischen Wärme des Meßobjektes
- Abb. 4 Zeitkonstante τ_0 als Funktion der Wärmeleitfähigkeit des Meßobjektes
- Abb. 5 Zeitkonstante τ_0 als Funktion der Wärmeübergangszahl α
- Abb. 6 Zeitkonstante τ_0 als Funktion der Wärmeleitfähigkeit der Wärmedämmschicht
- Abb. 7 Zeitkonstante τ_0 als Funktion des Innenradius r_2 des Kalorimeterinnenbehälters
- Abb. 8 Zeitkonstante τ_0 als Funktion des Innenradius r_4 des Kalorimeteräußenbehälters
- Abb. 9 Relativverlauf des Temperaturabfalls in der Wärmedämmschicht (isothermes Wärmeflußkalorimeter)
- Abb. 10 Spezifische Temperaturänderungsgeschwindigkeit als Funktion der spezifischen Wärme
- Abb. 11 Spezifische Temperaturänderungsgeschwindigkeit als Funktion des Innenradius vom Kalorimeterinnenbehälter
- Abb. 12 Temperaturverlauf ($T_2(t) - T_2(0)$) in einem adiabatischen Kalorimeter als Funktion der Zeit
- Abb. 13 Temperaturänderungsgeschwindigkeit eines adiabatischen Kalorimeters als Funktion der Zeit
- Abb. 14a Fehlereinfluß der spezifischen Wärme c_F des Meßobjektes auf die isotherme Messung
- Abb. 14b Fehlereinfluß der Wärmeleitfähigkeit λ_F des Meßobjektes auf die isotherme Messung
- Abb. 14c Fehlereinfluß der Wärmeübergangszahl α des Meßobjektes auf die isotherme Messung
- Abb. 14d Fehlereinfluß der spezifischen Wärme c_C der Kalorimeterinnenwand auf die isotherme Messung

- Abb. 14e Fehlereinfluß der Wärmeleitfähigkeit λ_I der Wärmedämmschicht auf die isotherme Messung
- Abb. 14f Fehlereinfluß der Zentraltemperatur $T_O(o)$ des Meßobjektes auf die isotherme Messung
- Abb. 14g Fehlereinfluß der Randtemperatur $T_1(o)$ des Meßobjektes auf die isotherme Messung
- Abb. 15a Fehlereinfluß der spezifischen Wärme c_F des Meßobjektes auf die adiabatische Messung
- Abb. 15b Fehlereinfluß der Wärmeleitfähigkeit λ_F des Meßobjektes auf die adiabatische Messung
- Abb. 15c Fehlereinfluß der Wärmeübergangszahl α des Meßobjektes auf die adiabatische Messung
- Abb. 15d Fehlereinfluß der spezifischen Wärme c_C der Kalorimeterinnenwand auf die adiabatische Messung
- Abb. 15e Fehlereinfluß der Zentraltemperatur $T_O(o)$ des Meßobjektes auf die adiabatische Messung
- Abb. 15f Fehlereinfluß der Randtemperatur $T_1(o)$ des Meßobjektes auf die adiabatische Messung
- Abb. 16 Kalorimeteraufbau
- Abb. 17 Bestückungsschema und Meßstellenbezeichnungen der Widerstandsthermometer
- Abb. 18 Kalorimeter vor dem Anbringen der äußeren Wärmeisolation
- Abb. 19 Kalorimeteraufbau vor dem Einbringen der Wärmedämmschicht (Blick in das Kalorimeterinnere)
- Abb. 20 Tragkorbgerüst des Abfallfaßsimulators mit Widerstandsheizung
- Abb. 21 Mit dem adiabatischen Kalorimeter gemessene Temperaturverläufe ($\Delta T_2(t)$) bei 4 verschiedenen Faßleistungen
- Abb. 22 Eichkurve des adiabatischen Kalorimeters (Faßsimulator)
- Abb. 23 Mit dem isothermen Wärmeflußkalorimeter gemessene Temperaturverläufe ($T_2(t) - T_3$) bei 4 verschiedenen Faßleistungen

- Abb. 24 Eichkurve des isothermen Wärmeflußkalorimeters
- Abb. 25 Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus
- Abb. 26 Elektrisch eingestellte Faßleistungen (—) und durch Least-square-fit berechnete Faßleistungen (•••) als Funktion der Meßzeit
- Abb. 27 Mit dem isothermen Wärmeflußkalorimeter gemessene Temperaturverläufe ($T_2(t) - T_3$) bei 2 verschiedenen Faßleistungen (Messungen mit vorgetemperten Fässern)
- Abb. 28 Elektrisch eingestellte Faßleistungen (—) und durch Least-square-fit berechnete Faßleistungen (••) als Funktion der Meßzeit (Messungen mit vorgetemperten Fässern)
- Abb. 29 Hülsen von KWO-BE Nr. 154, Abbrand 39,05 GWd/t_{SM}
Faß Nr. 45073 vom 14.6.82
- Abb. 29a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter
- Abb. 29b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$
- Abb. 30 Hülsen von KWO-BE Nr. 154, Abbrand 39,05 GWd/t_{SM}
nicht vorgetempertes Faß Nr. 45073 vom 11.8.82
- Abb. 30a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter
- Abb. 30b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$
- Abb. 31 Hülsen von KWO-BE Nr. 154, Abbrand 39,05 GWd/t_{SM}
nicht vorgetempertes Faß Nr. 45073 vom 1.3.83
- Abb. 31a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter
- Abb. 31b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$
- Abb. 32 Hülsen von KWO-BE Nr. 237, Abbrand 31,3 GWd/t_{SM}
Faß Nr. 40299 vom 13.2.84
- Abb. 32a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter
- Abb. 32b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$
- Abb. 33 Hülsen von KWO-BE Nr. 131, Abbrand 28,08 GWd/t_{SM}
Faß Nr. 18424 vom 16.7.82
- Abb. 33a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter
- Abb. 33b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$
- Abb. 34 Hülsen von KWO-BE Nr. 193, Abbrand 24,6 GWd/t_{SM}
Faß Nr. 65345 vom 12.7.83
- Abb. 34a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter
- Abb. 34b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$

- Abb. 35 Hülsen von KWO-BE Nr. 250, Abbrand 29,4 Gwd/t_{SM}
Faß Nr. 2966/4 vom 16.1.84
- Abb. 35a Temperaturverlauf $\Delta = f(t)$ im Kalorimeter
- Abb. 35b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$
- Abb. 36 Abstandshalter und Führungsrohre von KWO-BE Nr. 250
Faß Nr. 4195/7 vom 3.1.84, Abbrand 29,4 Gwd/t_{SM}
- Abb. 36a Temperaturverlauf $\Delta T = F(t)$ im Kalorimeter
- Abb. 36b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$
- Abb. 37 Endstücke von KWO-BE Nr. 250, Abbrand 29,4 Gwd/t_{SM}
Faß Nr. 3434/9 vom 20.12.83
- Abb. 37a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter
- Abb. 37b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$
- Abb. 38 Wärmeleistung einzelner Nuklide der Aktivierungs-
produkte von Hüll- und Strukturmaterial eines DWR-
Brennelementes vom Typ "BIBLIS" (3)
- Abb. 39 Vergleich gemessener und mit KORIGEN berechneter
Wärmeleistungen von Hülsenabfällen von KWO-
Brennelementen

Danksagung

Dem Leiter der HDB, Herrn Dr. Höhle, danke ich für die Bereitstellung eines Experimentierplatzes in den heißen Zellen der HDB.

Herr Behr (HDB) hat mit viel Umsicht für die Beschickung des Kalorimeters mit aktiven Abfallfässern gesorgt, Herr Heine (IT) war wesentlich beim Aufbau, der Erprobung, Kalibrierung, Durchführung und Auswertung der Kalorimetermessungen beteiligt. Beiden Herren gebührt mein besonderer Dank.

A N H A N G

Abbildungen 2 bis 39

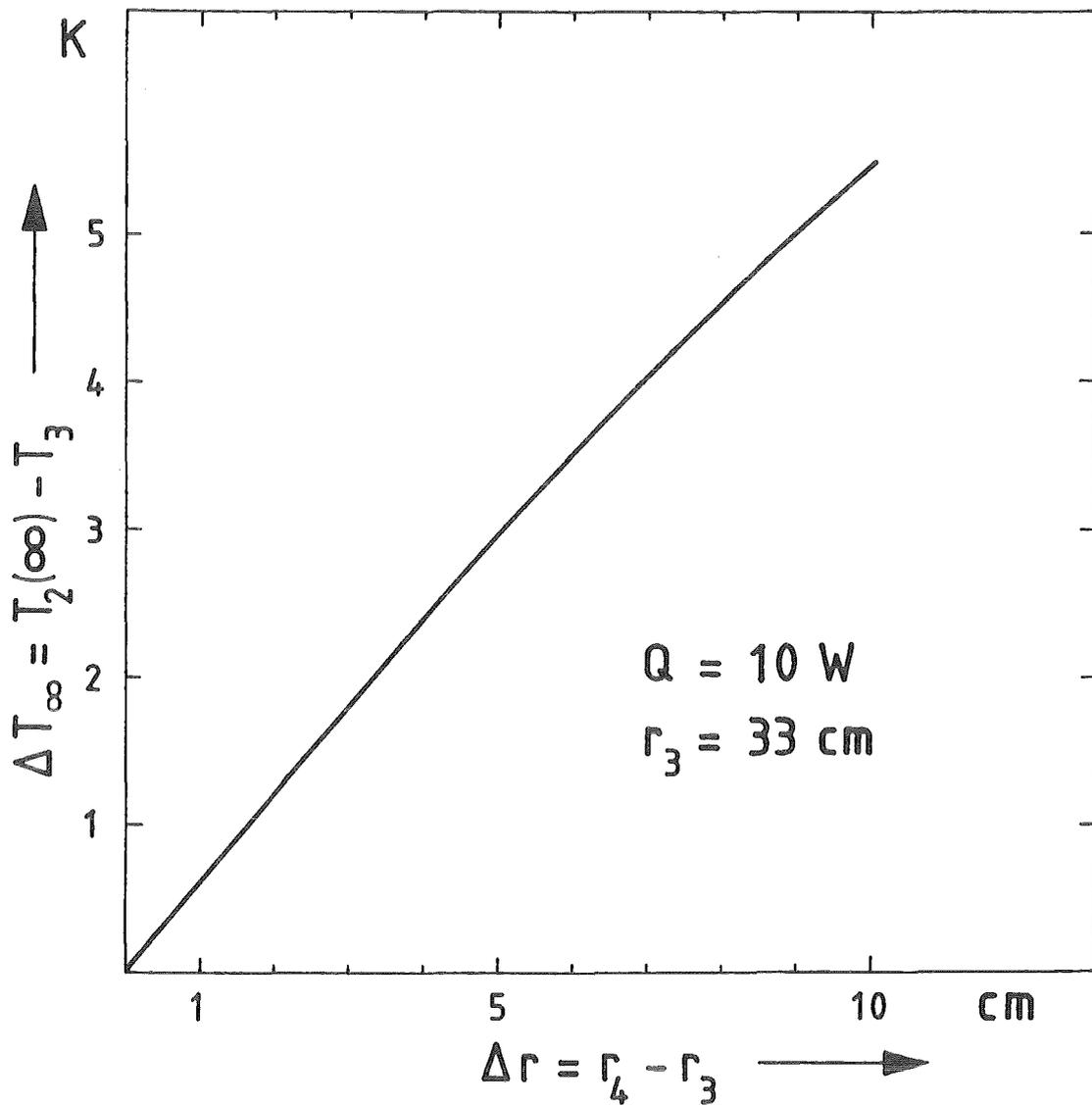


Abb. 2 Temperaturabfall in der Wärmedämmschicht nach Erreichen des Gleichgewichtszustandes (isothermes Wärmeflußkalorimeter)

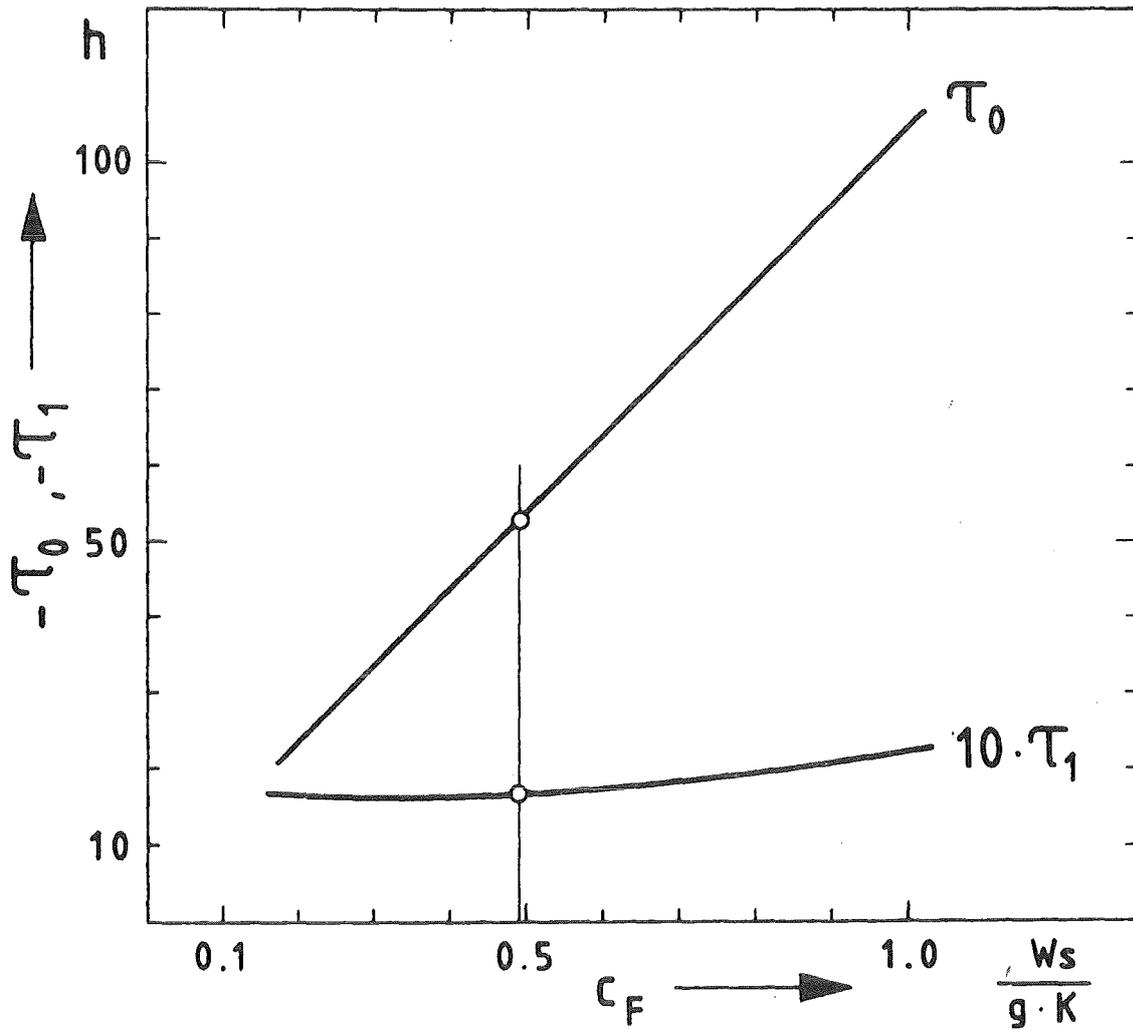


Abb. 3 Zeitkonstante τ_0 und τ_1 als Funktion der spezifischen Wärme des Meßobjektes

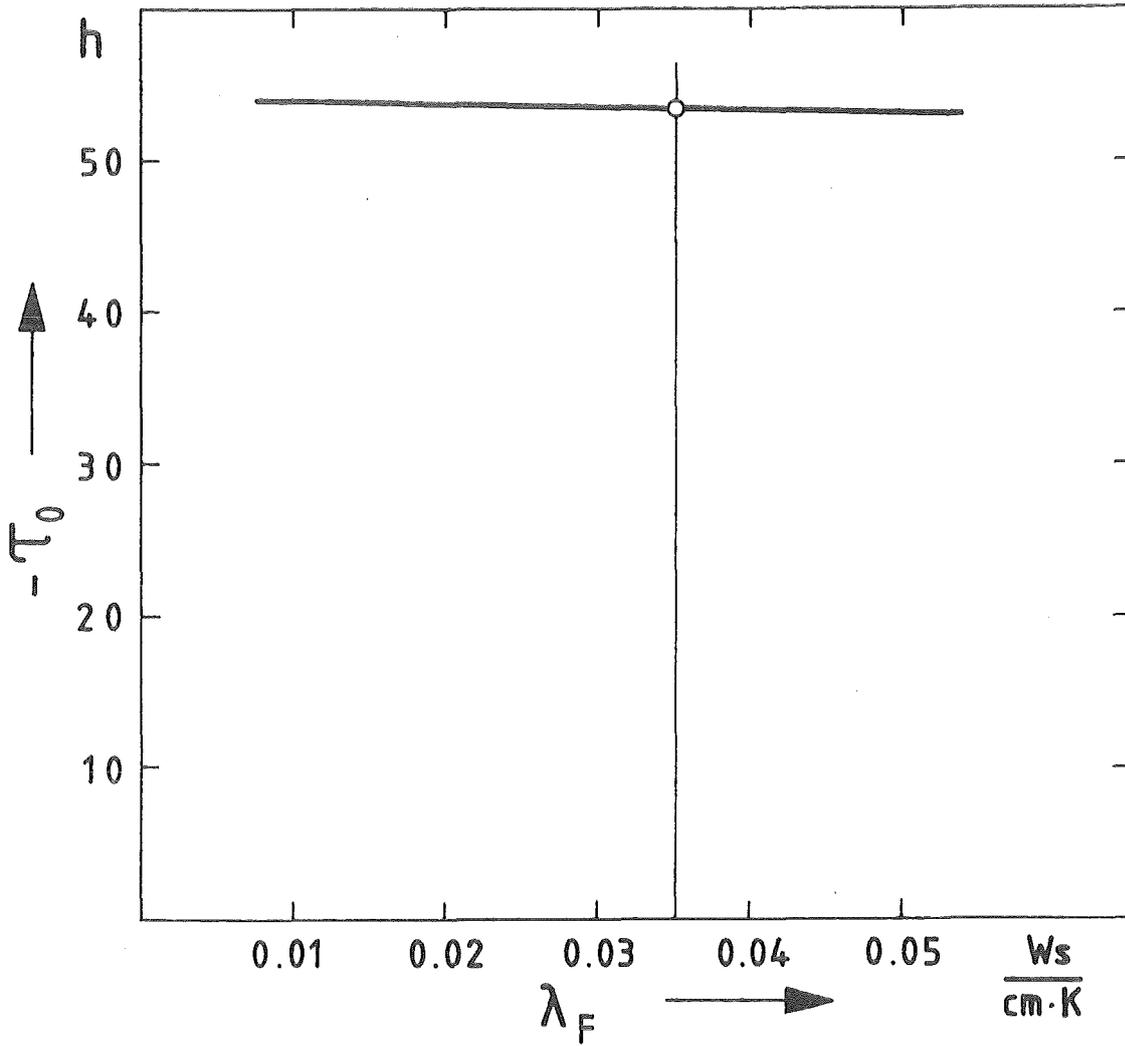


Abb. 4 Zeitkonstante τ_0 als Funktion der Wärmeleitfähigkeit des Meßobjektes

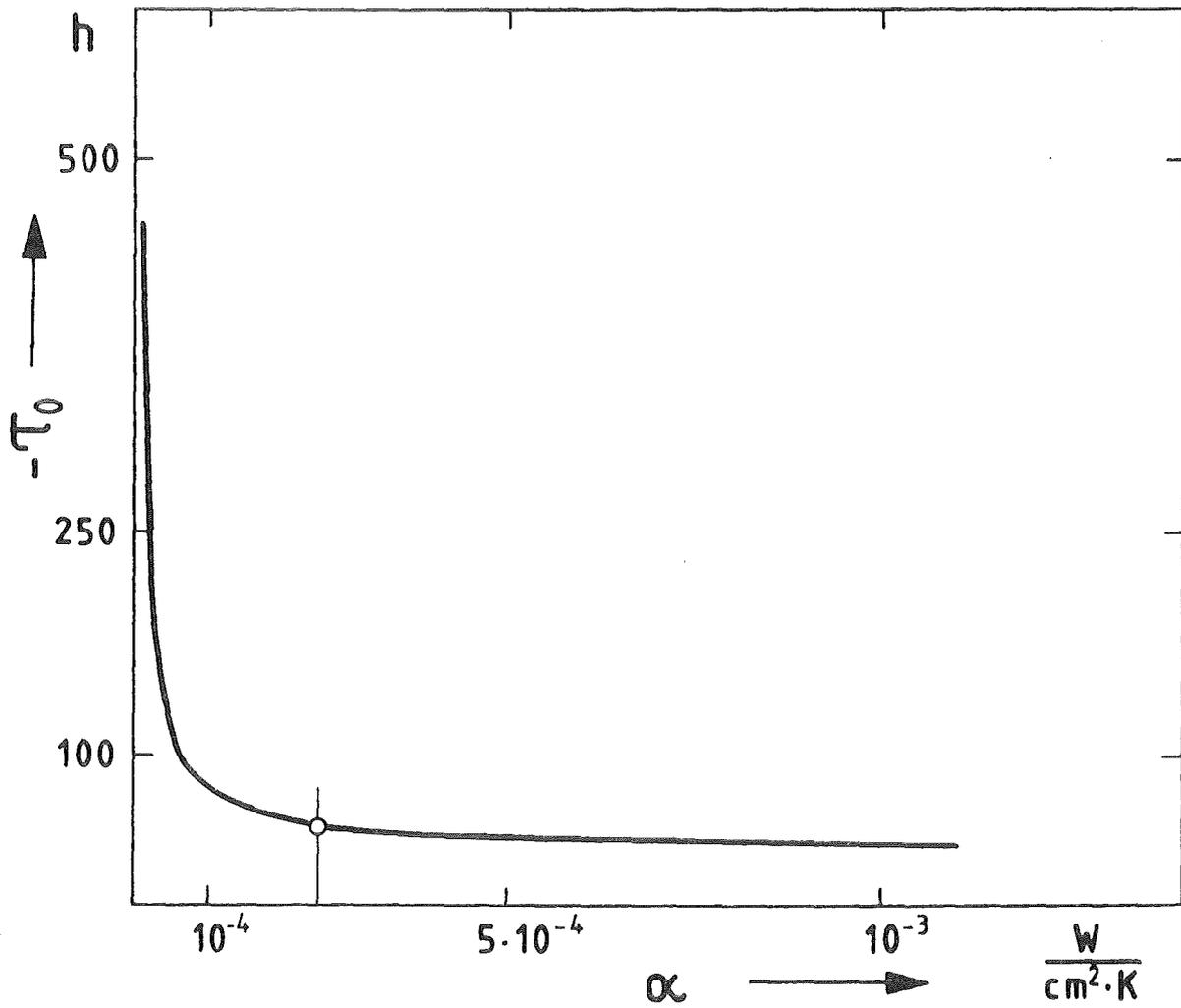


Abb. 5 Zeitkonstante τ_0 als Funktion der Wärmeübergangszahl α

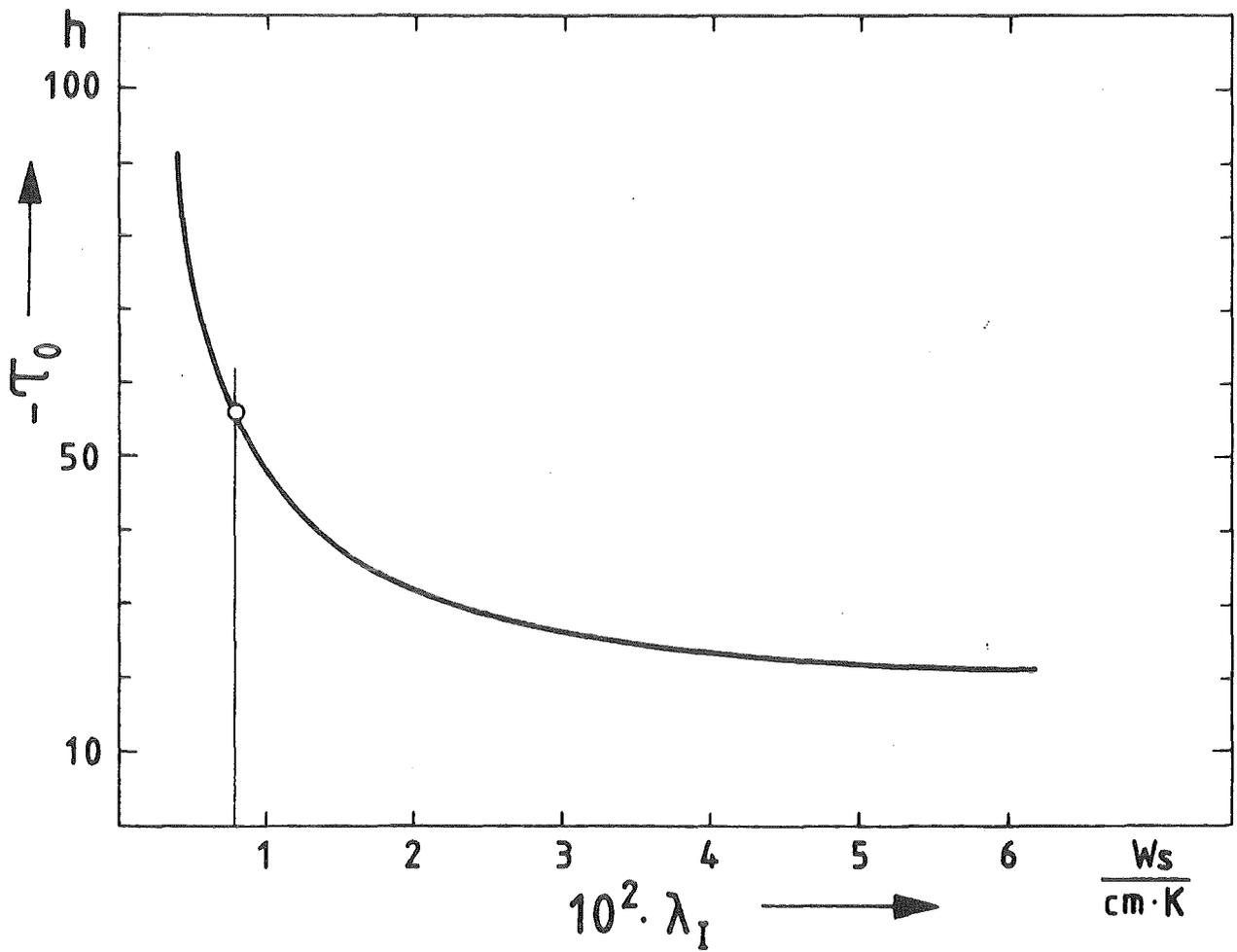


Abb. 6 Zeitkonstante τ_0 als Funktion der Wärmeleitfähigkeit der Wärmedämmschicht

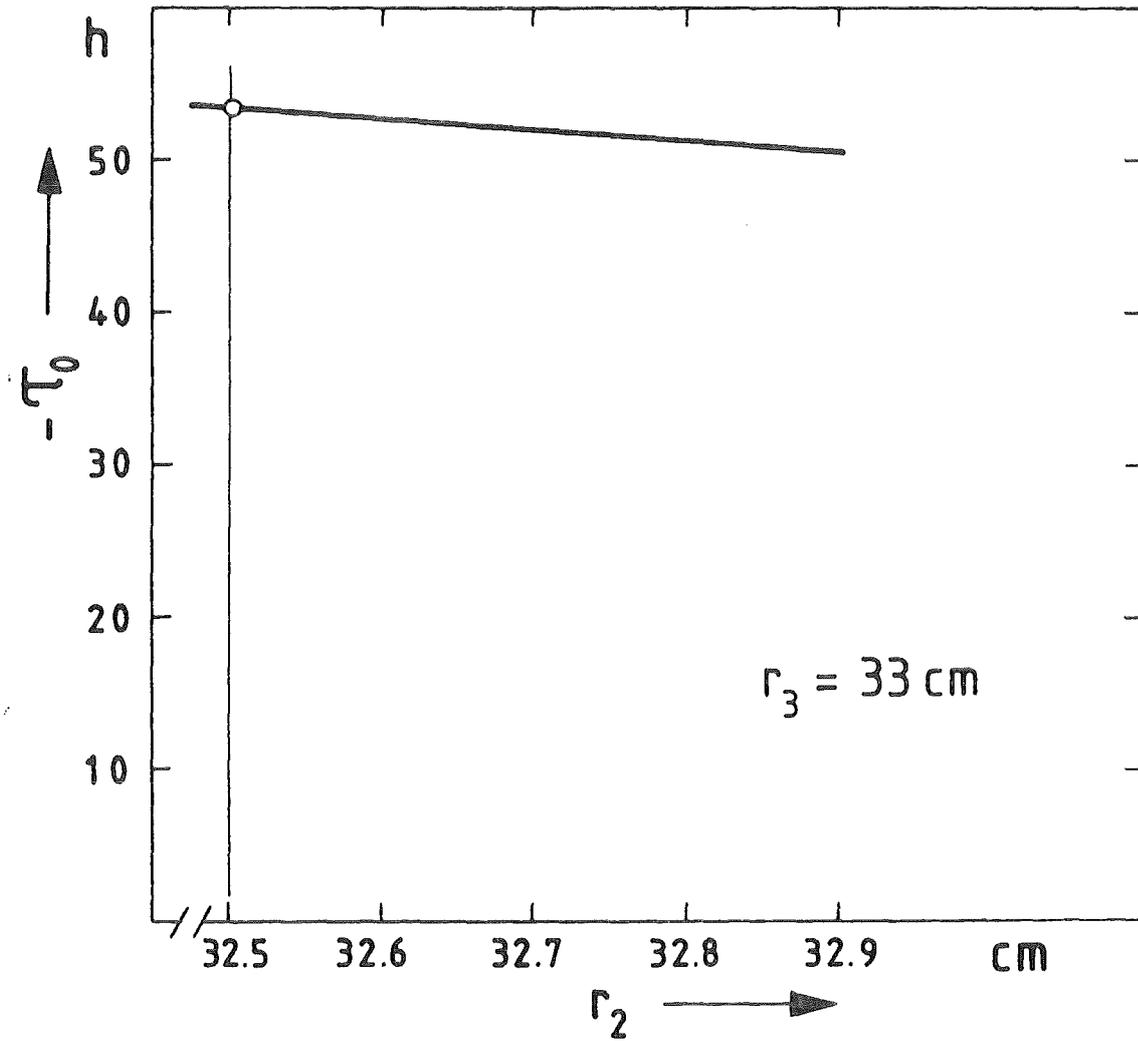


Abb. 7 Zeitkonstante τ_0 als Funktion des Innenradius r_2 des Kalorimeterinnenbehälters

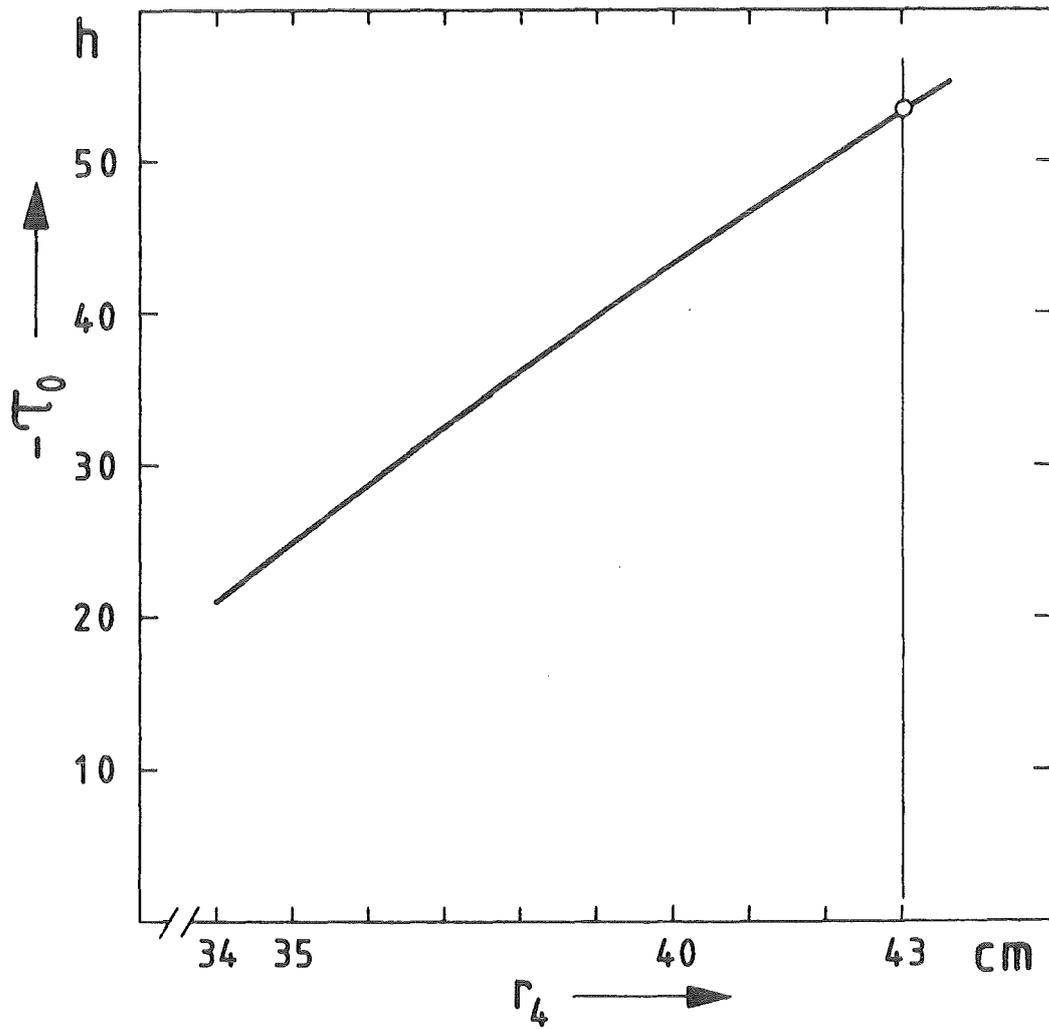


Abb. 8 Zeitkonstante τ_0 als Funktion des Innenradius r_4 des Kalorimeteraußenbehälters

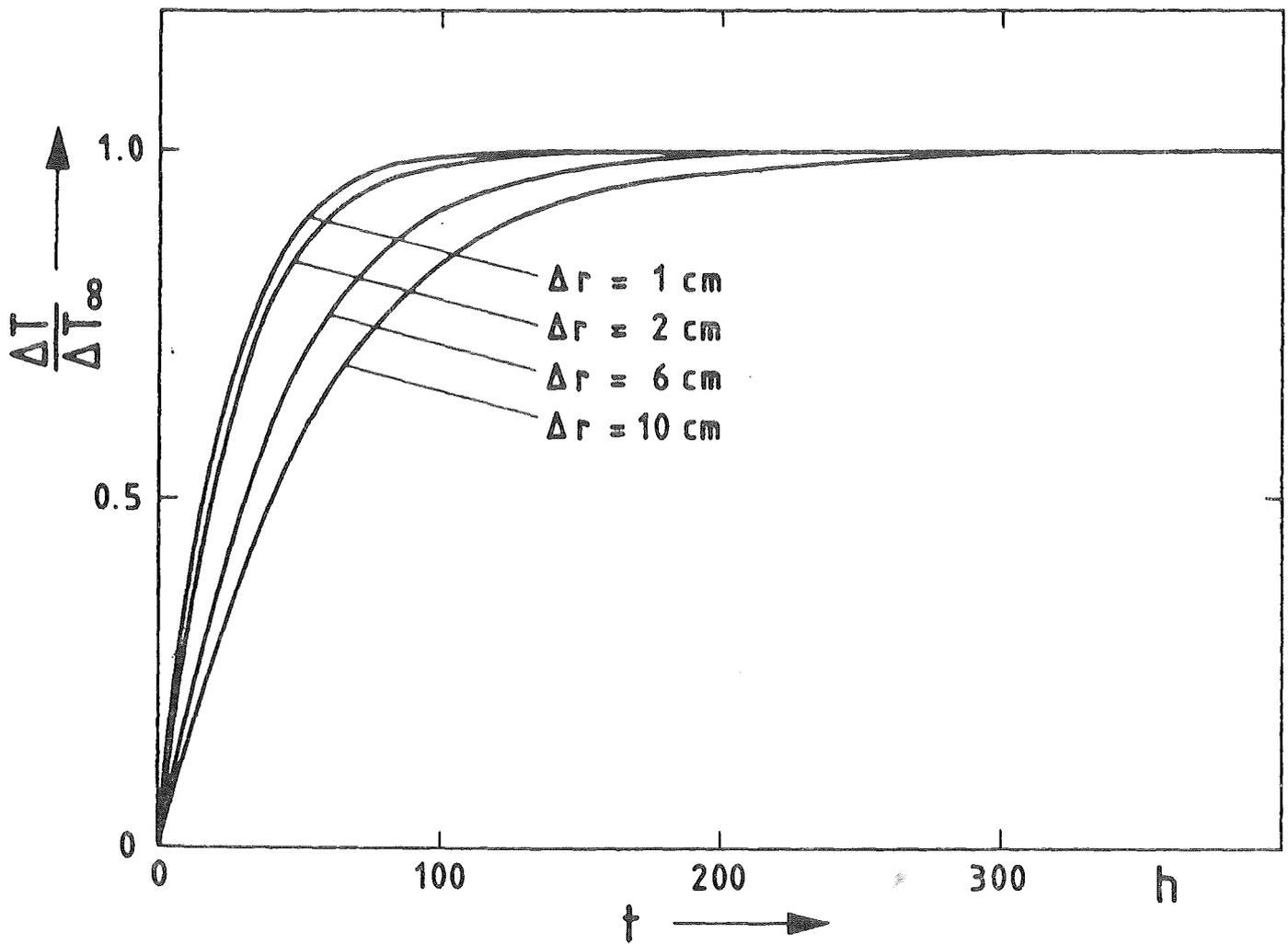


Abb. 9 Relativverlauf des Temperaturabfalls in der Wärmedämmschicht (isothermes Wärmeflußkalorimeter)

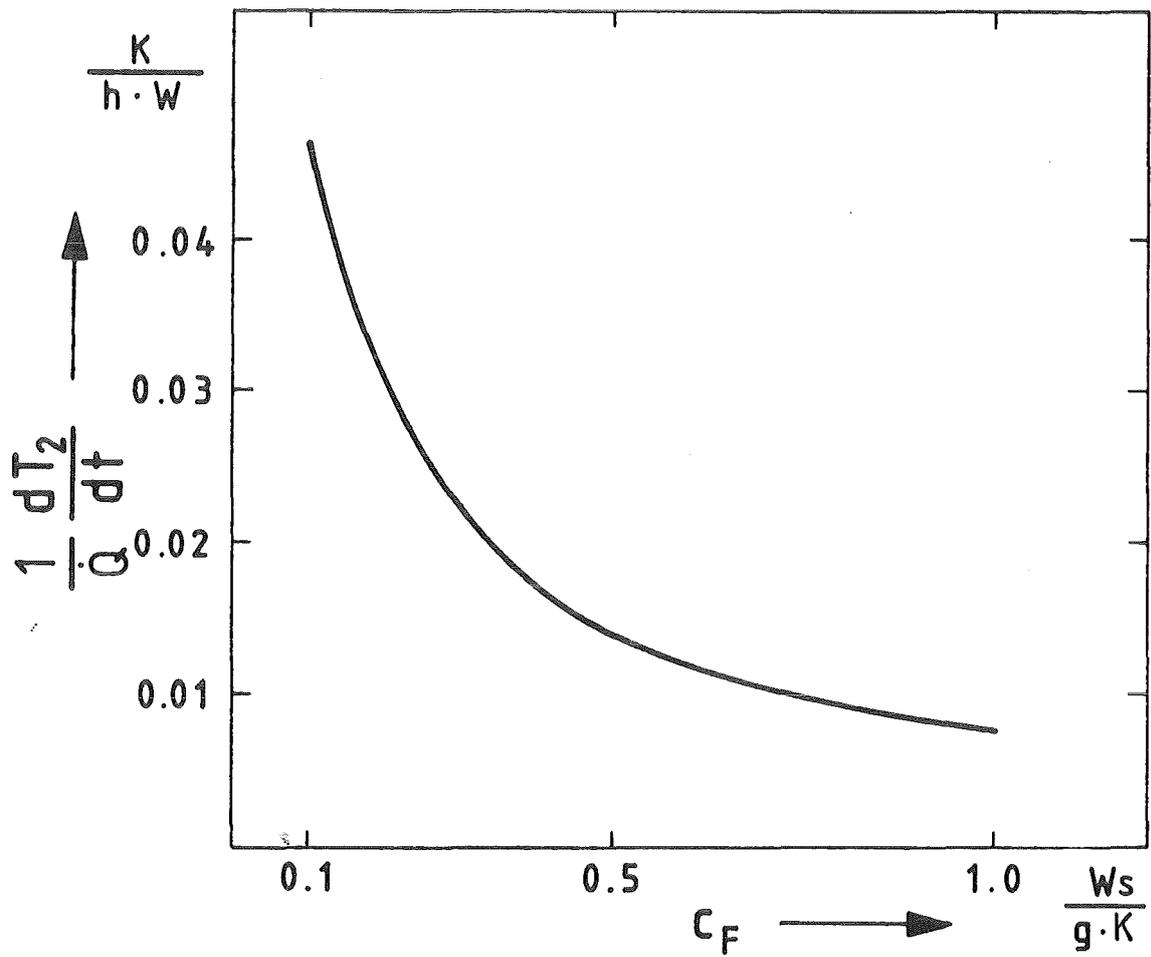


Abb. 10 Spezifische Temperaturänderungsgeschwindigkeit als Funktion der spezifischen Wärme des Meßobjektes

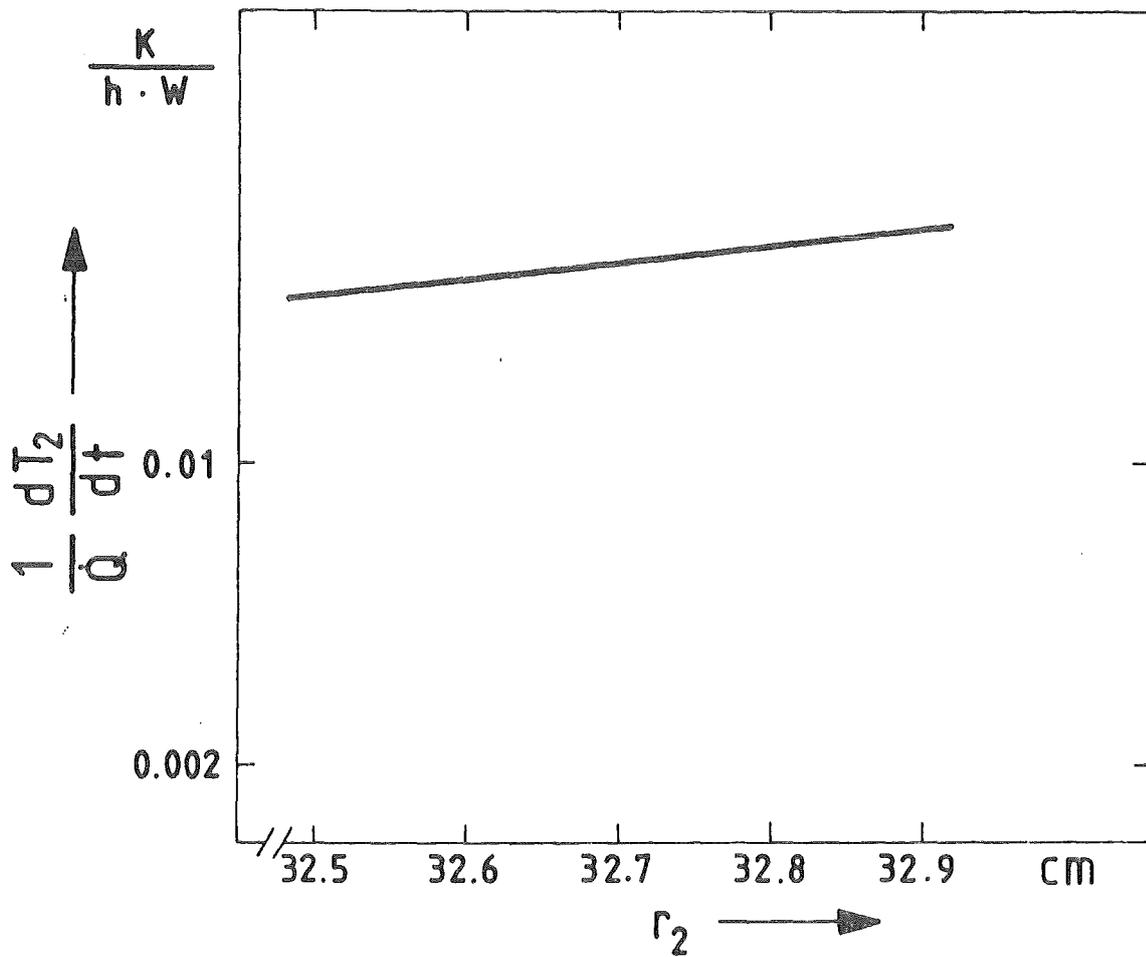


Abb. 11 Spezifische Temperaturänderungsgeschwindigkeit als Funktion des Innenradius des Kalorimeterinnenbehälters

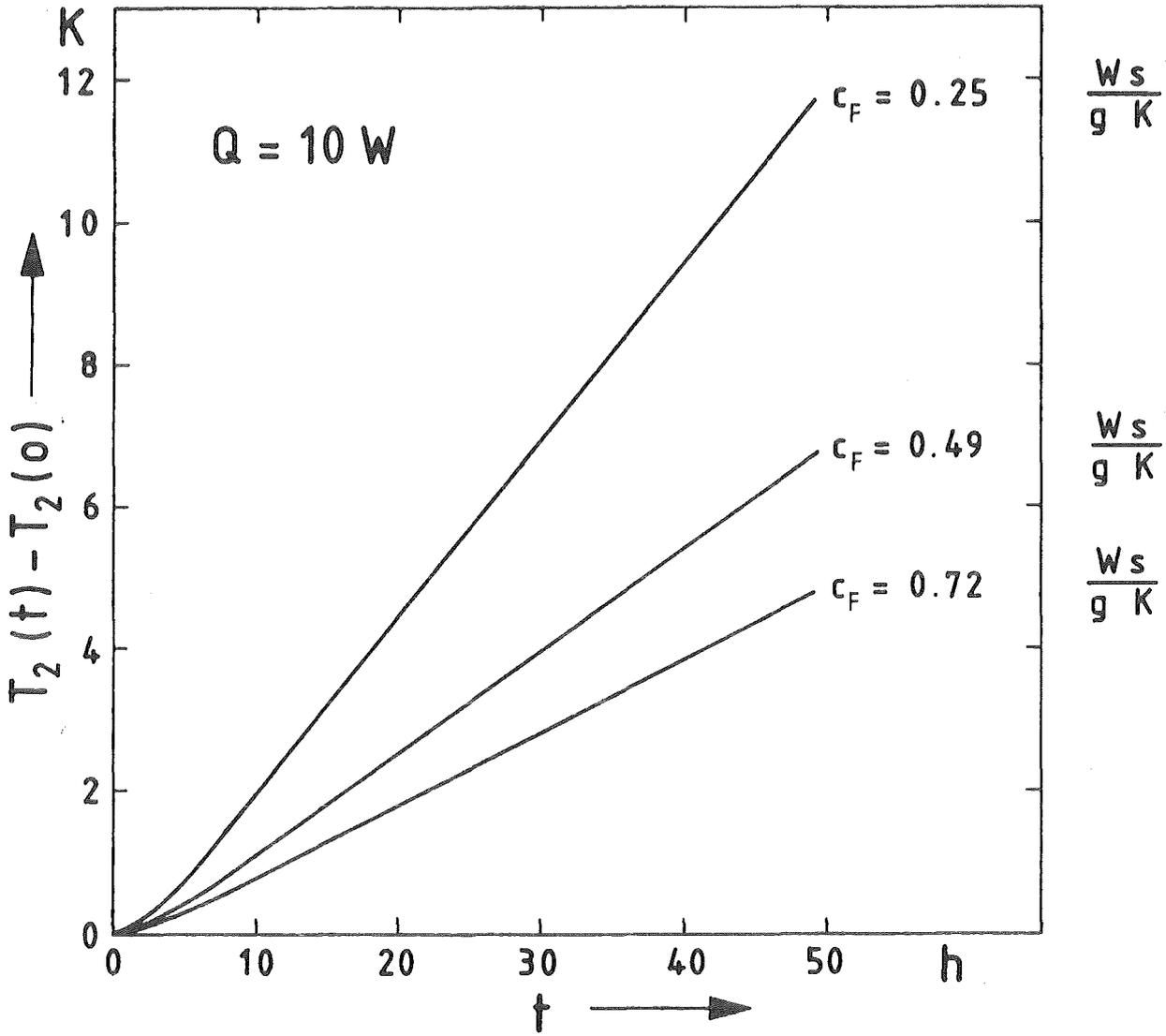


Abb. 12 Temperaturverlauf ($T_2(t) - T_2(0)$) in einem adiabatischen Kalorimeter als Funktion der Zeit

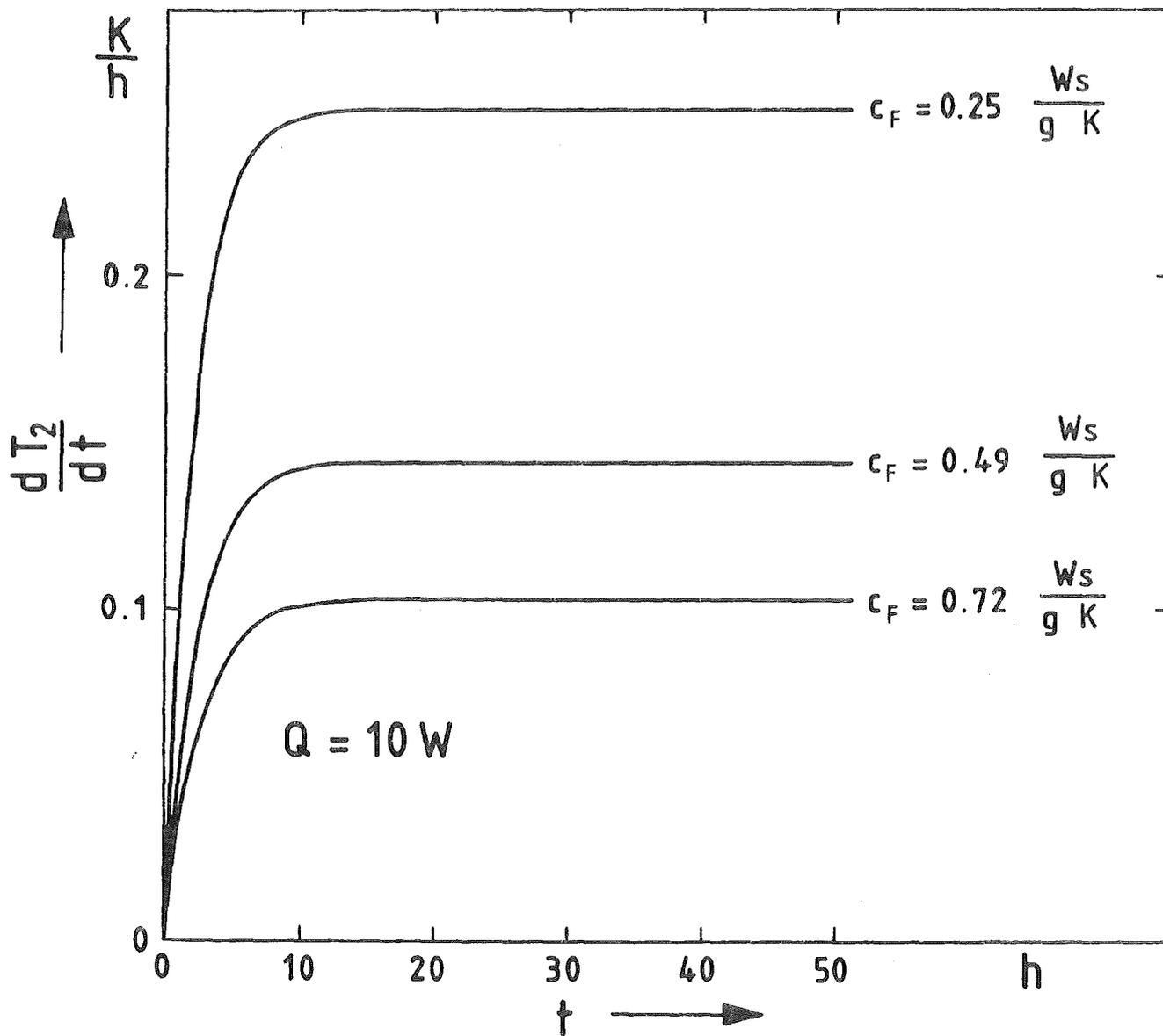


Abb. 13 Temperaturänderungsgeschwindigkeit eines adiabatischen Kalorimeters als Funktion der Zeit

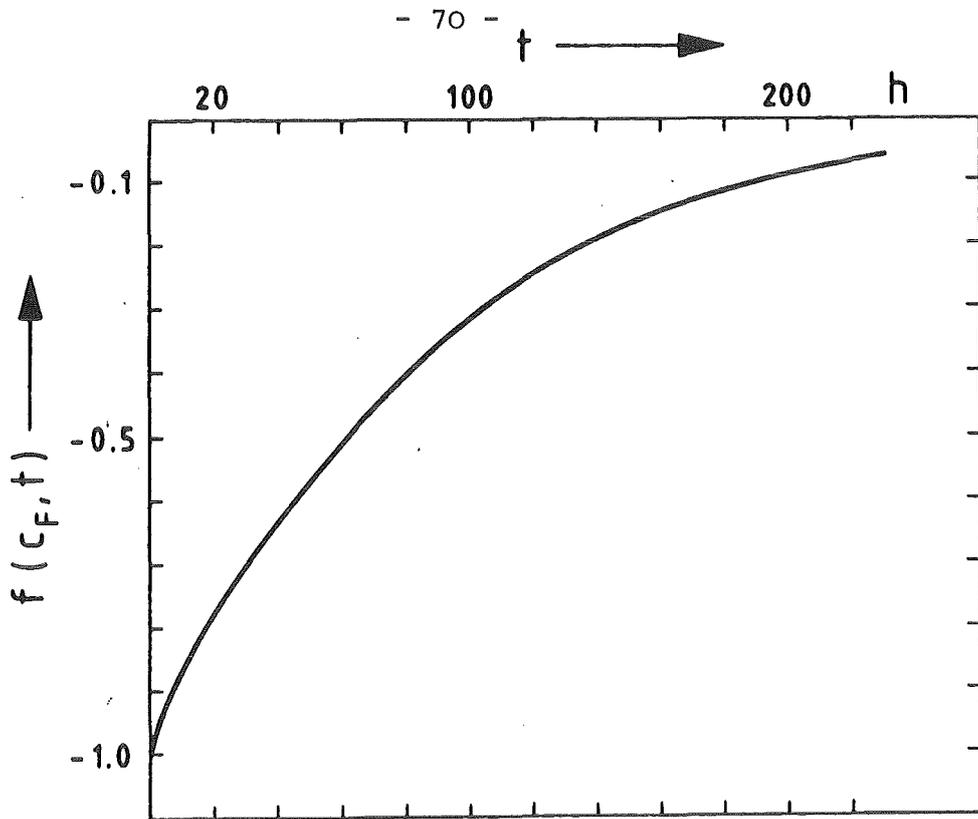


Abb. 14a Fehlereinfluß der spezifischen Wärme c_F des Meßobjektes auf die isotherme Messung

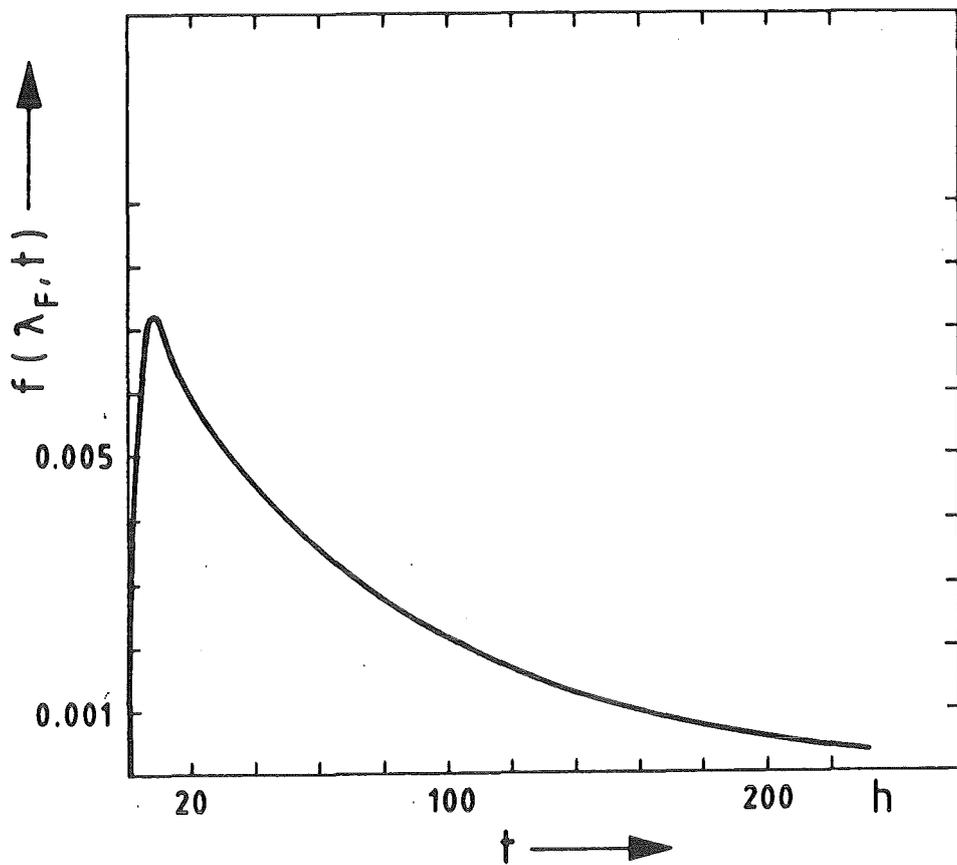


Abb. 14b Fehlereinfluß der Wärmeleitfähigkeit λ_F des Meßobjektes auf die isotherme Messung

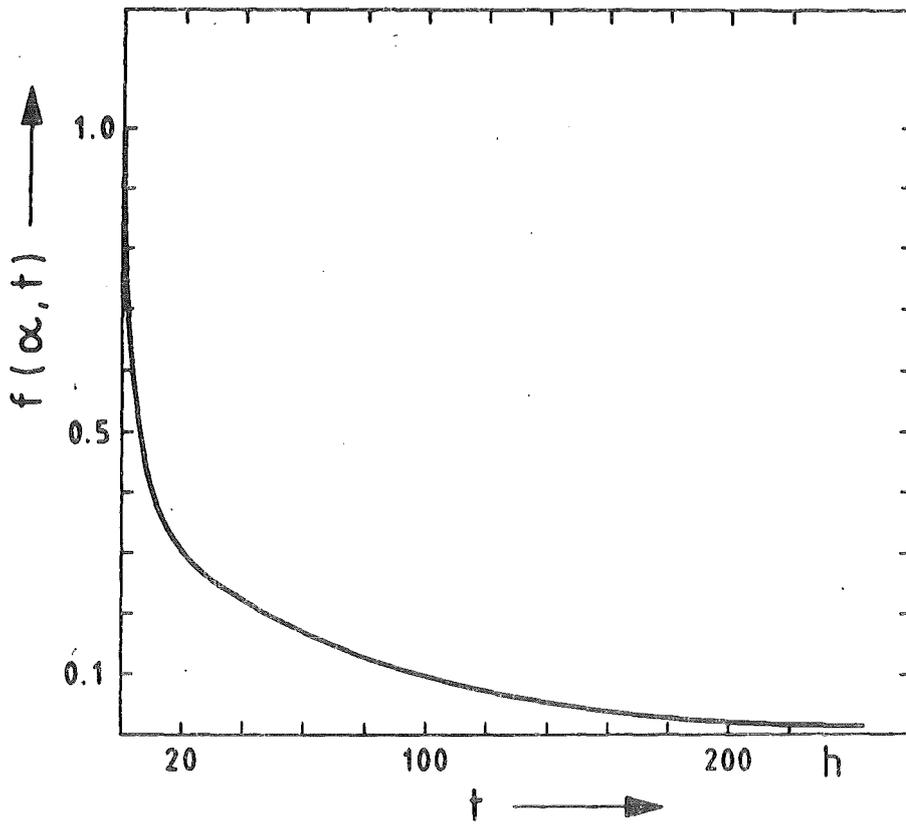


Abb. 14c Fehlereinfluß der Wärmeübergangszahl α des Meßobjektes auf die isotherme Messung

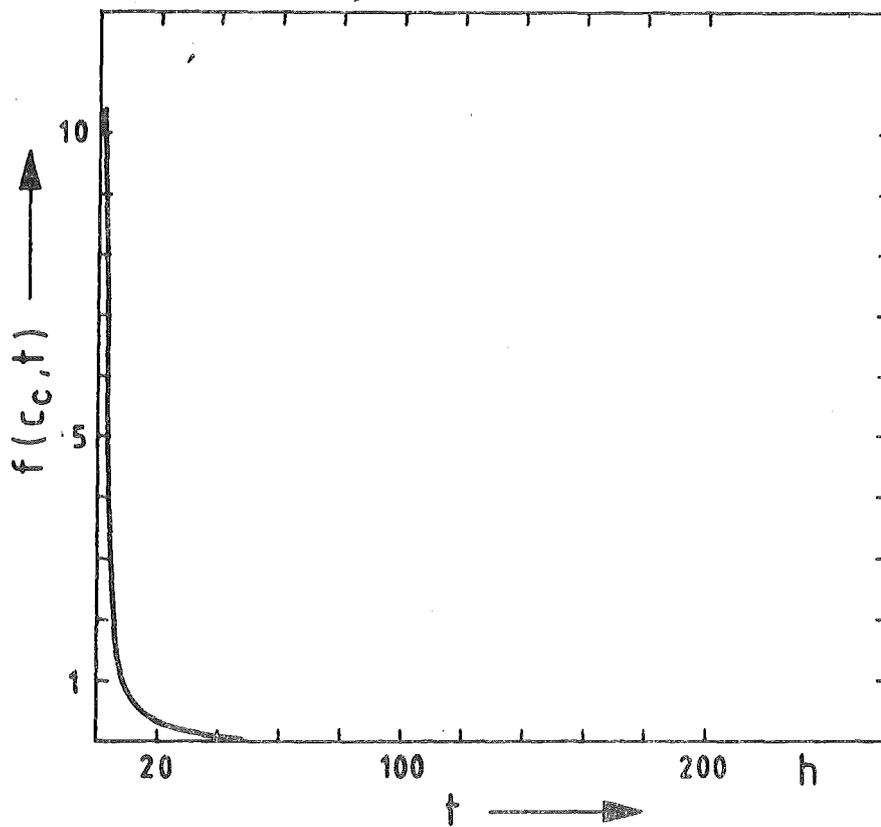


Abb. 14d Fehlereinfluß der spezifischen Wärme c_c der Kalorimeterinnenwand auf die isotherme Messung

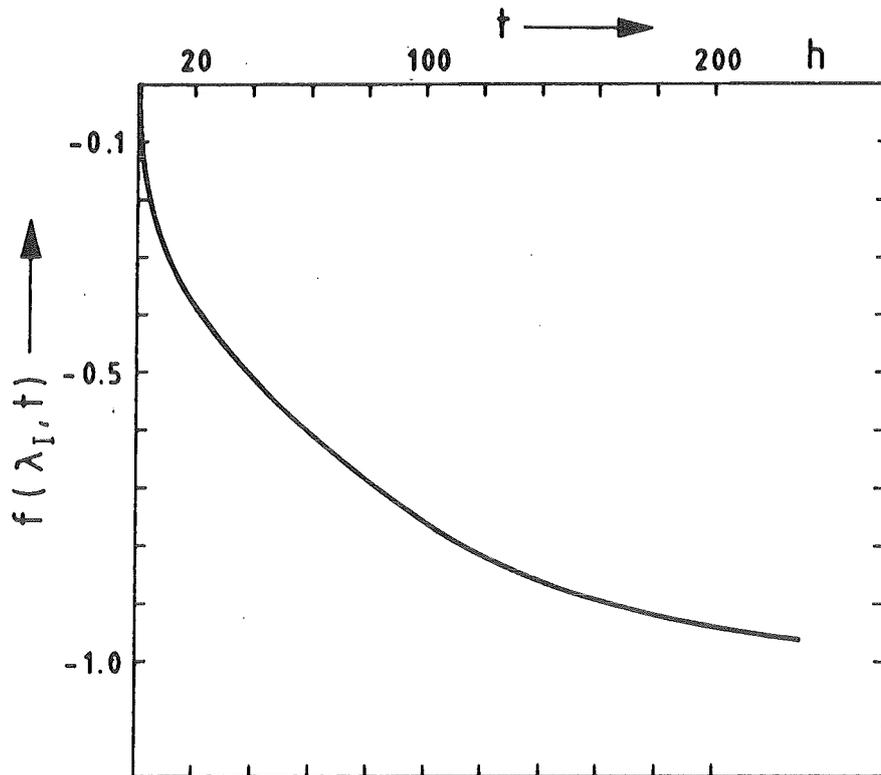


Abb. 14e Fehlereinfluß der Wärmeleitfähigkeit λ_I der Wärmedämmschicht auf die isotherme Messung

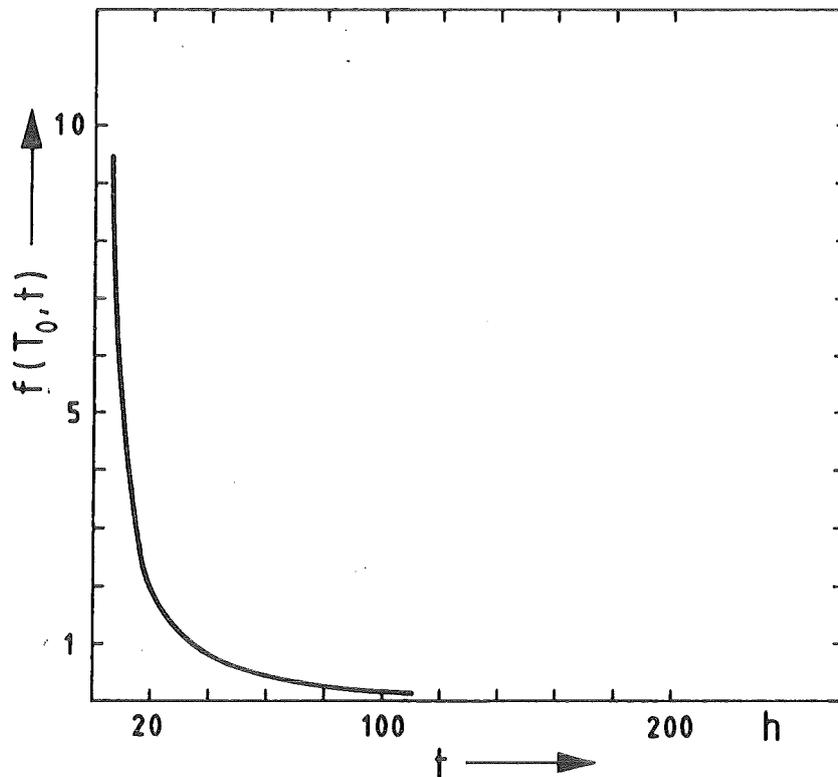


Abb. 14f Fehlereinfluß der Zentraltemperatur $T_0(o)$ des Meßobjektes auf die isotherme Messung

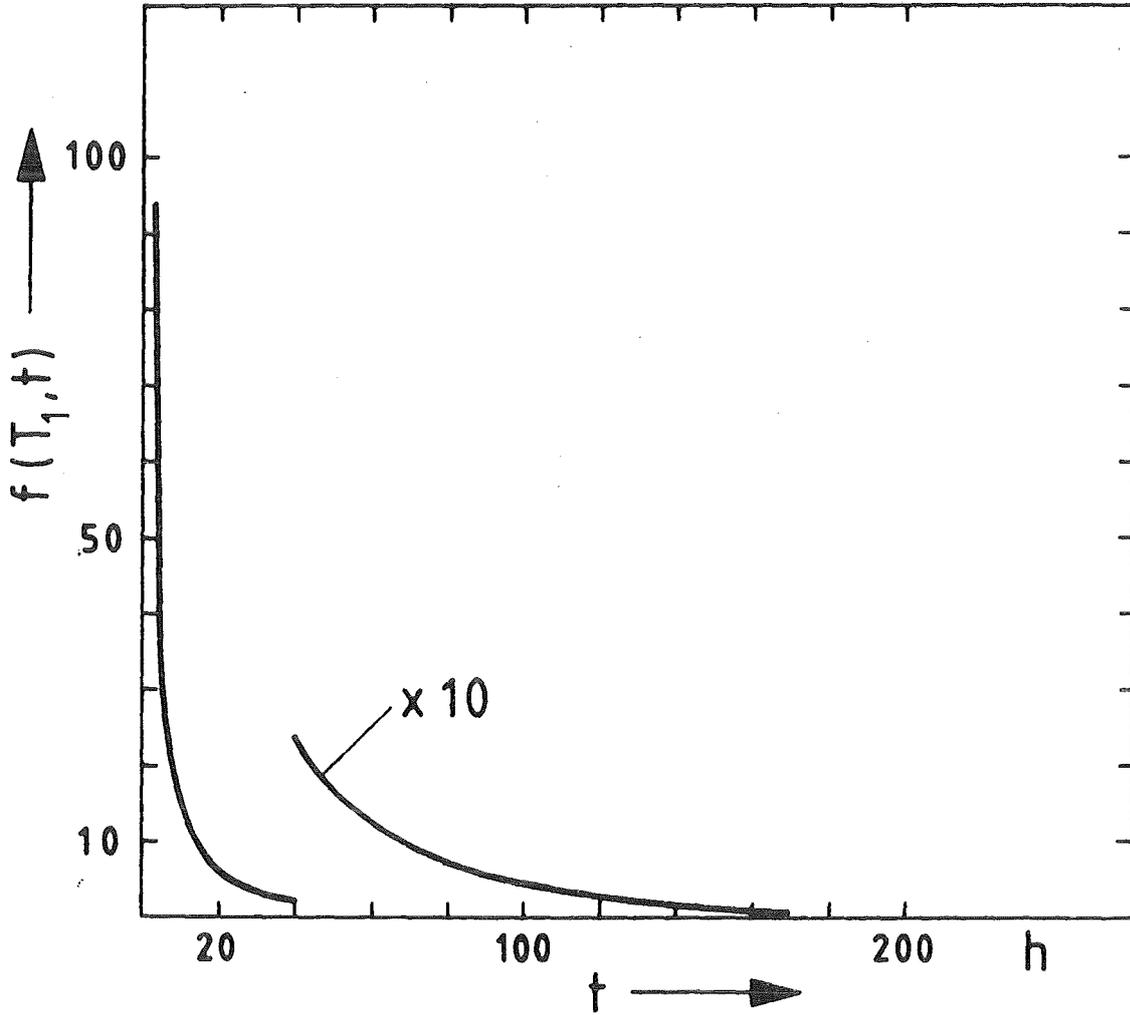


Abb. 14g Fehlereinfluß der Randtemperatur $T_1(o)$ des Meßobjektes auf die isotherme Messung

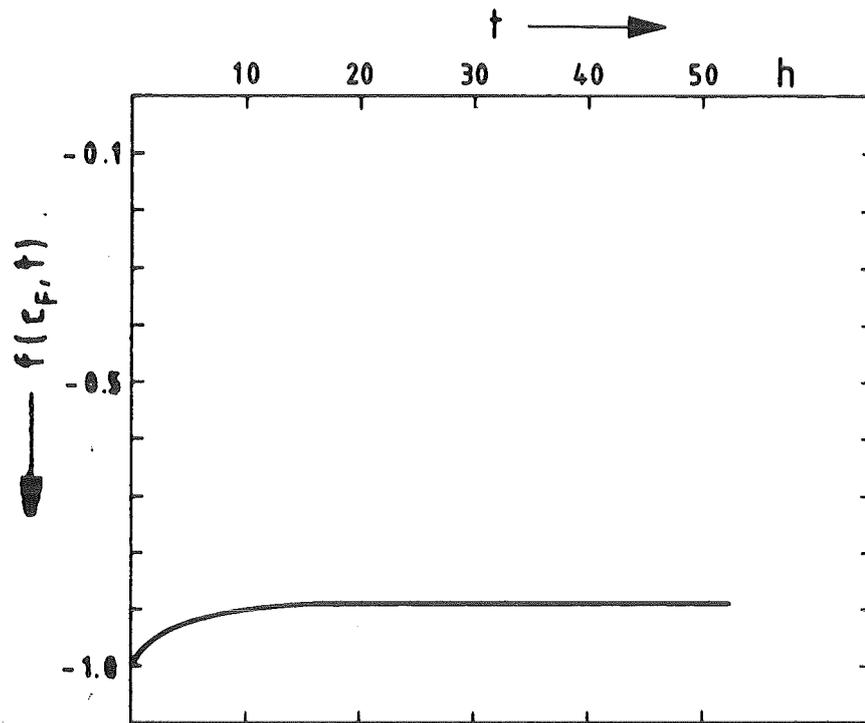


Abb. 15a Fehlereinfluß der spezifischen Wärme c_F des Meßobjektes auf die adiabatische Messung

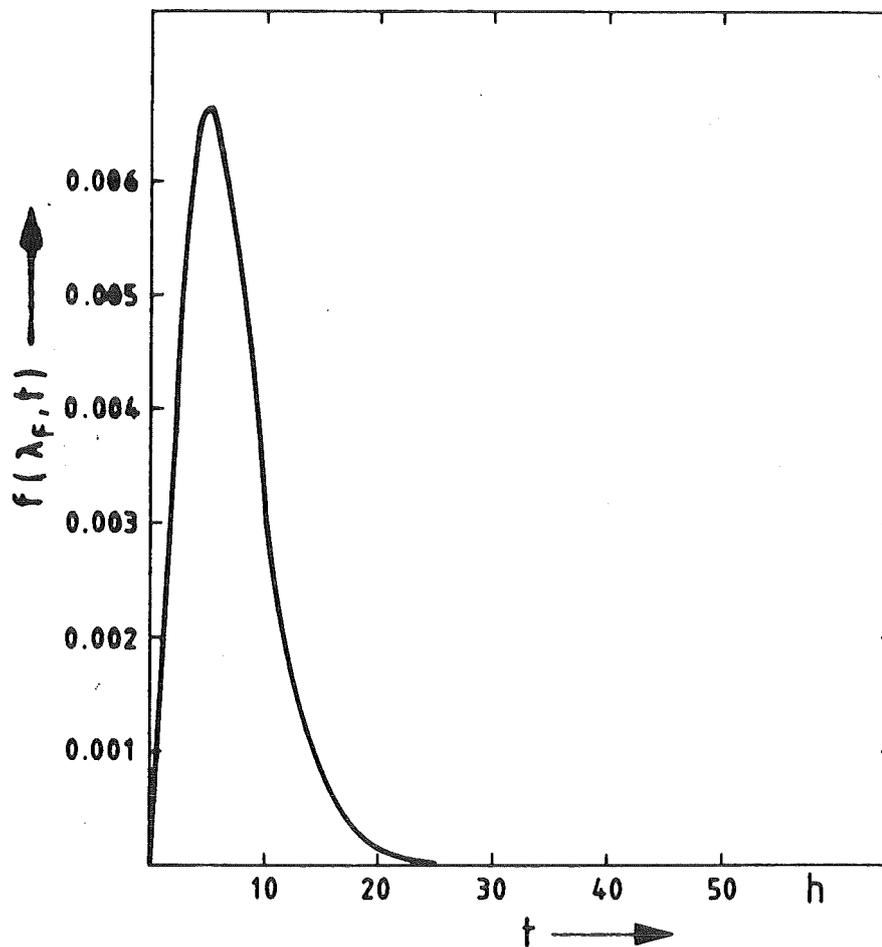


Abb. 15b Fehlereinfluß der Wärmeleitfähigkeit λ_F des Meßobjektes auf die adiabatische Messung

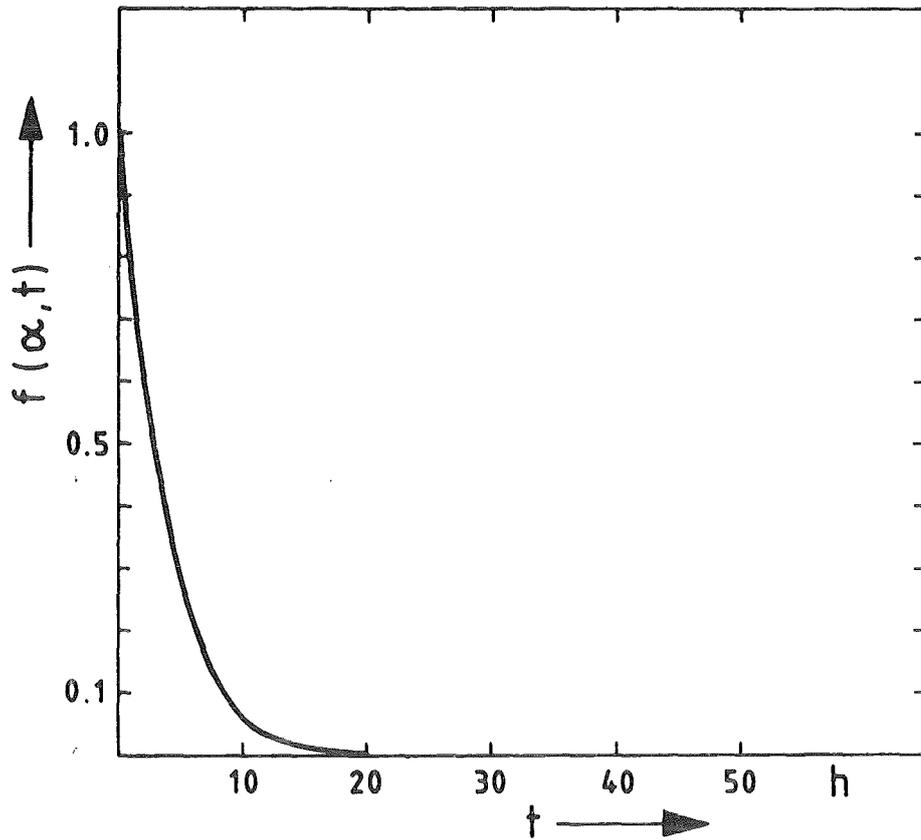


Abb. 15c Fehlereinfluß der Wärmeübergangszahl α des Meßobjektes auf die adiabatische Messung

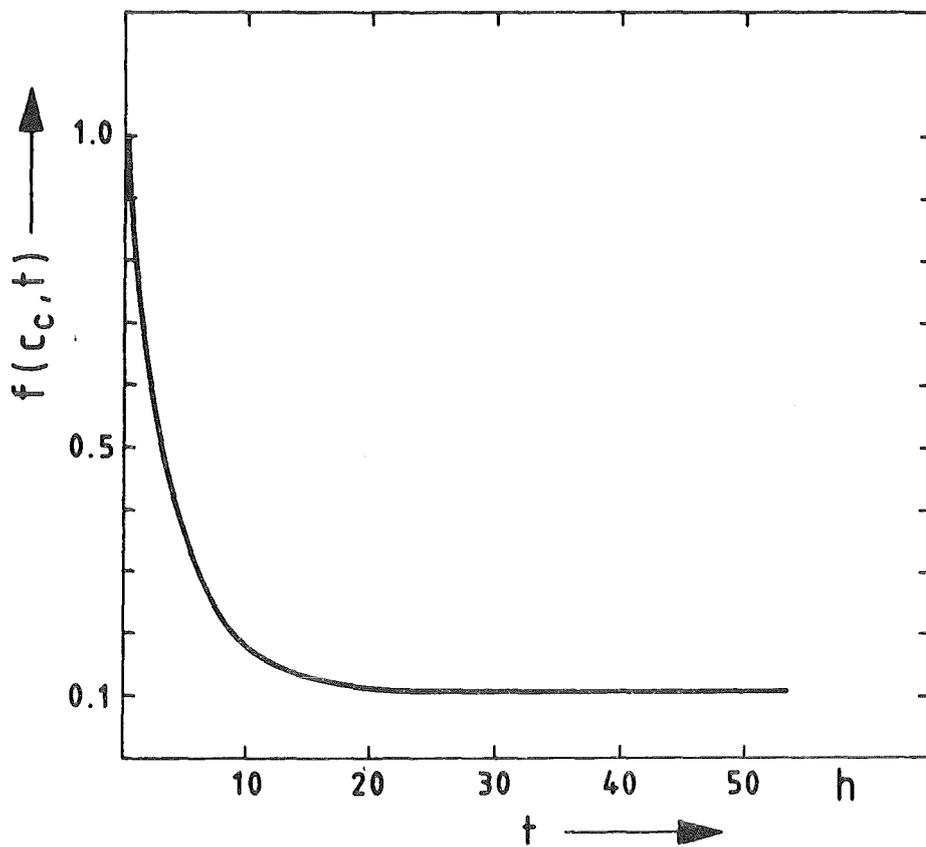


Abb. 15d Fehlereinfluß der spezifischen Wärme c_c der Kalorimeterinnenwand auf die adiabatische Messung

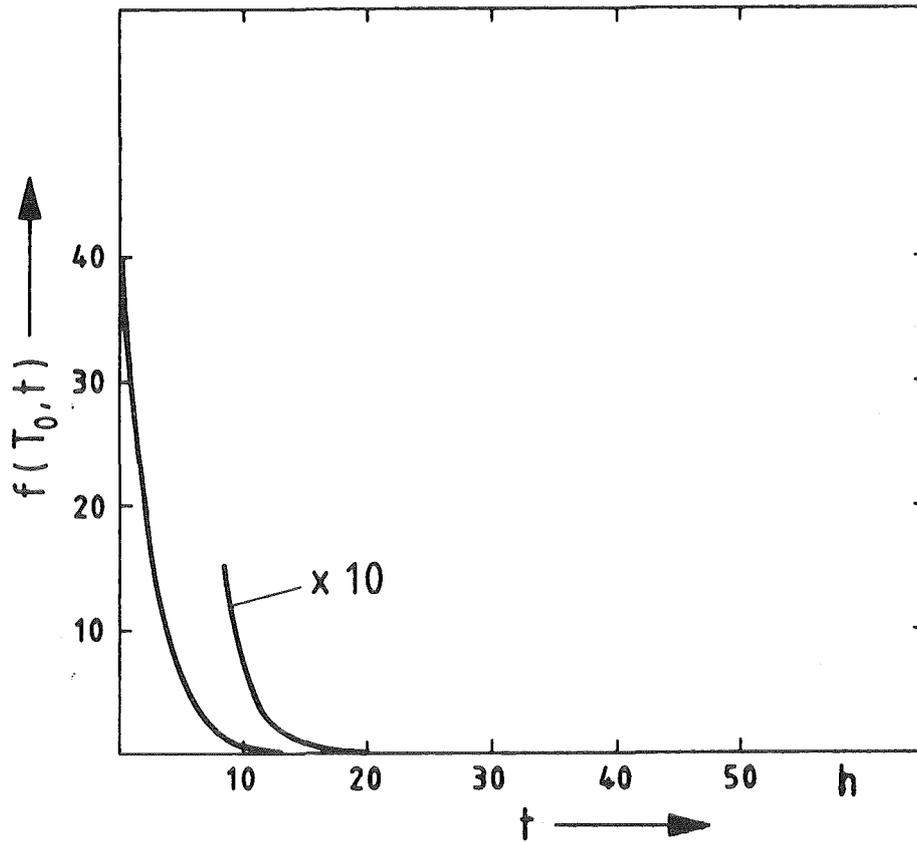


Abb. 15e Fehlereinfluß der Zentraltemperatur $T_0(o)$ des Meßobjektes auf die adiabatische Messung

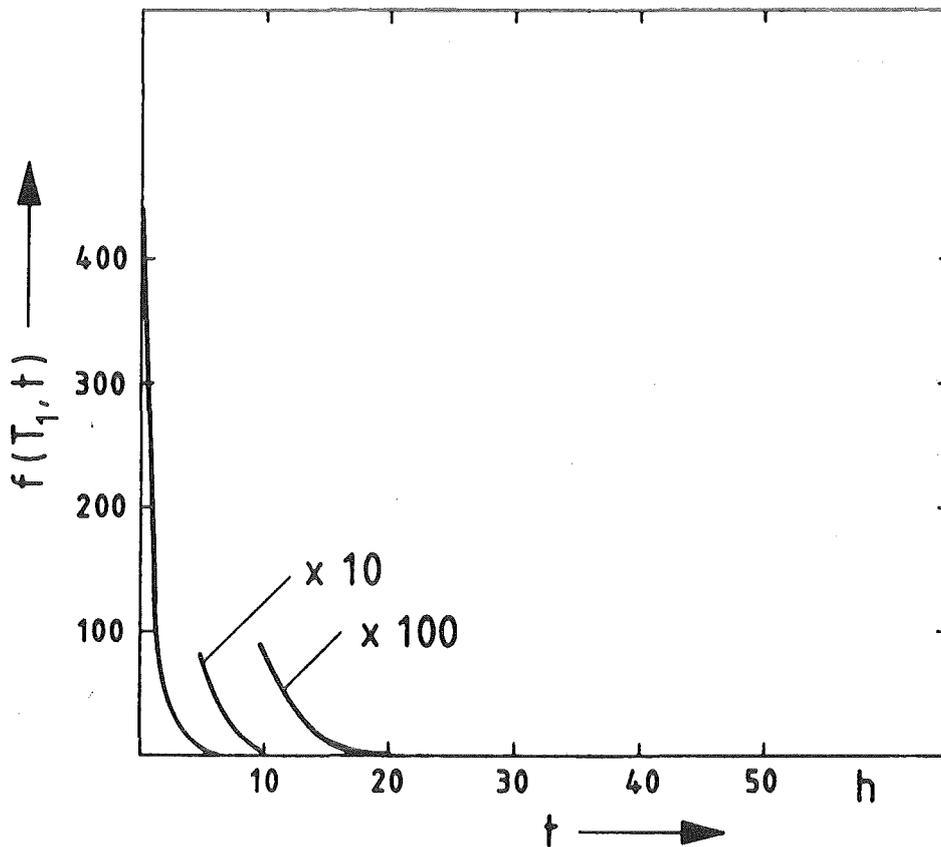


Abb. 15f Fehlereinfluß der Randtemperatur $T_1(o)$ des Meßobjektes auf die adiabatische Messung

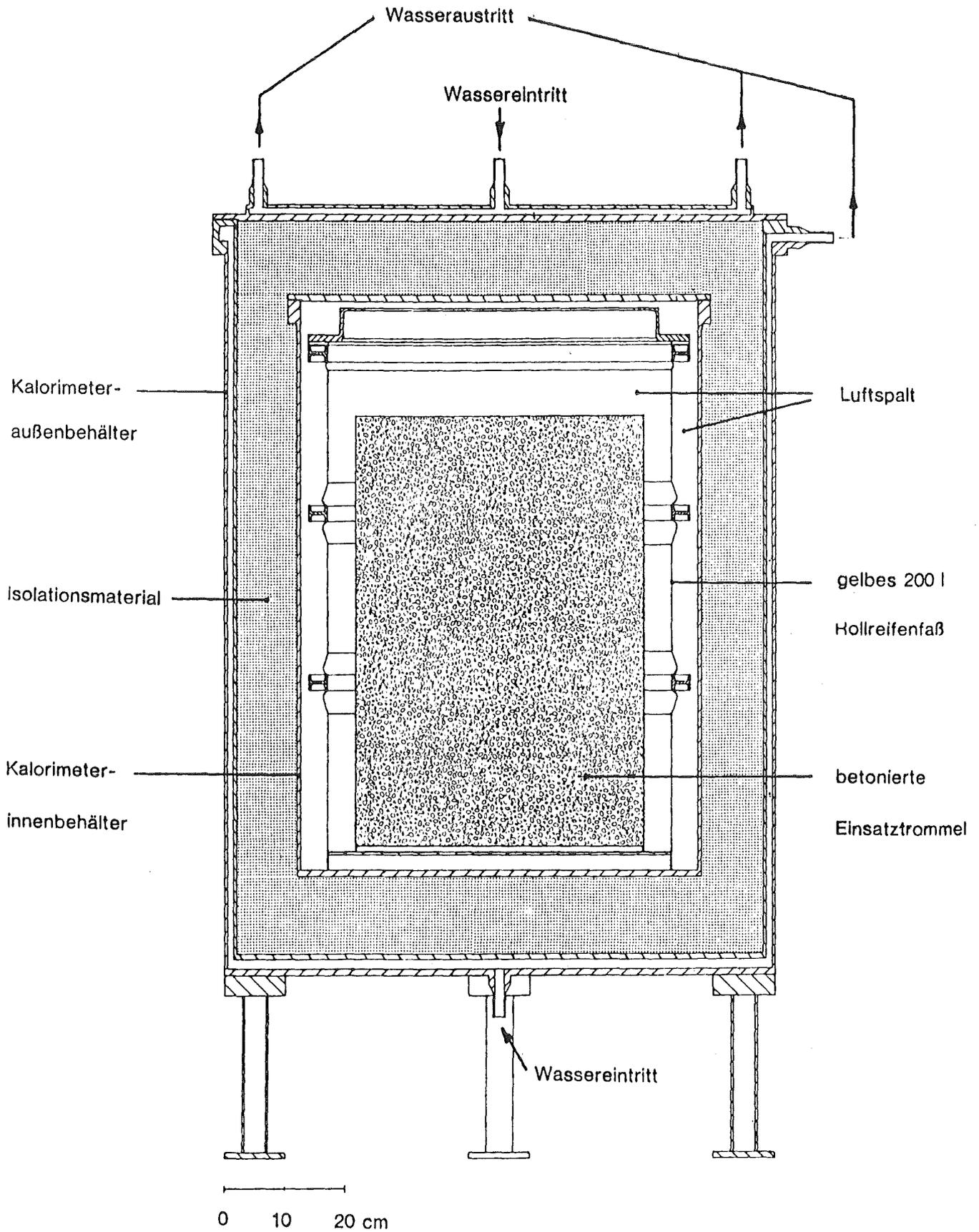


Abb. 16 Kalorimeternaufbau

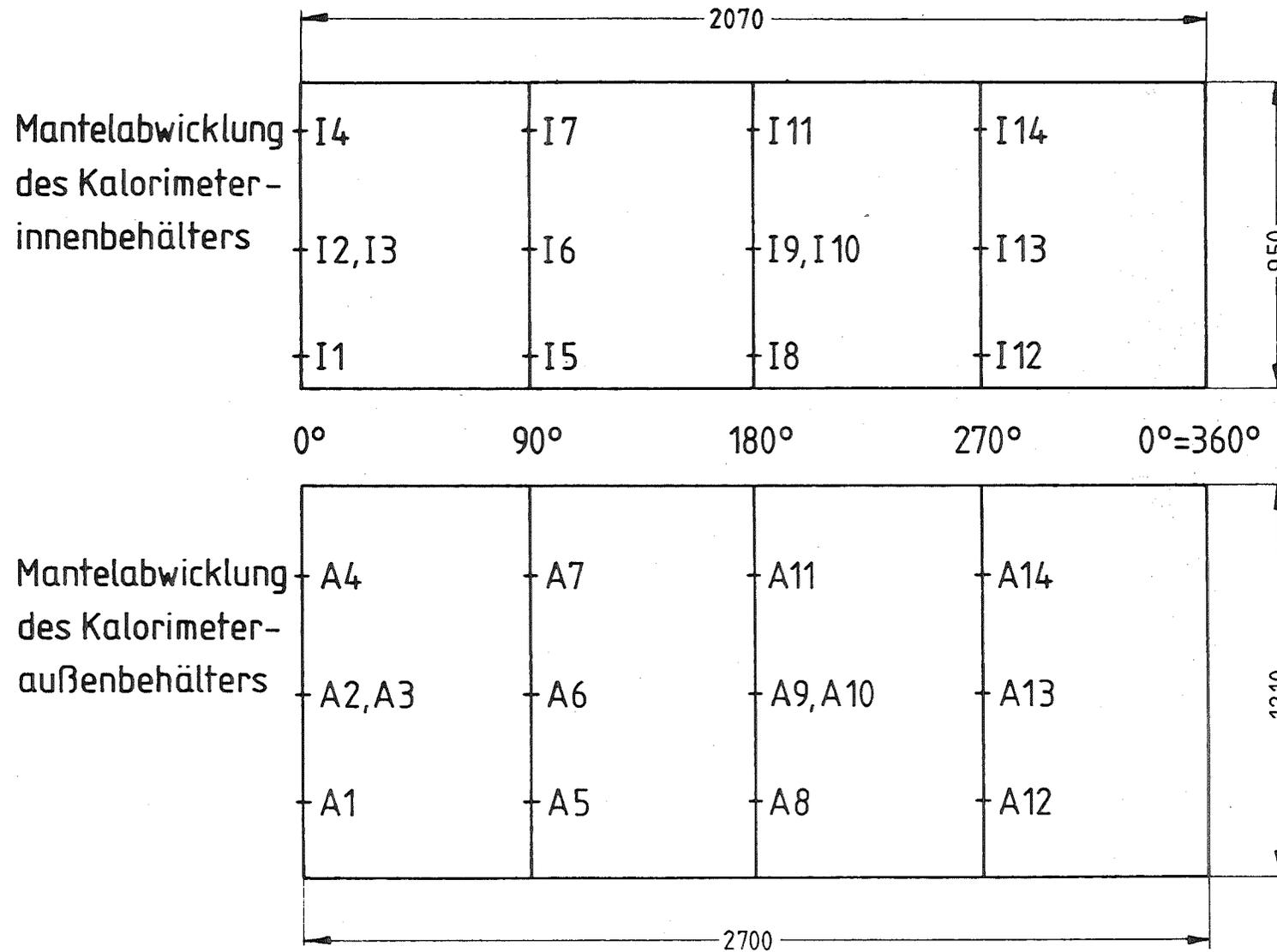


Abb. 17 Bestückungsschema und Meßstellenbezeichnungen der Widerstandsthermometer

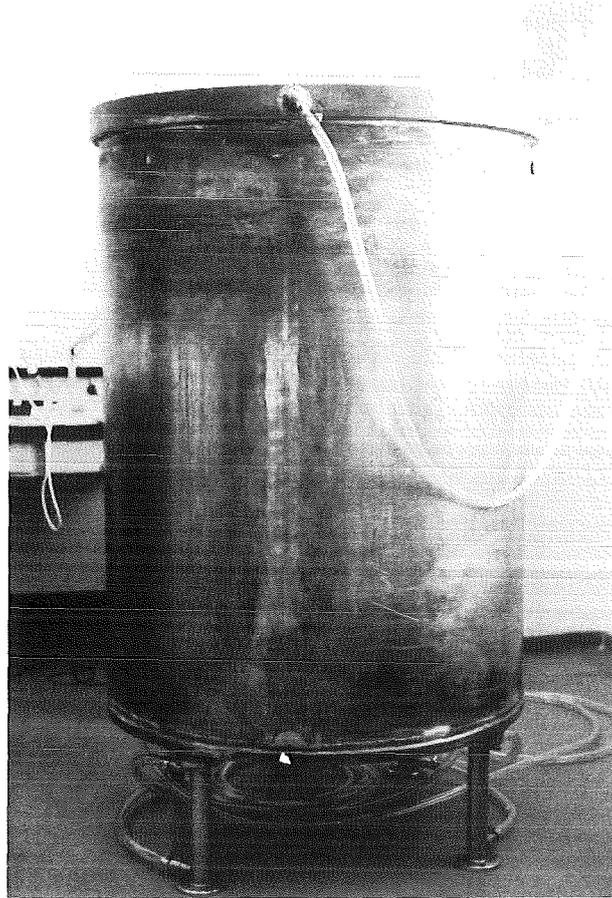


Abb. 18 Kalorimeter vor dem Anbringen der äußeren Wärmeisolation

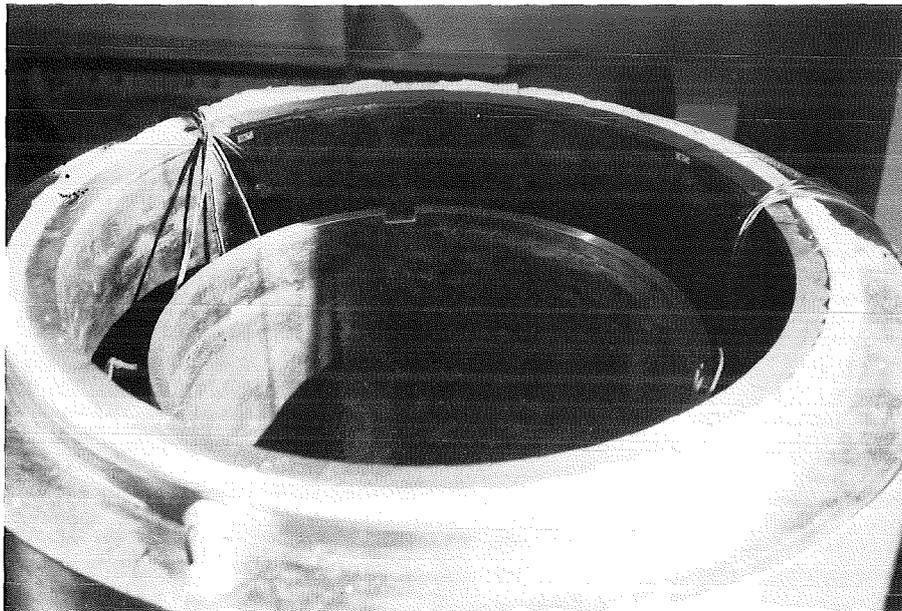


Abb. 19 Kalorimeteraufbau vor dem Einbringen der Wärmedämmschicht (Blick in das Kalorimeterinnere)

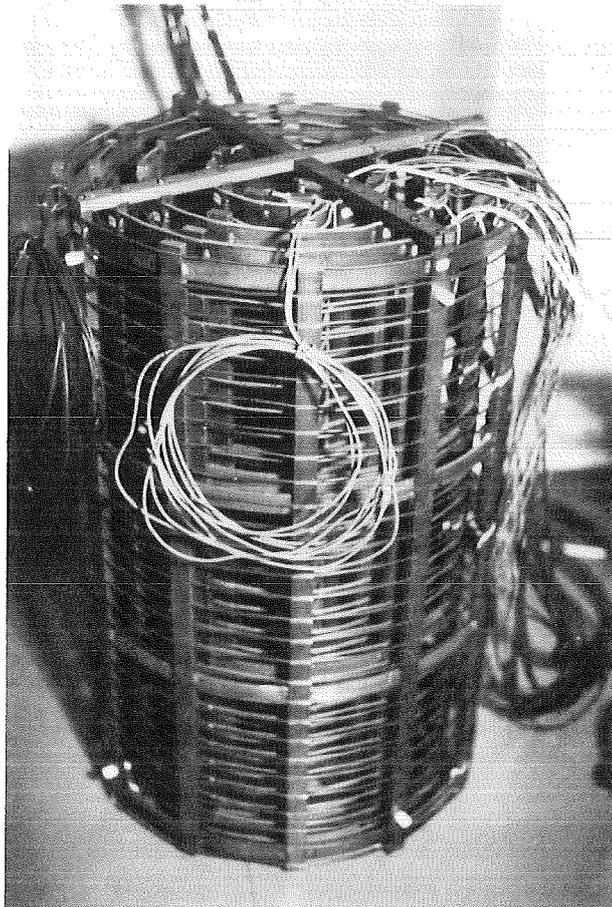


Abb. 20 Tragkorbgerüst des Abfallfaßsimulators mit Widerstandsheizung

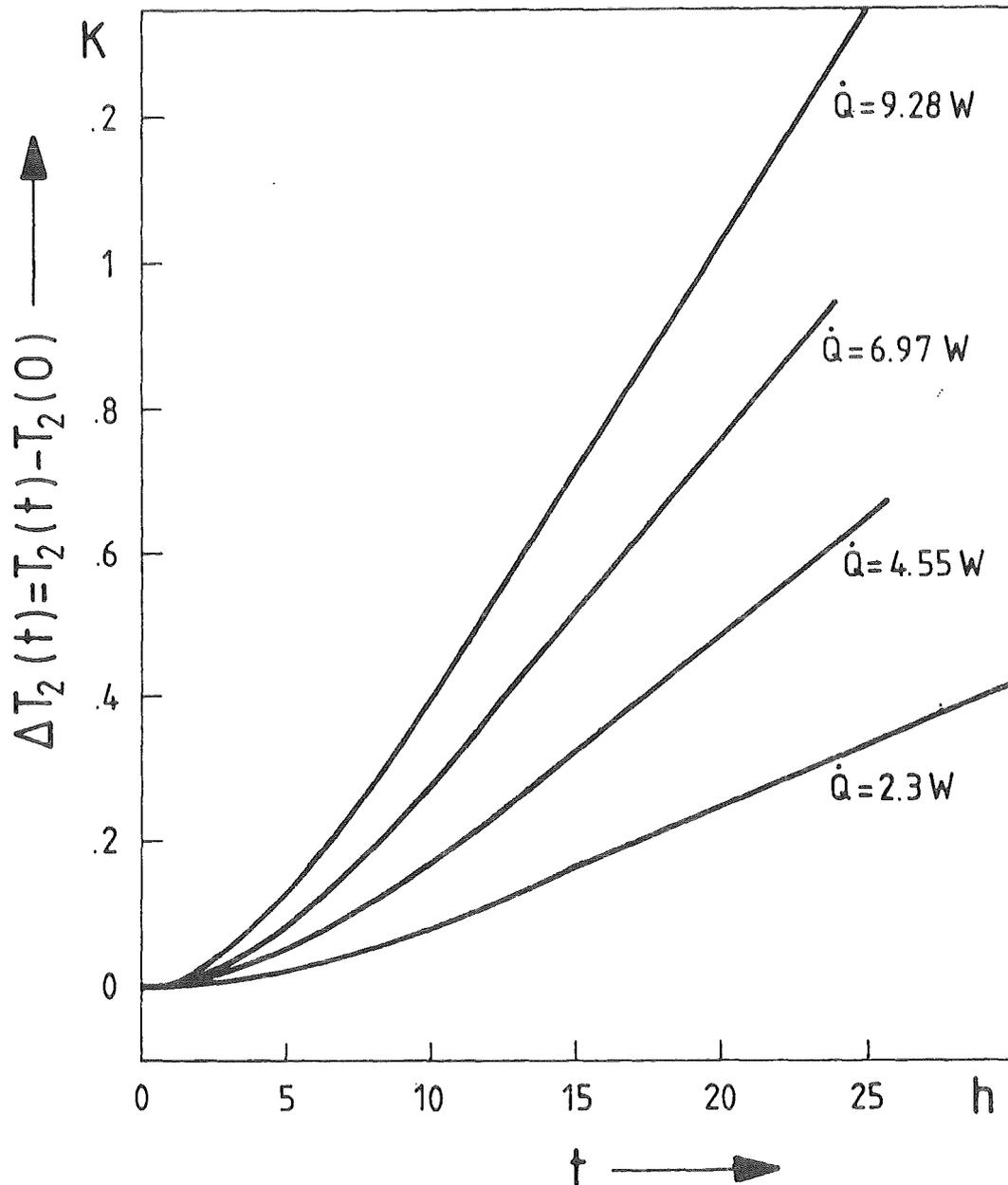


Abb. 21 Mit dem adiabatischen Kalorimeter gemessene Temperaturverläufe ($\Delta T_2(t)$) bei 4 verschiedenen Faßleistungen

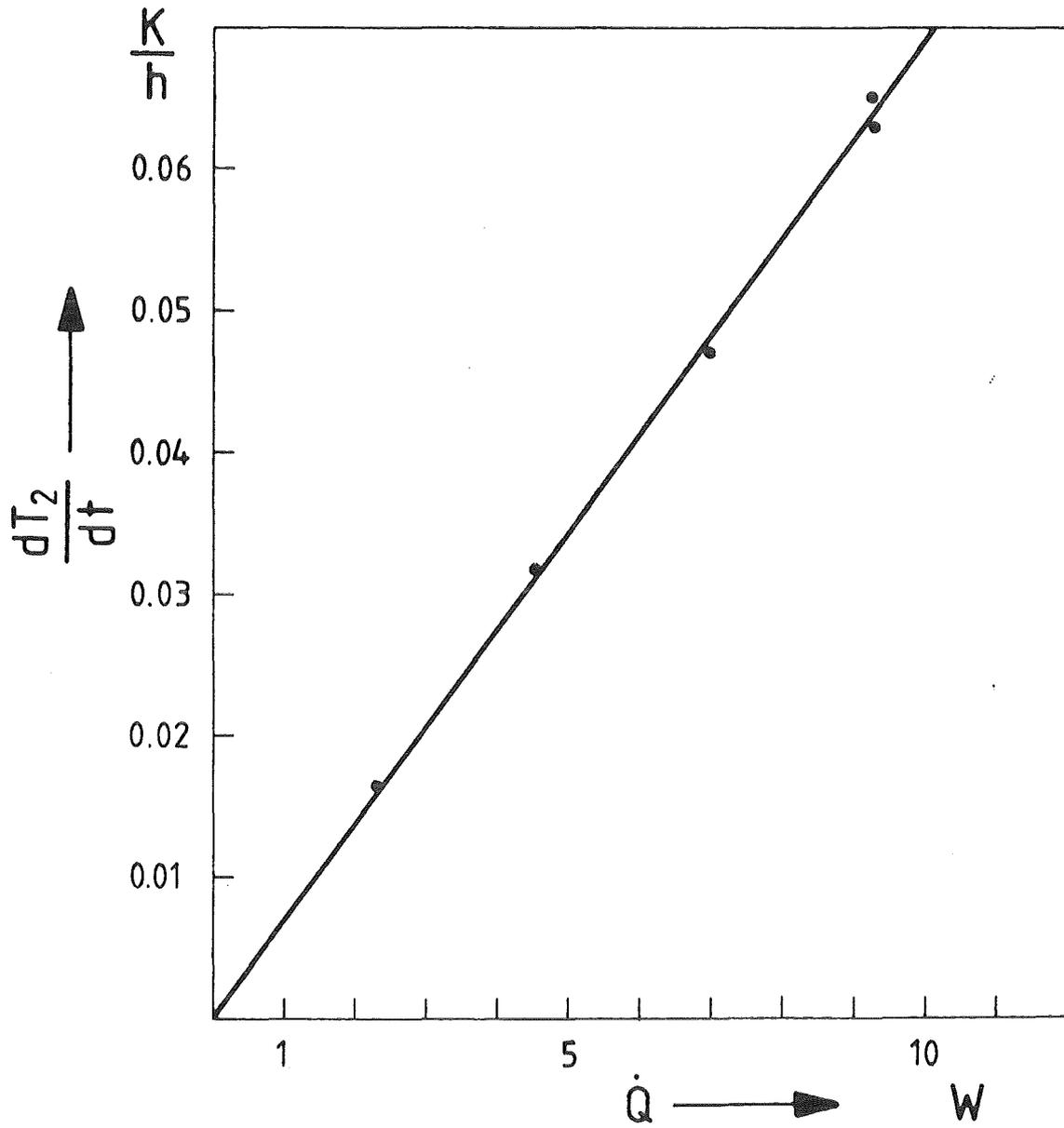


Abb. 22 Eichkurve des adiabatischen Kalorimeters (Faßsimulator)

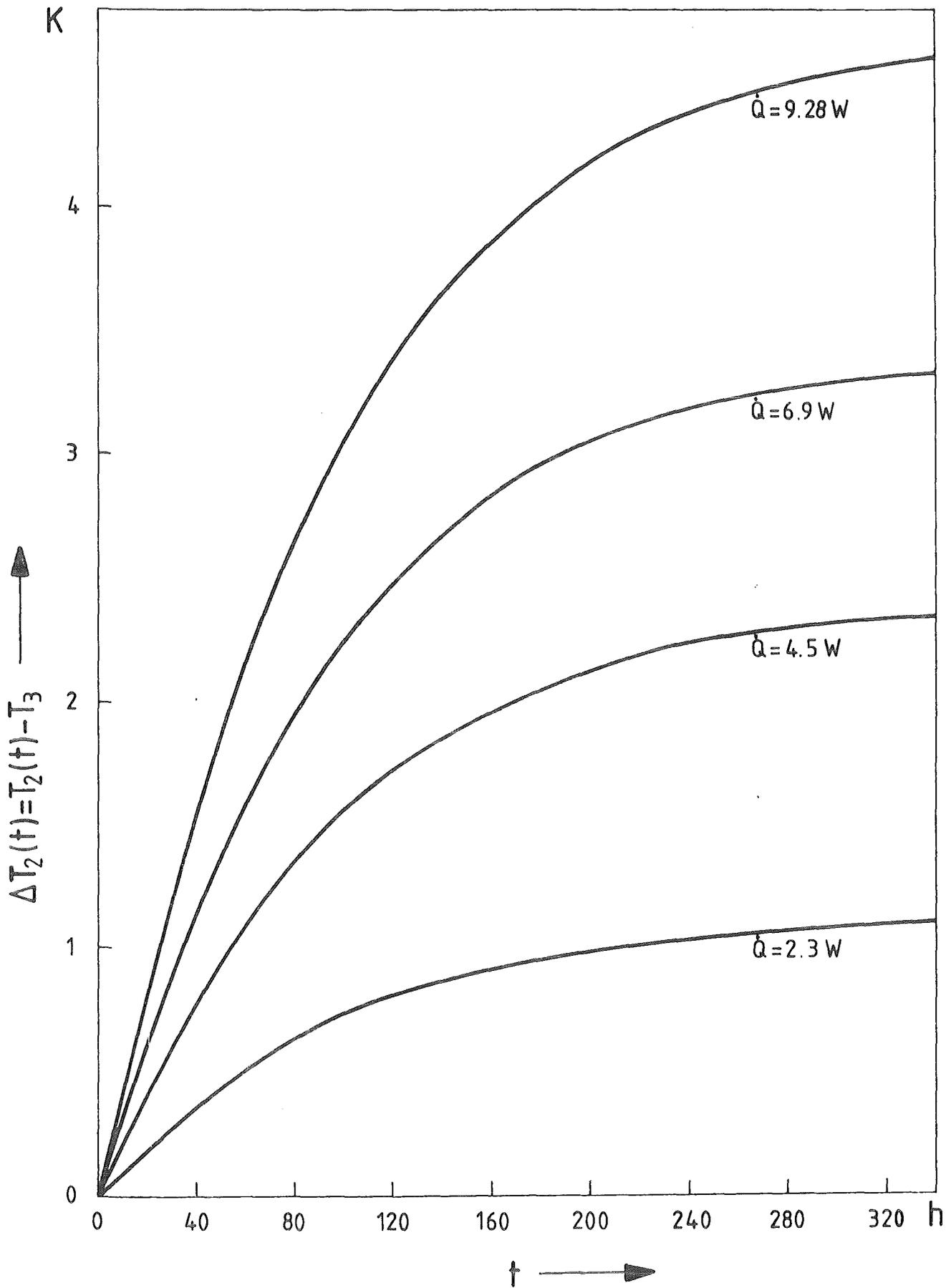


Abb. 23 Mit dem isothermen Wärmeflußkalorimeter gemessene Temperaturverläufe $(T_2(t) - T_3)$ bei 4 verschiedenen Faßleistungen

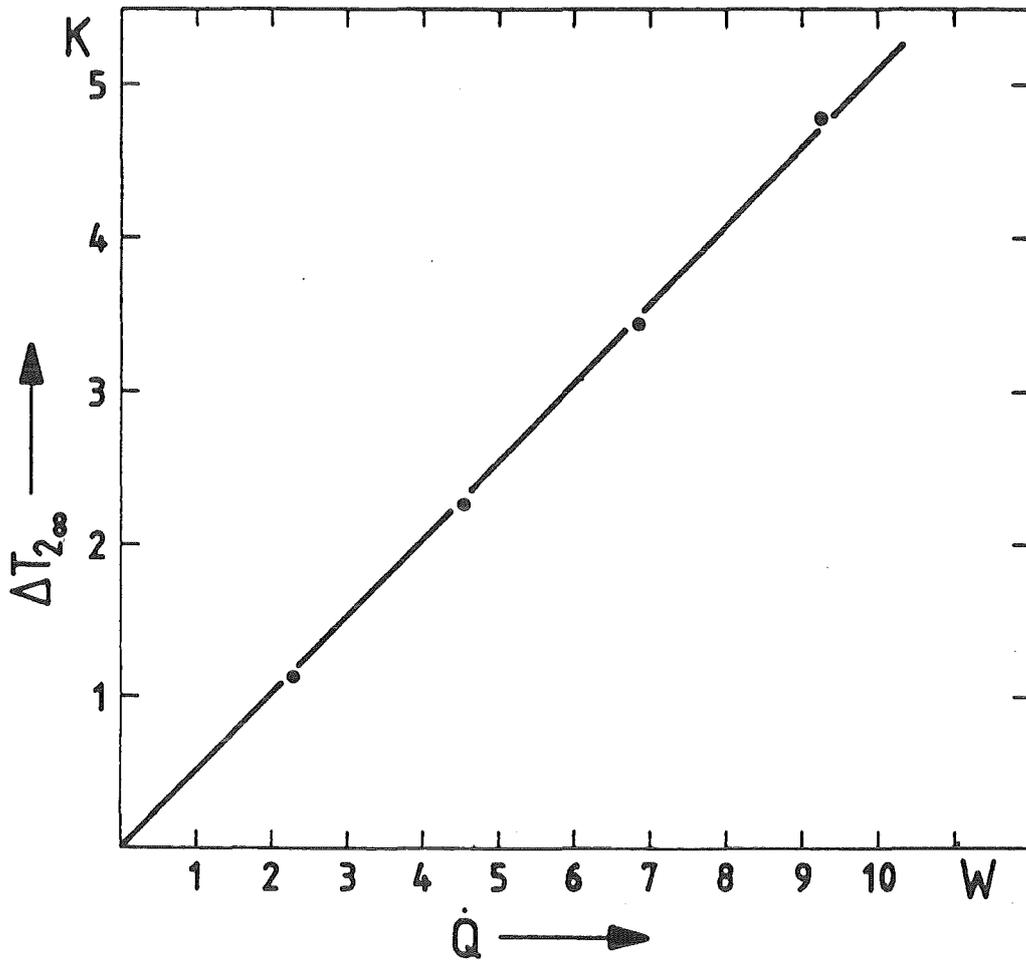


Abb. 24 Eichkurve des isothermen Wärmeflußkalorimeters

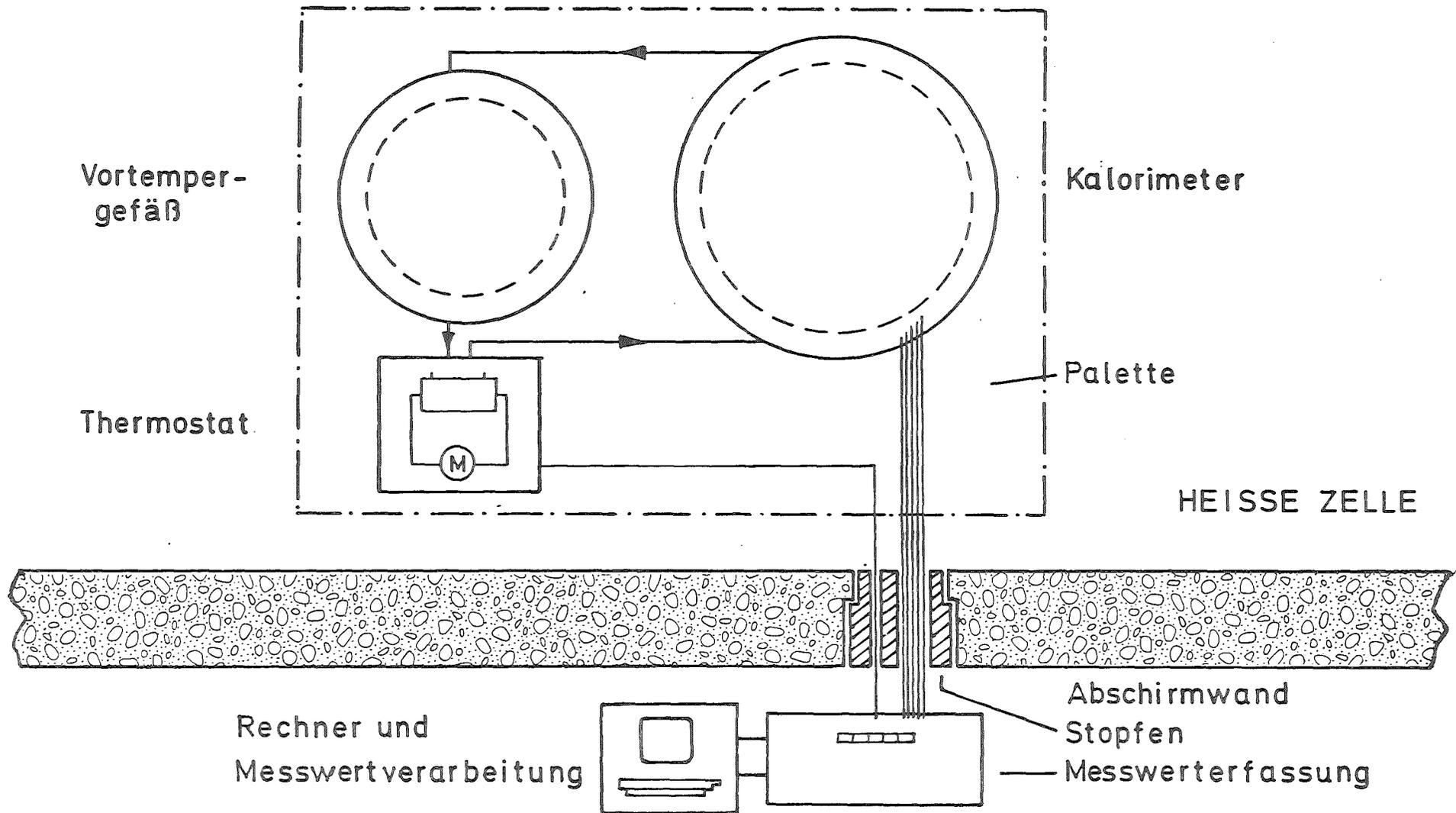


Abb. 25 Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus

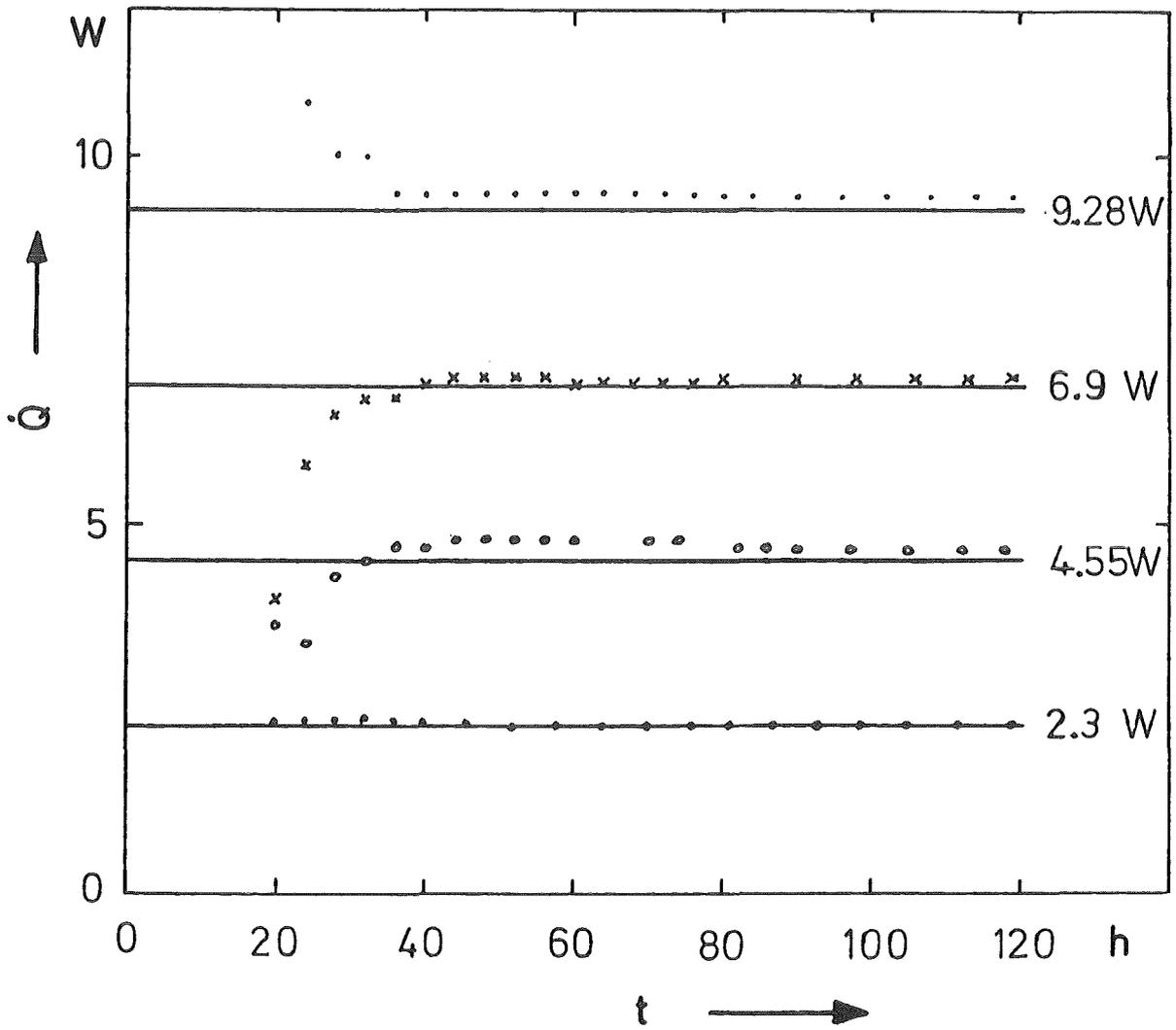


Abb. 26 Elektrisch eingestellte Faßleistungen (—) und durch Least-square-Fit berechnete Faßleistungen (·○×·) als Funktion der Meßzeit.

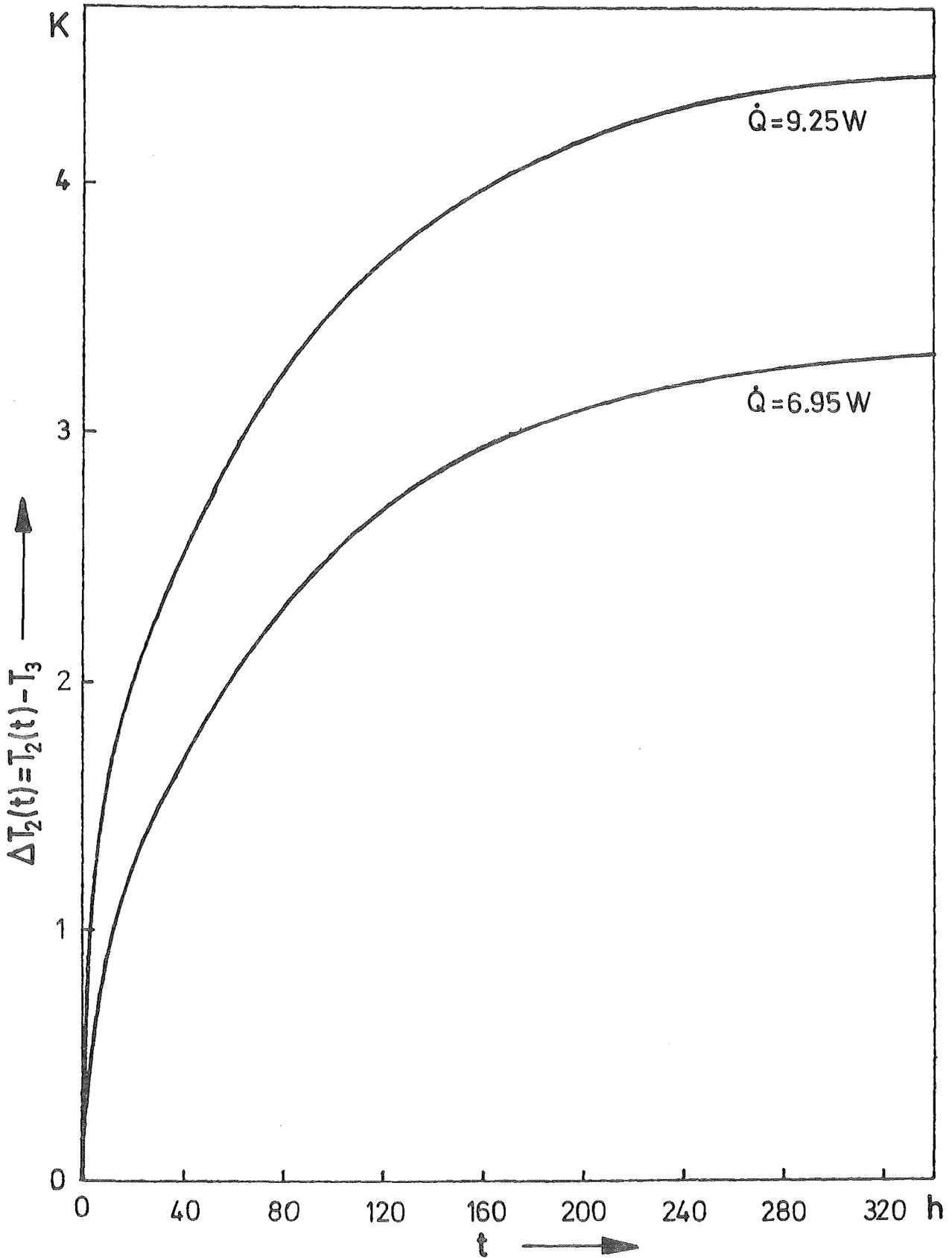


Abb. 27 Mit dem isothermen Wärmeflußkalorimeter gemessene Temperaturverläufe $(T_2(t) - T_3)$ bei 2 verschiedenen Faßleistungen (Messungen mit vorgetemperten Fässern)

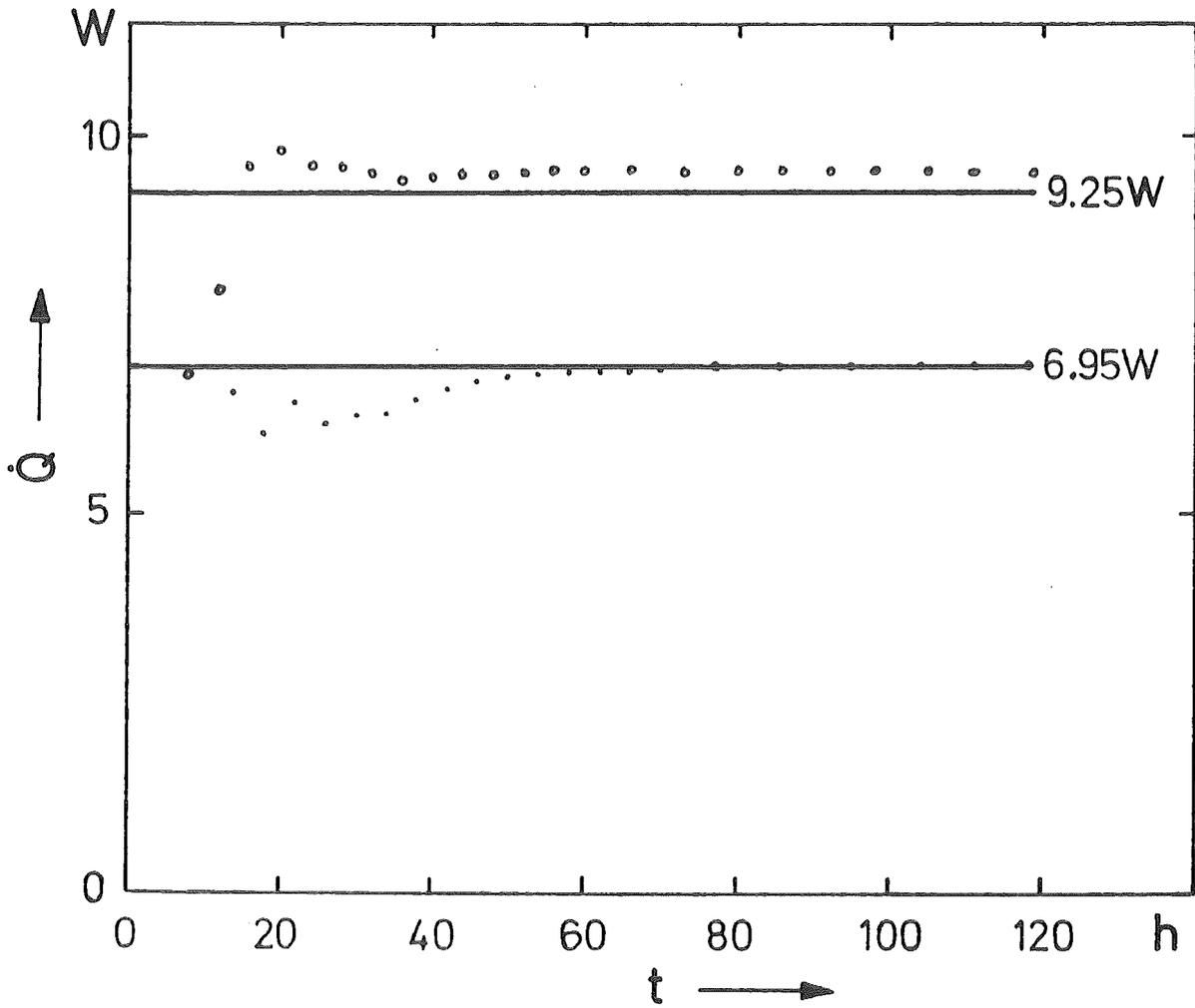


Abb. 28 Elektrisch eingestellte Faßleistungen (—) und durch Least-square-Fit berechnete Faßleistungen (· o) als Funktion der Meßzeit (Messungen mit vorgetemperten Fässern)

Hülsen von KWO-BE Nr. 154, Abbrand 39,05 GWd/t_{SM}
Faß Nr. 45073 vom 14.6.82

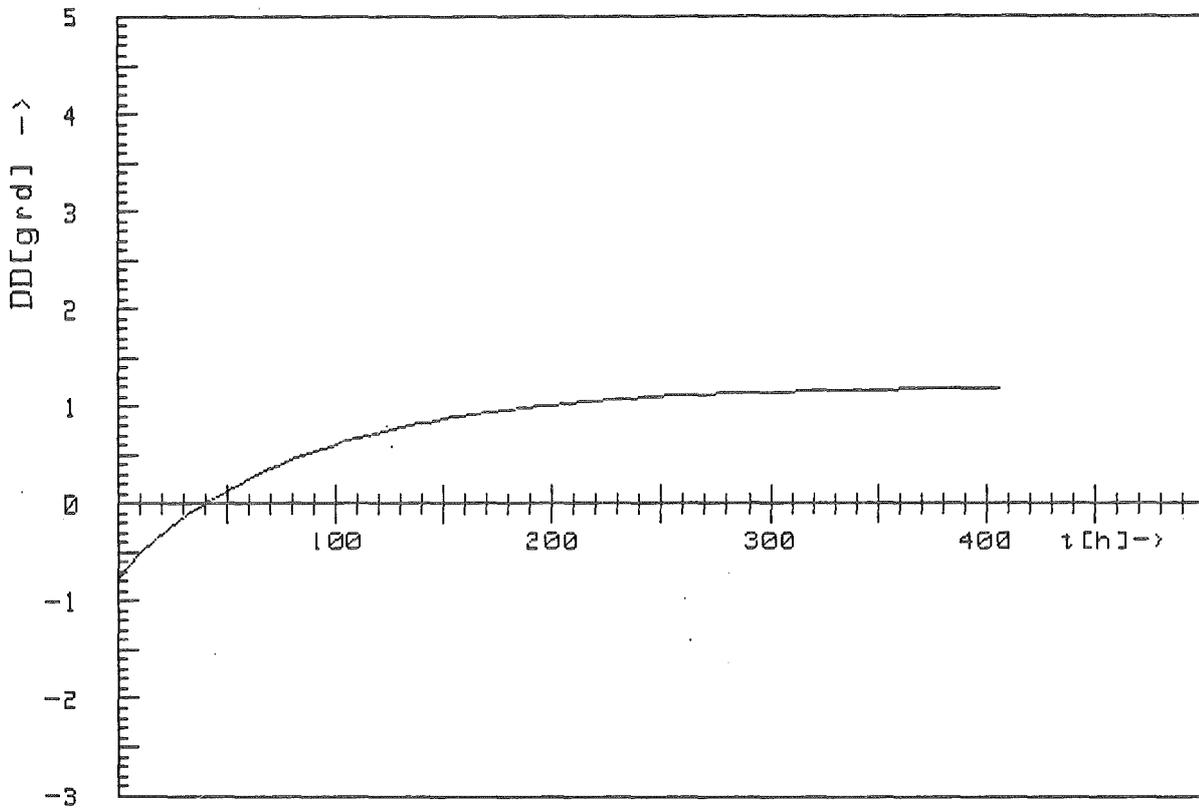


Abb. 29a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter

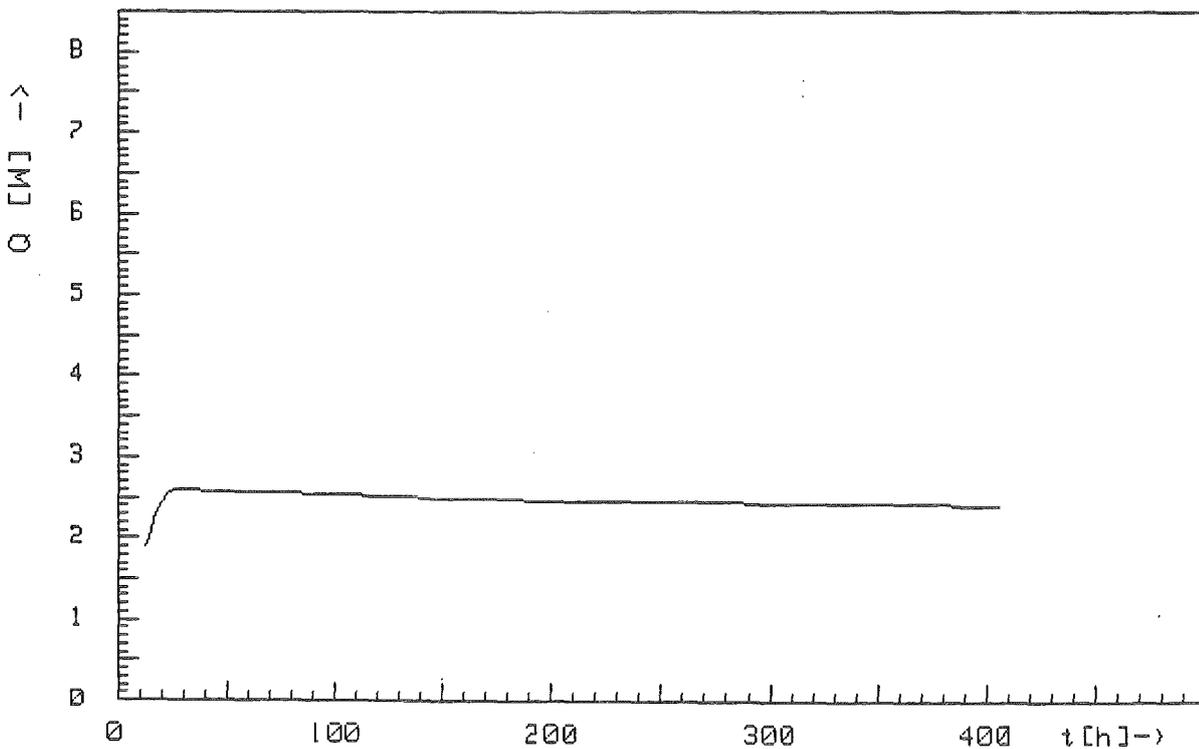


Abb. 29b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$

Hülsen von KWO-BE Nr. 154, Abbrand 39,05 GWd/t_{SM}
nicht vorgetempertes Faß Nr. 45073 vom 11.8.82

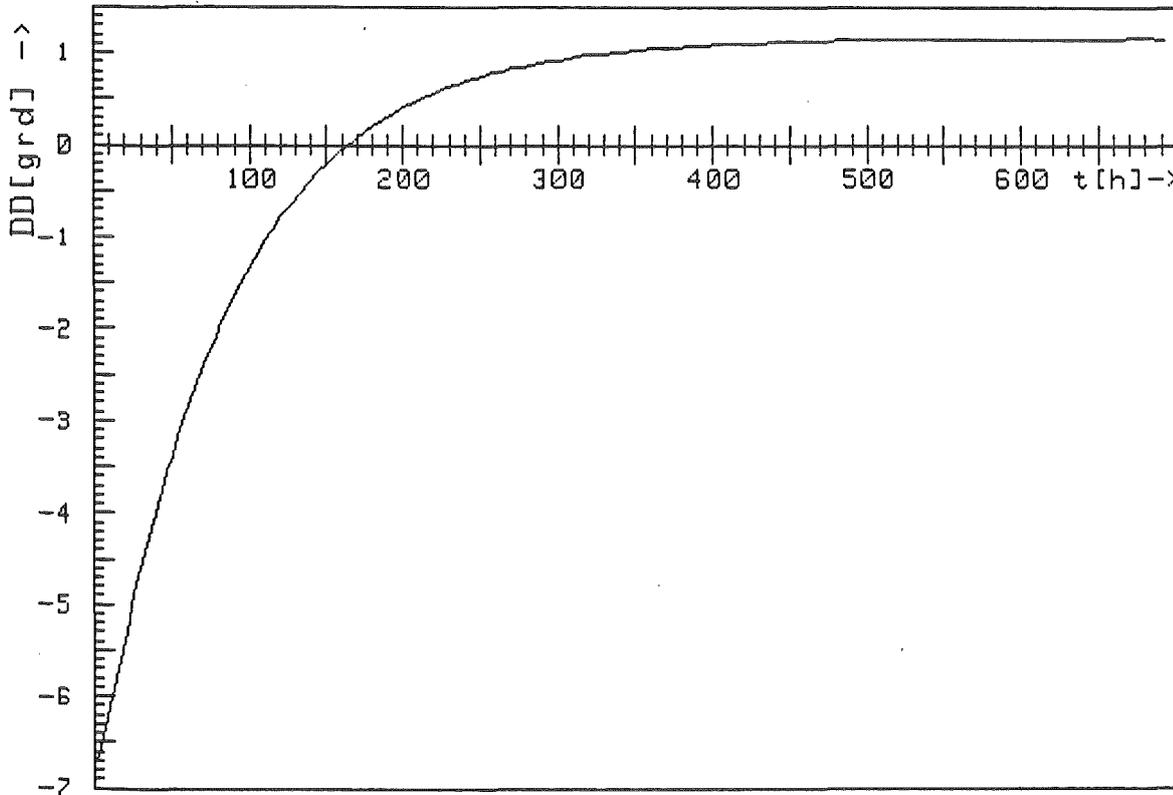


Abb. 30a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter

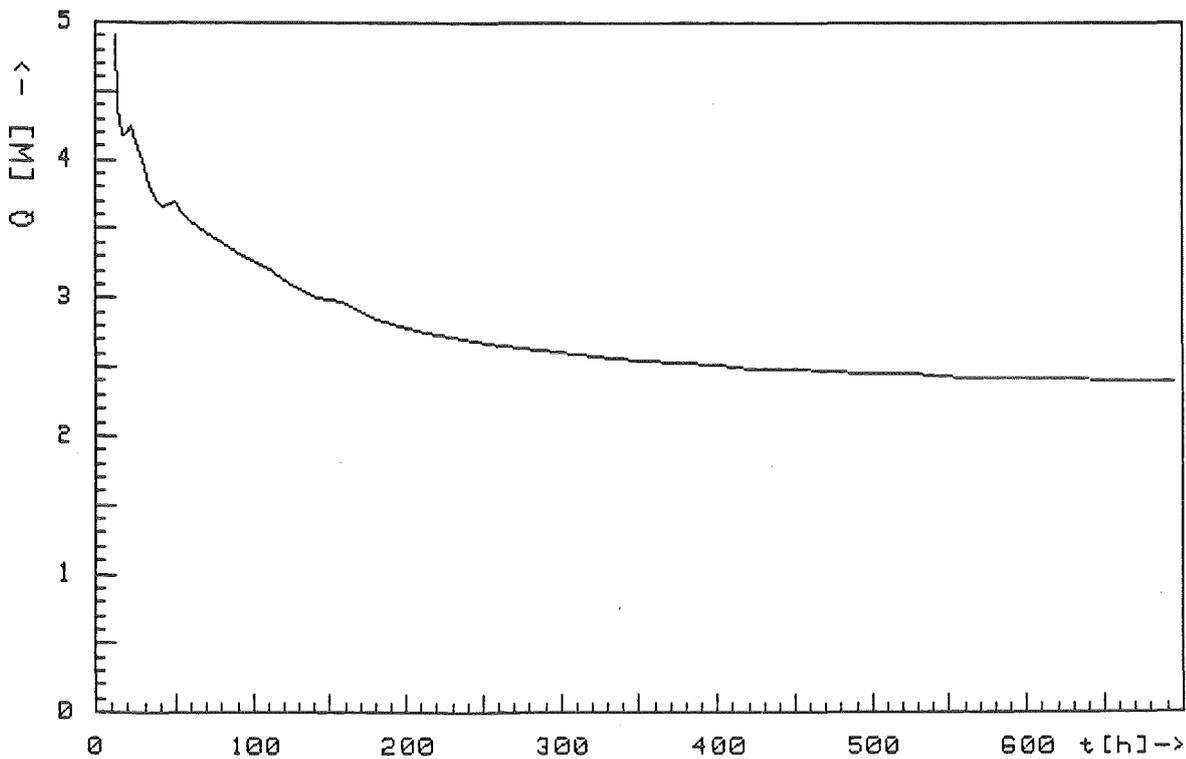


Abb. 30b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$

Hülsen von KWO-BE Nr. 154, Abbrand 39,05 GWd/t_{SM}
nicht vorgetempertes Faß Nr. 45073 vom 1.3.83

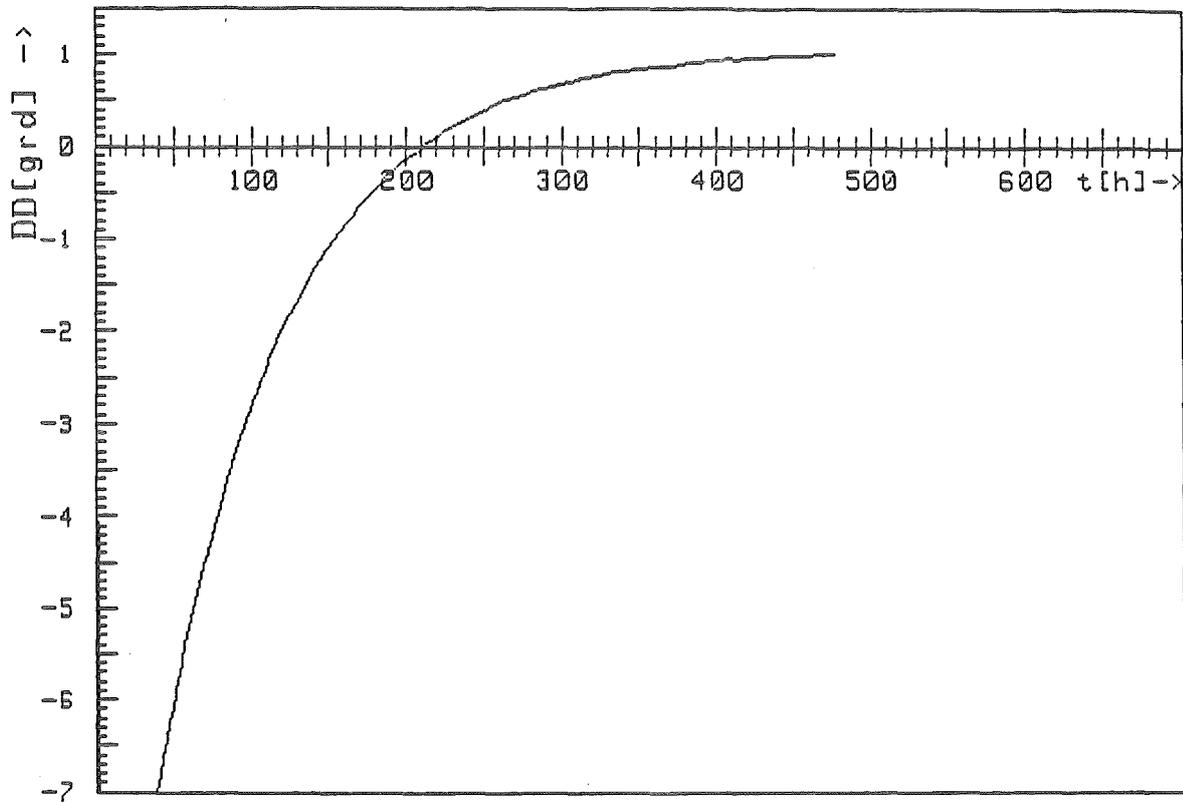


Abb. 31 a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter

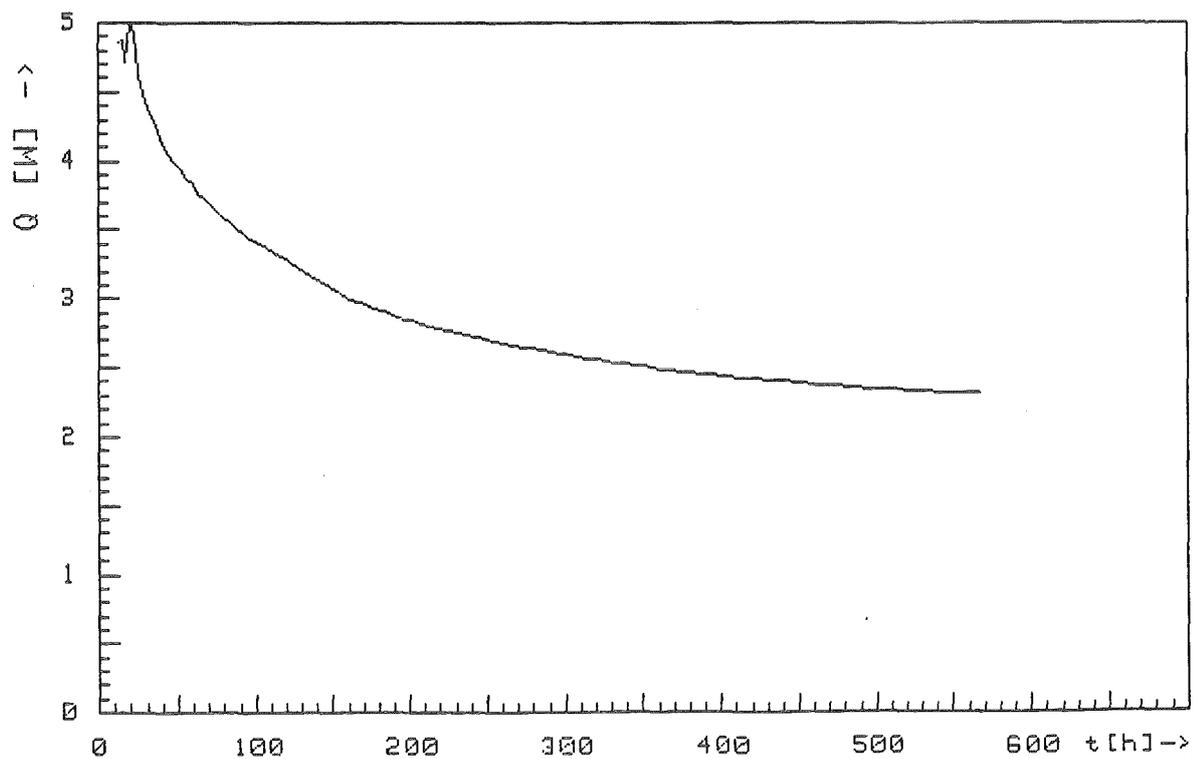


Abb. 31 b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$

Hülsen von KWO-BE Nr. 237, Abbrand 31,3 GWd/t_{SM}
Faß Nr. 40299 vom 13.2.84

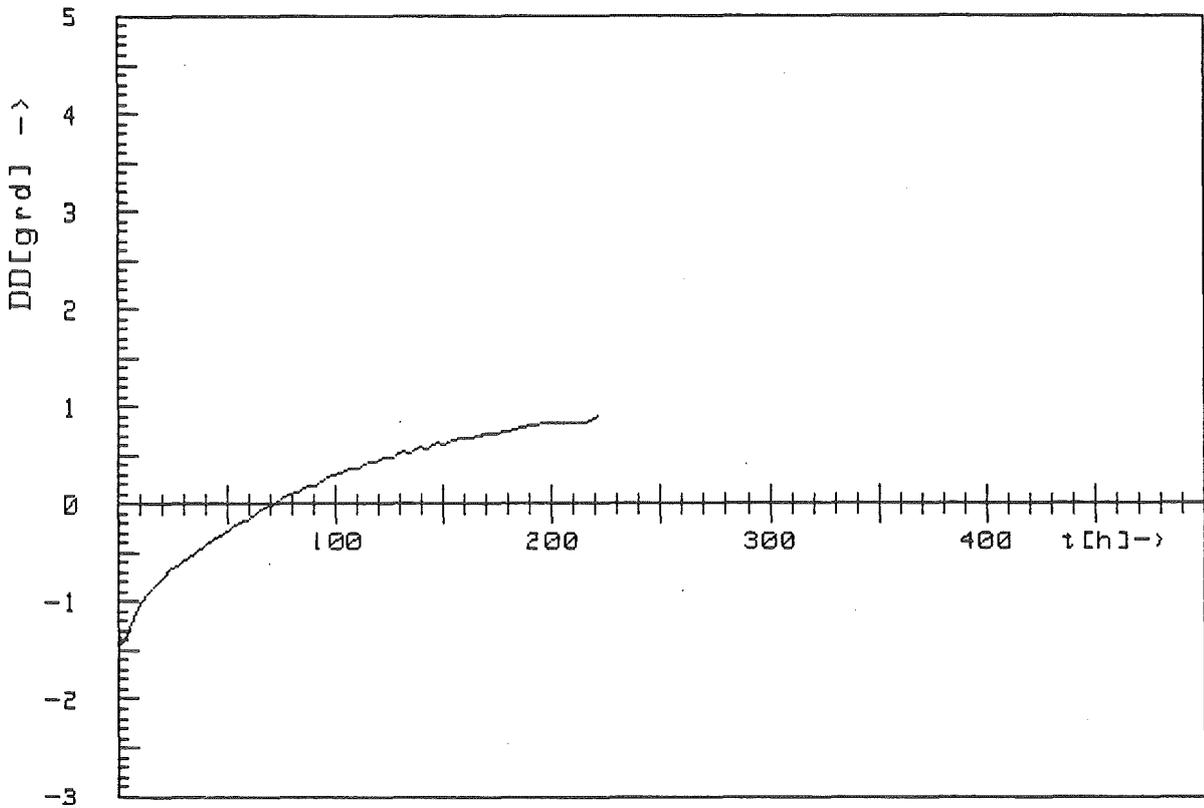


Abb. 32 a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter

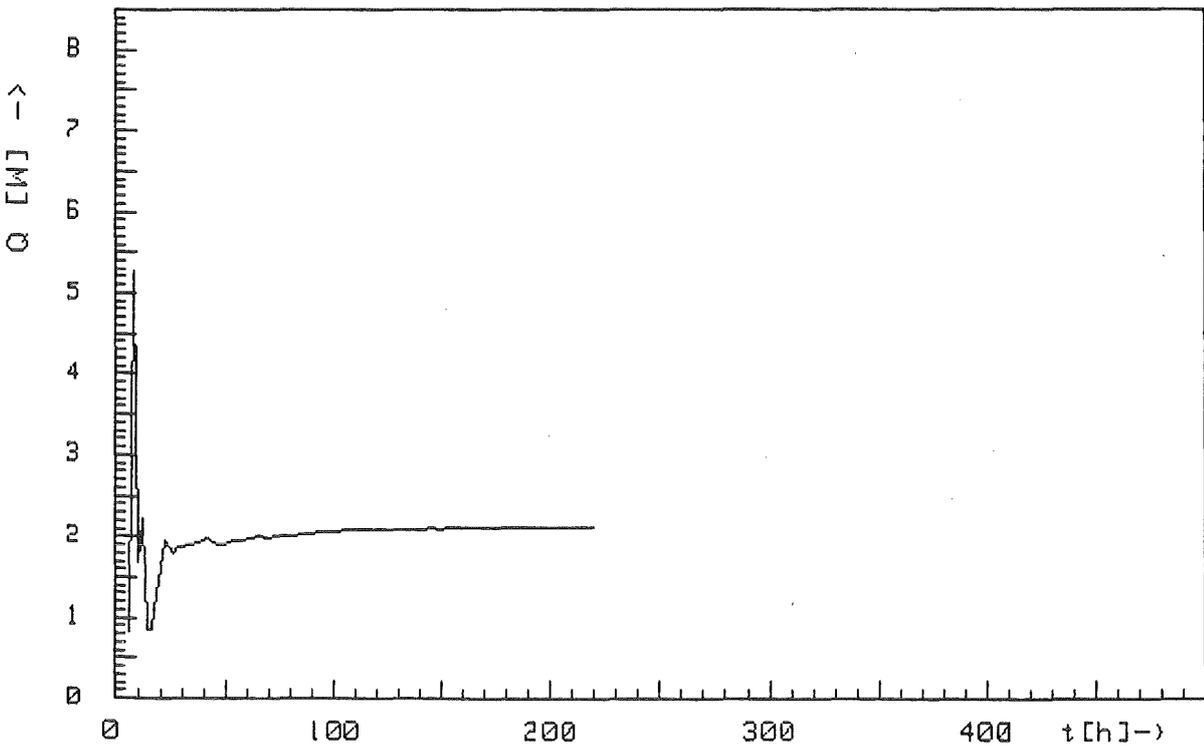


Abb. 32 b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$

Hülsen von KWO-BE Nr. 131, Abbrand 28,08 GWd/t_{SM}
Faß Nr. 18424 vom 16.7.82

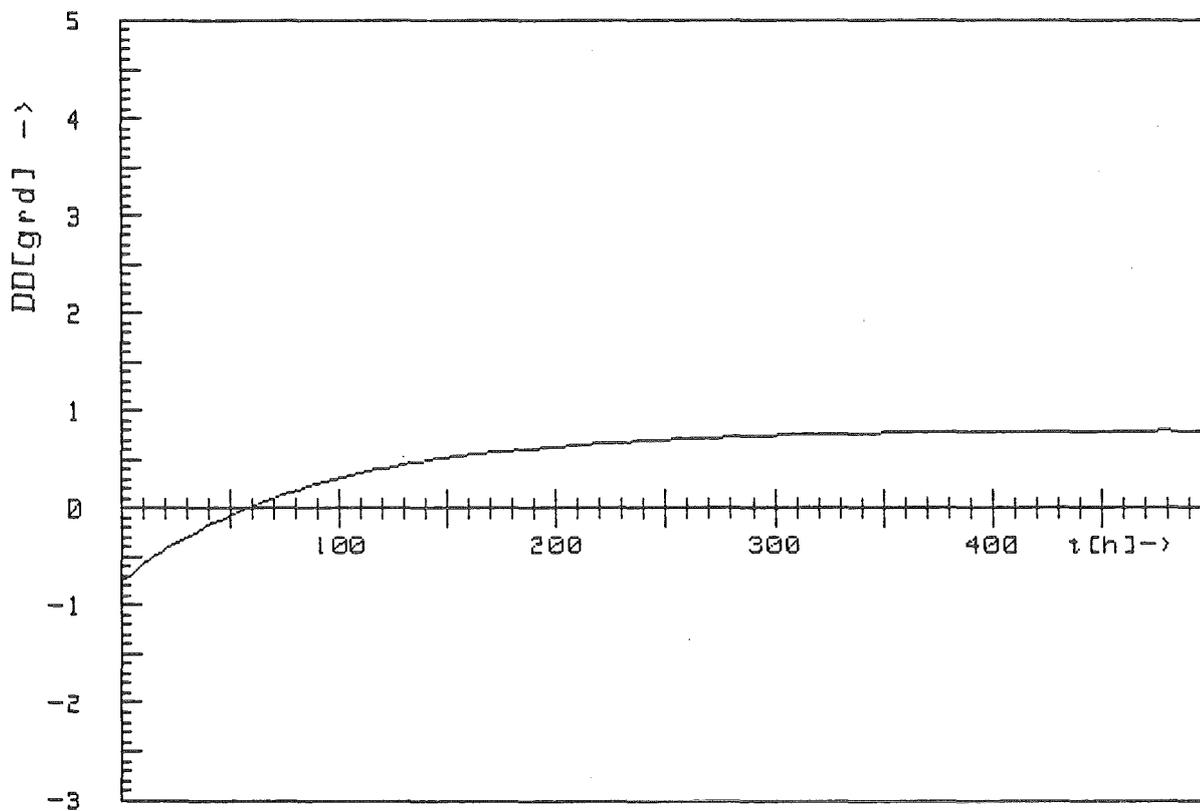


Abb. 33 a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter

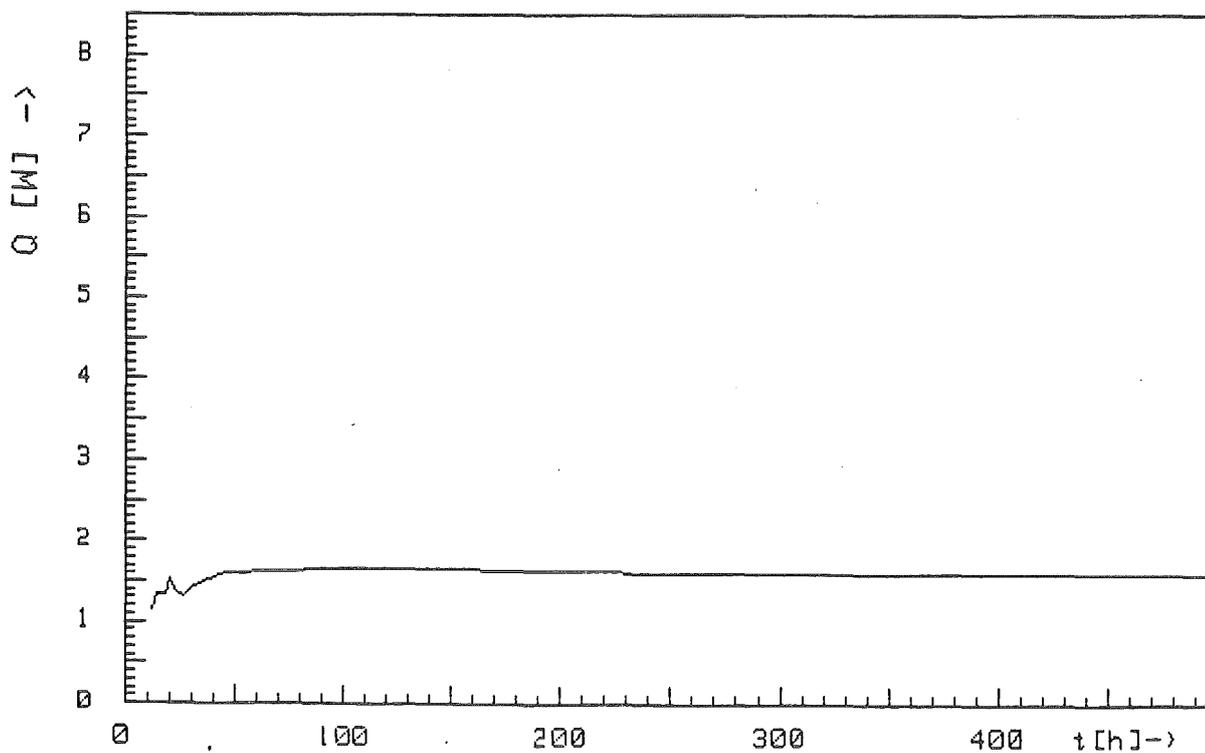


Abb. 33 b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$

Hülsen von KWO-BE Nr. 193, Abbrand 24,6 GWd/t_{SM}
Faß Nr. 65345 vom 12.7.83

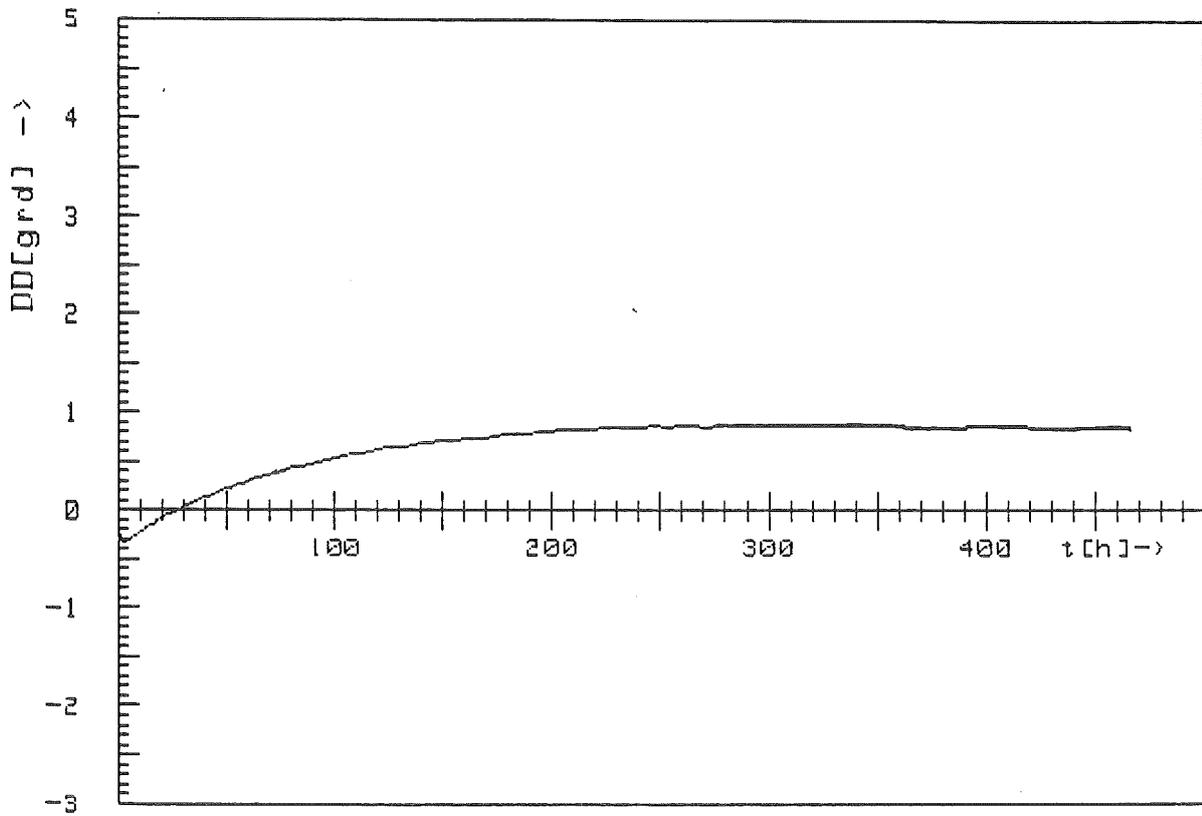


Abb. 34a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter

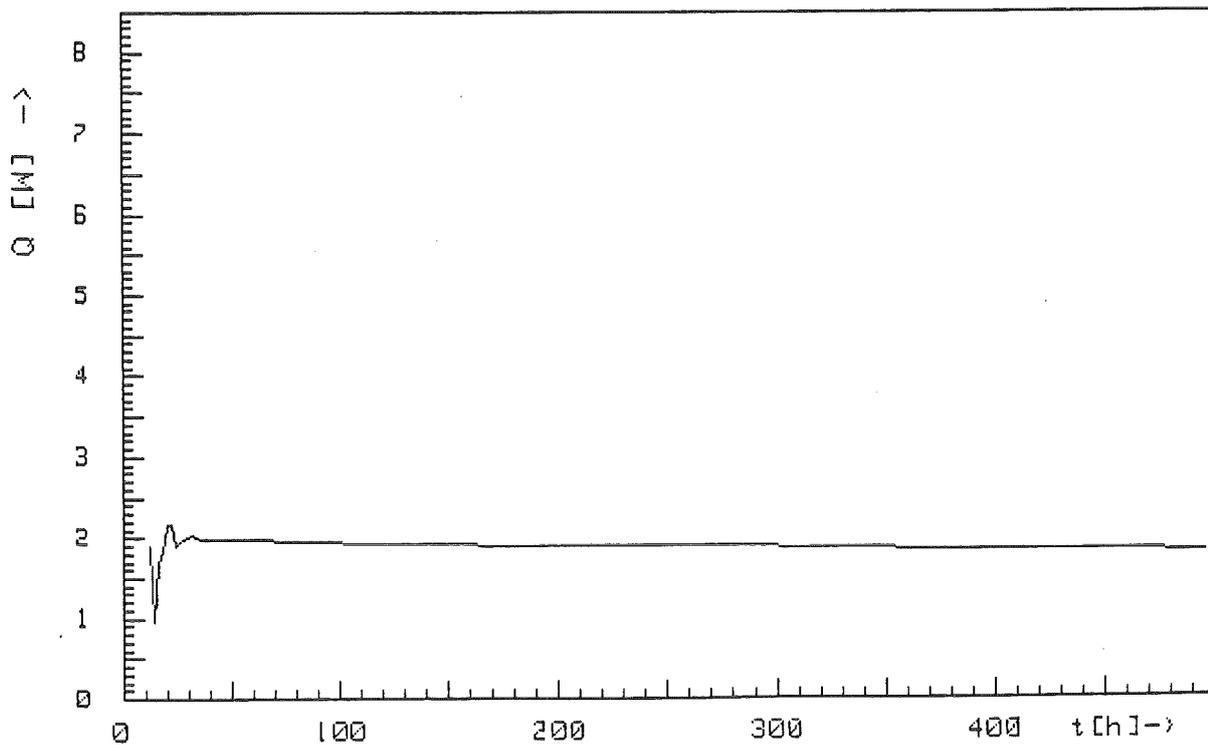


Abb. 34b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$

Hülsen von KWO-BE Nr. 250, Abbrand 29,4 GWd/t_{SM}
Faß Nr. 2966/4 vom 16.1.84

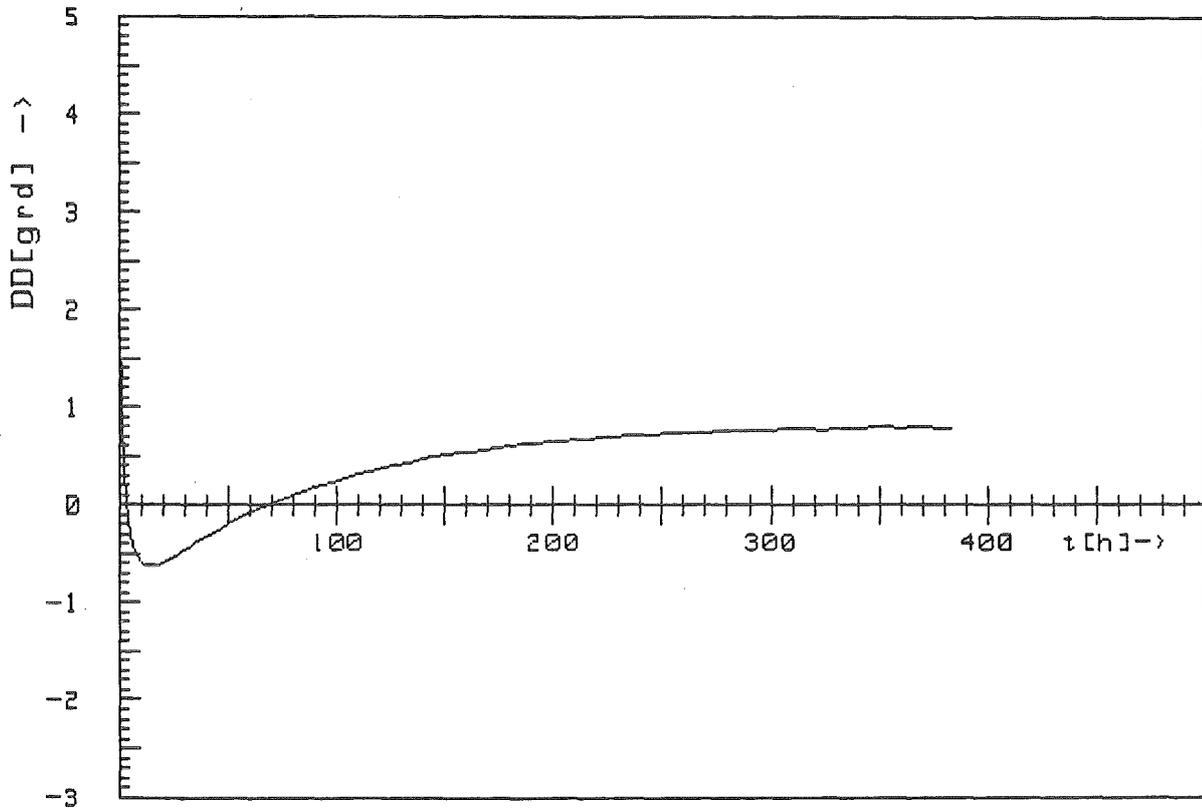


Abb. 35 a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter

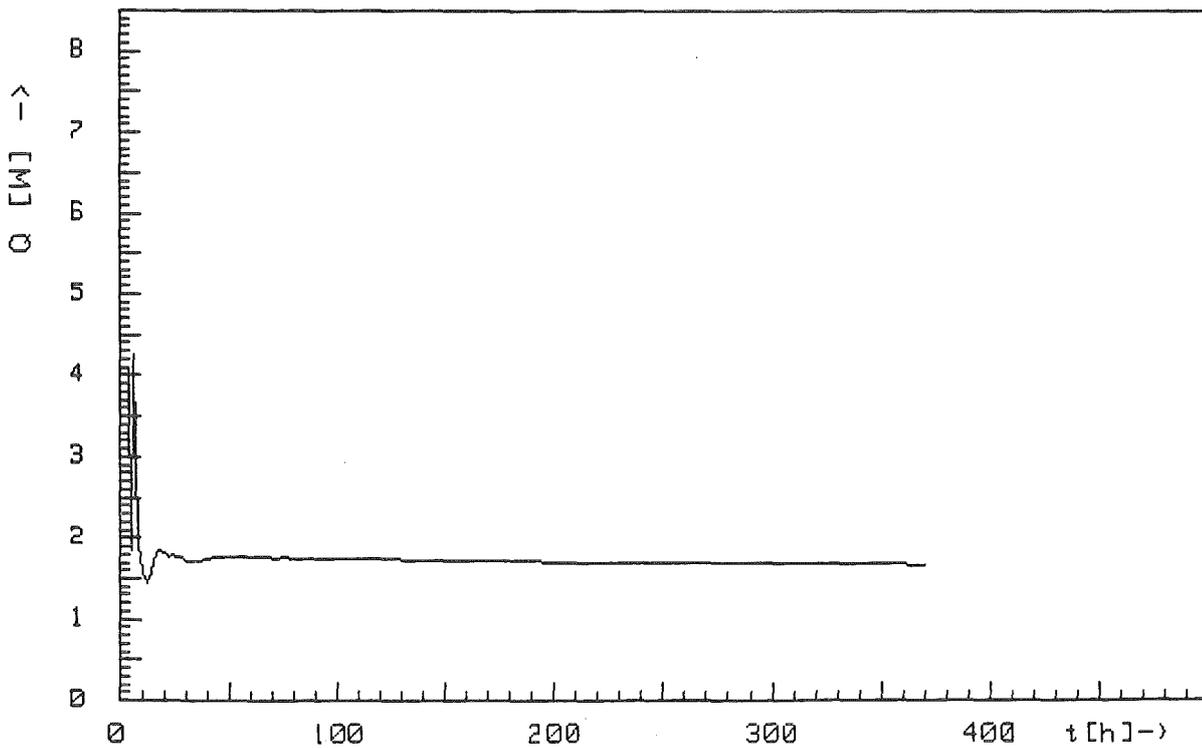


Abb. 35 b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$

Abstandshalter und Führungsrohre von KWO-BE Nr. 250
Faß Nr. 4195/7 vom 3.1.84, Abbrand 29,4 GWd/t_{SM}

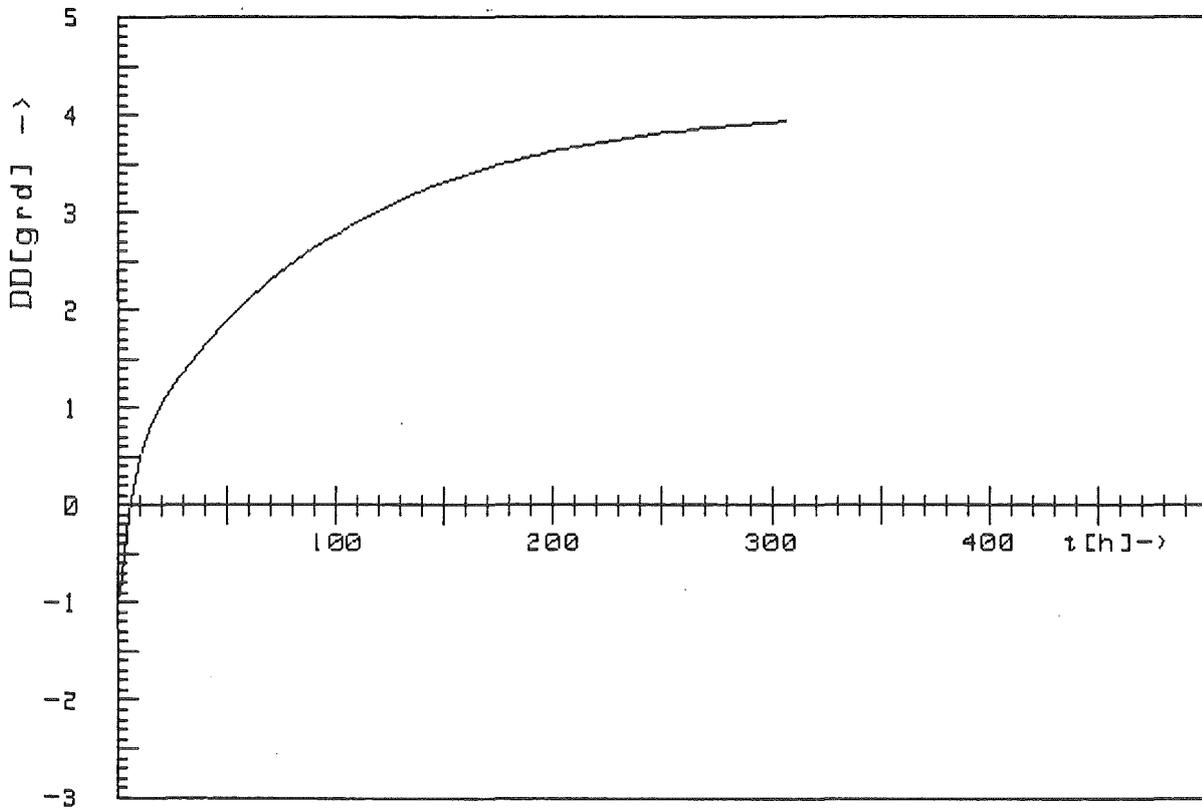


Abb. 36 a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter

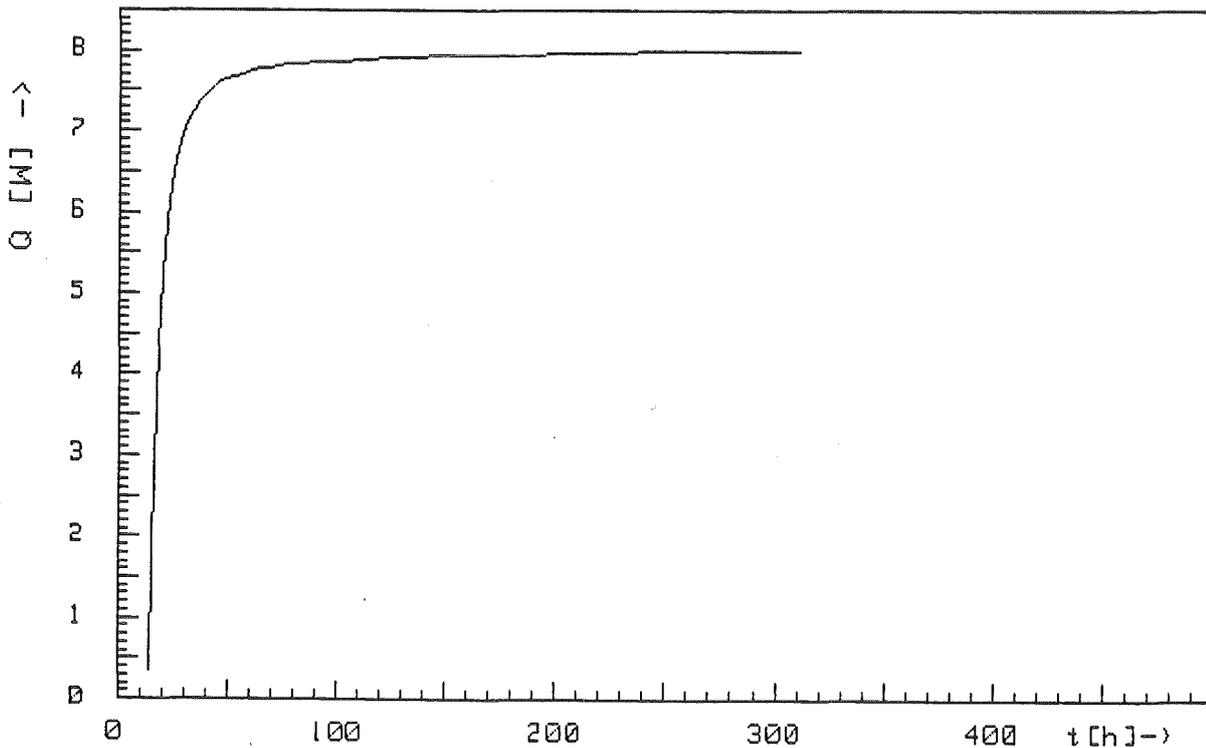


Abb. 36 b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$

Endstücke von KWO-BE Nr. 250, Abbrand 29,4 GWd/t_{SM}
Faß Nr. 3434/9 vom 20.12.83

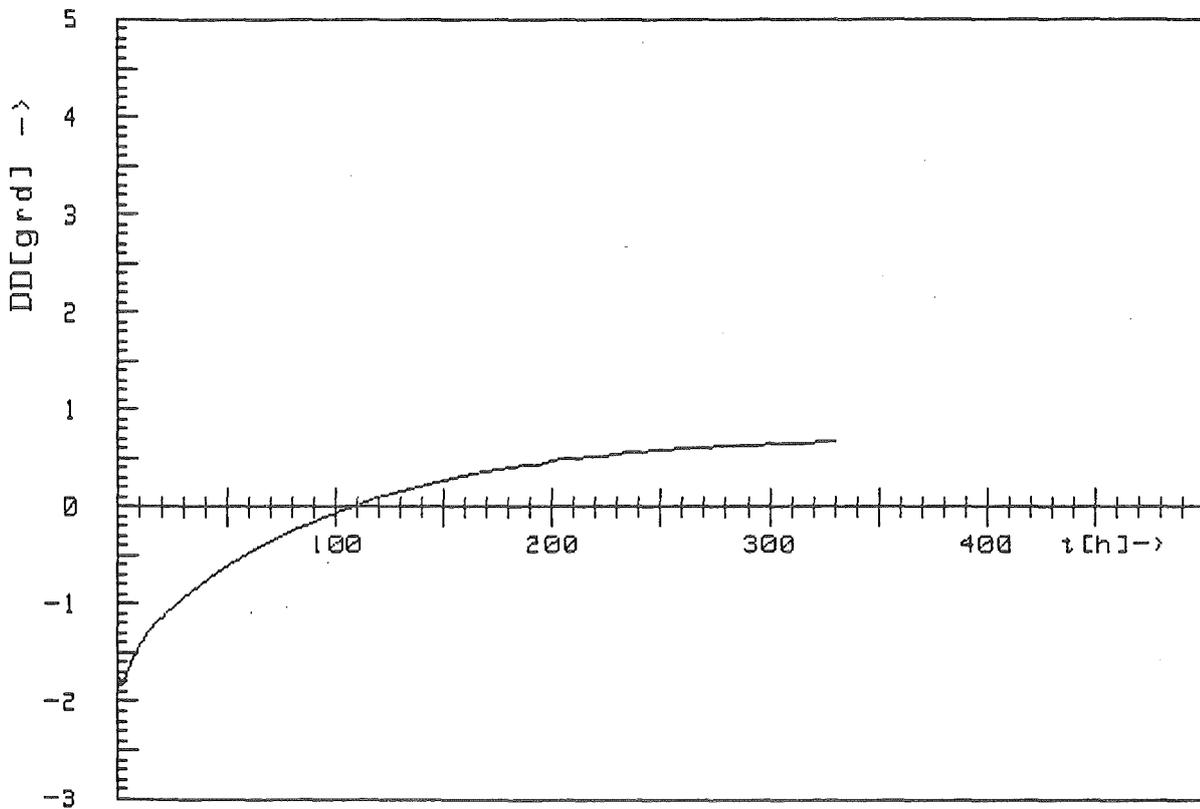


Abb. 37 a Temperaturverlauf $\Delta T = f(t)$ im Kalorimeter

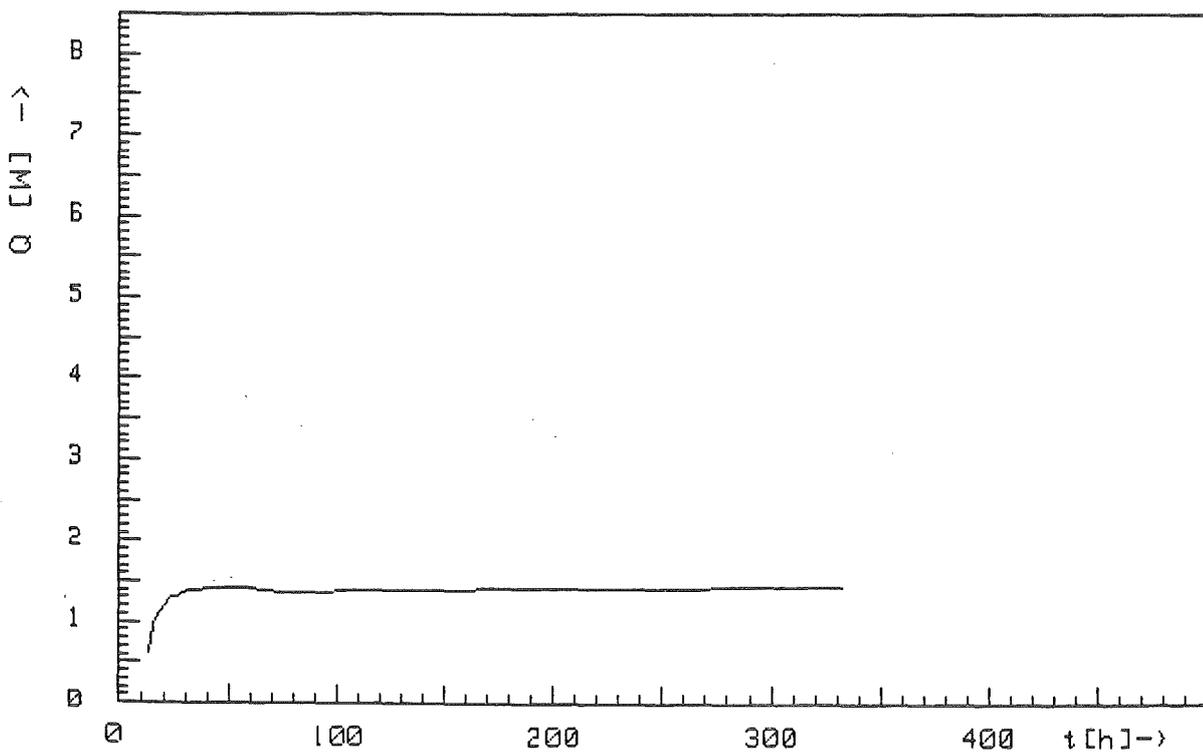


Abb. 37 b Aus $\Delta T = f(t)$ berechnete Wärmeleistung $Q = f(t)$

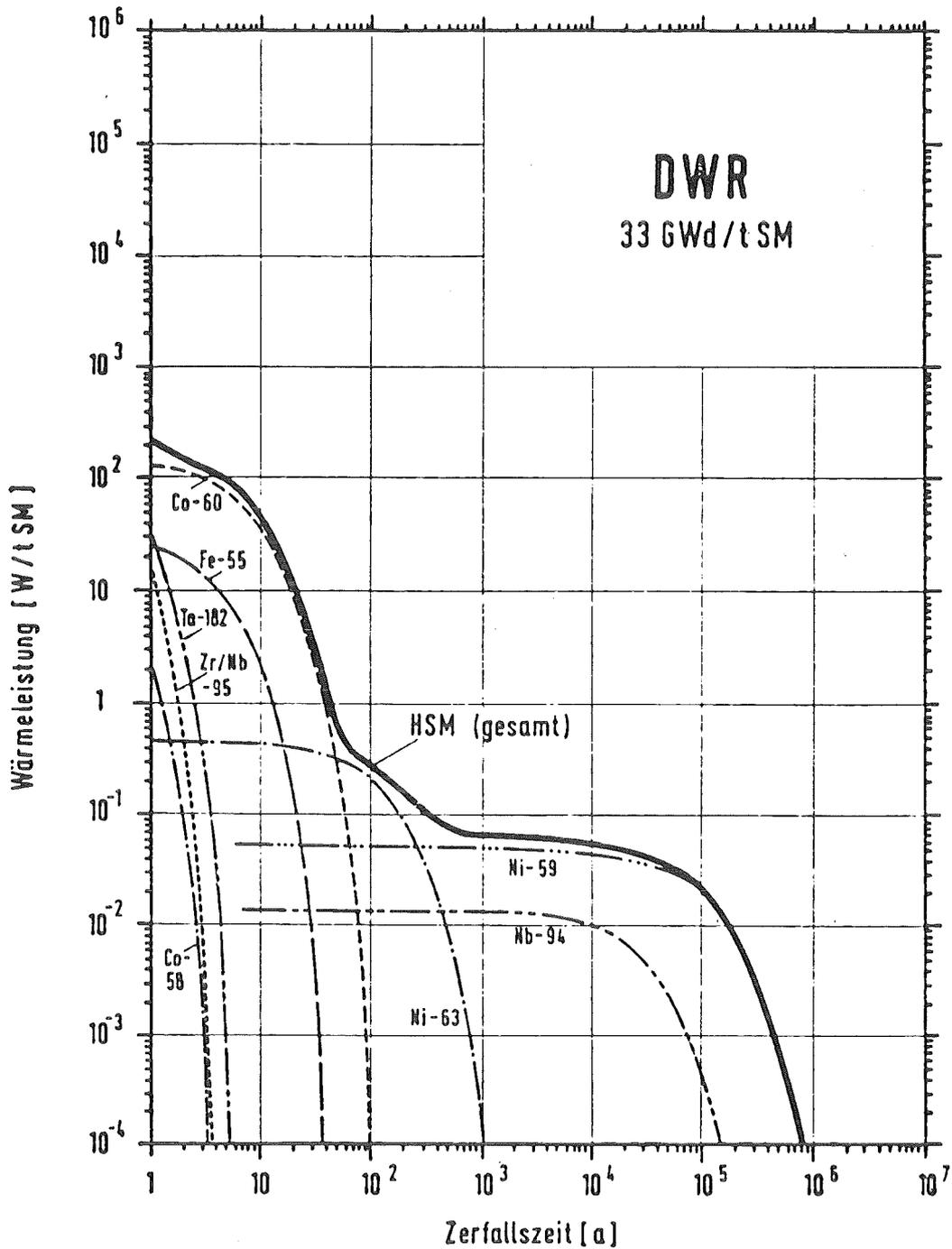


Abb. 38: Wärmeleistung einzelner Nuklide der Aktivierungsprodukte von Hüll- und Strukturmaterial eines DWR-Brennelementes vom Typ „BIBLIS“ (4)

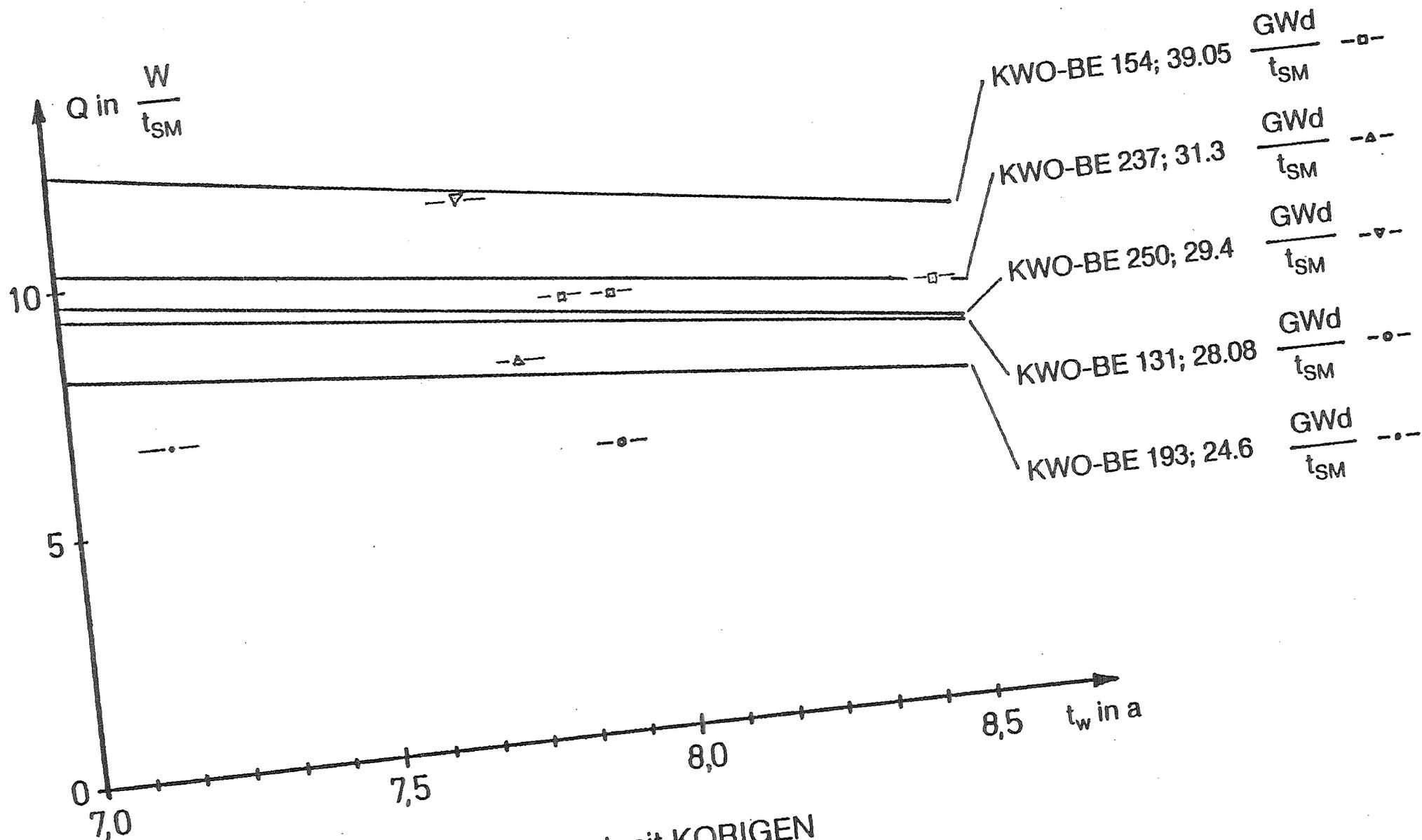


Abb. 39: Vergleich gemessener und mit KORIGEN berechneter Wärmeleistungen von Hülensabfällen von KWO-Brennelementen