

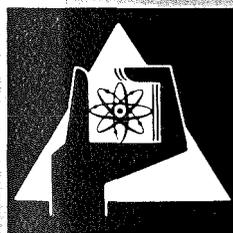
**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

November 1976

KFK 2399

Projekt Nukleare Sicherheit

**Jahreskolloquium 1976
des Projekts Nukleare Sicherheit**



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 2399

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

Sammlung der Vorträge zum
Jahreskolloquium 1976 des
Projekts Nukleare Sicherheit

Karlsruhe, am 23. November 1976

Gesellschaft für Kernforschung mbH.,
Karlsruhe

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	<u>Seite</u>
Wichtigste Aktivitäten und Ergebnisse des Projekts Nukleare Sicherheit im Jahr 1976 M. Fischer, Projektleitung	1
Nukleare Sicherheit bei Wiederaufarbeitungsanlagen H.H. Hennies, Mitglied des Vorstandes der Gesellschaft für Kernforschung mbH, K. Körting	52
Status of USNRC Research on Fuel Behavior under Accident Conditions W.V. Johnston, United States Nuclear Regulatory Commission, Fuel Behavior Branch	67
Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Niederdruckphase eines Kühlmittelverlust- störfalles U. Müller, Institut für Reaktorbauelemente	92
Modellrechnungen zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverluststörfall mit dem Programm- system SSYST-Mod 1 R. Meyder, Institut für Reaktorentwicklung	125
Zum Verlauf hypothetischer LWR-Kernschmelzunfälle K. Hassmann, Kraftwerk Union Erlangen E. Herkommer, Gesellschaft für Reaktorsicherheit Köln J.P. Hosemann, PNS-Projektleitung	146
Untersuchung des Abschmelzverhaltens von LWR-Brennstäben; experimentelle Ergebnisse S. Hagen, Abteilung Reaktorbetrieb und Technik C. Politis, Institut für Material- und Festkörper- forschung	167
Reaktionsverhalten von Reaktormaterialien unter Einbeziehung von Beton beim Kernschmelzen H. Holleck, P. Hofmann, A. Skokan, Institut für Material- und Festkörperforschung	187
Aktivitäts-Freisetzung und -Transport beim Kern- schmelzenunfall H. Albrecht, H. Wild, Institut für Radiochemie M.F. Osborne, Oak Ridge National Laboratory (Resident Engineer der USNRC beim PNS)	208

JAHRESKOLLOQUIUM 1976
des
PROJEKTS NUKLEARE SICHERHEIT

Wichtigste Aktivitäten und Ergebnisse des Projekts Nukleare
Sicherheit im Jahr 1976

M. Fischer

1. Einleitung

Hinter dem Projekt liegt ein Jahr der Meilensteine. Große Versuchsanlagen wurden fertiggestellt und in Betrieb genommen. In stark zunehmendem Maße wurden Ergebnisse erzielt.

Als Beispiele möchte ich herausgreifen:

- Die Fertigstellung der Blowdown-Versuchsanlage zur Untersuchung des Brennstabverhaltens in der sogenannten Blowdown-Phase eines Kühlmittelverluststörfalles, Abb. 1;
- Die Fertigstellung und Inbetriebnahme der Flut-Versuchsanlage zur Untersuchung des Brennstabverhaltens in der Aufheiz- und Flut-Phase eines Kühlmittelverluststörfalles, Abb. 2. Hier werden Zircaloy-umhüllte Brennstäbe und Brennstabbündel mit bis zu 25 Brennstäben, bei voller Länge von 3,90 m hinsichtlich Aufbläh- und Berstverhalten untersucht;
- Die Durchführung der ersten 5 transienten Inpile-Experimente im Dampf-Kontaminations-Loop des FR2 zur Untersuchung der nuklearen Einflußgrößen, insbesondere der Abbrandeinflüsse auf das Brennstabverhalten beim Kühlmittelverluststörfällen;

- Bei den umfangreichen Arbeiten zur Untersuchung des extrem hypothetischen Kernschmelzenunfalles wurde die erste Versuchsphase mit der Kernschmelzanlage SASCHA abgeschlossen, Abb. 3. Hier wird die Freisetzung und der Transport von Spaltprodukten aus einer Kernschmelze erstmals unter realistischen Bedingungen ermittelt, d.h. in Luft- und Dampfatosphäre, bei Temperaturen der Kernschmelze zwischen 1700 und 3000 °C, Reaktion der Kernschmelze mit Betonstrukturen, Simulierung innerer Wärmequellen etc.

Die Ergebnisse der Abschmelzexperimente zeigen, daß im Verlauf eines solchen hypothetischen Kernschmelzenunfalls nicht mit einer Dampfexplosion gerechnet werden muß.

- Die Versuchsanlage KRETA zur Entwicklung der Krypton 85-Abtrennung aus dem Abgas der geplanten großen Wiederaufarbeitungsanlage wurde fertiggestellt und in Betrieb genommen, Abb. 4.

Entscheidend wichtig für die erfolgreiche Durchführung unserer Projektvorhaben, die ja zum größten Teil sicherheitstechnisches Neuland betreten, ist die ständige Rückkopplung mit der Hersteller- und Betreiber-Industrie sowie mit Gutachtern und Genehmigungsbehörden.

Trotz der schwierigen Situation in der sich z.Z. Genehmigung und Bau von Kernkraftwerken insbesondere aber die Wiederaufarbeitung befinden, hat sich in dem Dreiecksverhältnis Industrie, Begutachtung und Genehmigung und unabhängige Sicherheitsforschung und -Entwicklung eine erfreulich gute und offene Zusammenarbeit entwickelt.

Dafür sind wir dankbar, setzt doch eine solche Kooperation, wie wir sie heute haben, ein hohes Maß an Vertrauen in unsere Tätigkeit voraus.

2. Übersicht über das erweiterte Arbeitsprogramm des Projekts

Lassen Sie uns einen Blick werfen auf das Arbeitsprogramm des PNS, Abb. 5.

Wir haben einerseits unsere Kräfte und Kapazitäten im Zuge einer Prioritätensetzung noch stärker auf die folgenden Teilprojekte konzentriert:

- Untersuchung und Verbesserung des dynamischen Verhaltens von RDB-Einbauten, Containmentsystemen und Sicherheitsarmaturen bei Störfällen
- Untersuchung und Verbesserung des Brennelementverhaltens bei Störfällen
- Ablauf und Möglichkeiten zur Beherrschung hypothetischer Kernschmelzenunfälle
- Weiterentwicklung von Rückhalteeinrichtungen für störfallbedingt freigesetzte Spaltprodukte.
- Untersuchung der Ausbreitung und der Auswirkungen von in die Umgebung bei hypothetischen Störfällen freigesetzten Spaltprodukten.

Gleichzeitig mit der Konzentration der Kräfte auf diese Arbeitsschwerpunkte wurde das Arbeitsprogramm des Projekts erweitert um F+E-Arbeiten zur Sicherheit der großen Wiederaufarbeitungsanlage. Zusätzlich zu der bereits seit 1973 auf vollen Touren laufenden Entwicklung der sicherheitstechnisch und für die Genehmigung entscheidend wichtigen Abgasreinigung in großen Wiederaufarbeitungsanlagen wird das PNS zunächst eine umfassende Störfallablaufanalyse für die Wiederaufarbeitungsanlage durchführen.

Dies geschieht in Abstimmung und Zusammenarbeit mit dem für die Entwicklung der WA-Anlage zuständigen Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung sowie in Zusammenarbeit mit den Firmen KEWA und GWK.

Ich möchte besonders die bereits gut angelaufene Zusammenarbeit zwischen allen Beteiligten hervorheben.

Die Ergebnisse unserer F+E-Arbeiten zur Sicherheit der Wiederaufarbeitung werden selbstverständlich sowohl dem für die Planung und Bau der großen Wiederaufarbeitungsanlagen verantwortlichen Industriekonsortium wie auch den Gutachtergremien und Genehmigungsbehörden zur Verfügung stehen.

Angesichts der schwierigen Gesamtsituation in der sich die Nutzung der Kernenergie heute befindet, geht es jetzt darum, die hier noch notwendigen Arbeiten entschlossen voranzutreiben und wo notwendig entsprechend zu verstärken.

Abb. 6 zeigt die bisherige Personalentwicklung des Projekts sowie das Jahr der Inangriffnahme der einzelnen Arbeitspakete.

Obwohl bereits laufend und in zunehmendem Maße Projektziele erreicht werden, ist es dringend erforderlich, daß für die notwendigen Arbeiten zur Sicherheit der Wiederaufarbeitung (wie z.B. eine konsistente und zunächst rein deterministische Störfallablaufanalyse für die Gesamtanlage, experimentelle Absicherung sicherheitstechnischer Einrichtungen und eine Risikobeurteilung) das PNS verstärkt wird.

3. Grundsätzliches Vorgehen zur Erreichung der Projektziele

Alle experimentellen Arbeiten zur Untersuchung von Einzeleffekten und zum integralen Verhalten sicherheitstechnisch wichtiger Komponenten und System sind systematisch alle so geplant, daß die parallel laufende Entwicklung von Rechenprogrammen verifiziert werden kann. Denn allein mit Hilfe verifizierter Rechenprogramme ist es möglich, die sicherheitstechnischen Reserven großer nuklearer Anlagen zuverlässig quantitativ zu ermitteln, vorhandene Konservativitäten abzubauen oder, gezielt sicherheitstechnische Verbesserungen zu erreichen.

Der Schlüssel zum Erfolg der nuklearen Sicherheitsforschung liegt daher im engen Zusammenwirken zwischen analytischen bzw. modelltheoretischen Entwicklungsarbeiten einerseits und den experimentellen Projekten andererseits.

Abb. 7 zeigt die auf dieser Grundlage stehende Programm-Matrix des PNS. Die Planung und Durchführung der einzelnen Teilprojekte erfolgt unter der Prämisse einer möglichst engen Wechselwirkung zwischen Modelltheorie und der schrittweisen experimentellen Untersuchung von Einzeleffekten bis hin zu abschließenden Integral-Experimente. In dieser Programm-Matrix, Abb. 7, sind auch diejenigen Forschungsarbeiten anderer in- und ausländischer Institutionen aufgeführt, die in unmittelbarem Zusammenhang zu den PNS-Arbeiten stehen.

4. Ziel und Stand der Arbeiten, wichtigste Ergebnisse und nächste Schritte

4.1 Dynamische Beanspruchung von Sicherheitseinrichtungen

HDR-BLOWDOWN-PROGRAMM

1) Zielsetzung

Im Rahmen der HDR-Blowdown-Versuche wird die dynamische Beanspruchung von Reaktordruckbehälter-Einbauten, von Containment-Systemen und von Sicherheitsarmaturen unter realistischen Störfallbedingungen ermittelt. Anhand dieser experimentellen Daten werden die heutigen, insbesondere aber die zur Zeit in der Entwicklung stehenden Rechenprogramme verifiziert.

2) Stand der Arbeiten

- Der Versuchskernmantel wurde konstruiert, Abb. 8, und befindet sich jetzt in der Fertigung, die planmäßig verläuft.
- Der Meßstellenplan, Abb. 9, zur Untersuchung der durch die plötzliche Druckentlastung bei einem Kühlmittelverluststörfall hervorgerufenen asymmetrischen Belastungen und Beanspruchungen wurde festgelegt.
- Die Auslegung des neuen Versuchskreislaufes, Abb. 10, wurde hinsichtlich einer stabilen Einstellung der erforderlichen Enthalpieschichtung im Reaktordruckbehälter nochmals einer genauen Prüfung unterzogen und mußte anschließend geändert werden. Der Kreislauf befindet sich jetzt in der Fertigungstellung.
- Auf dem Gebiet der Meßtechnik wird z.Z. eine Vorauswahl für die Meßgeber aufgrund von Labortests mit Autoklaven versucht. In den bisherigen Labortests zeigten die Meßwertgeber für Druck, Druckdifferenzen, Beschleunigung und Wege eine hohe Ausfallrate bei den angestrebten Versuchsbedingungen.
- Die Vorausberechnung der Versuche ist angelaufen.

WEITERENTWICKLUNG UND VERIFIZIERUNG GEKOPPELTER FLUID- UND STRUKTIRDYNAMISCHER CODES

- Der modifizierte 2-dimensionale YAQUI-Code (kompressible Fluide) steht für die Vorausberechnung der asymmetrischen Fluidodynamik im HDR-Ringraum zur Verfügung;
- Eine einfache Version eines linear-elastischen strukturdynamischen Codes (Schalenmodell) steht für die Vorausberechnung der HDR-Kernmantelbeanspruchung bereit;
- Experimente im Labormaßstab zur Unterstützung der Interpretation der HDR-Blowdown-Versuche werden z.Z. konzipiert.

MESSUNG VON BLOWDOWN-MASSENSTRÖMEN

1) Zielsetzung

Entwicklung, Kalibrierung und Einsatz von 2-Phasen-Massenstrom-Meßverfahren zur Untersuchung von Kühlmittelverluststörfällen

2) Stand der Arbeiten und wichtigste Ergebnisse

Auf dem Gebiet der Massenstrommeßtechnik beim Blowdown konnten unsere Meßverfahren im Rahmen der Marviken II-Blowdown-Versuche erprobt und verbessert werden. Bei allen 9 Blowdown-Versuchen im Marviken II-Programm konnte mit Hilfe des kombinierten Einsatzes der Radiotracermeßmethode des LIT und der Infrarotabsorptionsmethode des IRE jeweils der komplette transiente 2-Phasen-Massenstrom gemessen werden.

Zusätzlich und darauf konzentrierte sich unser Hauptinteresse - wurde das Tracerverfahren am Bruchstutzen des Marviken-Reaktors eingesetzt, Abb. 11 (mit 4 Ventilen, 3 Meßebenen und 12 Detektoren).

Diese Versuche haben uns wertvolle Erfahrungen für den geplanten Einsatz des Tracer-Verfahrens am HDR-Bruchstutzen gebracht. Die Genauigkeit der Massenstrombestimmung aus den Geschwindigkeiten und der Dichte dürfte besser als 10 % sein.

Unser Teststand im IRB zum Kalibrieren der verschiedenen Massenstrom-Meßmethoden, der im vergangenen Jahr errichtet wurde, wurde für stationäre Versuche in Betrieb genommen. Die Erweiterung für instationäre Strömungen erfolgt 1977.

Im Augenblick zeichnet sich ab, daß der Teststand eine wichtige Rolle für die Nachkalibrierung der bei LOFT, Semiscale und PBF eingesetzten Massenstrommeßverfahren spielen wird. Von dieser Kalibrierung hängt dann praktisch die Verifizierung der verschiedenen RELAP-Versionen ab.

4.2 Brennelementverhalten bei Störfällen

Dieses Teilprojekt konzentriert sich in erster Linie auf ein detailliertes Verständnis des Verhaltens von frischen und abgebrannten Brennelementen bei Kühlmittelverluststörfällen.

Die in der Bundesrepublik Deutschland und in den USA geltenden Notkühlungskriterien, die in den beiden Ländern nur geringfügig verschieden sind, sind bewußt konservativ angesetzt worden.

Es hat sich gezeigt, daß mehr quantitative Detailinformation auf dem Gebiet des Brennstabverhaltens erforderlich ist, um die Sicherheitsreserven quantifizieren zu können.

Unsere Arbeiten auf diesem Gebiet haben daher zum Ziel, das Brennstabverhalten bei Kühlmittelverlust-Störfällen zuverlässig zu beschreiben.

Dazu gehört zunächst die Entwicklung und experimentelle Verifizierung des Rechenprogrammsystems SSYST.

ENTWICKLUNG UND VERIFIZIERUNG VON SSYST⁺)

1) Zielsetzung

Bereitstellung eines experimentell verifizierten Codesystems (SSYST zur Beschreibung des Brennstab- bzw. Core-Verhaltens bei Reaktorstörfällen.

⁺) SSYST - Rechenprogramm-System zum Brennstabverhalten

Dieses Ziel soll in 3 Schritten erreicht werden:

- Beschreibung des Einzelstabverhaltens (SSYST-Mod 1,2)
- Beschreibung von Stabbündeln (Stabgruppen bzw. klassen) gleicher Schadensermutung (SSYST-Mod 3) unter Verwendung des Einzelstabmodells
- Beschreibung des Schadensumfangs im gesamten Core unter Einschluß von Stab-zu-Stab-Wechselwirkung und Schadenspropagation

2) Stand der Arbeiten und wichtigste Ergebnisse

Zur Zeit laufen in erster Linie die folgenden Arbeiten:

- Verifizierung und daraus folgende Verbesserungen des Einzelstabmodells, insbesondere
 - . Kopplung zwischen Deformationsanalyse und Hydrodynamik des Kühlkanals
 - . Erstellung verbesserter Stoffgesetze für Zry auf der Basis der Materialuntersuchungen im IMF
 - . Einführung statistischer Methoden in die Deformationsanalyse des Einzelstabes (Wahrscheinlichkeitsverteilungen des Ortes und der Größe auftretender Hüllrohrverformungen)
- Vorarbeiten zur Beschreibung des Bündelverhaltens
- Anwendungsrechnungen für die experimentellen Untersuchungen zum Brennstabverhalten

Die Arbeiten zur Verbesserung des Einzelstabmodells sind weit fortgeschritten.

Ein Leistungsvergleich zwischen unserem Brennstabverhaltensprogramm SSYST Mod 1 und dem Rechenprogramm FRAP-T2 der USNRC ergab am Beispiel eines Standardproblems eine bemerkenswert gute Übereinstimmung. Das Standardproblem war die Blowdown-Phase eines 2F-Bruches im kalten Strang eines amerikanischen DWR.

Abb. 12 zeigt den Verlauf der Hüllrohrtemperatur nach SSYST und FRAP-T. Die noch bestehenden Unterschiede sind u.a. auf unterschiedliche Modellansätze für den Spaltwärmedurchgang zurückzuführen.

Abb. 13 zeigt, daß das Hüllrohr aufblähen (Ballooning) (in der Blowdown-Phase eines Kühlmittelverluststörfalles) nach 8 sec beginnt und nach 11 sec beendet ist.

Die Übereinstimmung kann insbesondere auch hinsichtlich der Dehnungswerte durch Harmonisierung der eingegebenen Stoffwerte noch verbessert werden.

Neben der schrittweisen Verbesserung und Verifizierung des Einzelstabmodells werden verstärkte Anstrengungen auf die Erstellung des Stabbündel-Modells inklusive Stab-zu-Stab-Wechselwirkung und Schadenspropagation erforderlich. Außerdem wird im Hinblick auf die deutsche Risikostudie für DWR die Einführung statistischer Methoden in die Deformationsanalyse des Einzelstabes und des Core-Verbandes mit Vorrang betrieben.

ZIRCALOY-VERHALTEN BEI STÖRFÄLLEN

1) Zielsetzung

Aufstellung eines Stoffgesetzes zur Beschreibung des Deformationsverhaltens von Zircaloy-Hüllrohren in Abhängigkeit vom Werkstoffzustand und von Störfalltransienten der Temperatur und des Differenzdrucks.

2) Stand der Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Im Mittelpunkt standen hier die Untersuchungen zum inelastischen Verhalten von Zry-4, zur Zircaloy-Oxidation bei hohen Temperaturen und zum Einfluß der Spaltprodukte und des Sauerstoffpotentials des Brennstoffs auf das Verformungsverhalten von Zry-Hüllrohren.

Die wichtigsten Ergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Bei niedrigen Verformungsgeschwindigkeiten ($\dot{\epsilon} \leq \sim 10^{-3} \text{s}^{-1}$) wurde nur zwischen 850 und 950 °C superplastisches Verhalten beobachtet, siehe Abb. 14. Außerhalb dieses Temperaturbereiches sowie bei größeren Verformungsgeschwindigkeiten ($\dot{\epsilon} > \sim 10^{-2} \text{s}^{-1}$) wurde in allen Fällen normalplastisches Verhalten beobachtet.

- Abb. 15. Es gibt nun eine ausreichende experimentelle Grundlage dafür, daß im Verlauf eines Kühlmittelverluststörfalles bei 1200 °C die insgesamt Zry-Oxidation um rund 50 % niedriger bleibt als die im Genehmigungsverfahren angewandte Baker-Just-Beziehung. Diese neuen Daten wurden sowohl hier in Karlsruhe wie auch von Forschungsstellen in USA mit Hilfe transienter Versuche gewonnen, die typisch für Kühlmittelverluststörfälle sind.
- Auch die detaillierte Berechnung der Oxidationskinetik steht in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen.
- Je höher die Hüllrohrtemperatur in der Blowdown-Phase desto niedriger die Sauerstoffaufnahme in der Wiederauffüll- und Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles.
- Abb. 16 zeigt u.a., daß auch schon bei 900 °C die Oxidation in Wasserdampf eine Verfestigung des Zry und eine deutliche Duktilitätsminderung bewirkt.

INPILE-EXPERIMENTE ZUM BRENNSTABVERHALTEN,
IM DK-LOOP DES FR2

1) Zielsetzung

Untersuchung der nuklearen Einflußgrößen auf das Brennstabverhalten in Störfällen: thermisches und mechanisches Brennstoffverhalten, Abbrandeinflüsse durch Spaltprodukte und Sauerstoffpotential des Brennstoffs, Bestrahlungseinflüsse im Zircaloy.

Diese Zielsetzung beinhaltet den Vergleich von nuklear und elektrisch beheizten Prüflingen unter gleichen thermohydraulischen Randbedingungen.

2) Stand der Arbeiten und wichtigste Ergebnisse

- Nachdem die ersten inpile-Experimente mit frischen Stäben bereits im Oktober 1975 durchgeführt wurden, konnten im Berichtszeitraum nach Verbesserung der Kreislaufinstrumentierung und der Datenerfassungs-

anlage weitere 4 Experimente mit Nullabbrand und verschiedenen Innendrücken erfolgreich durchgeführt werden.

Die Berstdaten dieser Experimente sind in Abb. 17 zusammen mit den Ergebnisse verschiedener out-of-pile-Experimente dargestellt.

- Leider stellt die Nachuntersuchung der geborstenen Stäbe in den Heißen Zellen einen ausgesprochenen Engpass dar, so daß bisher nur die Nachuntersuchung des ersten Nuklearversuches vom Oktober 1975 vorliegt.

Die wesentlichen Ergebnisse aus den Nachuntersuchungen sind:

- bleibende Längung des Stabes 5,5 mm
- Beulenlänge ca. 60 mm
- größte Umfangszunahme an der Beule 65 %
- Länge des Risse 19 mm
- Max. Rißbreite 1,3 mm

Die Gesamtaufnahmen des ersten Stabes zeigen, daß es neben der großen Beule keine weiteren Beulstellen mehr gibt.

Einen Ausschnitt der Röntgenaufnahmen zeigt Abb. 18.

BRENNSTABVERHALTEN IN DER WIEDERAUFFÜLL- UND FLUTPHASE EINES KÜHLMITTELVERLUSTSTÖRFALLES

1) Zielsetzung

Untersuchung des Verhaltens einzelner Brennstäbe und von Brennstabbündeln unter Einbeziehung realistischer thermohydraulischer Randbedingungen des Wiederauffüll- und Flutvorganges, von Langzeiteffekten und Stab/Stab-Wechselwirkungen.

Diese Zielsetzung schließt folgende Aspekte ein:

- Ermittlung des zeitabhängigen Aufblähvorganges an Einzelstäben,
- Ermittlung der Beeinflussung des Aufblähvorganges durch die Kernnotkühlung,

- Untersuchung der thermischen und mechanischen Wechselwirkung benachbarter Stäbe beim Aufblähen im Stabbündel,
- Gewinnung von Aussagen über eine mögliche Versagensfortpflanzung,
- Untersuchung über Ausmaß und Verteilung von Kühlkanalversperrungen.

2) Stand der Arbeiten und wichtigste Ergebnisse

Die Versuchsanlage ist jetzt fertiggestellt und wurde in Betrieb genommen. Die Versuche mit verkürzten indirekt beheizten Brennstabsimulatoren, bei denen erstmalig Innendruck, Hüllrohrtemperatur und Verformung gleichzeitig als Funktion der Zeit in Luftatmosphäre gemessen wurde, ergaben folgende Ergebnisse:

- bei einem Stabinnendruck von 70 bar ergeben sich Berst-Umfangsdehnungen von etwa 36 %, höhere Stabinnendrucke führen zu niedrigeren Dehnungen,
- die ermittelten Werte für Dehnungsgeschwindigkeit und Temperatur entsprechen einem normalplastischen Verhalten,
- je nach Dehnungsverlauf treten azimutale Temperaturunterschiede auf der Zircaloy-Hülle bis zu 100 K auf,
- die Mantellinie des Rohres, auf welcher die Berststelle liegt, hebt sich praktisch nicht von der Wärmequelle ab, Abb. 19,
- die gegenüberliegende kältere Stabseite zeigt ein ausgeprägtes Abheben des Zircaloy-Hüllrohres ohne Wandstärkenschwächung,
- das Hüllrohr hebt über eine große Länge ab und führt zu keiner stark ausgeprägten, lokalen Beule,
- Abb. 20 zeigt die Berstdaten im Vergleich mit Berstexperimenten; eingetragen ist hier insbesondere auch der erste inpile Berstversuch im DK-Loop des FR2.

In diesen Tagen werden die Einzelstabversuche mit voller Länge in Dampf und realistisch simulierter thermischer Umgebung aufgenommen.

AUSWIRKUNGEN UND KÜHLKANALBLOCKADEN AUF DIE WIRKSAMKEIT DER KERNNOTKÜHLUNG BEIM KÜHLMITTELVERLUSTSTÖRFALL

1) Zielsetzung

Ermittlung des Einflusses einer durch aufgeblähte Hüllrohre entstandene Kühlkanalblockade auf die Notkühlung während der Flutphase.

2) Stand der Arbeiten

Nach dem Aufbau der Versuchsanlage und der Bereitstellung der Datenerfassungsanlage erfolgte die Aufnahme des Versuchsbetriebes Mitte 1976.

Schwerpunkte der Arbeiten lagen auf:

- dem Einfahren der Teststrecke mit teilweise instrumentierten Stäben,
- der Verbesserung des Sicherheitssystems und einzelner Kreislaufdetails,
- der Erprobung der Meßdatenerfassung und -verarbeitung,
- der Entwicklung der Filmtechnik zur Strömungsvisualisierung und
- der Aufnahme des Versuchsbetriebes mit voll instrumentierten Stäben ohne Blockaden.

Die Vorversuche mit einer Stabreihe von fünf Stäben, zunächst noch ohne Blockade, sind jetzt abgeschlossen. Sie haben die Funktionstüchtigkeit der Versuchsanlage, der Datenverarbeitungsanlage und der Schnellfilmtechnik bewiesen und das experimentelle Datenmaterial als Basis für den Vergleich mit den Ergebnissen der jetzt beginnenden Blockade-Experimente geliefert.

Die Blockade-Experimente beginnen mit einer teilweisen blockierten Fünfer-Stabreihe. Größe und Form der Blockade werden variiert. Nach Abschluß der Experimente mit der Stabreihe werden Bündelversuche mit 25 Stäben und partieller Blockade Anfang 1977 aufgenommen.

4.3 Ablauf eines hypothetischen Kernschmelzenunfalles

EXPERIMENTELLE UNTERSUCHUNG DER ABSCHMELZPHASE

Die Abschmelzexperimente mit einzelnen Zircaloy-umhüllten Brennstab-Simulatoren haben wichtige Ergebnisse geliefert über

- den Mechanismus bzw. Phänomenologie des Abschmelzens von LWR-Brennstäben,
- die auftretenden maximalen Schmelztemperaturen,
- die sich beim Abschmelzen einstellende stoffliche Zusammensetzung der Schmelze,
- und den Zustand der Schmelze vor einem Kontakt mit dem Restwasser im Reaktordruckbehälter.

Zusammengefaßt ergeben sich aufgrund der bisherigen Abschmelzexperimente die folgenden Schlußfolgerungen:

- Das Abschmelzen beginnt an der Innenseite des Zry-Hüllrohres mit dem Erreichen der Zry-Schmelztemperatur von ca. 1850 °C.
- Der Schmelzprozess setzt sich im UO₂-Zr - Gemisch bei dieser Temperatur fort.
- Die beim Aufheizen in Wasserdampf an der äußeren Oberfläche der Zry-Hüllrohre entstehende Oxidschicht hält die sich im Innern bildende Schmelze eingeschlossen bis sich Löcher bilden durch die die Schmelze austritt.

Aufgrund dieser Ergebnisse kann im Verlauf eines ohnehin extrem unwahrscheinlichen Kernschmelzen unfalles die Möglichkeit einer Wasserdampfexplosion nahezu ausgeschlossen werden, da der Abschmelzvorgang relativ langsam erfolgt und die Temperatur der Schmelze niedrig ist.

Notwendige Voraussetzungen für eine Wasserdampfexplosion wäre u.a. ein Abstürzen des geschmolzenen Reaktorkerns innerhalb weniger Zehntelsekunden und eine Temperatur der Schmelze weit oberhalb des Schmelzpunktes der Schmelze.

Unsere experimentellen Ergebnisse aus den Abschmelzversuchen zeigen, daß diese Bedingungen bei einem postulierten Kernschmelzenunfall in LWR nicht auftreten können.

Die Abschmelzexperimente werden fortgesetzt mit dem Ziel, das Abschmelzverhalten eines Brennstabbündels in strömendem Wasserdampf mit verengten Kühlkanälen aufgrund aufgeblähter Hüllrohre zu untersuchen.

SPALTPRODUKT-FREISETZUNG UND -TRANSPORT AUS EINER KERN-SCHMELZE

Die Spaltproduktfreisetzung aus einer Kernschmelze, die in Reaktion steht mit der Betonstruktur des Reaktorgebäudes stellt die zentrale Fragestellung bei einem hypothetischen Kernschmelzenunfall dar, zusammen mit der Frage nach der Betonzerstörung durch eine Kernschmelze und den dabei gebildeten Gasen und Dämpfen.

Mit der Schmelzanlage SASCHA, Abb. 21, wurde die erste Versuchsreihe mit insgesamt 21 Freisetzungsversuchen abgeschlossen.

Dabei stand zunächst die Beantwortung folgender Fragen im Mittelpunkt. Welchen Einfluß auf die Freisetzung hat

1. die Atmosphäre (Luft, Wasserdampf, Argon)
2. die Temperatur der Schmelze (1700 - 3000 °C)
3. der Systemdruck

Zu den auffälligsten Beobachtungen gehörte das stark unterschiedliche Verhalten des Schmelzgutes bei verschiedener Atmosphäre. Unter Luft kommt es oberhalb 2400 °C

zu heftigen Oxidationsreaktionen. Unter Wasserdampf verläuft die Aufheizung sehr ruhig.

Als Folge dieses unterschiedlichen Verhaltens ergab sich, daß die Freisetzung der Corium-Komponenten unter Wasserdampf deutlich am niedrigsten lag. Bei Luft war sie um mindestens eine Größenordnung höher.

Die einzelnen Freisetzungswerte selbst sind noch zu vorläufig für eine Angabe.

Es wurden auch bereits Experimente mit bis zu 500 g Coriumschmelzen in Betontiegeln mit induktiver Nachheizung in der SASCHA-Anlage gefahren, Abb. 22.

Die nächsten wichtigen Schritte sind die Durchführung von Versuchen mit aktivem Schmelzgut. Dazu wird zur Zeit eine Anlage zur Herstellung von schwach aktiven sogenannten Fissium-Pellets fertiggestellt. Die Pellets enthalten Zusätze der wichtigsten Spaltproduktelemente in einer Konzentration, die einem Abbrand von ca. 40.000 MWd/to entspricht.

Als ein äußerliches Zeichen für das Interesse, das unserer SASCHA-Schmelzanlage entgegengebracht wird, seinen so prominente Besucher erwähnt, wie C.F. von Weizsäcker, Eduard Teller, 16 amerikanische EVU-Präsidenten auf einmal und der ehemalige Leiter der amerikanischen Reaktorsicherheitsforschung H.J.C. Kouts.

REAKTIONSVERHALTEN VON KERNSCHMELZEN IN KONTAKT MIT BETON

Bei diesen Untersuchungen stand schwerpunktmäßig der Verbleib der Spaltprodukte und damit der Wärmequellen in der Kernschmelze sowie die Wechselwirkungen von Corium mit Betonbestandteilen im Mittelpunkt.

Bei den Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen Corium und Beton zeigte sich, wie zu erwarten war, eine hervor-

ragende Mischbarkeit und Löslichkeit von UO_2 und ZrO_2 mit den Silikaten des Betons. Selbst in Inertatmosphäre wird nicht voroxidiertes Zirkon vollständig in der Beton/Corium-Schmelze oxidiert. Der Zusammenhang zwischen Erstarrungstemperatur und dem Anteil an Beton in der keramischen Schmelze konnte ermittelt werden. Dies ist außerordentlich wichtig für die beim PNS begonnene modelltheoretische Beschreibung der Aktivitätsfreisetzung aus der Schmelze einerseits und die Betonzerstörung andererseits.

Abb. 23 zeigt qualitativ die wichtigsten Phasen bei der Wechselwirkung einer Kernschmelze mit den Betonstrukturen eines Reaktors.

SIMULATION GROSSER KERNSCHMELZEN IN WECHSELWIRKUNG MIT BAUSTRUKTUREN

Der technische Teil der Feasibility-Studie über die mögliche Simulation großer Kernschmelzen ist noch nicht ganz fertiggestellt, zeigt aber schon, daß das Erschmelzen und Halten von Corium-Mengen im 100 kg-Bereich in Beton-Tiegeln bei Simulation interner Wärmequellen möglich sein wird. Es kommt nun im weiteren Verlauf der Arbeiten darauf an, die experimentellen Anforderungen an ein solches scale up-Experimente zu detaillieren.

4.4 Verbesserung der Spaltprodukt-Rückhaltung in KKW nach Störfällen

1) Zielsetzung

Das Ziel dieser Entwicklung ist die sichere und schnelle Abscheidung von Spaltjod und radioaktiven Schwebstoffen aus der Atmosphäre von Reaktor-Sicherheitsbehältern nach Störfällen. Diese Filter sollen sowohl nach kleineren Betriebszwischenfällen mit relativ geringer Aktivitätsfreisetzung als auch nach einem GaU betrieben werden.

2) Stand der Arbeiten und wichtigste Ergebnisse

Die Prüfung der einzelnen Komponenten des Störfall-umluftfilters wurde unter definierten GaU-Bedingungen fortgesetzt. Bei den zu erwartenden maximalen Temperaturen im Störfallfilter von u.U. bis 300 °C zeigen Silbermolekularsiebe eindeutig die besten Abscheide-Eigenschaften auch bei langen Einsatzzeiten.

Damit steht diese Entwicklung nunmehr kurz vor ihrem erfolgreichen Abschluß.

Zusätzlich wurde eine Vergleichsuntersuchung zwischen der Wirksamkeit von Spraysystemen im Containment und dem entwickelten Störfall-Umluftfilter durchgeführt. Abb. 24 zeigt das Ergebnis:

- Bis auf wenige Ausnahmen, welche extrem hohe Wassermengen mit chemischen Additiven zugrundelegen, liegen die vergleichbaren Auswaschkonstanten für Spraysysteme weit unter den Werten von Störfallumluftfiltern.
- Die hohen Auswaschkonstanten bei Sprayssystemen gelten nur für elementares Jod, während Störfallumluftfilter auch Jodverbindungen mit hohen Filterkonstanten abscheiden können.
- Die hohen Auswaschraten für Spraysysteme gelten nur bei Einsatz von Frischwasser. Wegen des notgedrungen beschränkten Frischwasservorrates können hohe Auswaschkonstanten auch nur für kurze Zeiträume gelten. Störfallumluftfilter können dagegen über Tage mit hohen Filterkonstanten betrieben werden.
- Aus dem beim Einsatz von Spraysystemen entstehenden Sumpf wird bei Überschreiten der Gleichgewichtskonzentration das Jod wieder desorbiert und verzögert freigesetzt!

Die beabsichtigten Untersuchungen des Abscheideverhaltens der Jod- und Schwebstofffilterkomponenten in hohen Strahlenpegeln, welche im Savannah River Lab. durchgeführt werden sollen, werden unter der Voraussetzung

erfolgreicher Verhandlungen mit der USNRC 1977 durchgeführt.

4.5 Entwicklung der Abgasreinigung für die große Wiederaufarbeitungsanlage

Bereits jetzt zeigt sich, welche grundsätzliche Bedeutung im Genehmigungsverfahren für die große Wiederaufarbeitungsanlage eine sowohl im Normalbetrieb wie auch bei Störfällen zuverlässig und wirksam arbeitende Abgasreinigung einnimmt.

Das PNS hat die Entwicklung der Abgasreinigung in großen Wiederaufarbeitungsanlagen sowohl für Jod, Krypton und α -strahlende Aerosole wie auch für Stickoxide rechtzeitig und umfassend im Jahr 1973 gestartet.

Daher sind diese Entwicklungsarbeiten inzwischen weit fortgeschritten. Nach der Phase der Labortests und Klärung vieler grundsätzlicher Fragen befinden sich nun die notwendigen großen Versuchsanlagen HAUCH, PASSAT, REDUKTION, ADAMO, KRETA und AZUR alle in der Detailplanung sind im Aufbau bzw. bereits in Betrieb.

Zwei der wichtigsten Ergebnisse seien herausgegriffen:

- Das im LAF entwickelte Jodfiltermaterial zur Abscheidung von J-129 wurde sowohl an der WAK wie in Marcoule im aktiven Betrieb eingesetzt. Es hat sich außerordentlich gut bewährt. An der WAK wurde ein Abscheidegrad von 99,98 % gemessen, in Marcoule hat sich dieses Jodsorptionsmaterial sogar im Abgasstrang direkt hinter dem Auflöser mit einem vorgeschalteten Schwebstofffilter bestens bewährt.
- Mit der Versuchsanlage KRETA, Abb. 25, zur Abtrennung von KR 85 liegen die ersten erfolgversprechenden Ergebnisse vor. Im Rahmen der Abnahmeversuche mit der Herstellerfirma, die ohne wesentliche Rückschläge

verliefen, wurde in den letzten Wochen auch das Dreistoffgemisch Stickstoff/Krypton/Xenon, so wie wir es später in der großen Wiederaufarbeitungsanlage erwarten, gefahren. Ohne endgültigen und genaueren Untersuchungen vorweggreifen zu wollen, glauben wir, daß sich unser Konzept der Tieftemperatur-Rektifikationsanlage mit Siebbodenkolonne C 1 und Füllkörperkolonne C 2 bewährt. Nach den bisherigen Ergebnissen scheint es möglich zu sein, das Dreistoffgemisch Stickstoff, Krypton, Xenon ohne Sauerstoffzusatz (und damit zunächst einmal ohne Ozonprobleme in der ersten Kolonne zu fahren. Wenn in der Siebbodenkolonne C 1 ein genügend großes Puffervolumen mit flüssigem Krypton vorhanden ist. Die in der nächsten Zukunft durchzuführenden genaueren Untersuchungen sollen zeigen, ob sich die Kolonne auch bei Erhöhung des Xenon-Gehaltes im Sumpf noch störungsfrei betreiben läßt. Z.Z. werden kleinere Mängel an der Anlage behoben, um nach der Montage der Vorreinigungsstufe ADAMO dann das umfangreiche Versuchsprogramm durchführen zu können.

4.6 Verhalten und Auswirkungen freigesetzter nuklearer Schadstoffe in der Umgebung

Die Kenntnis der Anteile elementaren Jods und Verbindung des Jodes in der Abluft kerntechnischer Anlagen ist eine wesentliche Eingangsgröße in die Abschätzung der Umgebungsbelastung durch das Jod. Aus diesem Grunde wurden Arbeiten zur Bestimmung dieser Anteile aufgenommen.

Diese haben nun nach vorangegangener Entwicklung eines diskriminierenden Jodsammlers zur Messung an verschiedenen Stellen des Abluftsystems in mehreren Reaktoren geführt. Dabei wurden folgende Werte für die organischen Jodanteile gemessen:

DWR 1	Betriebsraumabluft (bei Brennelementwechsel)	9 %
	Fortluft (bei Brennelementwechsel)	20 %
DWR 2	Betriebsraumabluft (bei Brennelementwechsel)	19 - 24 %
FR	Fortluft (Normalbetrieb)	10 - 13 %

Die Arbeiten werden mit Messungen an verschiedenen zusätzlichen Druck- und Siedewasserreaktoren fortgesetzt.

Wegen seiner Bedeutung für die Beurteilung der Umweltbelastung durch Wiederaufarbeitungsanlagen hat das PNS vor einiger Zeit ein Forschungsvorhaben zur Erfassung der Parameter, welche eine Veränderung der J-129-Konzentration in Luft - Gras (Boden-Kuh-Milch-Pfad und im Abwasser-Sedimente-Fisch-Pfad bewirken können, aufgenommen. Diese Arbeiten haben nach Entwicklung einer empfindlichen Nachweismethode für das J-129 zur Untersuchung von ca. 200 Boden- und Pflanzenproben in der Umgebung der WAK im ersten Halbjahr 1976 geführt. Diese sollten insbesondere den aktuellen Kontaminationsstand nach Einbau der neuen Jodfilter erfassen. Im Verlauf dieses Forschungsvorhabens sollen noch an weiteren spezifischen Punkten der oben genannten Jodpfade Proben genommen werden, um ggf. neuralgische Punkte mit außergewöhnlichen Verteilungsfaktoren aufzuspüren.

Wegen der Bedeutung der Konzentration stabilen Jodes in der Luft für die relative Inkorporationsmenge und somit Gefährlichkeit von Jod-129 beabsichtigt das PNS an potentiellen Standorten für die große deutsche Wiederaufarbeitungsanlage diese Konzentrationen getrennt nach organischen Jodverbindungen und elementarem Jod zu messen.

Wegen seiner Toxizität und der Notwendigkeit, bei Sicherheitsbetrachtungen für verschiedene Teile des Brennstoffkreislaufs den Verteilungsmechanismus von Plutonium-239 und anderen Transuranen beurteilen zu können, führt das PNS seit 2 Jahren ein Forschungsvorhaben zur Untersuchung des Wanderungsverhaltens von Plutonium und anderen Transuranen in Böden verschiedener Zusammensetzung. Neben dem Aufbau α -dichter Boxen für das Versuchsprogramm wurden Konzentrationsprofile von Plutonium-239 als Funktion der Tiefe in ungestörten Böden an Orten aufgenommen, an denen die Luftkonzentration von Plutonium-239 bekannt war. Diese Konzentrationsprofile erlauben Rückschlüsse auf die Wanderungskoeffizienten.

Insbesondere wegen ihrer Bedeutung für die Analyse von Störfallauswirkungen hat das PNS Untersuchungen zur modellmäßigen Erfassung des Ausbreitungsverhaltens von radioaktiven Schadstoffen über mittelgroße Entfernung (d.h. in etwa 100 km) aufgenommen. Für das Jahr 1976 waren Vorüberlegungen und Vorexperimente zur Durchführbarkeit von Tetroon-Experimenten in Kombination mit SF_6 -Tracerexperimenten vorgesehen. Diese Vorbereitung für erste Pfadfinderflüge mit Tetroons sowie die Absprachen mit dem französischen CEA zur Durchführung gemeinsamer Experimente mit dessen SF_6 -Tracertechnik im Rhonetal sind soweit gediehen, daß das erste gemeinsame große Experimente für Juni 1977 vorgesehen werden konnte.

UNFALLFOLGENMODELL FÜR DIE DEUTSCHE RISIKOSTUDIE DWR

Nachdem das PNS in dem Arbeitskreis zur Vorbereitung und Formulierung der Aufgabenstellung für die deutsche DWR-Risikostudie aktiv beteiligt war, hat es jetzt die Erstellung, Programmierung und Implementierung des Unfallfolgenmodells für diese Risikostudie übernommen, Abb. 26. Für Teile dieses Unfallfolgenmodells werden die GSF und das IFU verantwortlich sein.

5. Stand der internationalen Zusammenarbeit

Das PNS steht in enger Zusammenarbeit mit dem Fuel Behavior Programm und hier insbesondere mit dem Versuchsprogramm in dem Sicherheitstestreaktor Power Burst Facility der amerikanischen Nuclear Regulatory Commission (NRC). Diese Zusammenarbeit hat sich außerordentlich fruchtbar gestaltet und wird durch einen gegenseitigen Austausch bester Fachleute unterstützt.

Wir können ferner einen zunehmenden und nützlichen Informationsaustausch mit japanischen Forschungsinstitutionen feststellen, insbesondere mit dem japanischen Testprogramm im Nuclear Safety Research Reactor (NSRR).

Das PNS ist ferner mit dem französischen CEA in Kontakt wegen einer Kooperation beim PHEBUS-Projekt, das ist ein neuerbauter Sicherheitstestreaktor in Cadarache.

An der Beurteilung und Planung von von großen Brennstab-Bündelexperimenten im ESSOR-Reaktor in Ispra haben wir aktiv mitgewirkt.

Bei der Ausrichtung der Halden-Experimente auf sicherheitstechnische Fragestellungen arbeitet das PNS aktiv mit.

Schließlich ist noch die Zusammenarbeit mit der USNRC bei den HDR-Blowdown-Experimenten hervorzuheben. Hier beteiligt sich z.Z. die amerikanische Seite an der Vorausberechnung der HDR-Blowdown-Versuche durch Arbeiten in Los Alamos. Es ergeben sich bereits gute Perspektiven für eine optimale Kooperation bei der Entwicklung gekoppelter fluid- und strukturdynamischer Codes und deren Verifizierung anhand der Versuche im HDR.

6. Beiträge des PNS zur Überwindung der nuklearen Kontroverse

Neben den F+E-Arbeiten zur weiteren Erhöhung der Sicherheit kerntechnischer Anlagen wurden beachtliche Aktivitäten in die Öffentlichkeitsarbeit investiert.

Im Vordergrund steht bei uns hierbei die Information und Schulung von sogenannten Multiplikatoren. Die GfK führt hierzu regelmäßig Wochenkurse durch für

- Physik-, Chemie- und Biologielehrer
- Journalisten
- Pfarrer
- Ärzte

Mitarbeiter des PNS übernehmen dabei die Vorträge über sicherheitstechnische Fragen. Es wurden in diesem Jahr ca. 15 Vorträge von PNS-Mitarbeitern gehalten.

7. Schlußbemerkung

Neben der intensiven Fortführung der laufenden Arbeiten wird der neue Schwerpunkt

Sicherheit und Risiko der Wiederaufarbeitung

alle Kräfte beanspruchen. Hier ist vor allem eine vertrauensvolle Zusammenarbeit mit der Industrie einerseits und Gutachtern und Genehmigungsbehörden andererseits entscheidend wichtig.

Alle Fortschritte und Erfolge sind nur aufgrund des hohen Einsatzes und Könnens der Mitarbeiter möglich geworden. Hier werden ständig Leistungen wie in der Industrie erbracht.

Ich danke allen Mitarbeitern für ihre hervorragenden Leistungen.

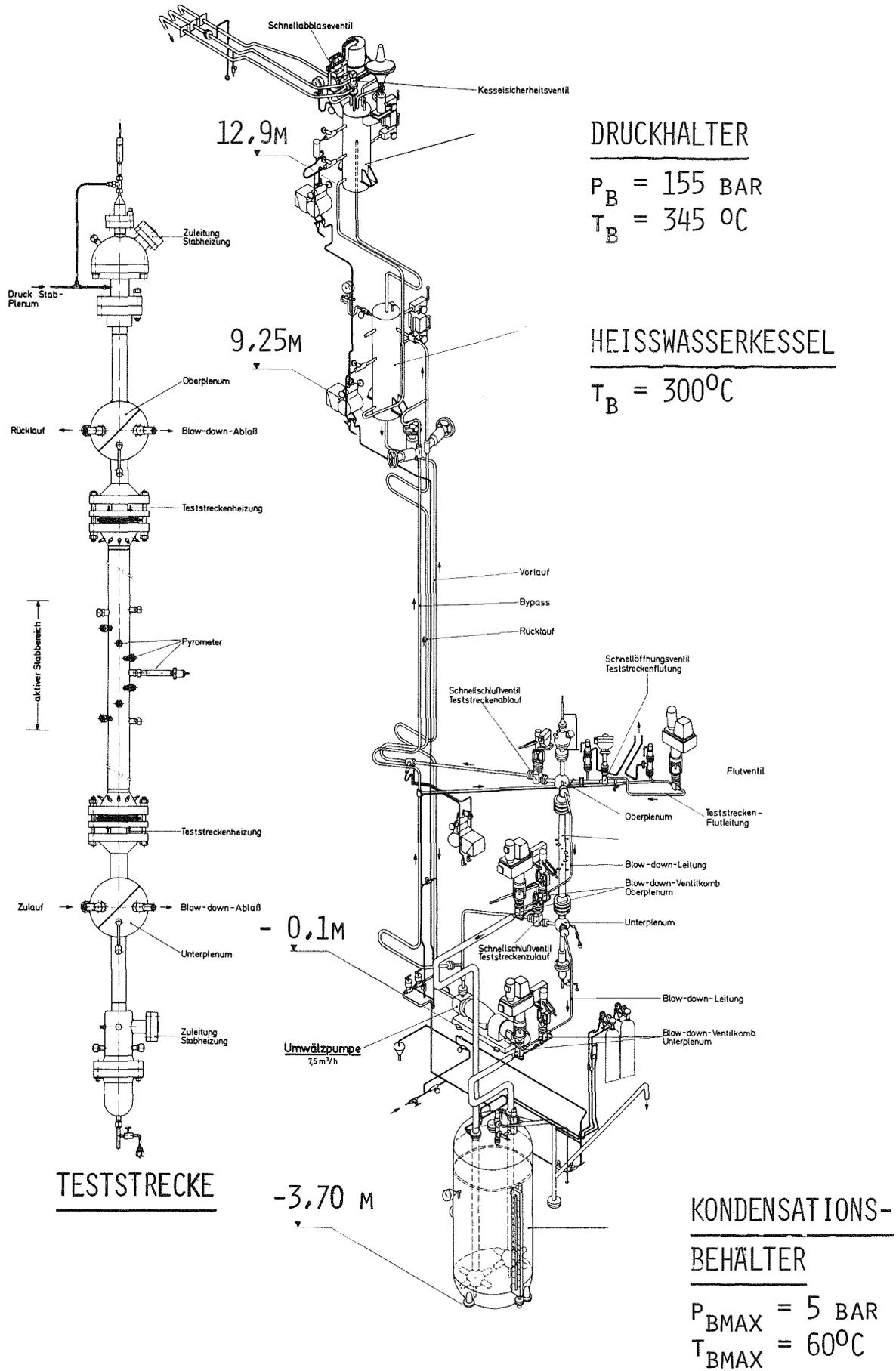
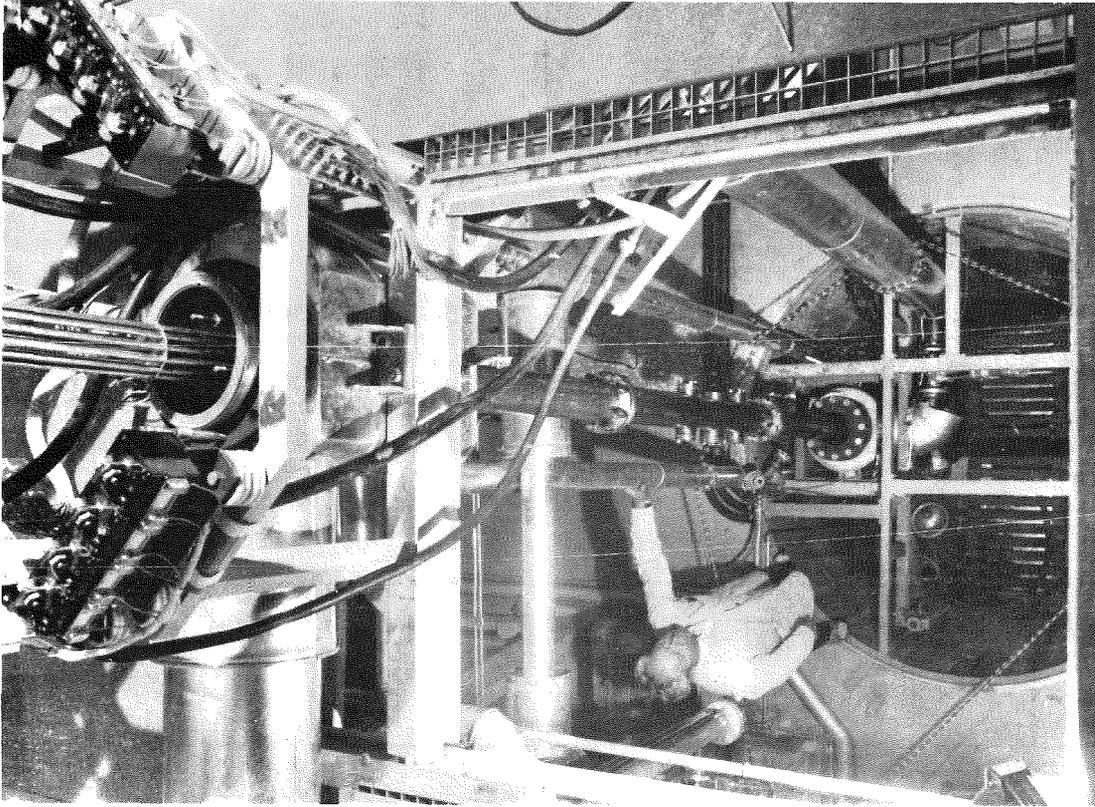


ABB. 1

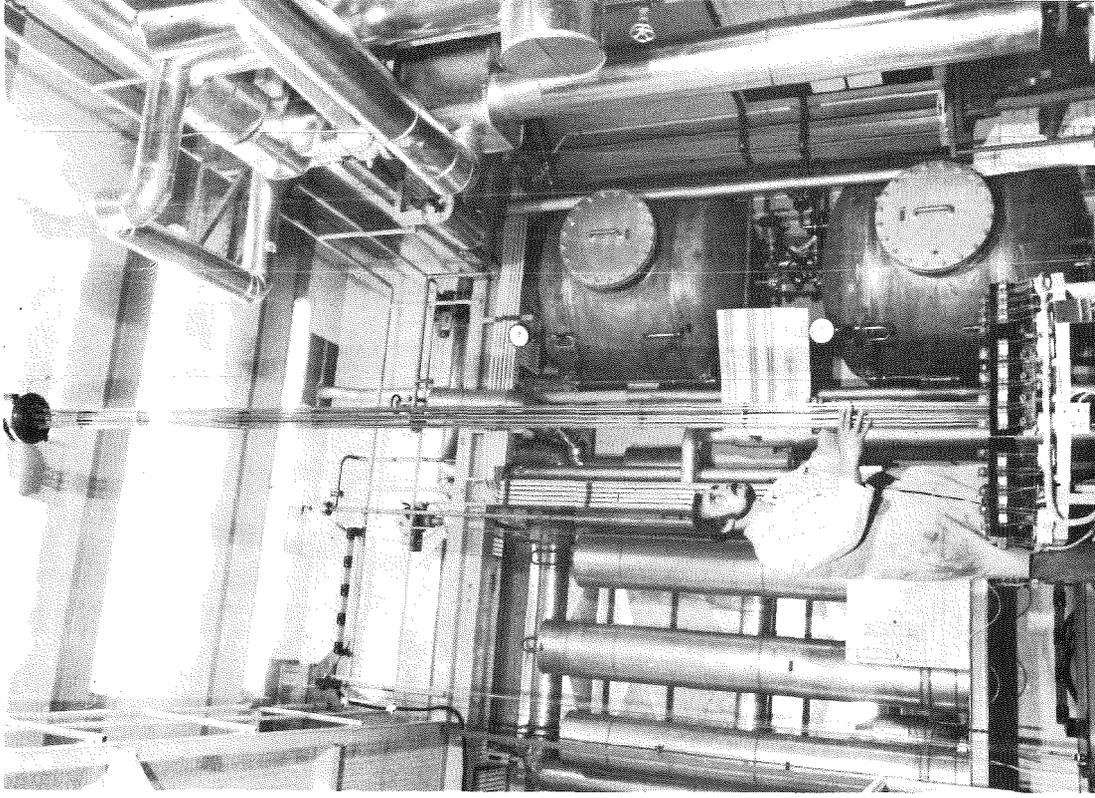
BLOWDOWN-VERSUCHSANLAGE
 PNS 4236

GFK/PNS
 RBT/IT - IRE



GfK - IRB

1976



ABB, 2

PNS - 4238

Versuchsstand

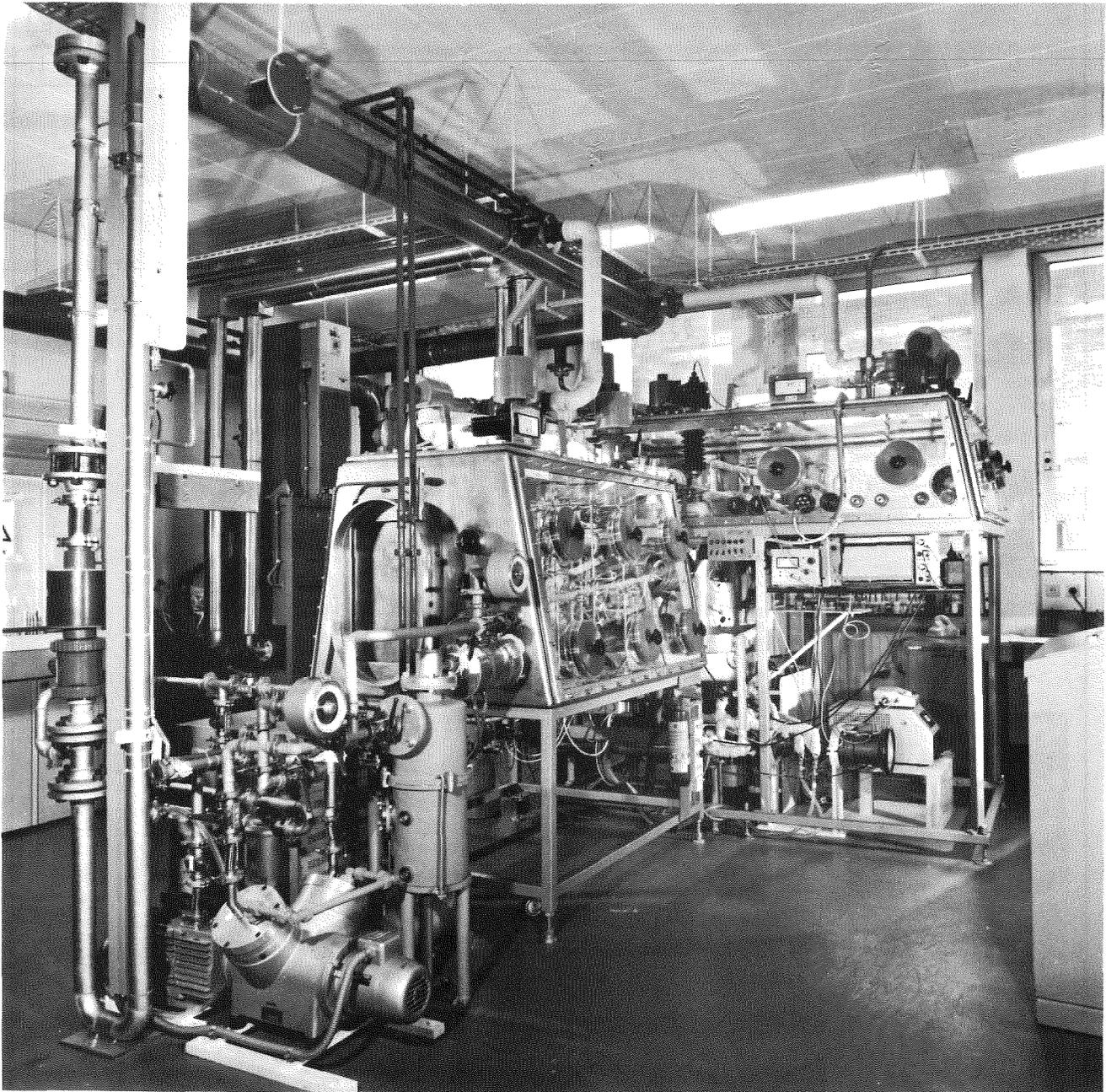


ABB. 3

GESAMTANSICHT DER SCHMELZANLAGE
SASCHA

GFK/PNS
IRCH/RBT

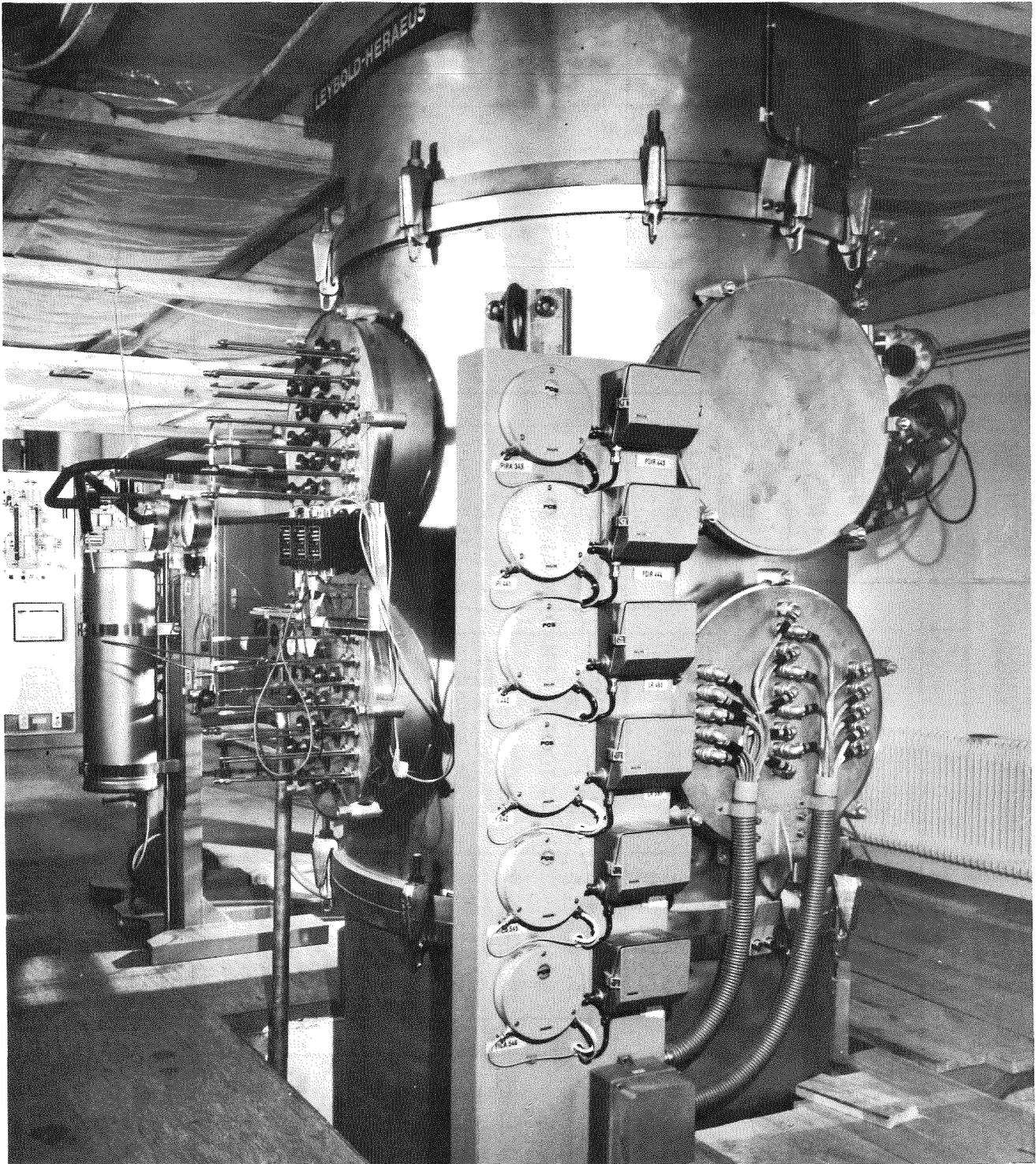
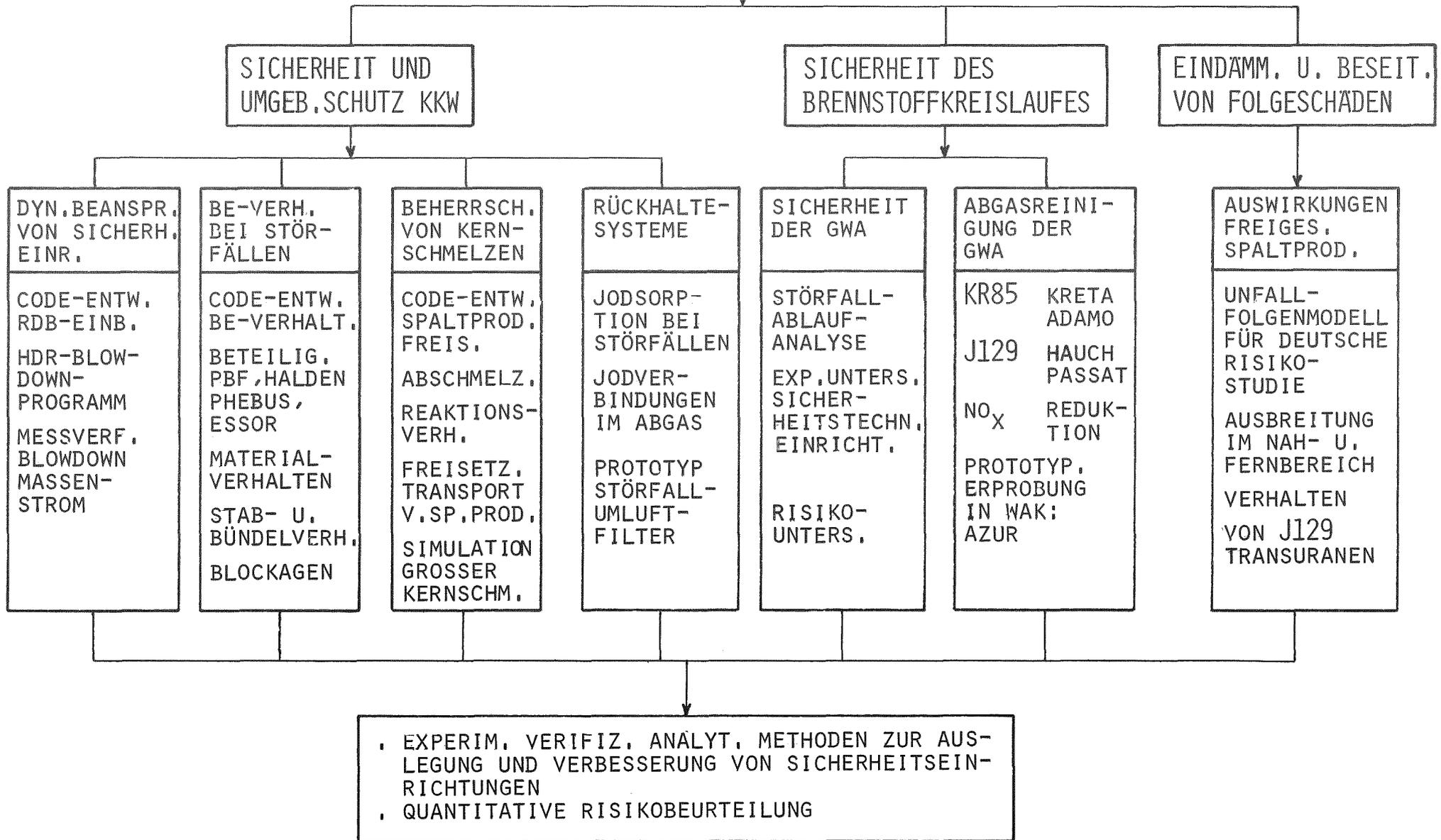


ABB. 4: TIEFTEMPERATUR-REKTIFIKATIONSANLAGE KRETA

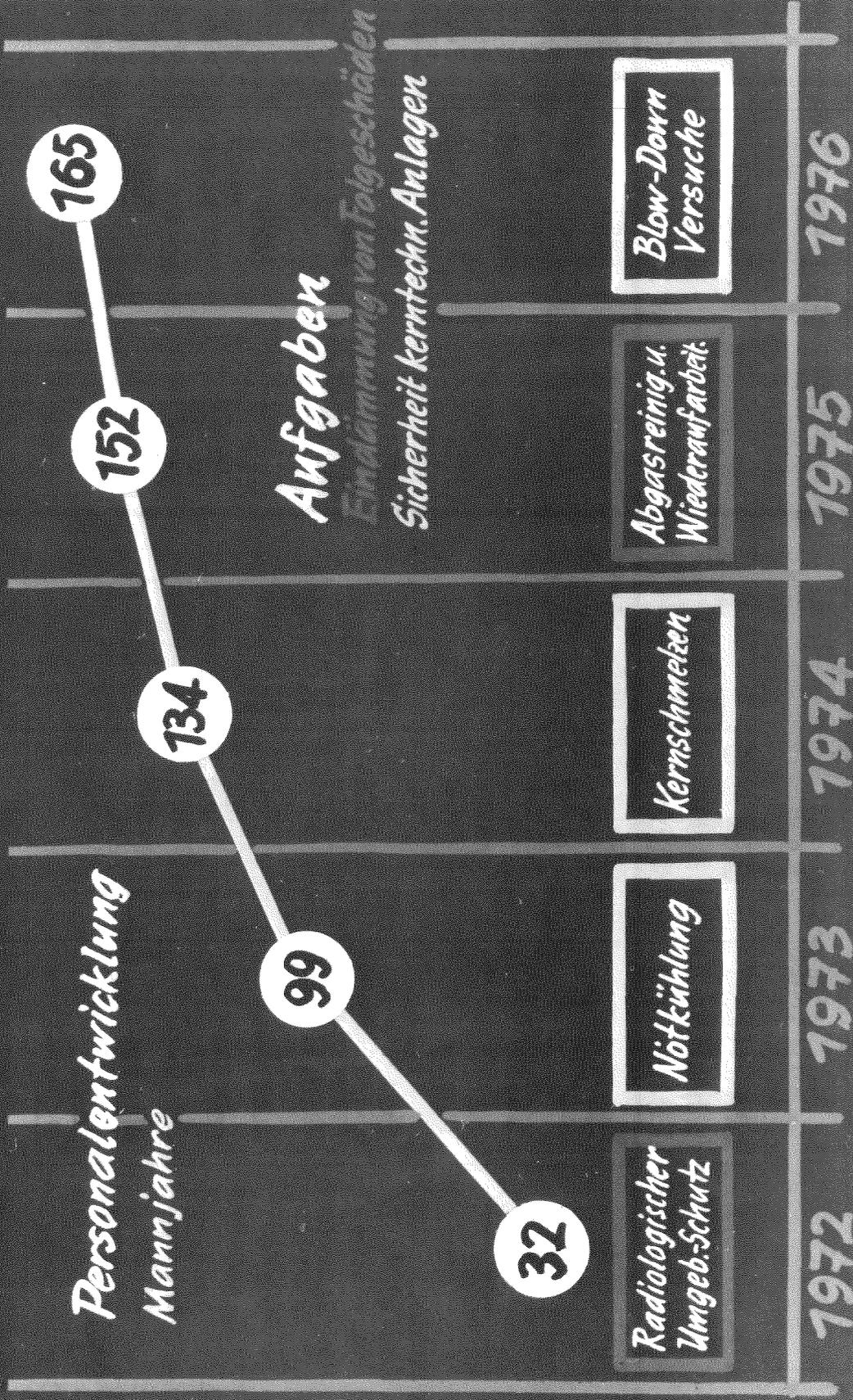
ABB. 5

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT



Personalentwicklung - Aufgaben PNS

PNS 105 '76 GfK



PNS-PROGRAMM-MATRIX

	SICHERHEIT VON KKW				SICHERHEIT DES BRENNSTOFF-KREISLAUFES		STÖRFALL-FOLGEN
	DYN. BEANSPR. -RDB-EINBAUT. -CONT. SYSTEME	BRENNELEMENT VERHALTEN BEI LOCA ETC.	BEHERRSCHUNG VON KERN-SCHMELZEN	RÜCKHALTE-SYSTEME	SICHERHEIT DER GWA	ABGASREINIGUNG DER GWA	AUSWIRKUNGEN FREIGESETZTER SPALTPRODUKTE
ANALYSE, CODE-ENTW./VERIFIZ.	<u>PNS</u> : YAQUI FLUST CYLDY STRUDL <u>IRS/LRA/KWU/NRC-CODES</u>	<u>PNS</u> <u>IKE</u> > SSYST <u>NRC</u> : FRAP S/T	<u>PNS</u> : SPALT NAUA <u>KWU</u> : BILANZ MELSIM <u>TUHA</u> : THEKAR KAVERN <u>NRC</u> : CORRAL BOIL	<u>PNS</u> : NAUA	<u>PNS</u> : STÖRFALLAB-LÄUFE IN DER GWA RISIKO-STUDIE	<u>PNS</u> : DYN. VERHALTEN DER ABGAS-REINIGUNG	<u>PNS/GSF</u> : UNFALLFOLGEN-MODELL FÜR DEUTSCHE RISIKO-STUDIE DES <u>IRS/LRA</u>
EXPER. UNTERS. VON EINZEL-EFFEKTEN	<u>PNS/IRS/LRA/BATT./KWU</u> : HDR-BLOWDOWN-VERSUCHE (PARAM. VAR.) <u>PNS</u> : LABOREXP. 2-PHASEN MASSENSTROM <u>BATT</u> : RS 16	<u>PNS</u> : ZRY-VERH. STAB/BÜNDEL VERH. (IN PILE OUT-OF-PILE) BLOCKAGEN <u>KWU</u> : ZRY- U. STAB-VERH. <u>NRC</u> : PBF <u>JAERI</u> : NSRR <u>OECD</u> : HALDEN	<u>PNS</u> : ABSCHMELZEN REAKTIONS-VERH. IN SCHMELZEN INCL. BETON SPALTPROD. FREIS. UND TRANSPORT <u>KWU</u> : BETON-ZERSTÖRUNG	<u>PNS</u> : JODSORPTIONS-MATERIAL FÜR STÖRFÄLLE IDENTIFIZ. VON JOD, VERBINDUNGEN IM ABGAS	<u>PNS</u> : STÖRFALL-VERHALTEN SICHERHEITSTECHNISCHER EINRICHTUNGEN IN DER GWA	<u>PNS</u> : KR85 KRETA ADAMO J129 HAUCH PASSAT NO _x REDUKTION	<u>PNS</u> : ÖKOLOG. VERH. - J129 - TRANSURANE AUSBREITUNG RADIOAKT. GASE UND AEROSOLE IM NAHBEREICH (0 - 10 KM)
INTEGRAL EXPERIM.	HDR-BLOWDOWN PROGRAMM <u>BATT</u> : RS 50 MARVIKEN I, II	<u>PNS</u> : BÜNDEL VOLLER LÄNGE <u>NRC</u> : LOFT-FUEL <u>CEA</u> : PHEBUS <u>ISPRA</u> : ESSOR	<u>PNS</u> : SIM, GROSSER KERNSCHMELZEN <u>SANDIA</u> : GROSSES KERN-SCHMELZEN-EXP.	<u>PNS</u> : TESTS MIT PROTOTYP. STÖRFALLUM-LUFTFILTER	Z.Z. NOCH OFFEN	<u>GFK/GWK/KEWA</u> PASSAT (KALT) AZUR (HEISS)	<u>PNS</u> : AUSBREITUNG IM MESO-SCALE (10 - 100 KM)

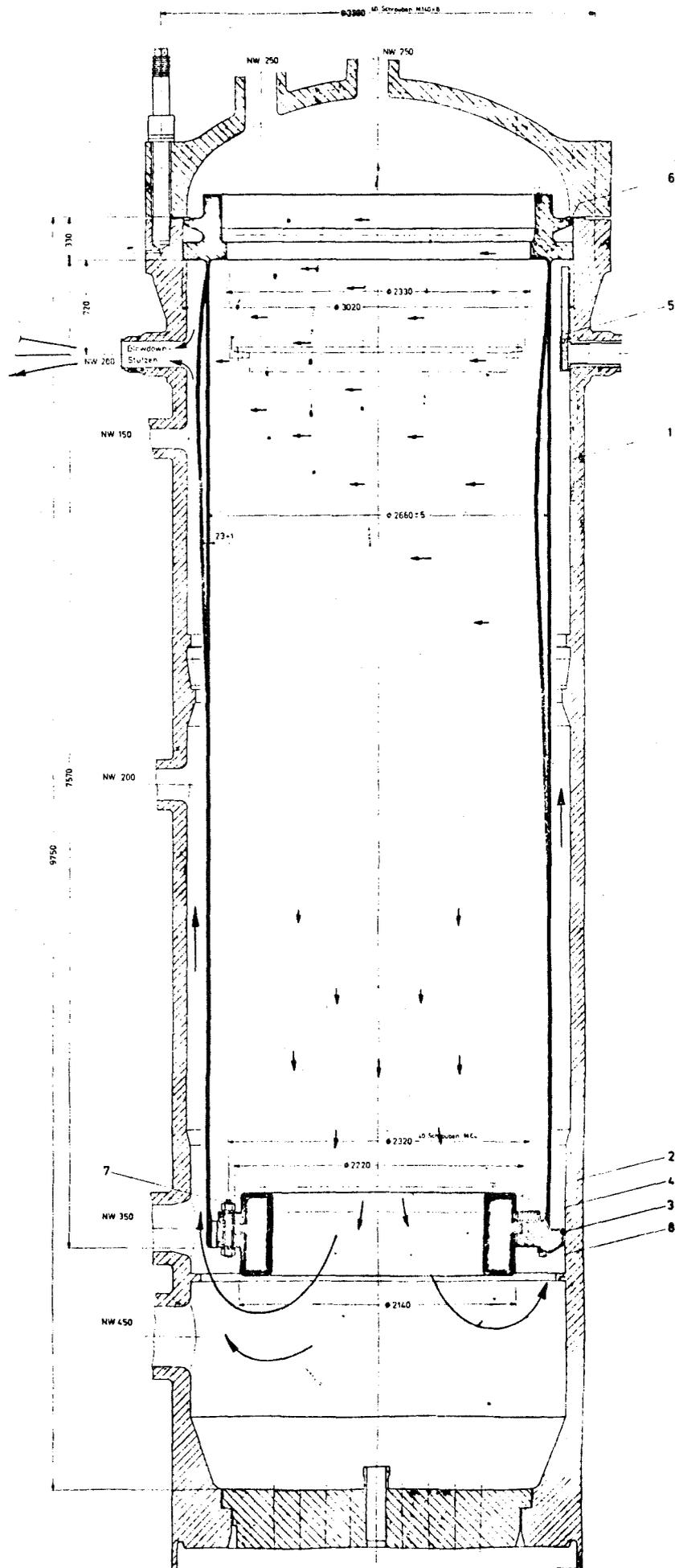


ABB. 8: HDR-VERSUCHSKERNMANTEL IM HDR-RDB

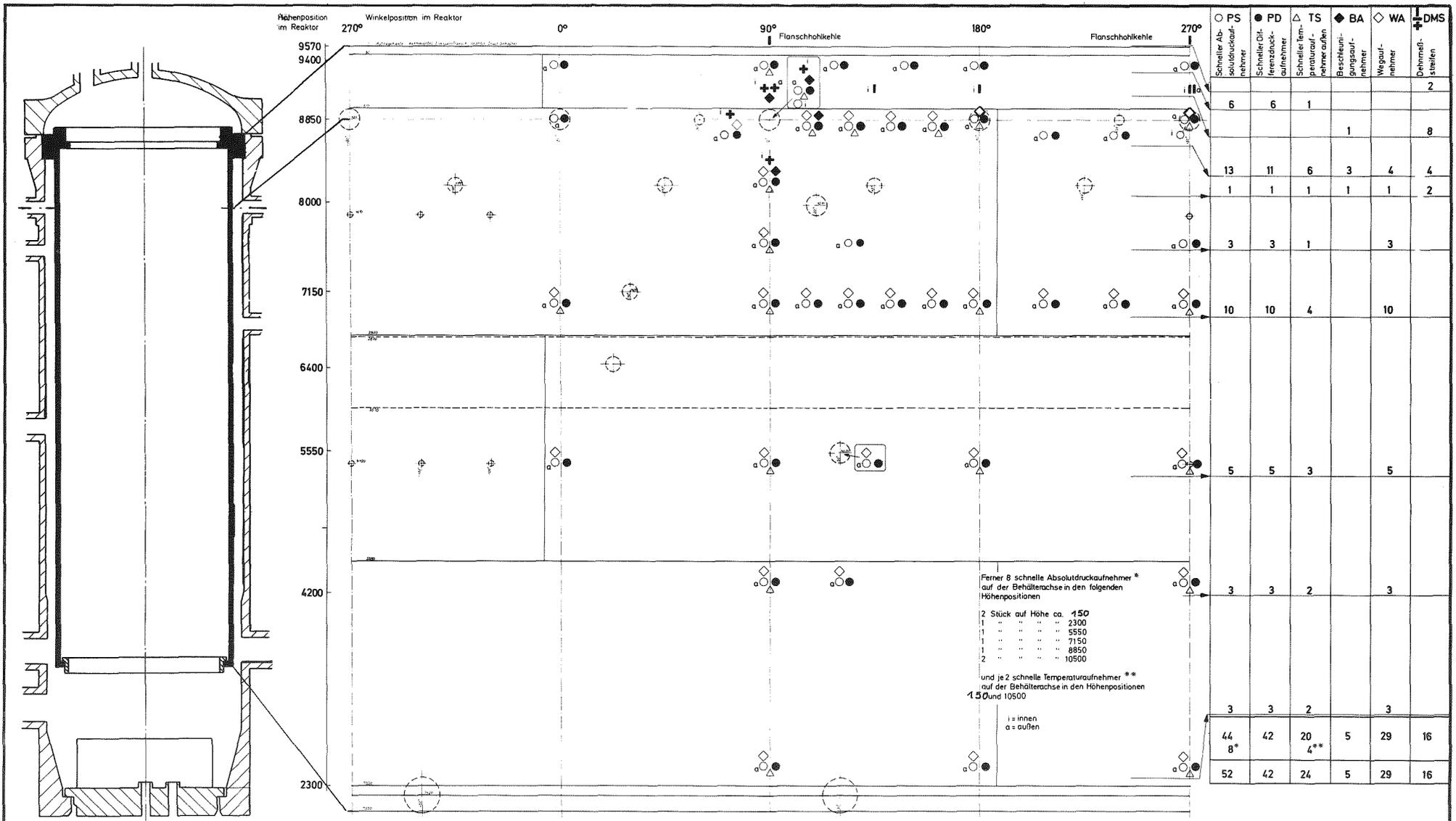


ABB. 9 HDR - KERNBEHÄLTERINSTRUMENTIERUNG

GFK
PHDR/PNS

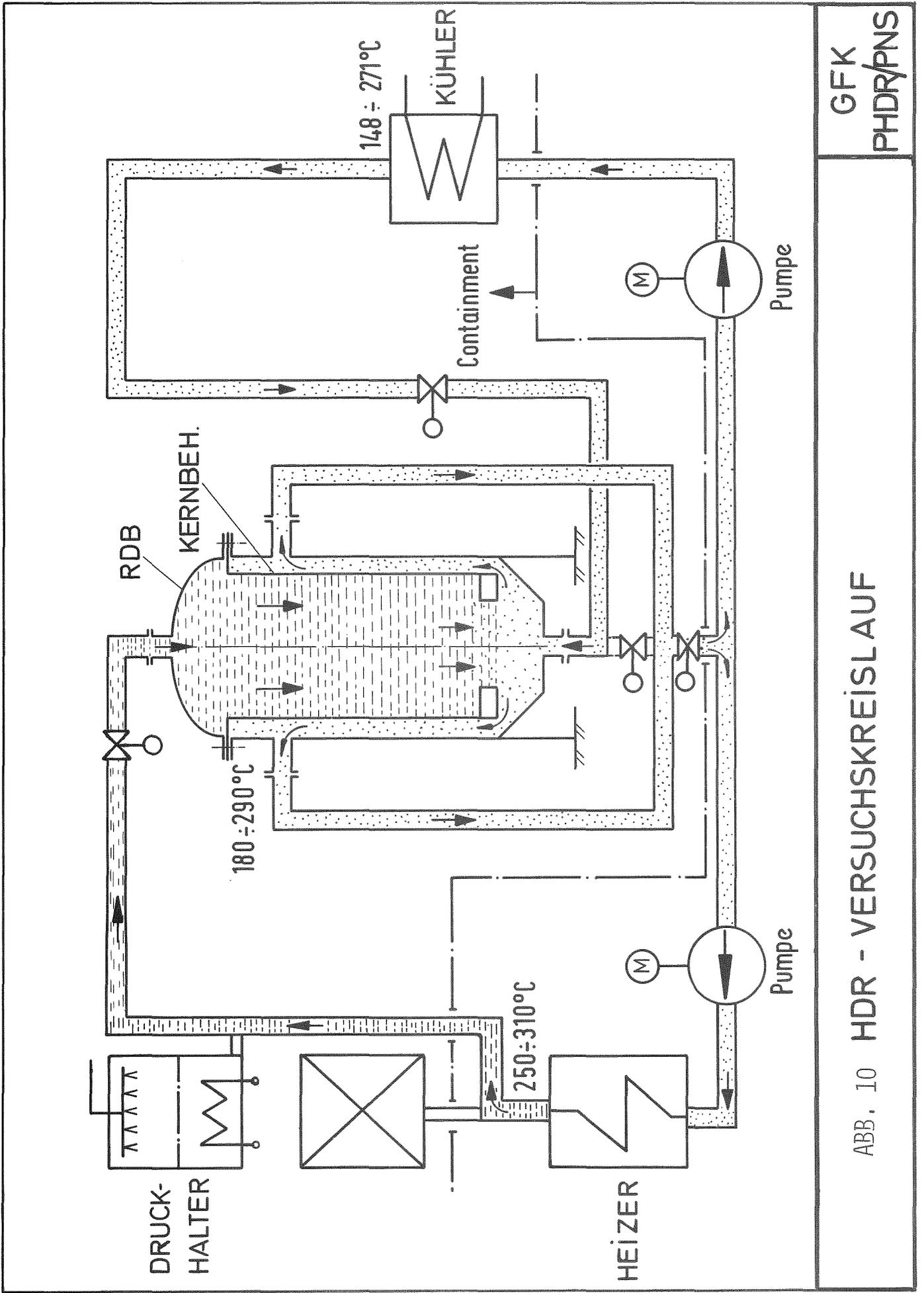
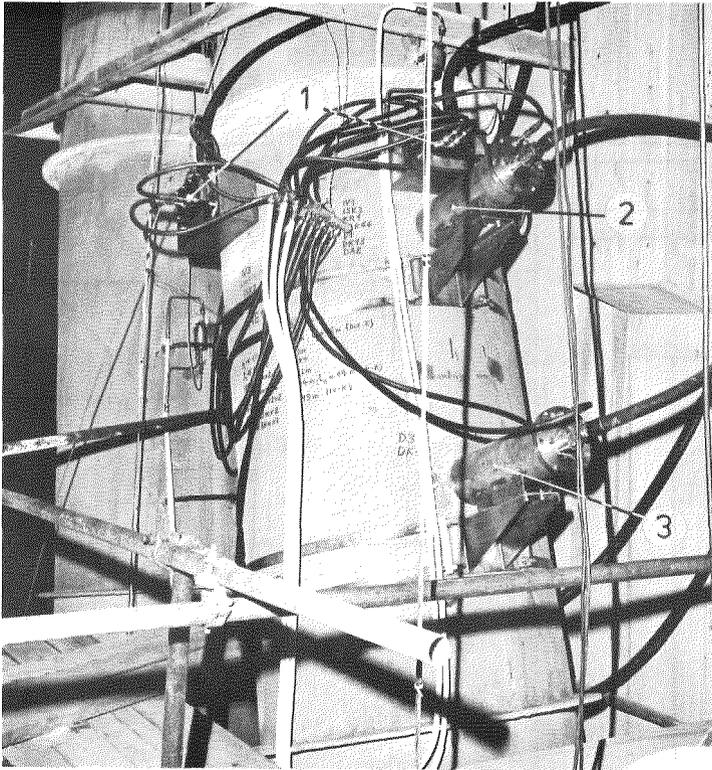
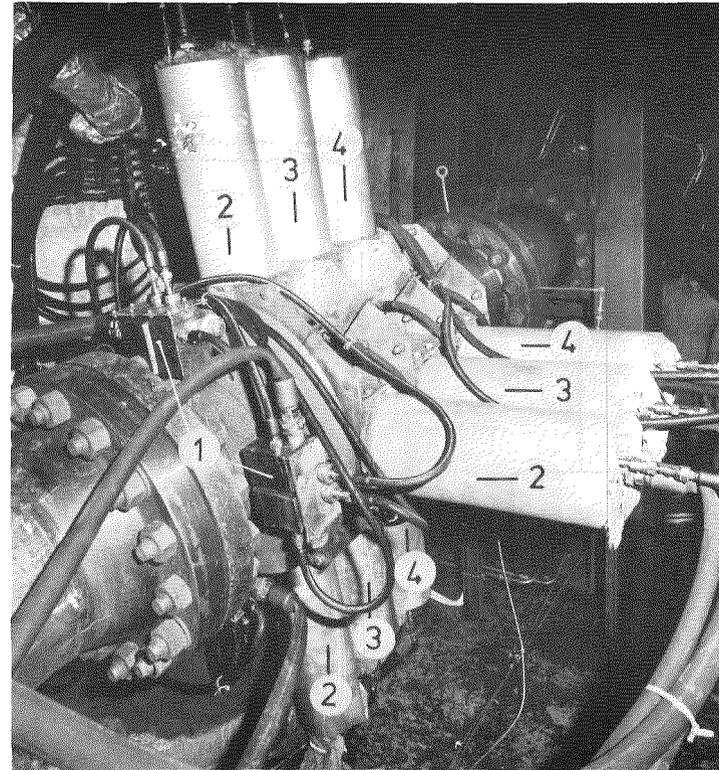


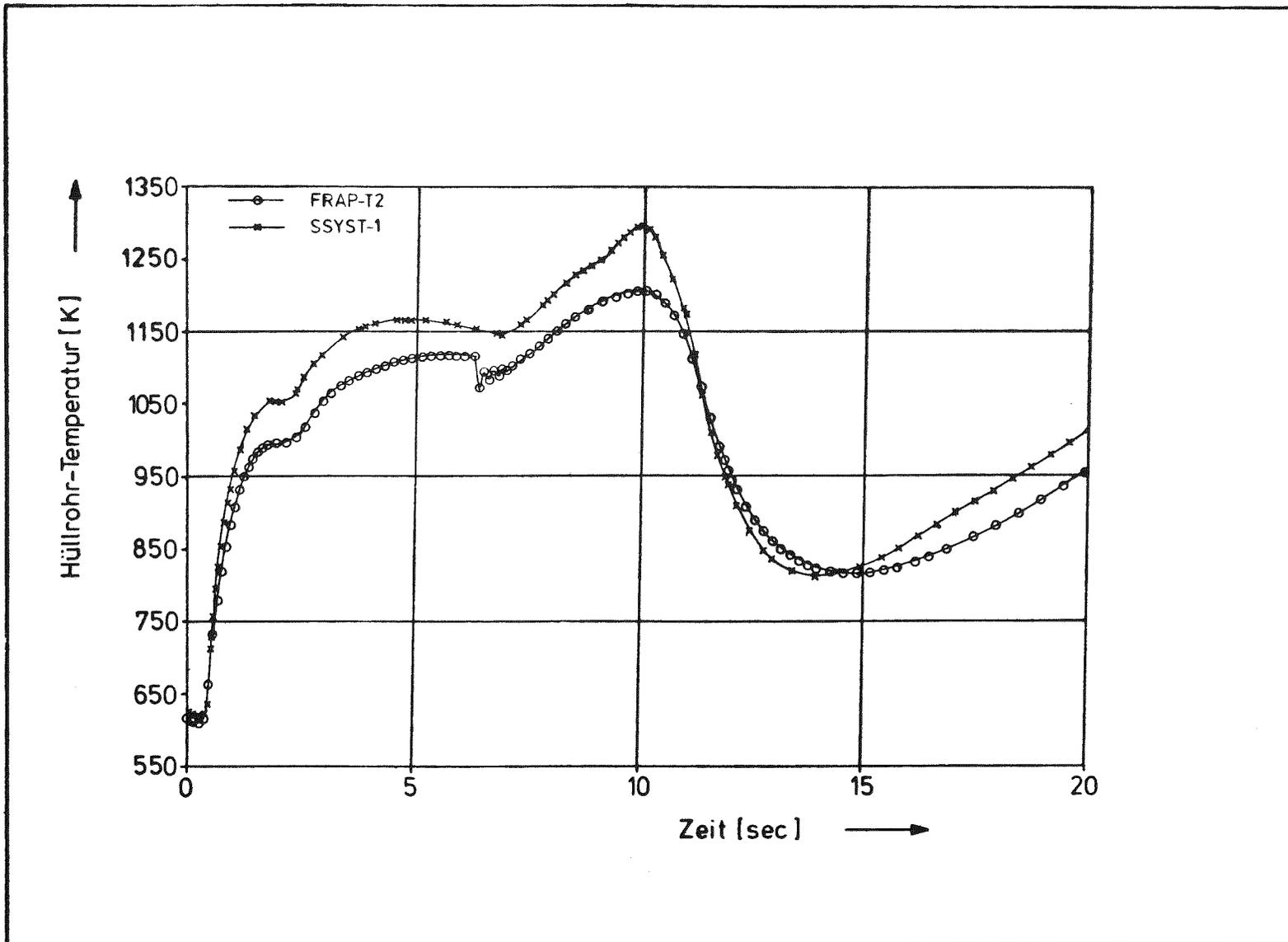
ABB. 10 HDR - VERSUCHSKREISLAUF



RADIOTRACERGESCHWINDIGKEITSMESSEINRICHTUNG
AN EINEM DER 4 ABBLASEKANÄLE (NW 1200)
DES MARVIKEN-REAKTORS



RADIOTRACERGESCHWINDIGKEITSMESSEINRICHTUNG
AM BRUCHSTUTZENS (NW 400) DES MARVIKEN-
REAKTORS



<p>Abb.12</p> <p>PNS 4231</p>	<p>Vergleichsrechnung SSYST-1 - FRAPT2 für das FRAP-T Standard Problem 1 2F-Bruch, kalter Strang, amerikanischer DWR Maximale Hüllrohr-Temperatur</p>	<p>PNS/IKE</p> <p>1976</p>
-------------------------------	---	----------------------------

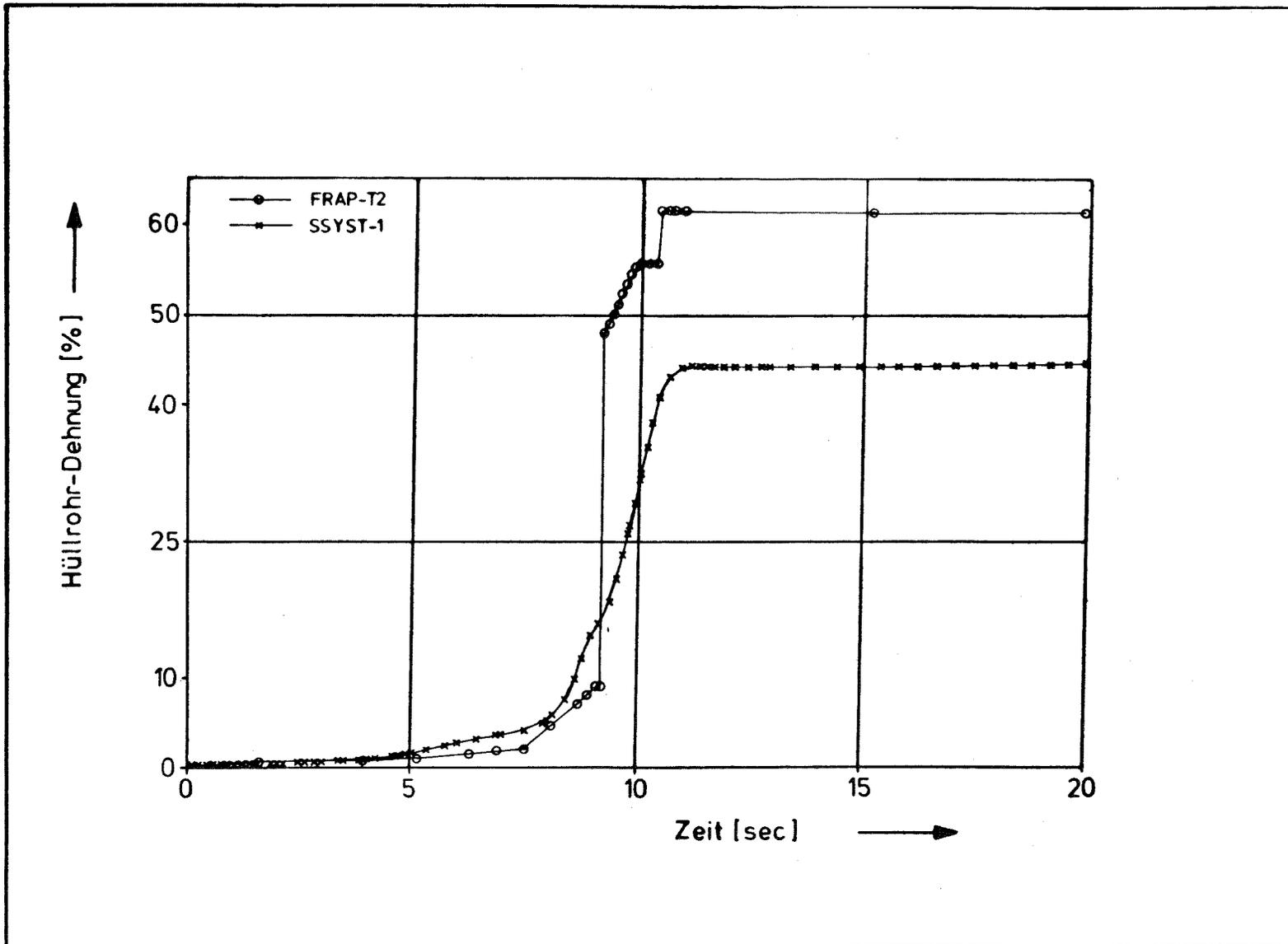


Abb 13

PNS 4231

Vergleichsrechnung SSYST-1-FRAP-T2 für
 das FRAP-T Standard Problem 1
 2F-Bruch, kalter Strang, amerikanischer DWR
 Maximale Hüllrohr-Dehnung

PNS/IKK

1976

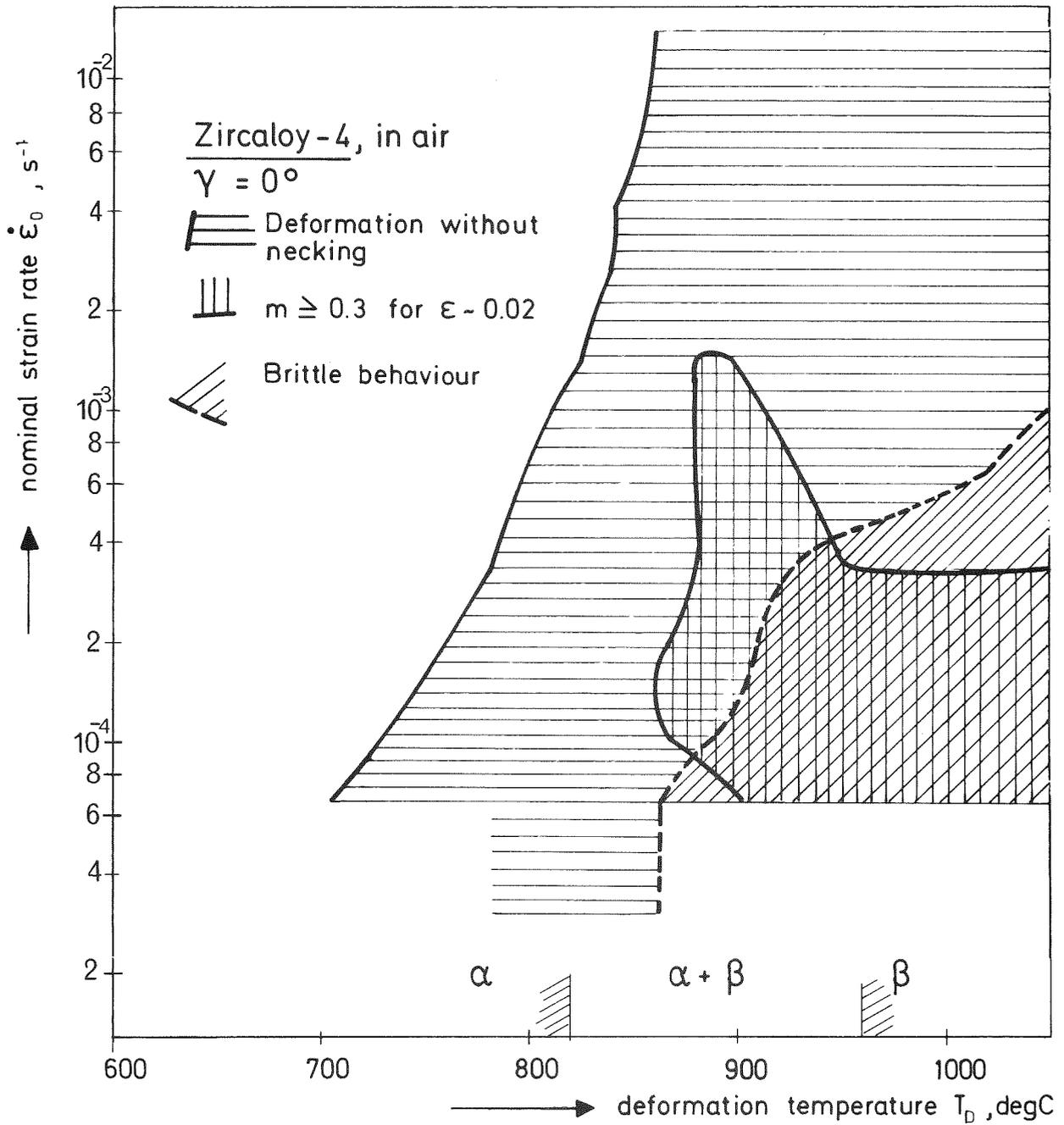


ABB. 14

EINSCHNÜRUNGSVERHALTEN VON ZIRCALOY-4
 FLACHZUGPROBEN

GFK / PNS
 IMF II

ABB. 15 ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

GEWICHTSZUNAHME NACH 1. ANGENÄHERT ISOTHERMER UND 2. STÖRFALLTYPISCHER REAKTIONSFÜHRUNG MIT HALTEZEIT BEI MAXIMALTEMPERATUREN VON 800-1300°C UND GESAMT-REAKTIONSZEIT VON 3 min (1m/s, 1at)

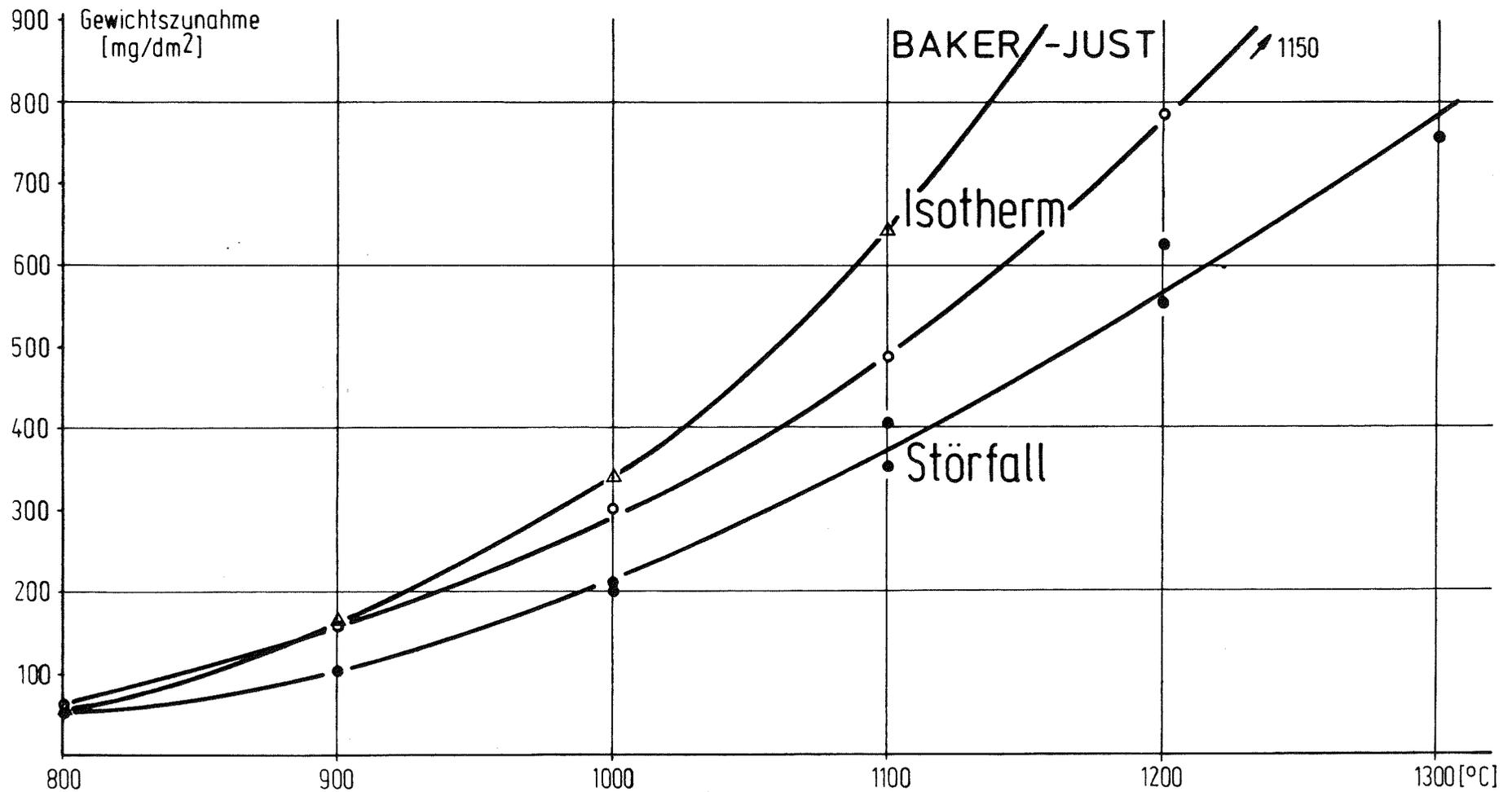
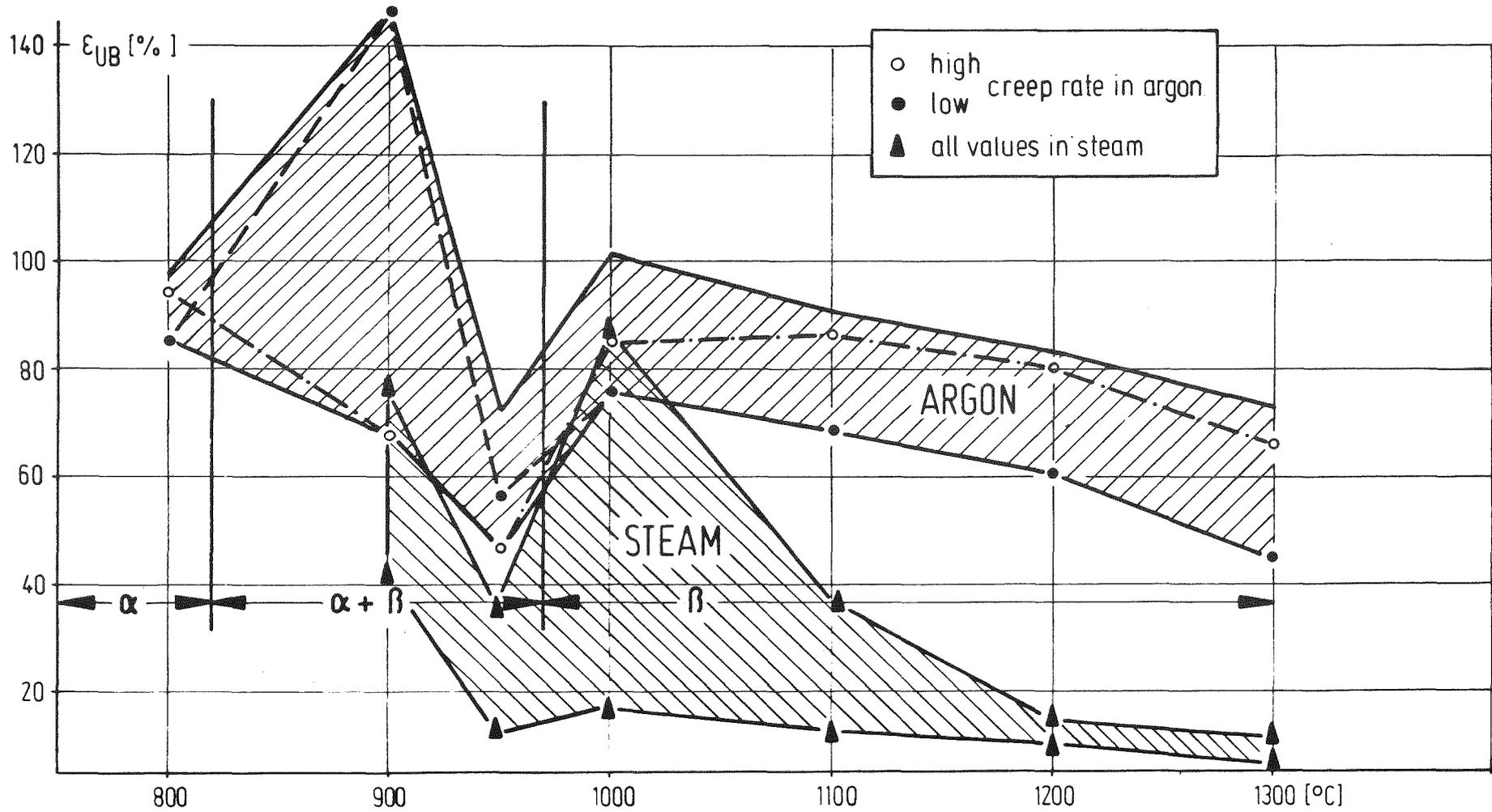


ABB. 16

STRESS-RUPTURE TESTS OF ZIRCALOY 4 TUBE CAPSULES IN ARGON AND STEAM

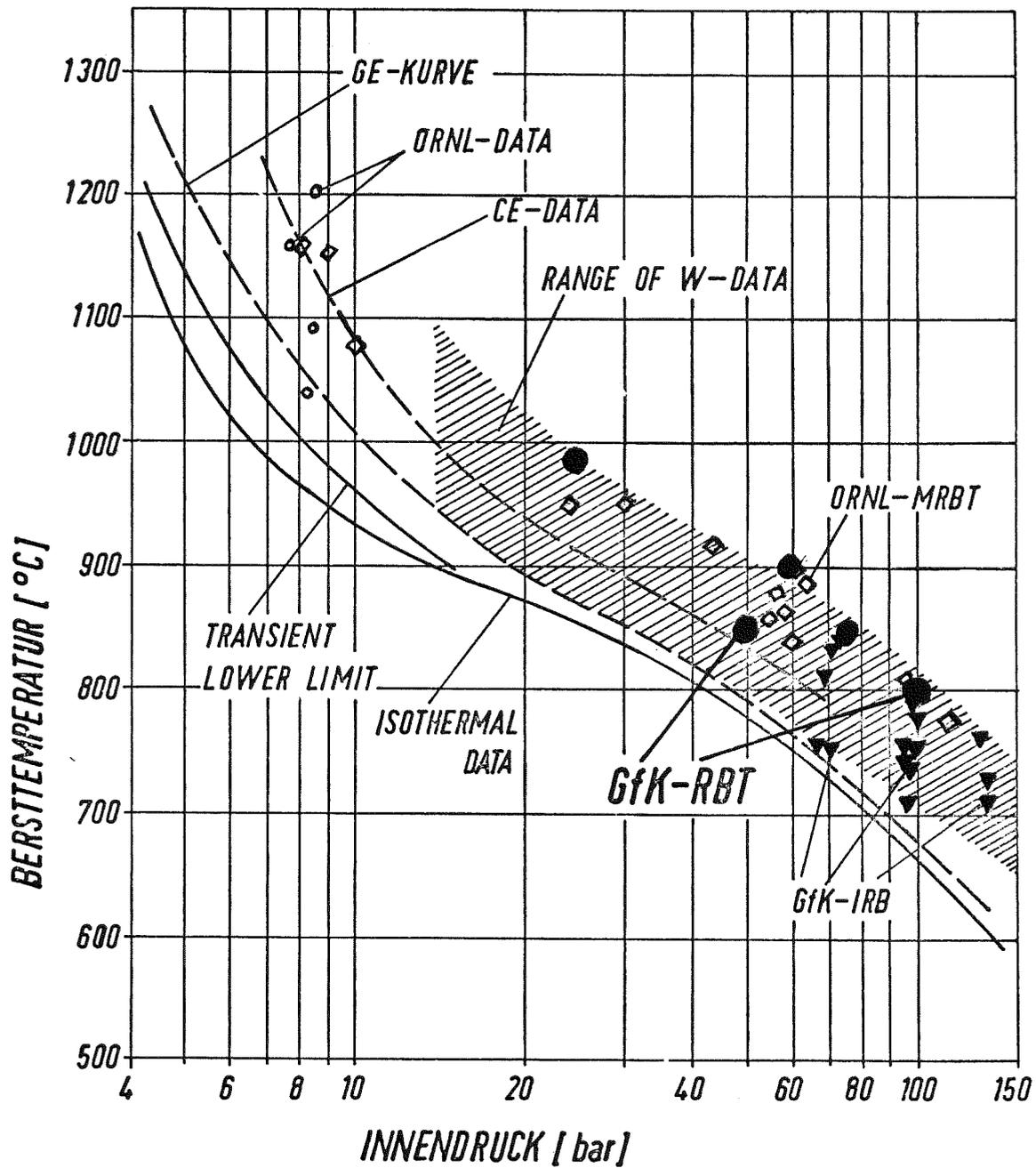
MAX. CIRCUMFERENTIAL STRAIN VERSUS TEMPERATURE

(S. Leistikow and R. Kraft)



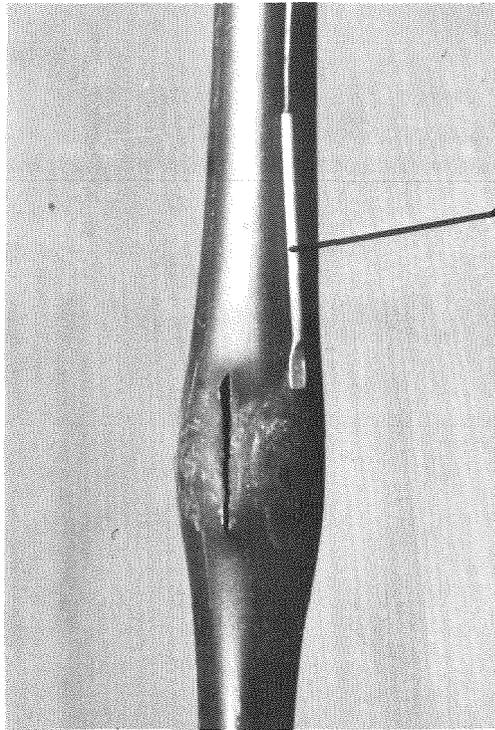
▼ GfK-IRB: Brennstabsimulator indirekt beheizt.

● GfK-RBT: In-pile-Versuche im FR2-Reaktor.

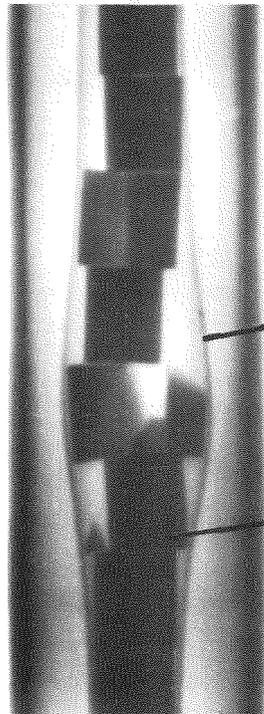


[z.T. aus: J.R. Weir, ORNL-CF-72-11-1, Nov. 72]

GfK-RBT	Bersttemperatur von Zry.-Hüllrohren in Abhängigkeit vom Differenzdruck	ABB. 17
1976		PNS 4237



Thermoelement 1mm ϕ mit
Platinhülse



Zircaloy-Hülle

UO₂-Tabletten
(teilweise zersprungen)

GfK-RBT

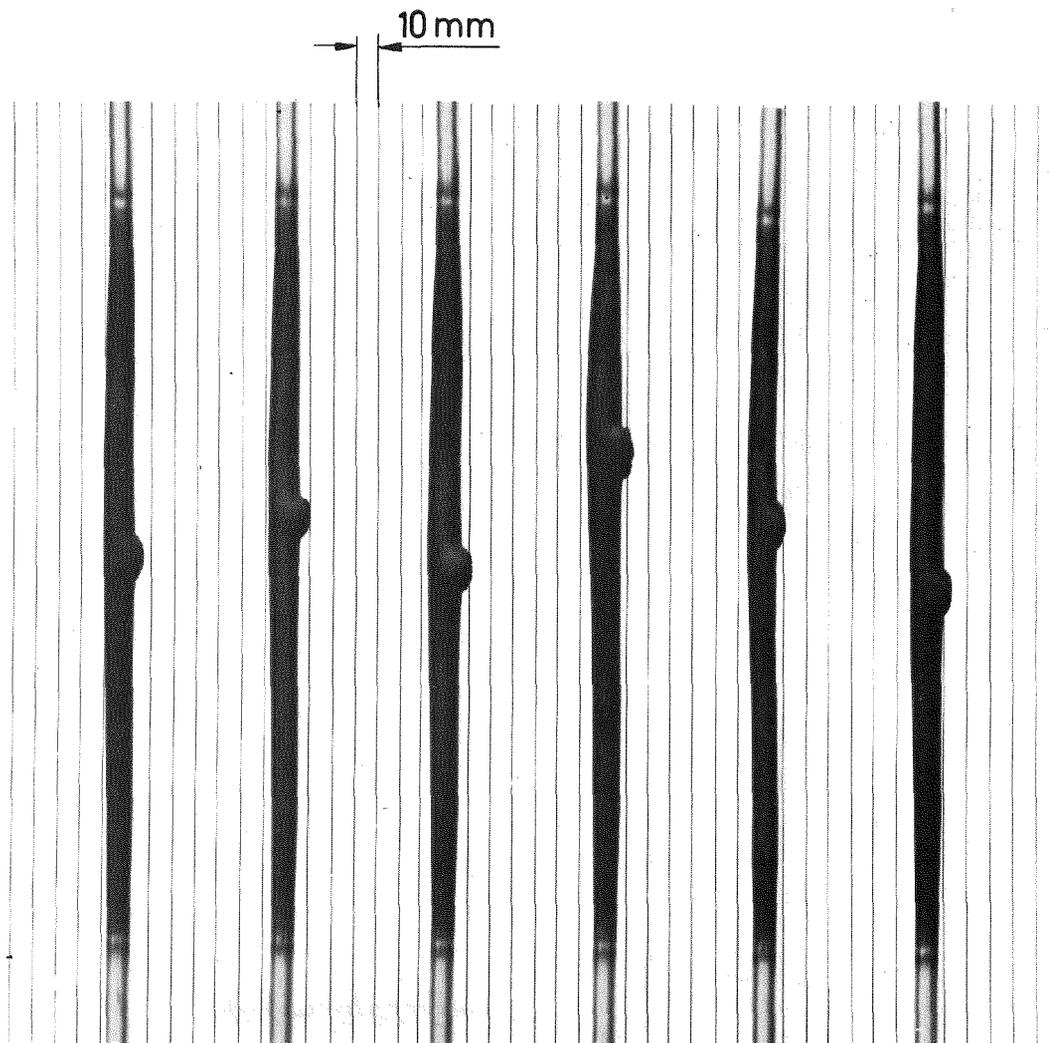
In-pile-Versuch A1.1

ABB. 18

1976

Innendruck 50 bar, Bersttemperatur 850°C

PNS4237

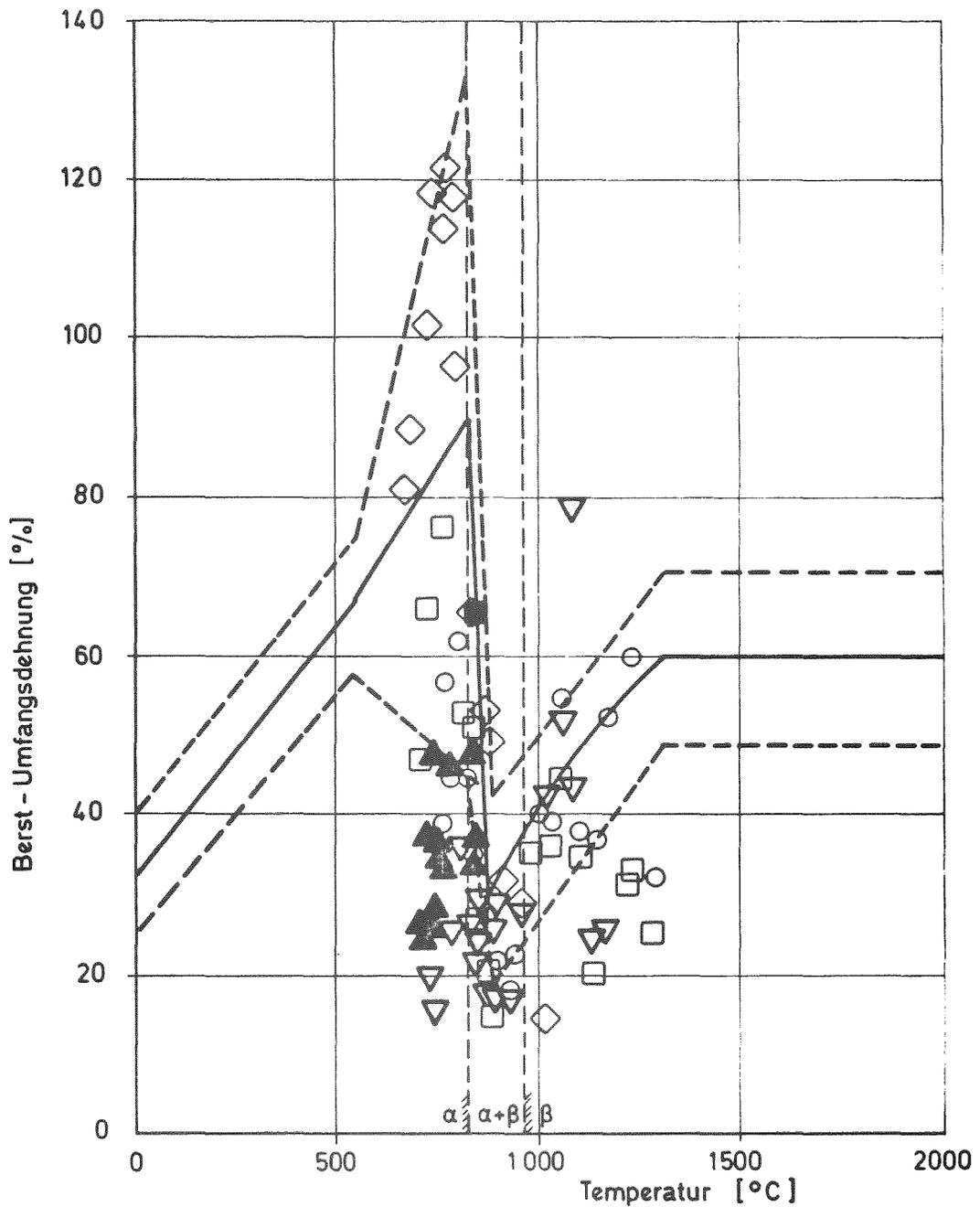


beheizte Länge : 325 mm
konstante Stableistung : 50 W/cm
Innendruck : 100 bar
Versuchsatmosphäre : Luft, 1 bar

GfK - IRB
1976

Aufgeblähte und geborstene
Zircaloy - Hüllrohre

ABB. 19
PNS-4238



FRAP - T3 Rechnungen: — Durchschnittswert
 - - - Standard - Abweichung

- ◇ 5 K/s , direkt beheizt, Dampf (ANL)
- ▽ 28 K/s , innen beheizt, Dampf (ORNL)
- 55 K/s , direkt beheizt, Dampf (ANL)
- ▲ 11 K/s , innen beheizt, Luft (GfK-PNS4238)
- 115 K/s , direkt beheizt, Dampf (ANL)
- 10 K/s , in-pile, Dampf (GfK -PNS 4237)

[z. T. aus: P.E. Mac Donald, J.M. Broughton: Specialists' meeting Spätind.,
 September 1976, paper SNI 8/17]

GfK - IRB	Berst - Umfangsdehnung von Zirkaloy - Hüllrohren	Abb. 20
1977		PNS-4238

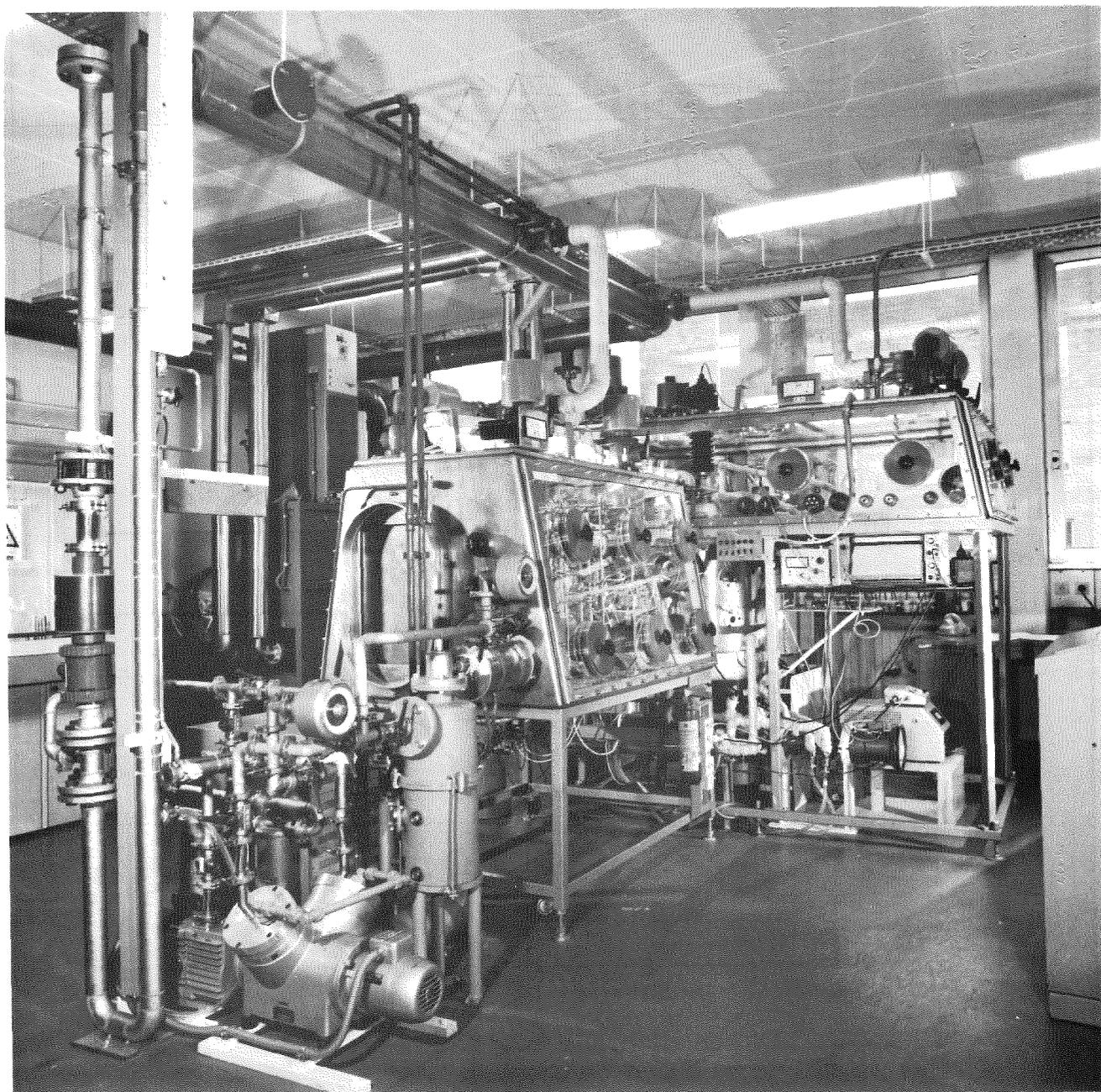


ABB. 21

GESAMTANSICHT DER SCHMELZANLAGE
SASCHA

GFK/PNS
IRCH/RBT



ABB. 22 SCHMELZE IM BETONTIEGEL

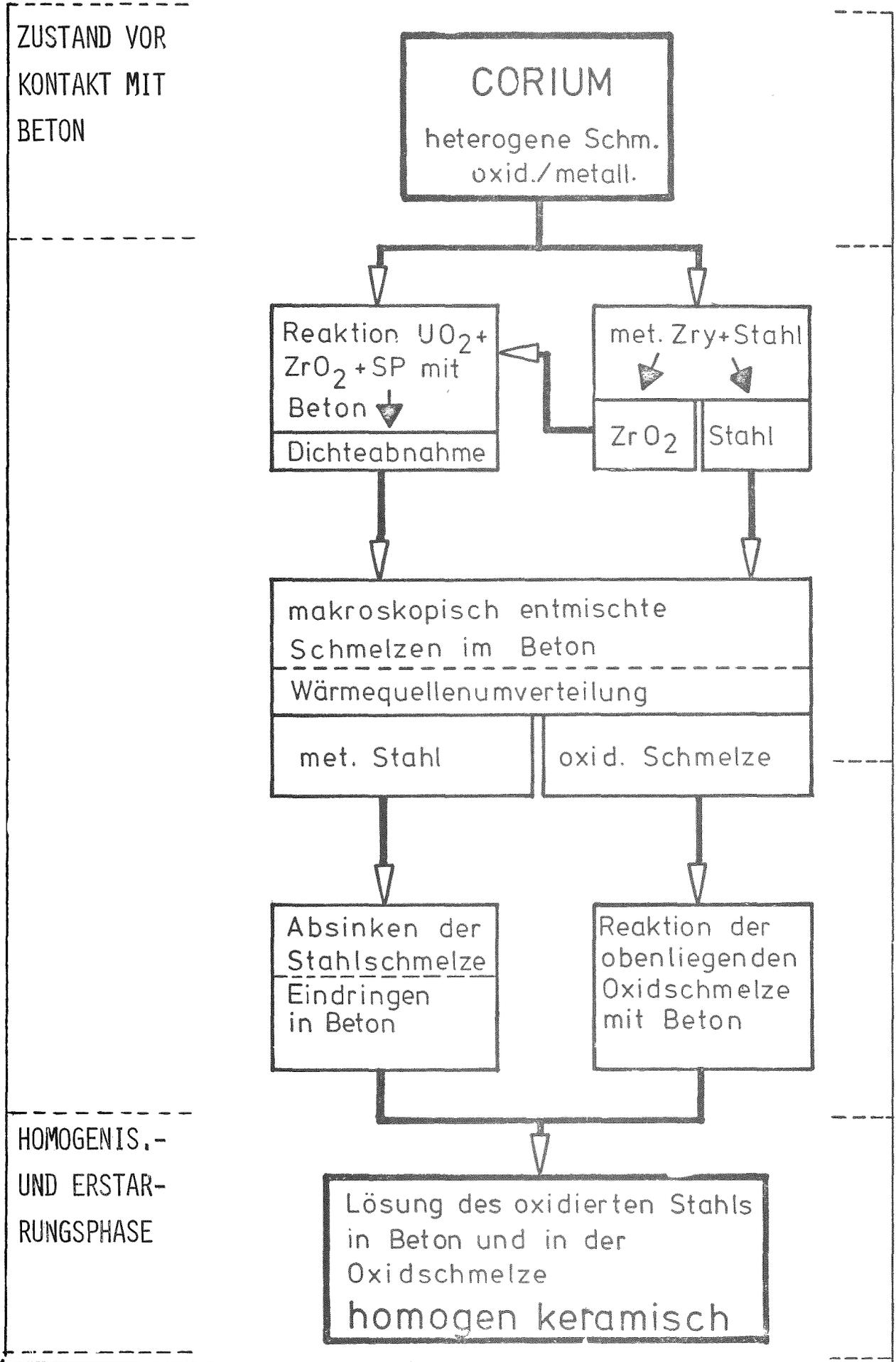


ABB. 23 ZUR WECHSELWIRKUNG ZWISCHEN CORIUM UND BETON

GFK
PNS

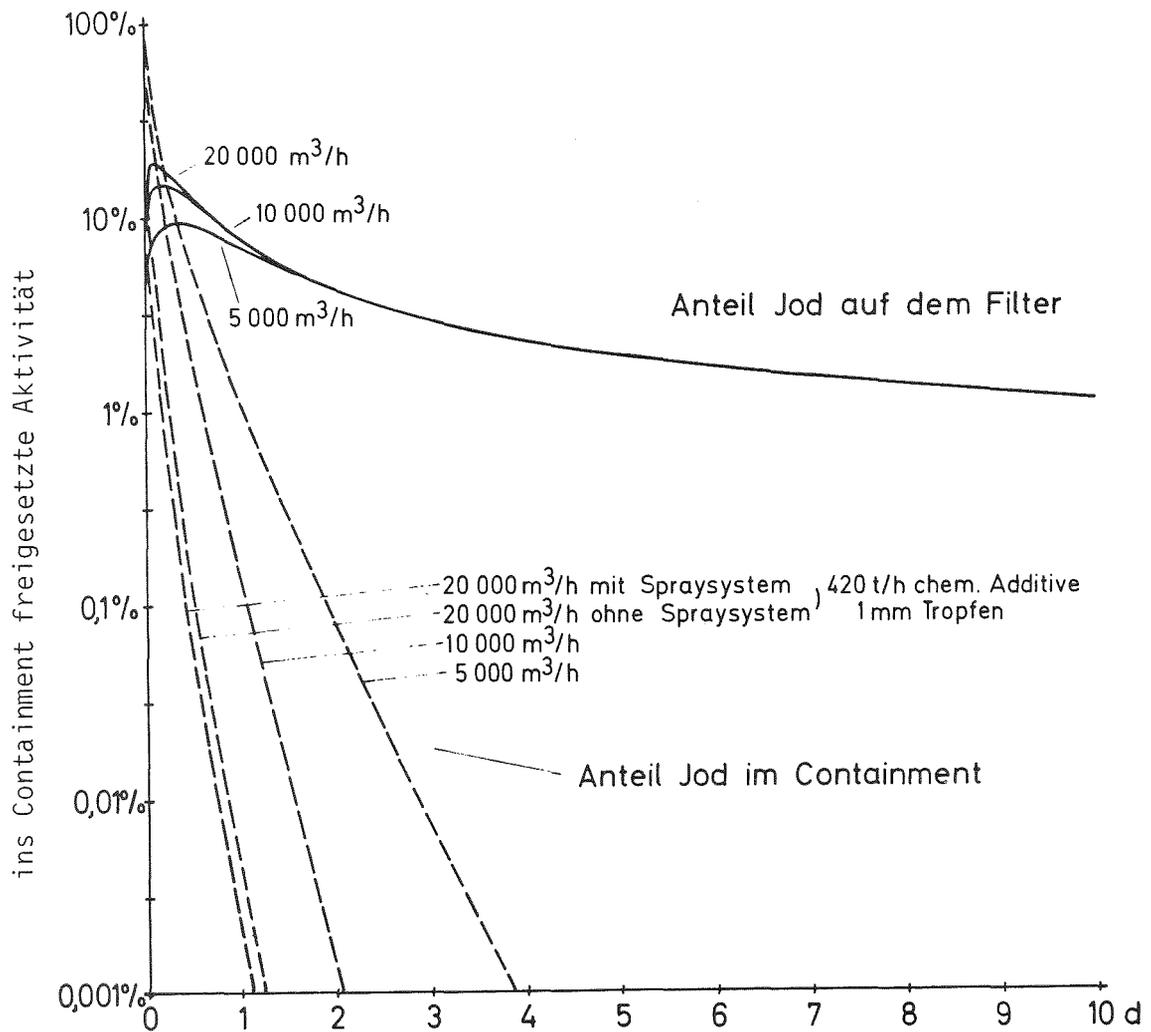


ABB.24 VERGLEICH STÖRFALL-UMLUFTFILTER
 SPRAYSYSTEME

GFK/PNS
 LAF II

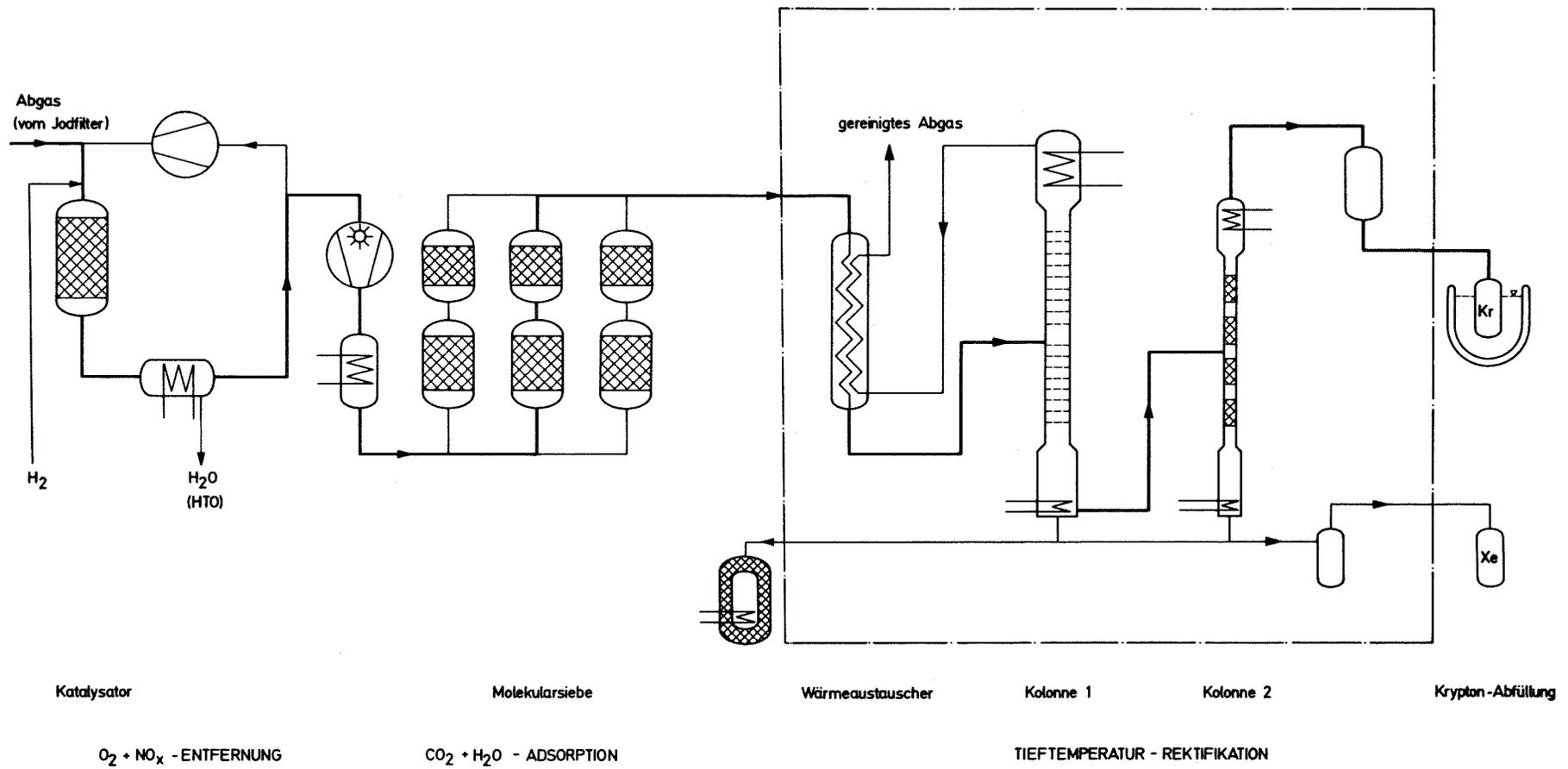


ABB. 25: SCHEMA DER ADSORPTIONSANLAGE ADAMO UND TTR-ANLAGE KRETA

IRS (GFK)

GFK

GSF

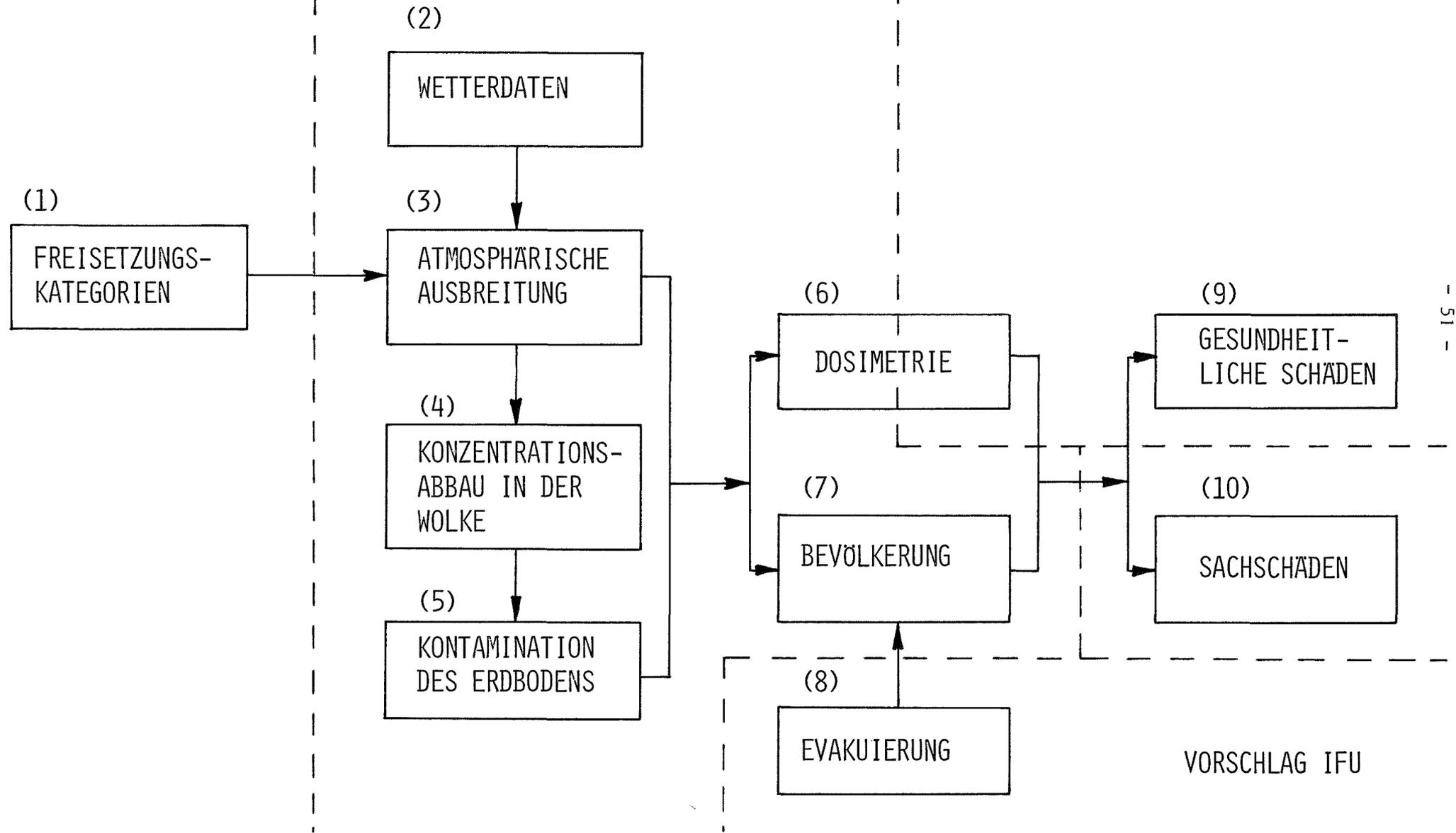


ABB. 26: ÜBERSICHT: UNFALLFOLGENMODELL DER DEUTSCHEN DWR-RISIKOSTUDIE

GFK/PNS-PL

JAHRESKOLLOQUIUM 1976

des

PROJEKTS NUKLEARE SICHERHEIT

Nukleare Sicherheit bei Wiederaufarbeitungsanlagen

H.H. Hennies und K. Körting

Kernforschungszentrum Karlsruhe

1. Einleitung

Aussagen über die Sicherheit von Wiederaufarbeitungsanlagen für Reaktor-Brennelemente beschränken sich - insbesondere in der Argumentation der Kernenergiekritiker - auf den Vergleich der in einer großen Anlage pro Jahr anfallenden ca. 12 t Plutonium mit der extrem geringen Menge von 10 Mikrogramm, deren Inhalation mit einem dem natürlichen vergleichbaren Lungenkrebsrisiko verbunden ist. Dieser Vergleich wird im allgemeinen mit dem Hinweis auf die angeblich nicht gelösten Probleme der Endlagerung der langlebigen radioaktiven Spaltprodukte verbunden. Es wird dann der Schluß gezogen, daß das Gefährdungspotential einer Wiederaufarbeitungsanlage wesentlich höher einzustufen ist als das eines Kernkraftwerks.

Da das Projekt Nukleare Sicherheit des Kernforschungszentrums Karlsruhe sich sowohl mit Arbeiten zur Sicherheit von Leichtwasserreaktor-Kernkraftwerken als auch von Wiederaufarbeitungsanlagen befaßt, setzt sich der Teilnehmerkreis des jährlichen Kolloquiums aus Fachleuten der Reaktorentwicklung und der Wiederaufarbeitungstechnik zusammen. Wir glauben deshalb, durch den Versuch eines Vergleichs der nuklearen Sicherheit von Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen diesem Kreis Informationen geben zu können, die für eine realistische Beurteilung des Sicherheitsproblems und der daraus resultierenden Auslegungsprinzipien von Nutzen sein könnten.

Zwar existieren seit längerem detaillierte Vergleiche des in beiden Anlagentypen befindlichen Inventars an radioaktiven Stoffen und ihres jeweiligen Gefährdungspotentials, erst in letzter Zeit haben jedoch die parallel zu den Auslegungsarbeiten für die geplante große deutsche Wiederaufarbeitungsanlage durchgeführten sicherheitstechnischen Analysen und Entwicklungsarbeiten einen Stand erreicht, der eine Beurteilung der mit dem Betrieb verbundenen Risiken erlaubt.

2. Das Gefährdungspotential

Das Gefährdungspotential kerntechnischer Einrichtungen beruht auf der Menge und dem Aggregatzustand des in ihnen enthaltenen radioaktiven Materials, insbesondere der Spaltprodukte und der Aktiniden. Wie in Abb. 1 dargestellt, beträgt bei einem 1300 MWe-Druckwasserreaktor das sicherheitstechnisch relevante Spaltproduktinventar nach 2,5 Volllastjahren beim Abschalten etwa $4,8 \times 10^9$ Ci¹⁾. Dabei sind Aktivitäten mit Halbwertszeiten unter 15 min nicht berücksichtigt. Die Edelgasisotope sind mit ca. $6,5 \times 10^8$ Ci, die des Sr mit $3,5 \times 10^8$ Ci und die des J mit $9,2 \times 10^8$ Ci beteiligt.

Wie in Abb. 2 dargestellt, wird die Freisetzung der Spaltprodukte und Aktiniden in die Umwelt durch folgende Barrieren verhindert: durch die Einlagerung im Brennstoff selbst, durch die Brennstoffhülle, durch den Reaktordruckbehälter, durch die Betonabschirmung, durch den Sicherheitsbehälter und schließlich durch die Betonhülle des Reaktorgebäudes.

Die 1500 jato-Wiederaufarbeitungsanlage wird für einen Brennstoff ausgelegt, der nach einem Abbrand von etwa 40.000 MWd/t und einer mittleren Kühlzeit von einem Jahr etwa 0,8 % Pu sowie 3 % Spaltprodukte bei einer spezifischen Aktivität von ca. $2,3 \times 10^6$ Ci/t enthält²⁾. Ein Jahresdurchsatz der Anlage entspricht daher einer Spaltproduktmenge von ca. 50 t mit einer Aktivität von ca. $3,5 \times 10^9$ Ci (Abb. 1).

Wie in Abb. 3 anhand eines stark vereinfachten Blockschemas der Wiederaufarbeitungsanlage dargestellt³⁾, werden die Brennelemente nach der Entladung durch eine Bündelschere zerkleinert. Der Brennstoff wird in heißer Salpetersäure aus den Hüllen gelöst. Dabei fallen im Abgas radioaktive Aerosole und flüchtige Spaltprodukte, insbesondere ^{85}Kr und ^{129}J in Jahresmengen von etwa 15×10^6 Ci bzw. 40 Ci an (Abb. 1). Hinzu kommen die Brennelementhüllen. Der hochaktive Abfall dieses Prozeßschritts - Spaltproduktlösungen und Brennelementhüllen - werden in der Anlage

zwischengelagert. Die Abgase werden durch Filterung bzw. Tieftemperatur-Rektifikation gereinigt. Die abgeschiedenen radioaktiven Stoffe werden in eine endlagerfähige Form gebracht. Während der folgenden drei Extraktionszyklen des zur Trennung und Rückgewinnung von Uran und Plutonium verwendeten Purex-Prozesses wird mit einer brennbaren Lösung aus 30 % Tributylphosphat in Kerosin und bei der Lösungsmittelwäsche mit Kerosin gearbeitet. Im ersten Extraktionszyklus werden die Spaltprodukte abgeschieden. Dabei fallen pro Jahr ca. 120×10^6 Ci ^{90}Sr und 440×10^6 Ci $^{134}, ^{137}\text{Cs}$ im hochaktivem Abfall an. Im zweiten und dritten Extraktionszyklus werden Uran und Plutonium auf die erforderliche Reinheit gebracht. Dabei fällt mittelaktiver Abfall an. Eine weitere Quelle von mittelaktivem Abfall ist die Lösungsmittelwäsche. Das pro Jahr in der Anlage anfallende T mit ca. 10^6 Ci geht bei der Auflösung zu etwa 1/3 in die Abgase und zu 2/3 in die flüssige Phase ^{3) +)}. Davon wiederum gelangt ein geringer Teil in den hochaktiven Abfall und der Rest in das Destillat des leicht aktiven Abfalls. Insgesamt ist bezogen auf einen Jahresdurchsatz von 1500 t mit ca. 1000 m^3 hochaktivem Abfall und mit ca. 2000 m^3 mittelaktivem Abfall zu rechnen.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die Aktivitätsmenge, die sich in Form von Spaltprodukten pro Jahr in der gesamten Wiederaufarbeitungsanlage ansammelt, etwa der eines 1300 MWe-Druckwasserkernkraftwerks kurz nach dem Abschalten entspricht, jedoch im Gegensatz dazu teilweise flüssig bzw. gasförmig vorliegt. Die räumliche Verteilung der Aktivitäten in der Anlage zeigt Abb. 4. Bei Betrachtungen zur Anlagensicherheit ist zu berücksichtigen, daß sich in einem wesentlichen Teil der Anlage, nämlich den Extraktionszyklen nur die einem Tagesdurchsatz entsprechende Aktivitätsmenge, d. h. etwa 1/2 % der dem Jahresdurchsatz entsprechenden Aktivitätsmenge, befindet. In dem aus Gründen erhöhter Flexibilität für zwei Jahresdurchsätze, d. h. 3000 t UO_2 ausgelegten Brennelement-Lagerbecken befinden sich die Spaltprodukte noch innerhalb der Brennelemente. Der Hauptteil der Spaltprodukte fällt in den Lagern für hochak-

⁺) Neuere Erkenntnisse deuten an, daß ein wesentlicher Teil des T in den Brennelementhülsen gebunden ist.

tiven und mittelaktiven Abfall sowie für das abgeschiedne Kr an. Dabei ist im Lager für hochaktiven Abfall mit einer Ansammlung von bis zu 10^{10} Ci in 5 Jahren und im Kr-Lager mit $1,2 \times 10^8$ Ci in 15 Jahren zu rechnen. Eine wesentliche Aktivitätsmenge ist auch in dem für einen Durchsatz von einigen Wochen ausgelegten Feed-Pufferbehälter mit $7,2 \times 10^7$ Ci enthalten. Bei einer quantitativen Beurteilung des Risikos ist neben der räumlichen Verteilung bzw. Konzentration der Aktivitäten auch der Einfluß der Langlebigkeit bzw. Radiotoxizität der enthaltenen Nuklide in Rechnung zu stellen. Neben der wichtigen Tatsache, daß tatsächlich nur ein geringer Teil des Inventars sich in den Prozeßschritten mit einem möglicherweise höheren Unfallpotential befindet, ist für die sicherheitstechnischen Betrachtungen besonders bedeutend, daß anders als in Kernkraftwerken in der Anlage keine erhöhten Betriebsdrücke und -temperaturen, sowie auch keine Überschußreaktivität zu beherrschen sind.

3. Normalbetrieb

Wie alle kerntechnischen Anlagen mit hohem Aktivitätsinventar ist die Wiederaufarbeitungsanlage so auszulegen, daß weder die naturbedingten Ereignisse Erdbeben, Sturm, Blitzschlag, Feuer und Hochwasser, noch die zivilisationsbedingten Ereignisse Flugzeugabsturz, Druckwelle, Flächenbrand und Sabotage zu einer unzulässigen Freisetzung von Aktivitäten führen können.

Entsprechende Maßnahmen sind in der Kerntechnik heute zum großen Teil Standard. In dieser Hinsicht besonders relevante Erfahrungen konnten bei der Errichtung von Abfallagern für hochaktiven und mittelaktiven Abfall bei der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe gewonnen werden.

Bei Reaktoren haben die genannten Maßnahmen die Erhaltung der Integrität des Containments bei allen Auslegungsstörfällen zum Ziel. Es sei jedoch darauf hingewiesen, daß dies weder im Fall der Reaktoren noch der Wiederaufarbeitungsanlagen eine vollständige Verhinderung der Abgabe radioaktiver Stoffe bedeutet. Ein derartiges "zero-release"-Konzept

wäre weder aus der Sicht der Umweltbelastung zu begründen, noch wirtschaftlich zu vertreten. Die bisherigen Erfahrungen zeigen, daß eine begrenzte und kontrollierte Abgabe radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen ausreichend ist, um die dadurch verursachte Strahlenbelastung der Bevölkerung vernachlässigbar klein gegenüber der natürlichen Belastung zu halten.

Die beim Normalbetrieb abgegebenen begrenzten Mengen radioaktiver Substanzen haben beim Kernkraftwerk ihren Ursprung in den geringen Mengen fester, flüssiger und gasförmiger radioaktiver Stoffe, die bei Routineoperationen, wie z. B. dem Wechsel von Ionenaustauschern oder der Kühlmittelreinigung anfallen. Die Ableitungen der Kernkraftwerke sind vom Gesetzgeber so begrenzt worden, daß an keinem Punkt ihrer Umgebung eine größere Gesamtkörperdosis als 30 mrem/Jahr empfangen werden kann.

Für ein 1300 MWe Kernkraftwerk, wie z. B. Biblis A, ergeben sich daraus zulässige Emissionen für Edelgase von ca. $8,95 \times 10^4$ Ci/Jahr, für ^{131}J von 0,695 Ci/Jahr und für Aerosole von 3,25 Ci⁴⁾. Abb. 5 zeigt, daß mit der heutigen Standardkerntechnik diese Grenzwerte nur zu einem geringen Bruchteil ausgeschöpft werden. Auch für die bestehende Versuchsanlage WAK gilt heute bereits das 30 mrem-Konzept. Unter Einbeziehung in den Abluftplan des Kernforschungszentrums Karlsruhe waren dort für 1975 folgende Abgaben zugelassen: $2,5 \times 10^5$ Ci Edelgase, 40 mCi ^{129}J , 4 Ci γ/β -Aerosole sowie 10 mCi α -Aerosole. Ein Vergleich dieser Abgaberraten mit dem Spaltproduktinventar der 1500 jato-Wiederaufarbeitungsanlage zeigt, daß hier wesentliche Anstrengungen zur Abscheidung bzw. Rückhaltung der gasförmigen bzw. flüchtigen Substanzen erfolgen müssen, damit durch vergleichbare Freisetzungsraten das 30 mrem Konzept eingehalten werden kann. Nach einer Empfehlung der Strahlenschutzkommission zur Abtrennung von Kr aus den Abgasen von Wiederaufarbeitungsanlagen⁵⁾ werden die jährlichen Kr-Abgaben aus ökologischen Gründen auf etwa 10^6 Ci/a zu begrenzen sein. Für ^{129}J ist damit zu rechnen, daß die

jährliche Abgabe auf wenige 100 mCi begrenzt werden muß. Die Lösung dieser technischen Probleme liegt in der Anwendung der Tieftemperaturabscheidung und der Entwicklung leistungsfähiger Jodfilter. Das bei der Auflösung der Brennelemente mit ca. 10^6 Ci/a anfallende T liegt im wesentlichen bereits als HTO vor. Elementares T wird im Abgasreinigungssystem durch katalytische Verbrennung in HTO überführt. Das HTO fällt schließlich, wie bereits oben bemerkt, zu einem wesentlichen Teil im Destillat des leicht aktiven Abfalls an. Für diesen Teil wird das Verpressen im Untergrund diskutiert. Das im Abgas vorhandene HTO wird soweit abgeschieden werden, daß die dadurch entstehende Ganzkörperdosis auf einige wenige mrem am ungünstigsten Ort außerhalb der Anlage beschränkt bleibt.

4. Störfälle

Im Hinblick auf die Gefährdung der Umgebung sind sogenannte Auslegungstörfälle zu diskutieren, die eine sehr kleine Eintrittswahrscheinlichkeit haben und gegen deren Auswirkungen die Anlage so ausgelegt ist, daß eine unzulässige Belastung der Umgebung ausgeschlossen ist⁶⁾. Aus dem Spektrum der Auslegungstörfälle seien als Beispiele die mit den schwerwiegendsten Auswirkungen angeführt:

- Zerknall des Verdampfers für hochaktiven Abfall.

Es ist bekannt⁷⁾, daß im Savannah-River-Laboratory 1953 eine exotherme Reaktion zwischen Uranyl-nitrat-hexahydrat, Salpetersäure und Tributylphosphat zum Zerknall eines Verdampfers geführt hat. Obwohl die für diese Reaktion erforderlichen Betriebsbedingungen in der Wiederaufarbeitungsanlage nicht vorkommen werden, wurde eine Abschätzung der Folgen eines solchen Störfalles im Verdampfer für hochaktiven Abfall durchgeführt. Dieser Verdampfer ist in Abb. 6 dargestellt. Im Verfahrensschema ist er vor dem ersten Extraktionszyklus in einer wegen des Strahlenschutzes durch ca. 2 m dicke Betonwände abgeschirmten Zelle untergebracht. Abschätzungen haben gezeigt, daß im ungünstigsten

Fall die mechanischen Auswirkungen im wesentlichen auf die Verdampferzelle beschränkt bleiben und sich außerhalb der Anlage am ungünstigsten Aufpunkt eine Dosis von einigen Hundert mrem ergäbe.

- Zirkaloybrand

Zirkaloypulver mit einer Korngröße unter 10μ , besonders mit geringem Wassergehalt, ist selbstentzündlich bei Luftzutritt. Unter bestimmten Bedingungen können auch Staubexplosionen auftreten. Zirkaloyspäne und dergleichen werden nach der Zerkleinerung der Hülsen abgefiltert bzw. zentrifugiert. Ein Zirkaloybrand wäre beim Austrocknen der dabei anfallenden Schlämme denkbar. Die dabei freigesetzte Aktivität könnte im ungünstigsten Fall zu einer Dosis von einigen Hundert mrem führen.

- Ausfall der Kühlung bei selbsterhitzenden Prozeßlösungen

Selbsterhitzende und daher zu kühlende Prozeßlösungen mit hoher Aktivität sind in der Eingangsstufe der Wiederaufarbeitungsanlage als Brennstoff- oder Spaltproduktlösungen vorhanden. Die Kühlung der Behälter ist redundant ausgelegt. Die hochaktive Abfalllösung besitzt eine Leistungsdichte von ca. 12 bis 16 W/l⁸⁾. Pro Jahr fallen ca. 1000 m³ mit einer thermischen Leistung von insgesamt 12 bis 16 MW an. Demgegenüber sind in der Reaktortechnik Kühlsysteme Stand der Technik, die bei einem Kühlmittelverluststörfall die Nachwärme von etwa 10 % entsprechend 370 MW für einen 1300 MWe-Druckwasserreaktor bei einer Leistungsdichte von etwa 10 kW/l beherrschen.

- Brand eines beladenen Lösungsmittels

Im Purex-Prozeß werden brennbares Kerosin und Tributylphosphat verwendet. Durch geeignete Brandschutzmaßnahmen können unkon-

trolliert austretende Lösungsmittel festgestellt, Zündquellen ausgeschaltet und Löschmaßnahmen ergriffen werden. Für die mengen- und aktivitätsmäßig ungünstigen Fälle eines dennoch auftretenden Brandes ergäben sich am ungünstigsten Aufpunkt außerhalb der Anlage Dosiswerte von weniger als 5 rem im wesentlichen durch Pu.

- Kritikalitätsstörfall

Kritikalitätsstörfälle sind in allen nicht geometrisch sicheren Behältern bei ausreichender Brennstoffkonzentration möglich. Als Maßnahmen gegen derartige Störfälle kommt eine Neutronenvergiftung durch Strukturteile aus Hafnium oder durch eine homogene Vergiftung durch gelöstes Gadolinium in Betracht. Abschätzungen zeigen, daß die bei derartigen Störfällen freigesetzten Energiemengen durch Dampfbildung zu Drücken führen können, die durchaus beherrschbar sind. Hier sei am Rande bemerkt, daß in der kernverfahrenstechnischen Industrie bereits mehrere Kritikalitätsstörfälle ohne besondere Konsequenzen aufgetreten sind ⁹⁾.

5. Zusammenfassung

Dieser - wenngleich auch teilweise sehr pauschale - Vergleich von Wiederaufarbeitungsanlagen und Kernkraftwerken zeigt aber doch, daß grundsätzliche Unterschiede im Gefährdungspotential nicht bestehen. Die Analyse möglicher Störfälle bei der Wiederaufarbeitungsanlage macht deutlich, daß sie von der Anlagenstruktur beherrscht werden und daß gegebenenfalls resultierende Dosiswerte außerhalb der Anlage von begrenztem Umfang sind.

Die noch zur Anwendungsreife zu bringenden Komponenten, wie z. B. die Abgasreinigung, sind im Prinzip soweit erprobt, daß an ihrem prinzipiellen Funktionieren nicht mehr gezweifelt werden kann.

Es ist nun erforderlich, die sicherheitstechnische Detailauslegung der Wiederaufarbeitungsanlage durchzuführen, wobei die aus den übrigen

Bereichen der Kerntechnik entwickelten Standards für das anzuwendende Sicherheitskonzept als Grundlage dienen müssen.

Dieses Konzept läßt sich mit dem Schlagwort "Verteidigung in der Tiefe" charakterisieren und besteht darin ¹⁰⁾, daß:

- durch konservative Auslegung und eingehende Qualitätssicherung das System für maximale Sicherheit im Normalbetrieb und bei der Störfallbeherrschung ausgelegt wird,
- zusätzliche Sicherheitseinrichtungen vorgesehen sind, die die Störfälle auch dann beherrschen, bzw. ihre Folgen auf ein tolerierbares Maß begrenzen, wenn wesentliche Komponenten des Systems ausfallen und daß
- auch unter der Annahme eines Ausfalls von Sicherheitseinrichtungen Vorsorge gegen äußerst unwahrscheinliche Störfallereignisse getroffen wird, von denen man annimmt, daß sie eigentlich während der Lebensdauer der Anlage nicht eintreten können.

Der Erfolg dieses Konzepts dokumentiert sich darin, daß während einer Betriebsdauer von etwa 450 Reaktorjahren der weltweit vorhandenen zivilen Leistungsreaktoren bisher keine mit einer Gefährdung der Öffentlichkeit verbundenen Störfälle aufgetreten sind.

Einen sicheren Betrieb haben auch schon kleinere unter zivilen Aspekten errichtete Wiederaufarbeitungsanlagen, wie z. B. die 1974 stillgelegte 70 jato große Eurochemic-Anlage oder die noch arbeitende 40 jato große Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) nachgewiesen.

Detailplanung und Bau der Anlage werden von einer detaillierten sicherheitstechnischen Bearbeitung und Begutachtung begleitet werden, die zu einer entsprechenden sicherheitstechnischen Auslegung der Anlagenteile führen wird. Dieser Prozeß kann nicht isoliert durchgeführt werden und ist auch nicht völlig vor Baubeginn abzuschließen.

Genausowenig ist es erforderlich, alle Entwicklungsarbeiten vor Baubeginn abgeschlossen haben zu müssen, wenn heute abgesehen werden kann, daß die Arbeitsweise grundsätzlich gesichert ist. Für eine Optimierung steht schließlich bis zum Betriebsbeginn noch rd. ein Jahrzehnt zur Verfügung.

Nicht eingegangen worden ist hier auf die derzeit so häufig diskutierte Frage der Sicherheit der Endlagerung der radioaktiven Spaltprodukte in unterirdischen Salzlagern, da dies nicht unmittelbar zur Thematik der Wiederaufarbeitungsanlage gehört. Aber auch für diesen Komplex gilt das für den Anlagenbetrieb gesagte: Die Techniken für die Lagerung verschiedener radioaktiver Abfälle sind heute bekannt, fundamentale Sicherheitsprobleme sind nicht abzusehen. Die bis zur Inbetriebnahme verbleibenden 10 Jahre können für eine betriebliche und wirtschaftliche Optimierung auch dieser Anlagen genutzt werden.

Literatur

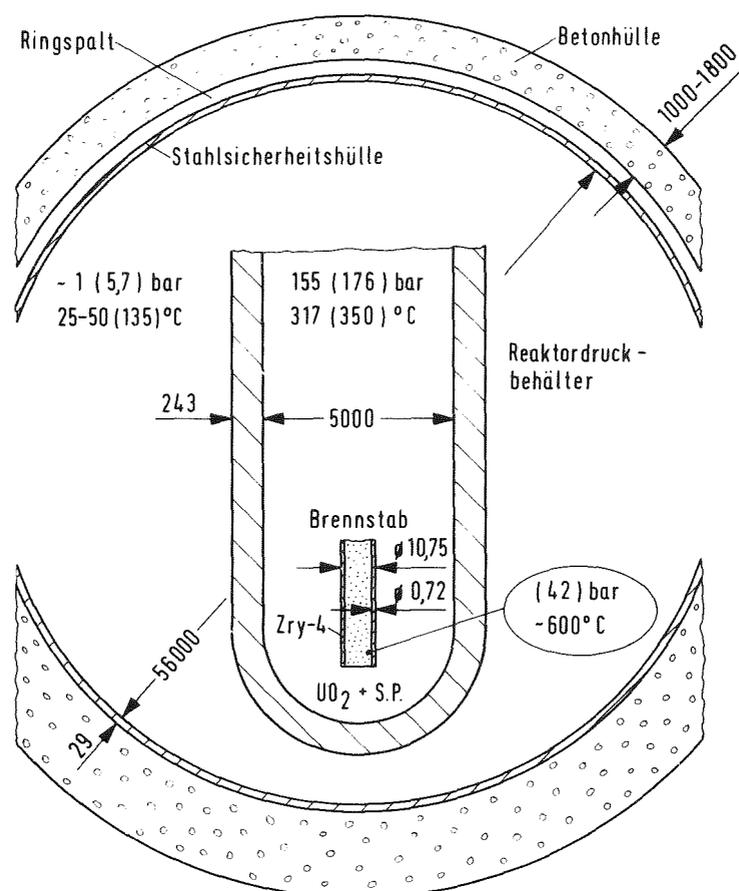
1. Mitteilung KWU, Erlangen
2. W. Issel und W. Knoch, Zur Auslegung einer großen Wiederaufarbeitungsanlage, ATW, 339, 7/8 (1976)
3. R. Gasteiger und G. Höhle, Behandlung radioaktiver Abfälle aus Wiederaufarbeitungsanlagen, ATW, 349, 7/8 (1975)
4. Mitteilung der Betriebsleitung des KKW Biblis und ETV-Schriftenreihe Musteranlagen der Energiewirtschaft Bd. 10, Kernkraftwerk Biblis
5. Empfehlung der Strahlenschutzkommission zur Abtrennung von Krypton aus den Abgasen von großen Wiederaufarbeitungsanlagen (1975)
6. Strahlenschutzverordnung, StrlSchV vom 13.10.1976, Bundesgesetzblatt Nr. 125 (1976)
7. T.J. Colren et al, DP-25, Interim Technical Report, TNX-Evaporator Incident, Mai 1953
8. H. Bokelund et al, Behandlung hochradioaktiver Abfälle, ATW, 352, 7 (1976)
9. N. L. Franklin, Irradiated Fuel Cycle, European Nuclear Conference, Paris, 21. - 25. April 1975
10. D. Smidt und R. Salvatory, Safety Technology for Accident Analysis and Consequence Mitigation - Pressure Vessel Types, ANS-International Conference, Washington 15 - 19 November 1976

Spaltproduktinventar in 10^6 Ci	1300 MWe DWR	1500 jato WA
Edelgase	650	15
Jod	920	$40 \cdot 10^{-6}$
Tritium	0,07	1,0
Sonstige	3 230	3484
Summe ca.	4 800 ⁺⁾	3 500 ⁺⁺⁾

+) Biblis A nach 2,5 Vollastjahren bei Abschaltung (ohne kurzlebige Aktivitäten).

++) Kühlzeit vor WA 1 Jahr

Abb. 1 Spaltproduktinventar eines 1300 MWel Druckwasserreaktors bei Abschaltung und einer Wiederaufarbeitungsanlage bezogen auf den Jahresdurchsatz von 1500 t Kernbrennstoff.



Betriebswerte (Auslegungswerte)

Abb. 2 Barrieren eines 1200 MWel Druckwasserreaktors gegen die Freisetzung von Aktivitäten.

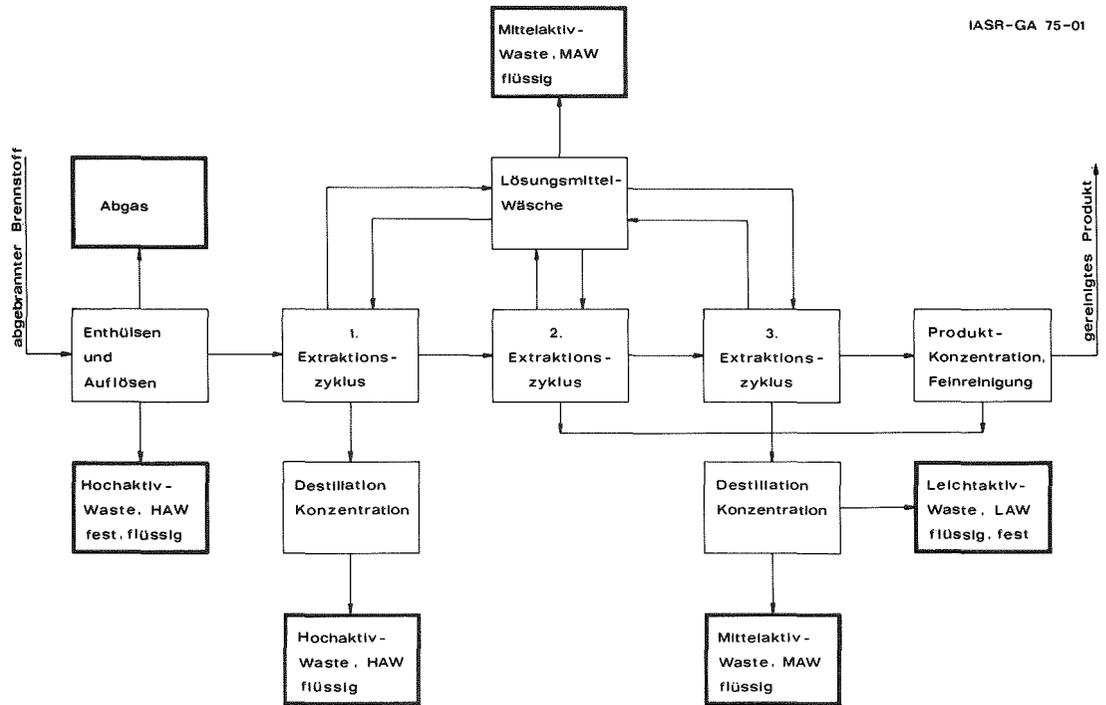


Abb. 3 Stark vereinfachtes Fließschema des Wiederaufarbeitungsprozesses.

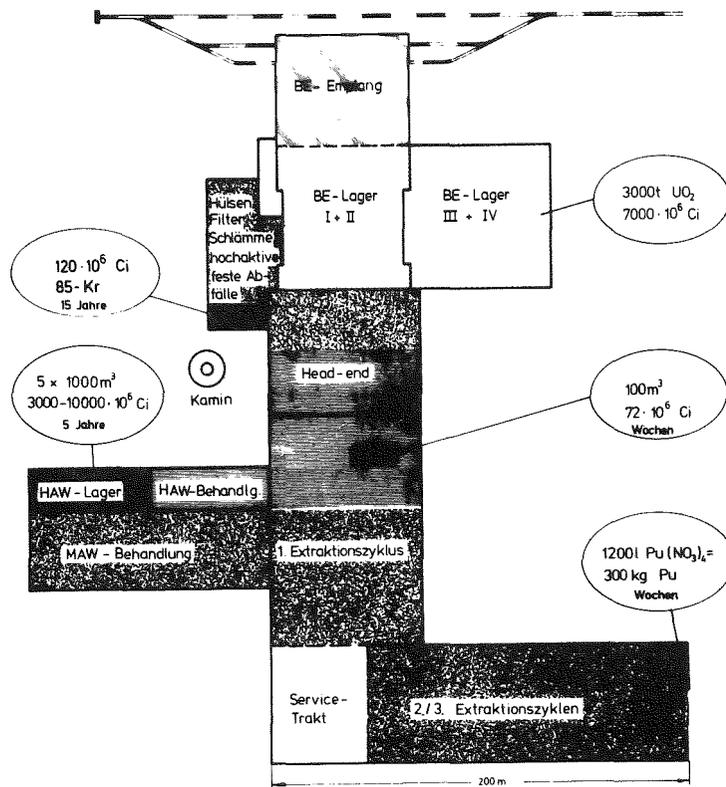


Abb. 4 Gebäudeanordnung einer großen Wiederaufarbeitungsanlage mit Aktivitätsansammlungen.

	Zugelassene Werte [Ci/a]	Tatsächliche Abgaben [Ci/a]
Edelgase	89 500	1 700
Jod	0,695	0,005
Aerosole	3,250	0,006

Abb. 5 Emissionen von Biblis A in 1975.

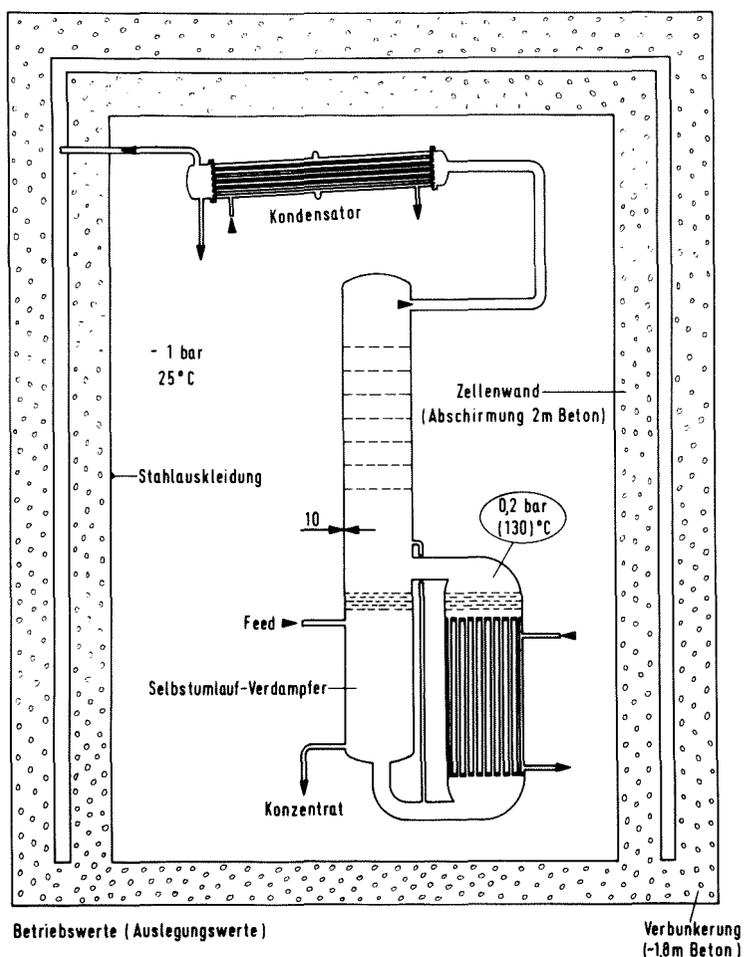


Abb. 6 Abschirmung eines Verdampfers für hochaktiven Abfall einer großen Wiederaufarbeitungsanlage.

JAHRESKOLLOQUIUM 1976
des
PROJEKTS NUKLEARE SICHERHEIT

Status of USNRC Research on Fuel Behavior Under Accident Conditions

William V. Johnston, USNRC

The program of the Fuel Behavior Research is directed at providing a detailed understanding of the response of nuclear fuel assemblies to off-normal or accident conditions. This understanding is expressed in physical and analytical correlations which are incorporated into computer codes. The results of these experiments and the resulting codes are available to the licensing authorities for use in evaluating utility submissions.

The Fuel Behavior Research Program has its strongest focus on the LOCA related areas of fuel behavior. The principal objectives and programs in Fuel Behavior Research are shown in Table 1. The program includes in addition, studies of transient overpower (RIA) and milder forms of power-cooling mismatch (PCM) as well as fission product release and molten fuel behavior.

Much of the LOCA related fuel research was started following the AEC hearings on Emergency Core Cooling Systems for Light Water Reactors which resulted in the ECCS Acceptance Criteria of December 1973. Three of the criteria are of particular importance in the fuel area because they relate to our understanding of the driving force for cladding temperature rise and the cladding response to temperature transients:

1. Peak Cladding Temperature - The calculated maximum fuel element cladding temperature shall not exceed 2200°F.
2. Maximum Cladding Oxidation - The calculated total oxidation of the cladding shall nowhere exceed 0.17 times the total cladding thickness before oxidation.
3. Coolable Geometry - Calculated changes in core geometry shall be such that the core remains amenable to cooling.

The criteria reflect conservative positions with respect to Zircaloy properties because the scatter or non-statistical nature of much of the data available at the time required use of conservative upper bounds to the existing data. In particular, the need for more information on the oxidation, embrittlement and deformation of Zircaloy was identified. The heat source terms of potential importance are fuel stored energy, fission product decay heat and cladding oxidation. In each of these areas the acceptance criteria and Appendix K rules are being shown to be conservative by a considerable margin on the basis of the new higher quality data. These results include:

- The decay heat is two σ below the ANS standard as reported by LASL, ORNL and OSU.
- Rate of Zr oxidation with steam is less than Baker-Just correlation as reported by ONRL.
- Rate of oxygen diffusion in β -ZR is less than Mallet data as reported by ORNL.

- The swelling of cladding when tested by ORNL and ANL with simulated fuel rod under more representative conditions is less than previous data of Zr-tube test. Less swelling means less flow blockage.
- Recovery of ductility of irradiated clad lag significantly behind the decrease in strength that accompany annealing thus causes less swelling as reported by BCL.
- In PBF PCM tests, no rods failed during nuclear operation even through the maximum time in film boiling of 11 minutes. No more severe failure mode for irradiated fuel than unirradiated one. No strong indication of transient gas release from irradiated fuel.
- The fuel codes FRAP-S2 and T2 are verified at INEL. Results are shown in Figures . The verification of fuel codes is well organized. It can complete the verification of all versions of fuel codes developed in the previous year.
- The preliminary result of molten core-concrete interation tests a Sandia shows that the overall erosion rates for both limestone concrete and basaltic concrete are less than 1 cm/min which reduces the risk of containment break and accident consequence considerably.

OBJECTIVES AND PROGRAMS OF FUEL BEHAVIOR

SPECIFIC OBJECTIVE	PROGRAMS
Quantification of the conservatism of peak clad temperature and 17% oxidation limits	Zircaloy-steam oxidation Zirc-O ₂ mechanical properties Decay heat evaluation
Evaluation of fuel rod stored heat	Gap conductance study Cladding creep and collapse Fuel code development Integrated tests - PBF & Halden
Prediction of clad deformation during LOCA	Multirod burst tests Zirc-O ₂ mechanical properties Fission gas release
Evaluation of the potential for transport of fission products into containment and environment	Fission product release Core meltdown review
Verification of codes for fuel initial conditions and response in accidents	Fuel code development Fuel code verification Material property correlation

NON LOCA EVENTS OF PARTICULAR INTEREST FOR FUEL BEHAVIOR

RIA

LOSS OF FLOW

TURBINE TRIP

FUEL HANDLING ACCIDENT

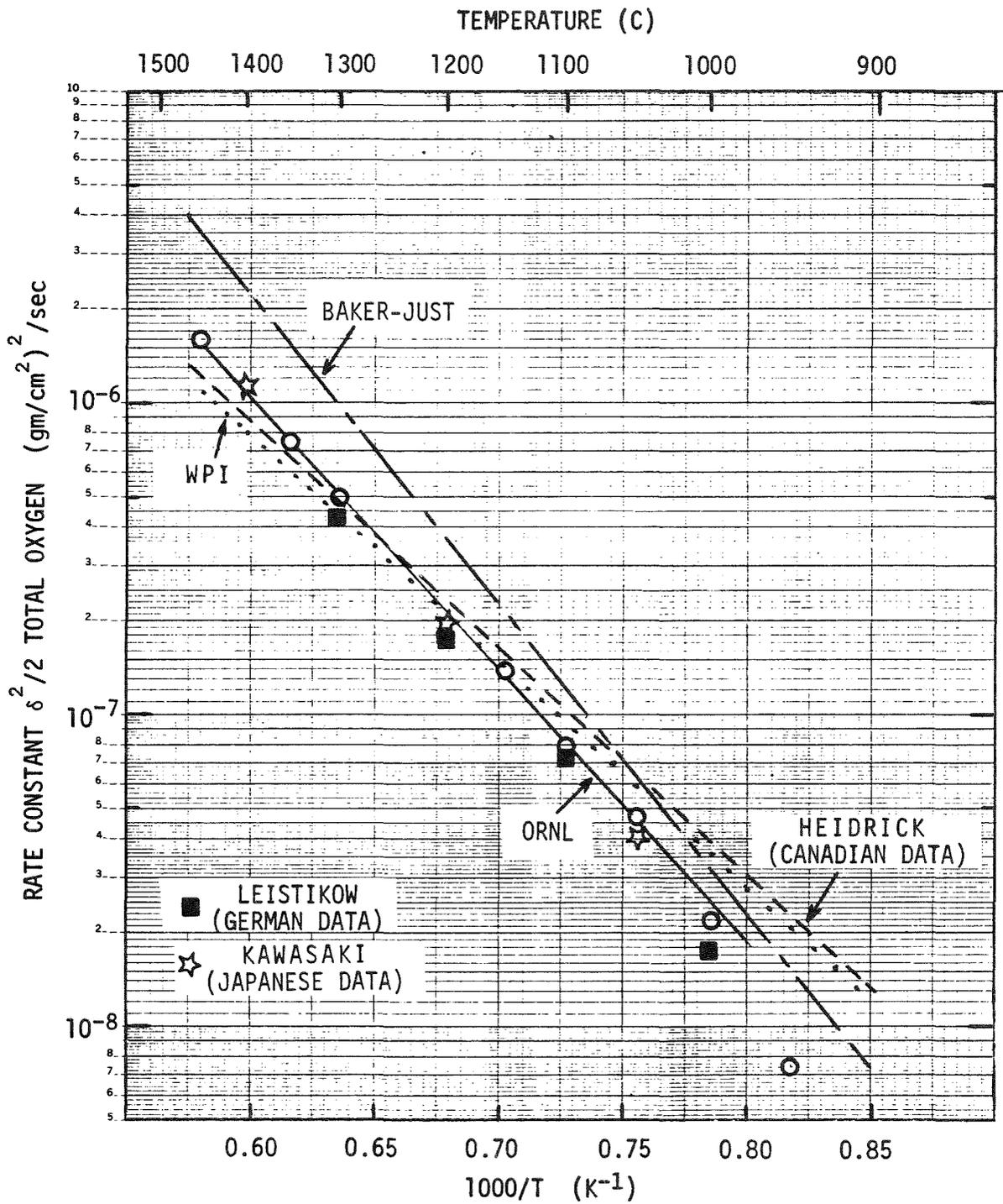
SEISMIC EVENT

FUEL CLAD FAILURE COMBINED WITH STEAM
GENERATOR LEAK

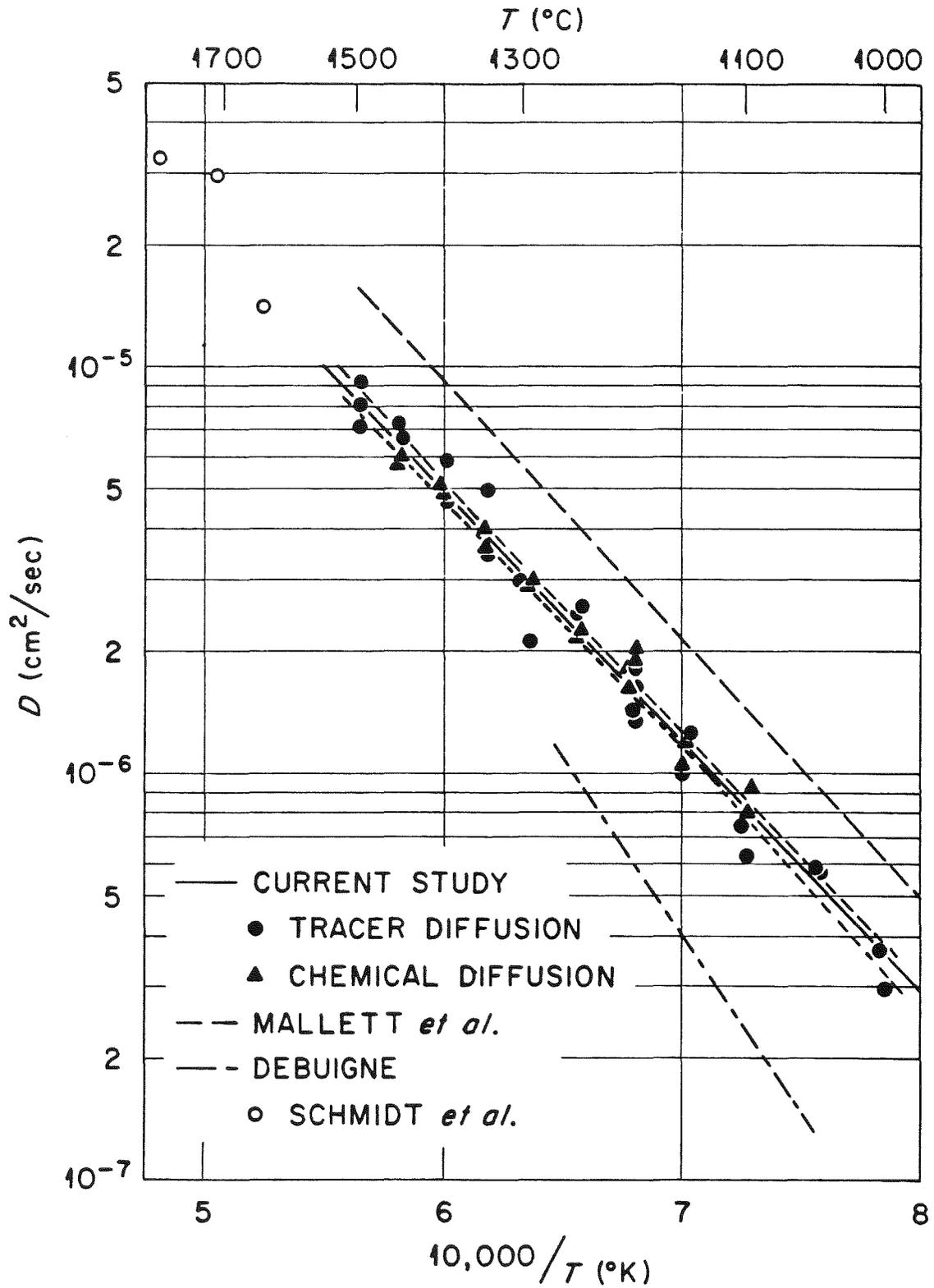
INLET FLOW BLOCKAGE

CLAD FAILURE DUE TO PCI DURING OPERATING TRANSIENTS

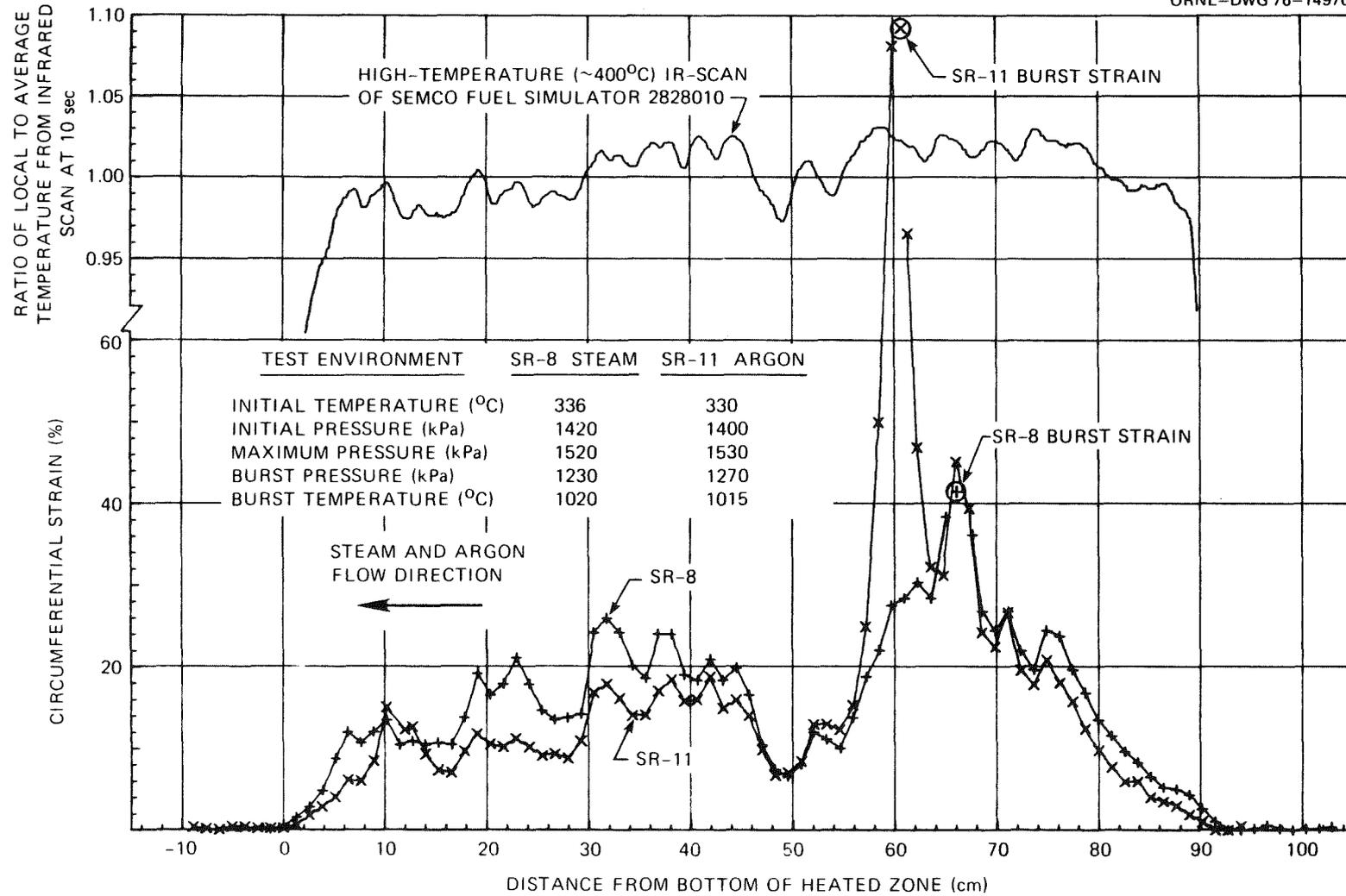
FUEL MELTDOWN



ARRHENIUS PLOT TOTAL OXYGEN RATE CONSTANT
FOR STEAM-ZIRCALOY 4 REACTION



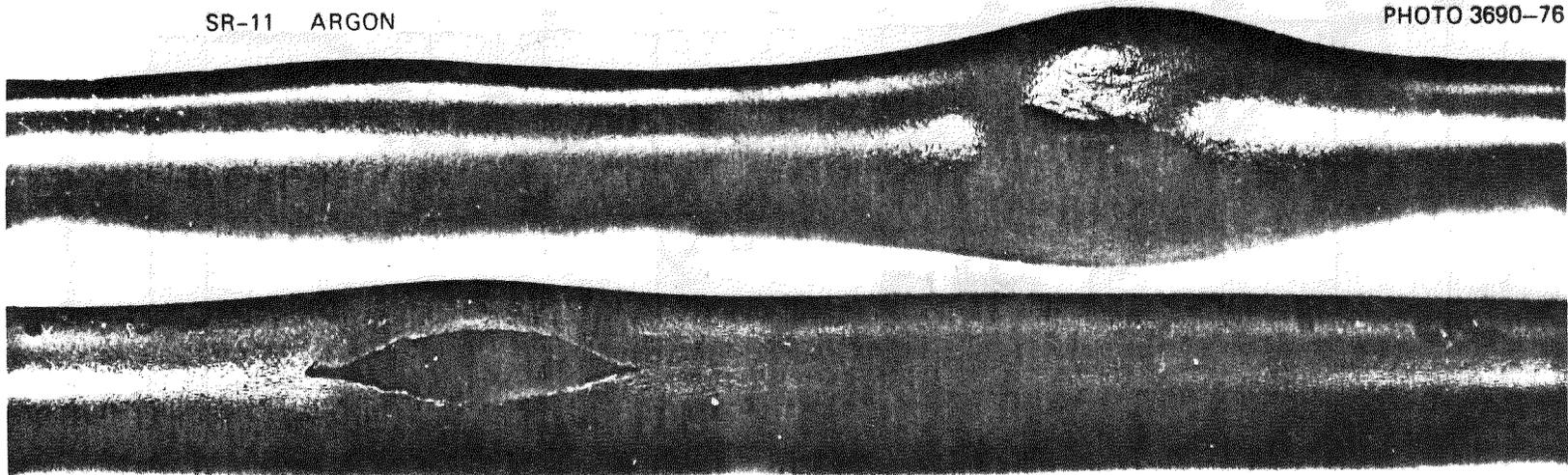
DIFFUSIVITY OF OXYGEN IN BETA ZIRCALOY-4



COMPARISON OF DEFORMATION FOR SIMULATORS TESTED IN STEAM AND ARGON ENVIRONMENTS USING THE SAME HEATER

SR-11 ARGON

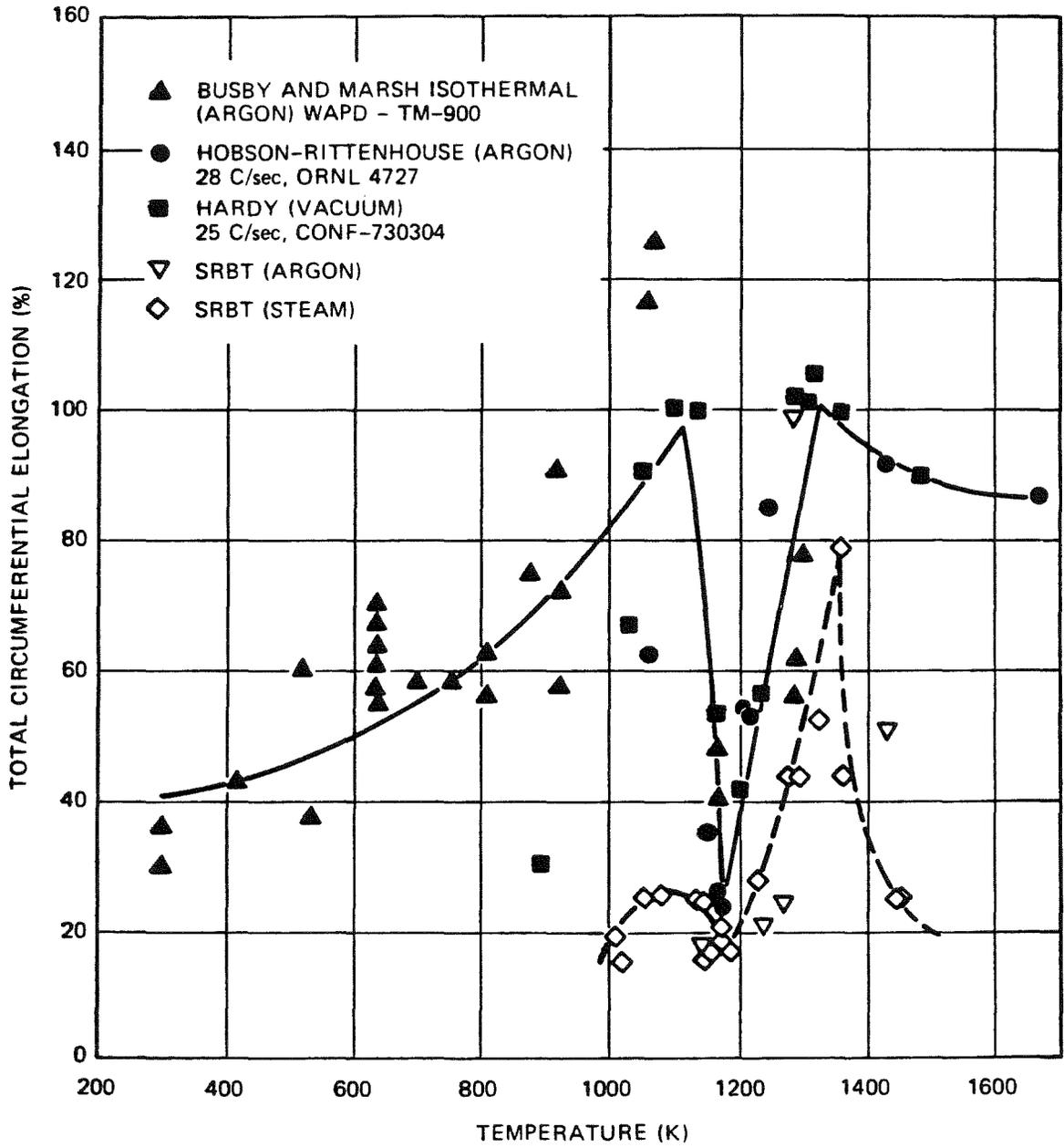
PHOTO 3690-76



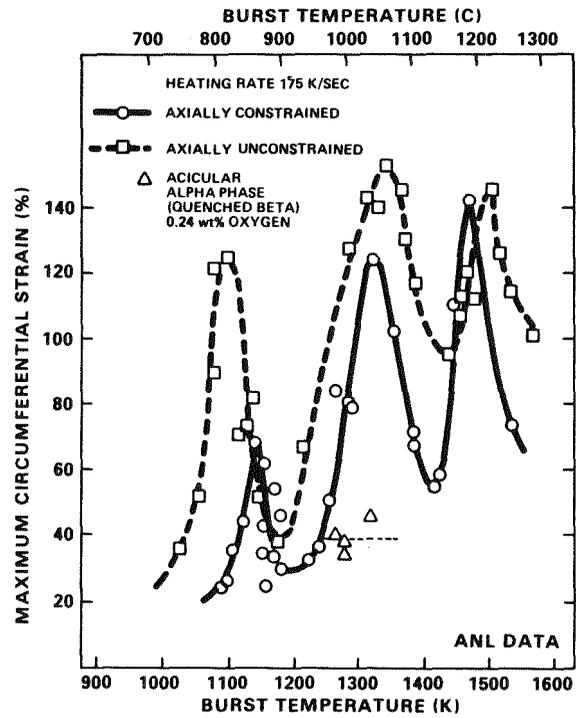
SR-8 STEAM

<u>ENVIRONMENT</u>	<u>SR-8 STEAM</u>	<u>SR-11 ARGON</u>
INITIAL TEMPERATURE (°C)	336	330
INITIAL PRESSURE (kPa)	1420	1400
MAXIMUM PRESSURE (kPa)	1520	1530
BURST PRESSURE (kPa)	1230	1270
BURST TEMPERATURE (°C)	1020	1015
AVERAGE BURST STRAIN (%)	43	98

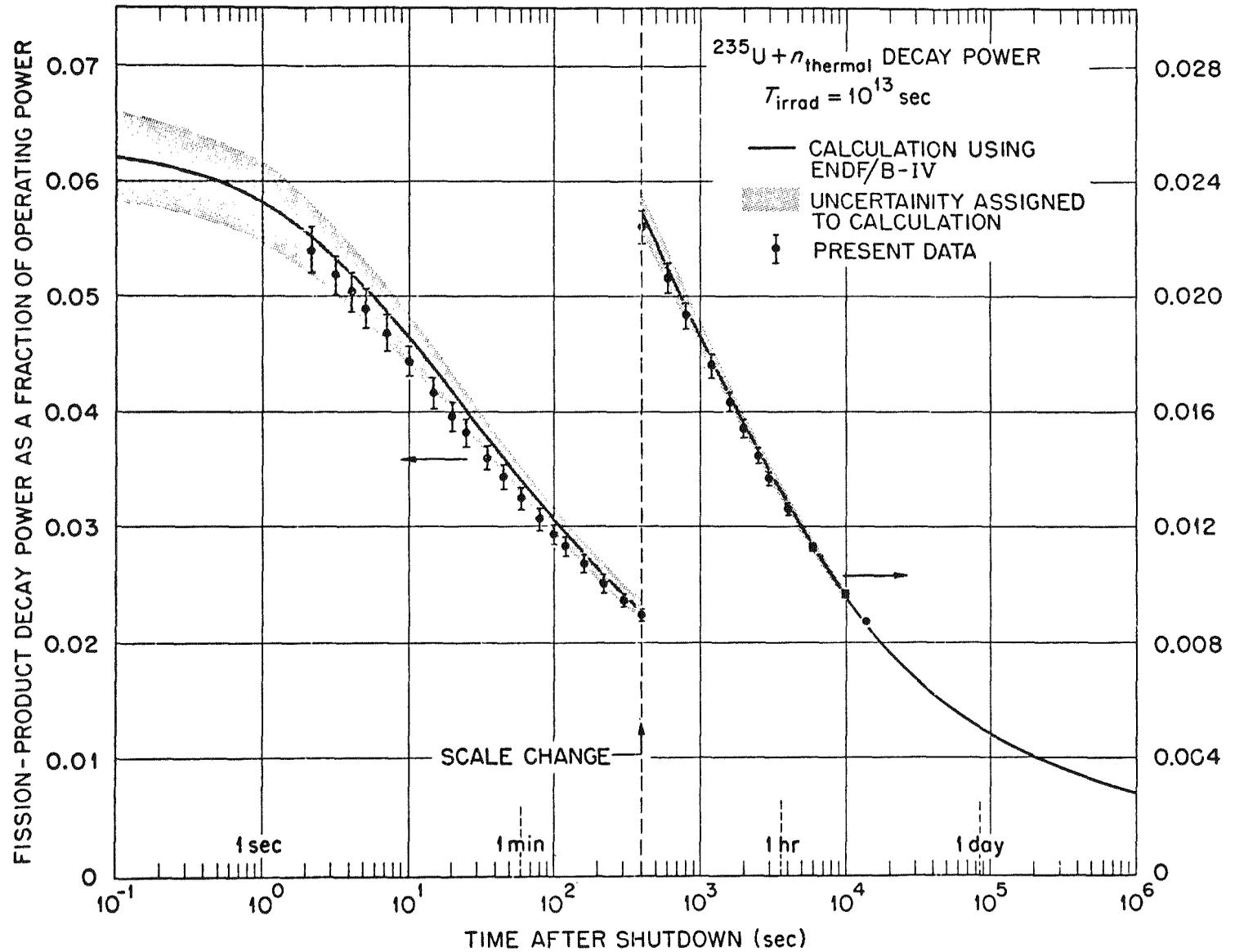
FAILURES IN TUBES TESTED WITH SAME HEATER AT SAME CONDITIONS



COMPARISON OF SRBT DATA WITH PUBLISHED DATA



**RUPTURE STRAINS DURING TRANSIENT HEATING
BURST TESTS OF ZIRCALOY-4 TUBES**



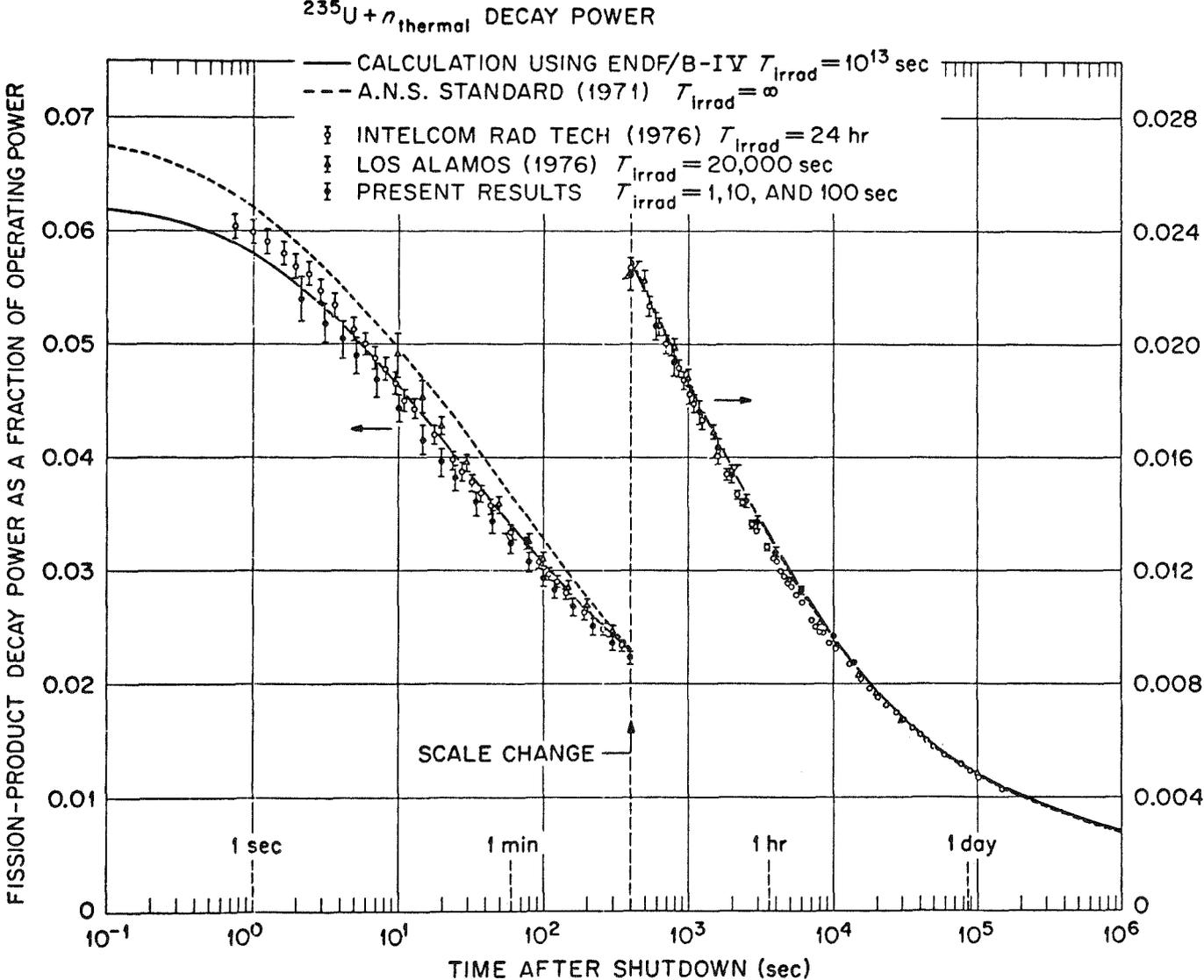


FIGURE 17
ROD 1 GAP CONDUCTANCE AND TEMPERATURE
PARAMETER UNCERTAINTIES

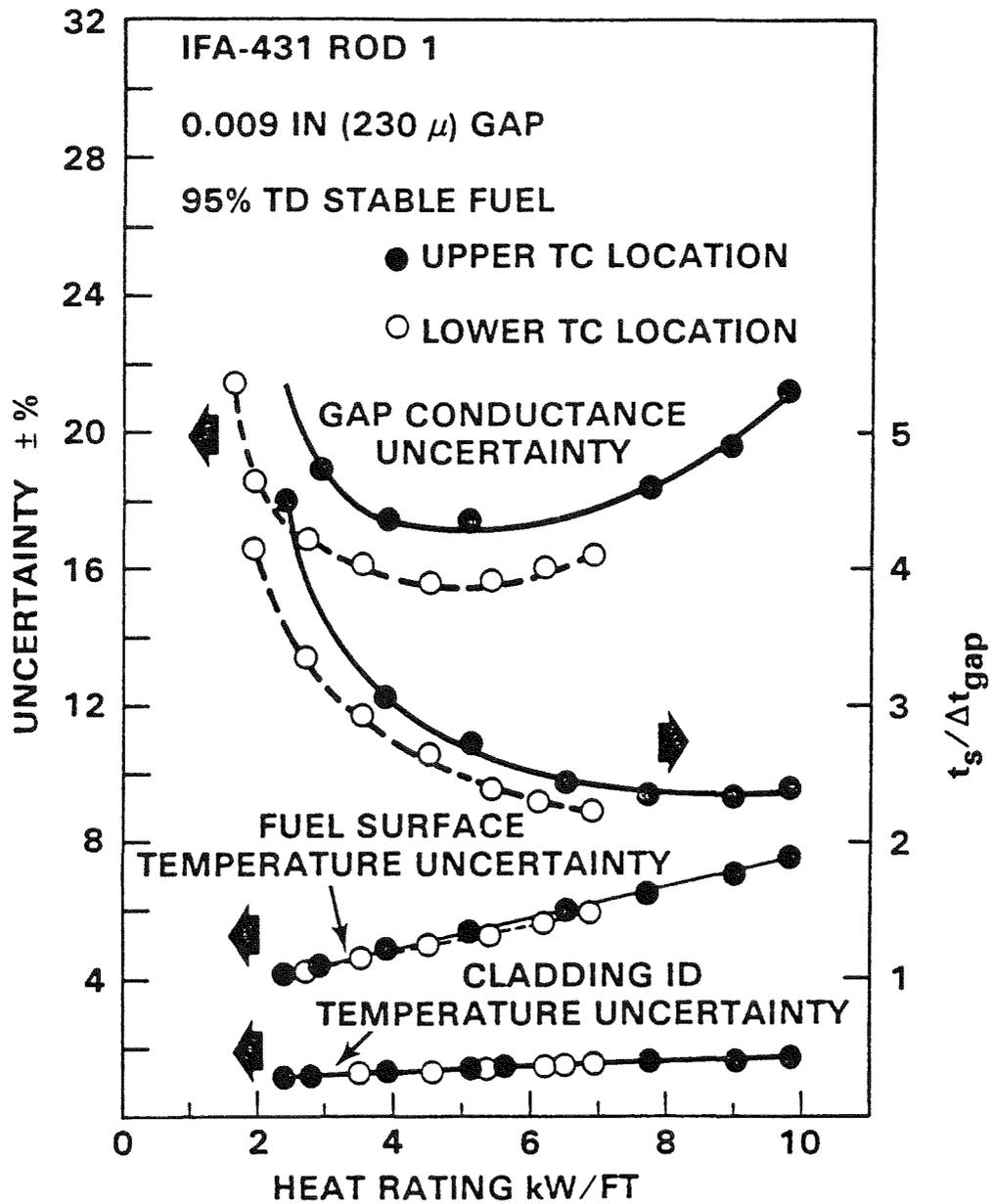


FIGURE 19
GAP CONDUCTANCE AND UNCERTAINTY AS A
FUNCTION OF GAP TEMPERATURE GRADIENT AT
10 kW/FT

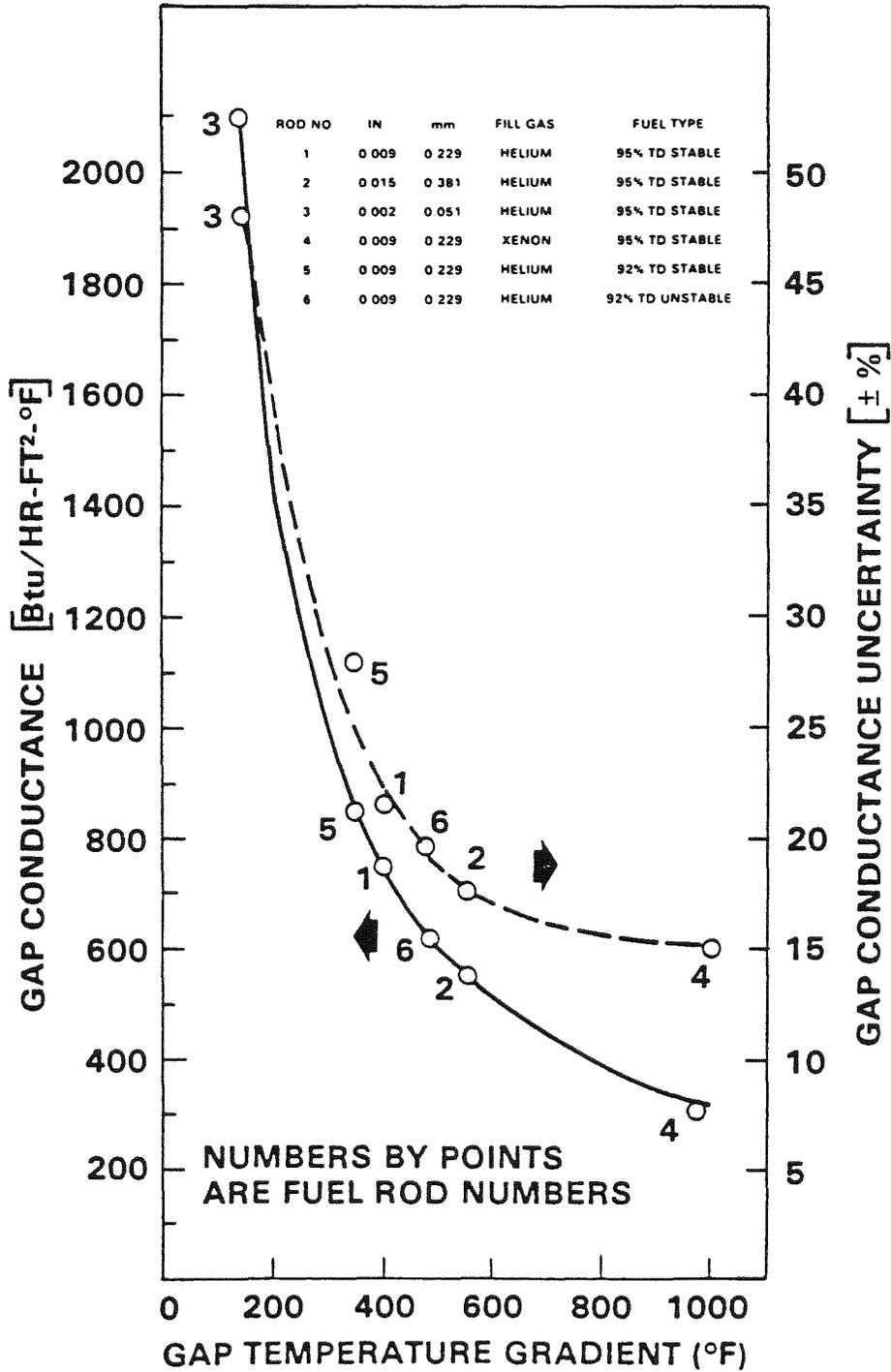
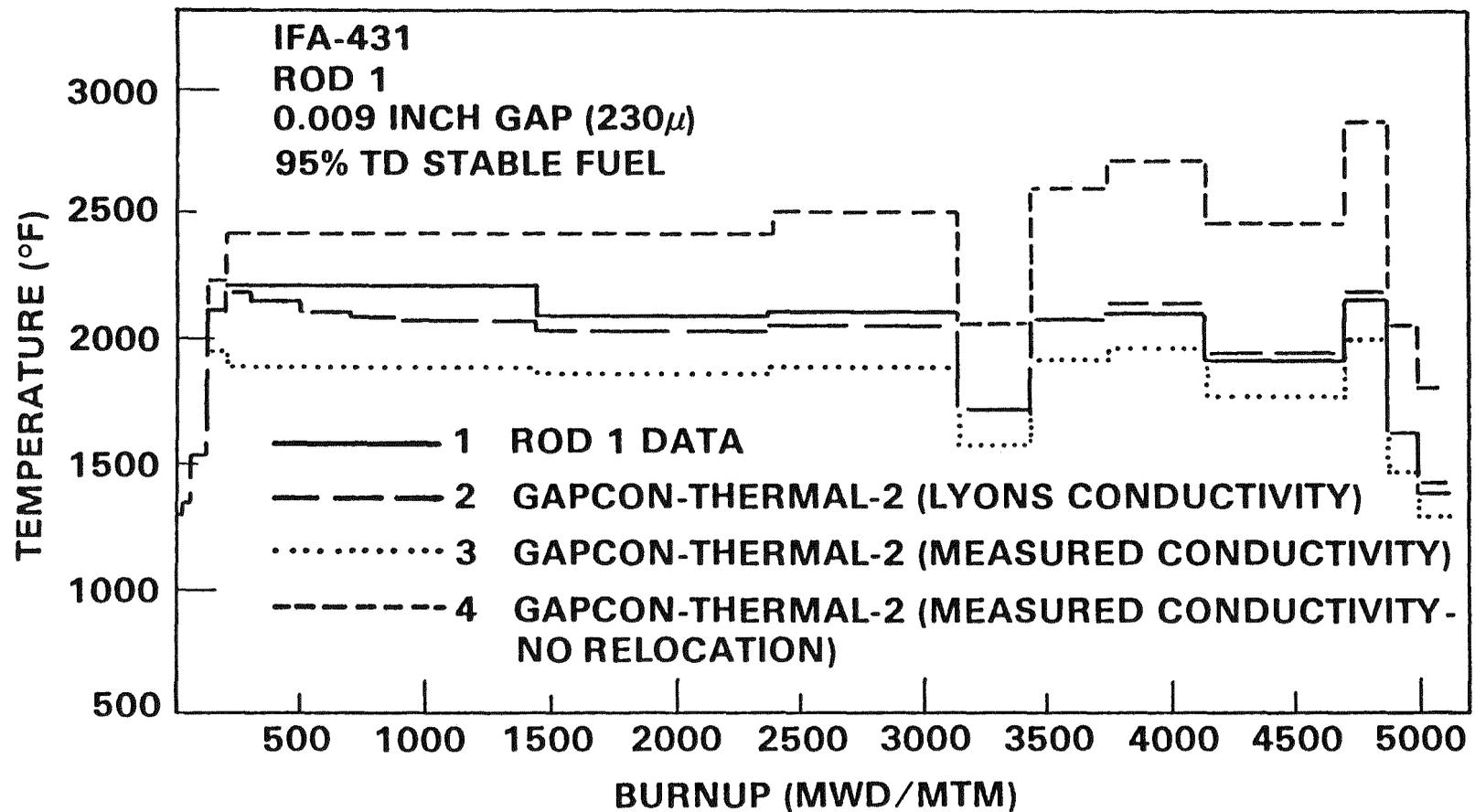
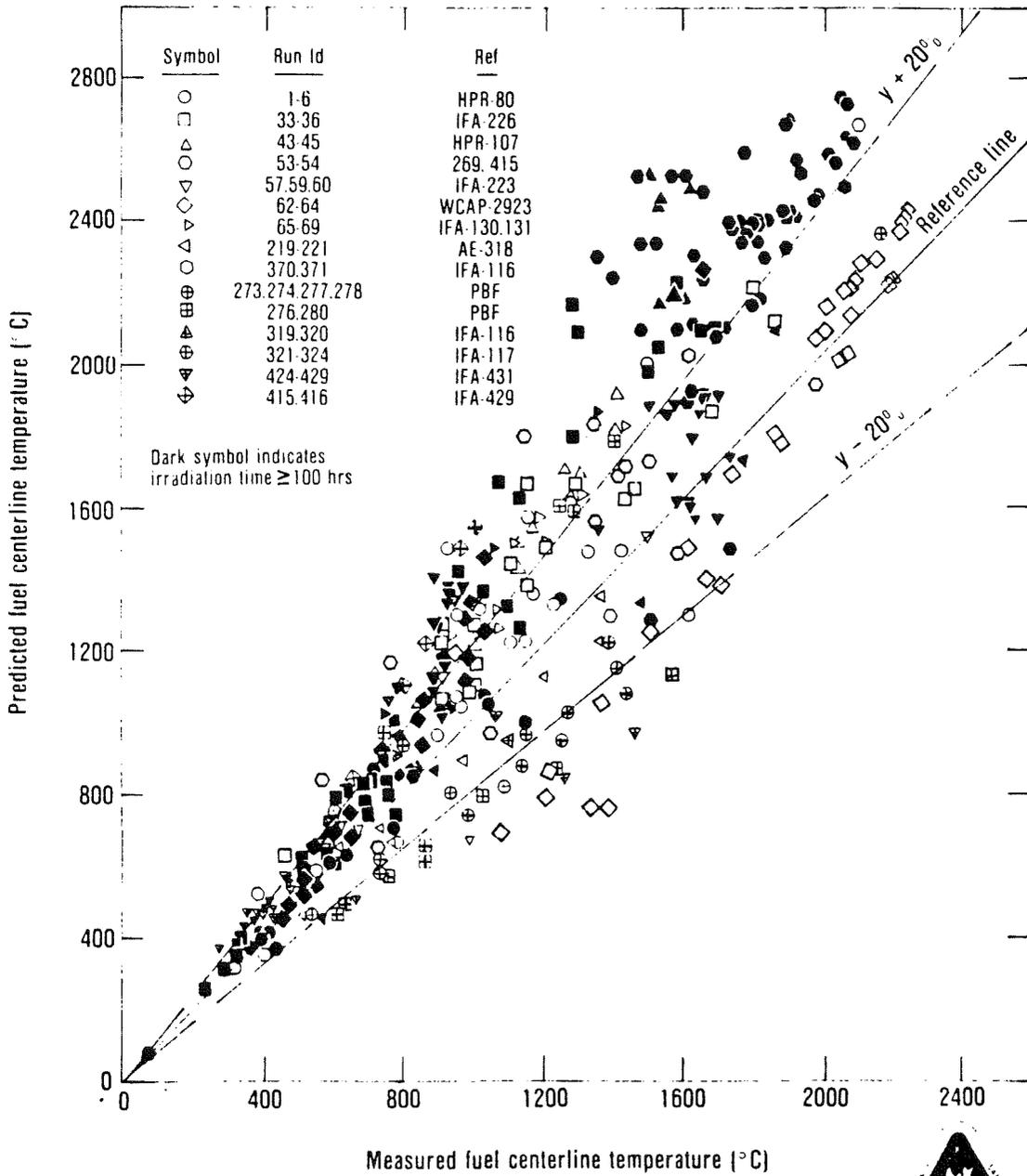


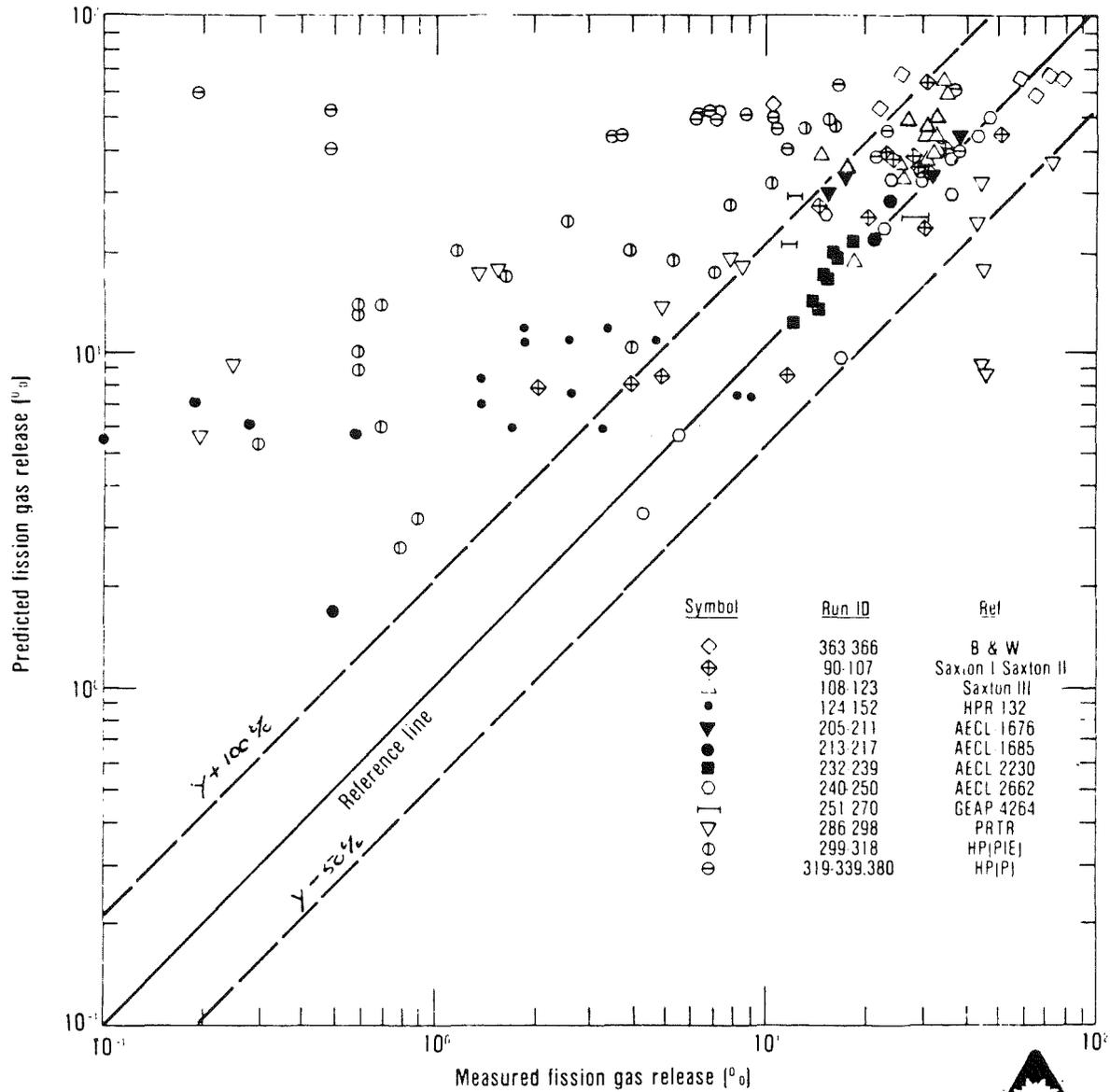
FIGURE 11
A COMPARISON OF CODE PREDICTIONS WITH ROD 1
DATA



FRAP-S2 PREDICTED VS MEASURED FUEL CENTERLINE TEMPERATURE

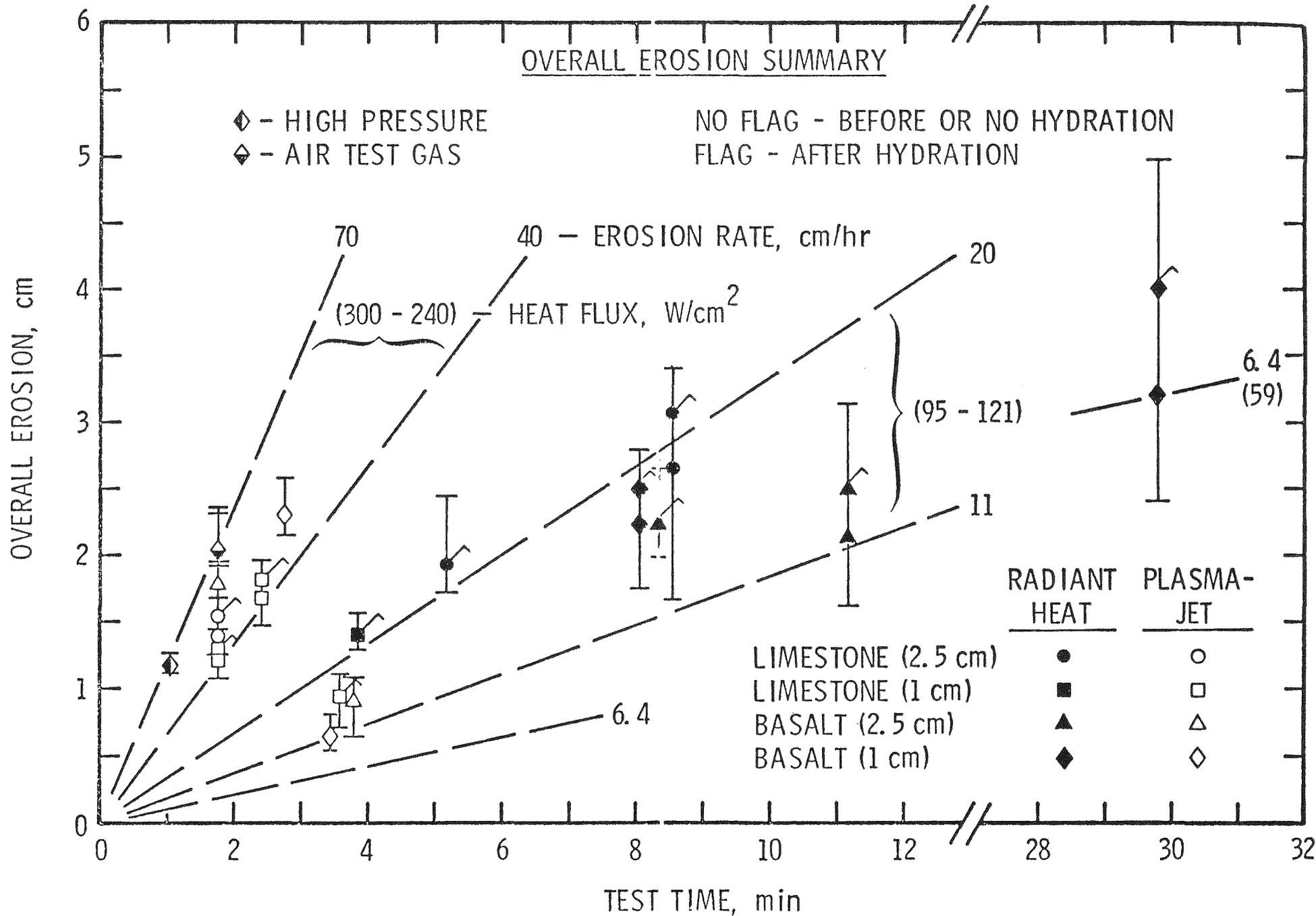


FRAP-S2 MEASURED VS PREDICTED FISSION GAS RELEASE

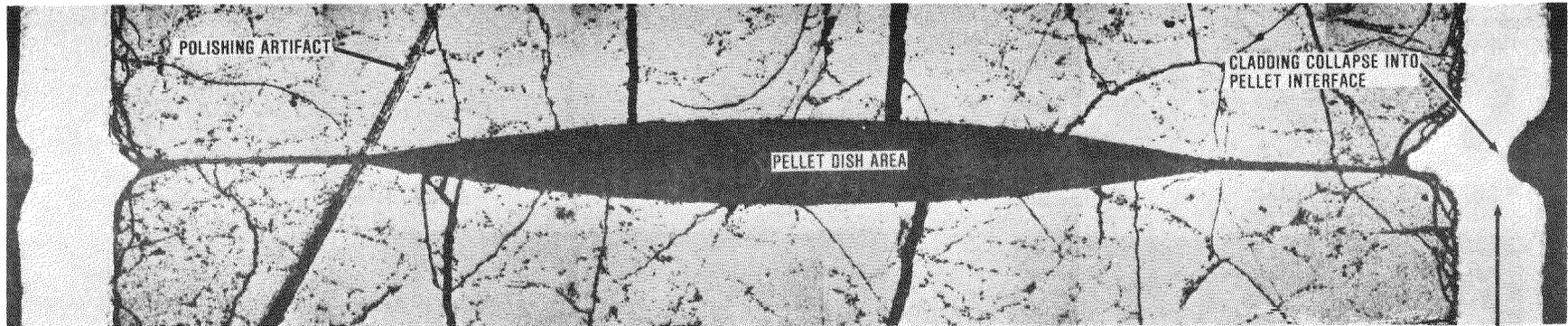


Idaho National
Engineering Laboratory

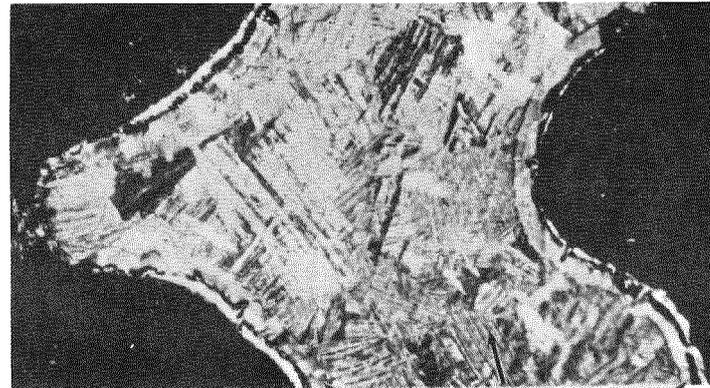
S-11308



LONGITUDINAL SECTION OF PCM-2A
FUEL ROD CENTERED 71cm ABOVE
BOTTOM OF FUEL STACK



0.1mm



0.1mm

PRIOR BETA
Zr

OXYGEN STABILIZED ALPHA
Zr



FIGURE 9

MICROGRAPHS OF CLADDING-SECTION TAKEN AT 71.1 cm FROM BOTTOM ON FUEL ROD FROM PCM 8-IRS TEST

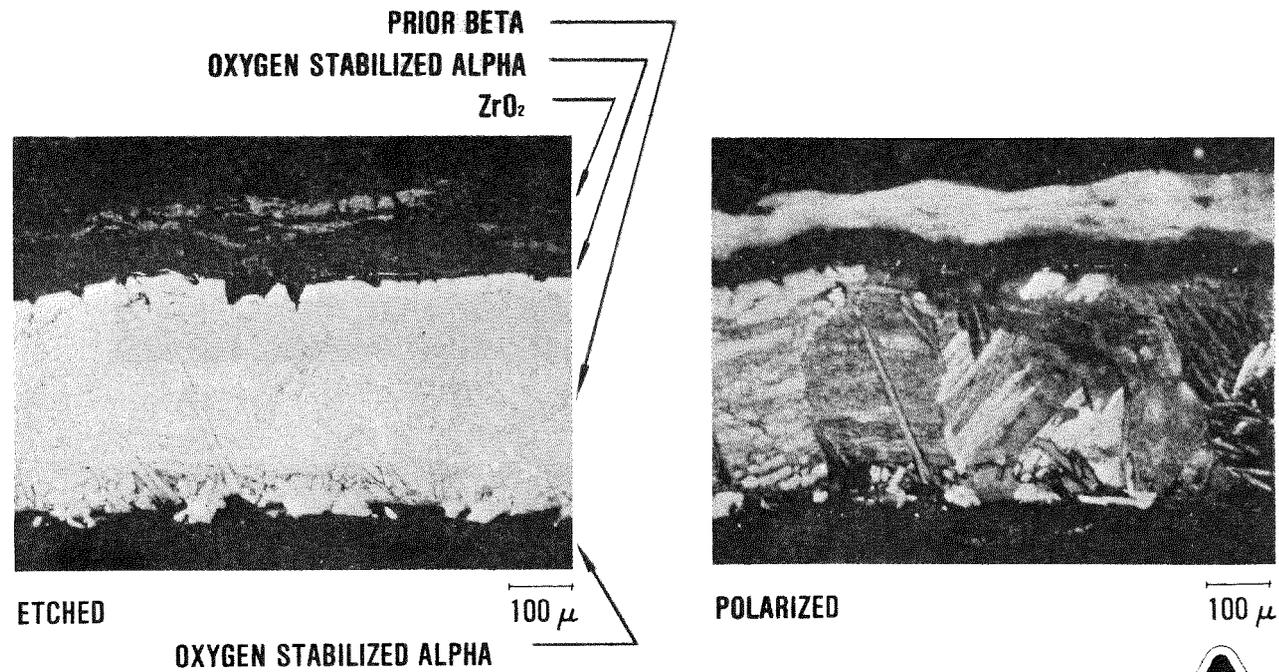


FIGURE 10



Idaho National
Engineering Laboratory

S-10785

TFB FY-1976 - 1979 PROGRAM

TEST CATEGORY	NUMBER TESTS	SPECIFIC TESTS	REMARKS
PCM	10	CHF SCOPING 8-1 RF PCM-1 PCM-2A PCM-2 PCM-3 PCM-4 PCM-5 PCM-6 PCM-7	COMPLETED COMPLETED POSTPONED COMPLETED COMPLETED COMPLETED 4 ROD } 9 ROD
IRRADIATION EFFECTS	6	TEST-1 TEST-2 IE-1 IE-2 IE-3 IE-5	COMPLETED COMPLETED COMPLETED 4 ROD SAXTON FUEL }
GAP CONDUCTANCE	6 PLUS ~30 PIGGYBACK TESTS	1-3 GAP 2-1 GAP 2-2 GAP 2-3 GAP 2-4 GAP 2-5	COMPLETED } 4 ROD BWR

TFB FY-1976 - 1979 PROGRAM (CONT'D)

TEST CATEGORY	NUMBER TESTS	SPECIFIC TESTS	REMARKS
LOCA	10	LOC-1 LOC-2 LOC-3 LOC-5 LOC-6 LOC-7 LOC-8 LOC-11 LOC-12 LOC-14	16 ROD HEATUP 16 ROD HEATUP } 4 ROD BLOWDOWN } 16 ROD BLOWDOWN
RIA	7 (UNDERGOING REEVALUATION)	RIA 1-1 RIA 1-2 RIA 1-3 RIA 1-4 RIA 1-7 RIA 1-8 RIA 1-14	} 4 ROD BWR } IRRADIATED
FLOW BLOCKAGE	5	BLK-1A-1C BLK-2 BLK-3	} 80-95-100% BLOCKAGE } 25 ROD BWR } 100% BLOCKAGE & BACKFLOW

Test Configuration Schematic

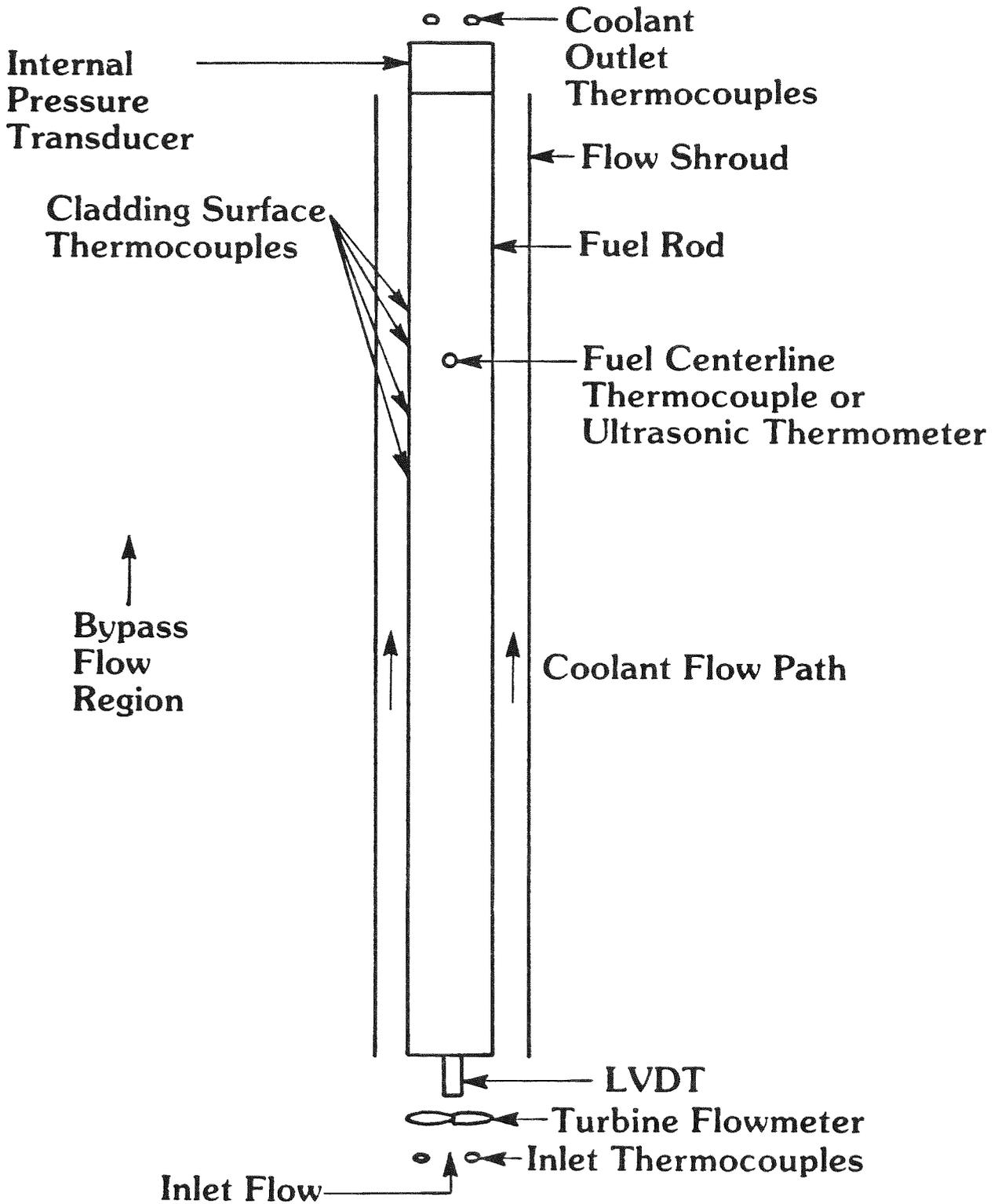
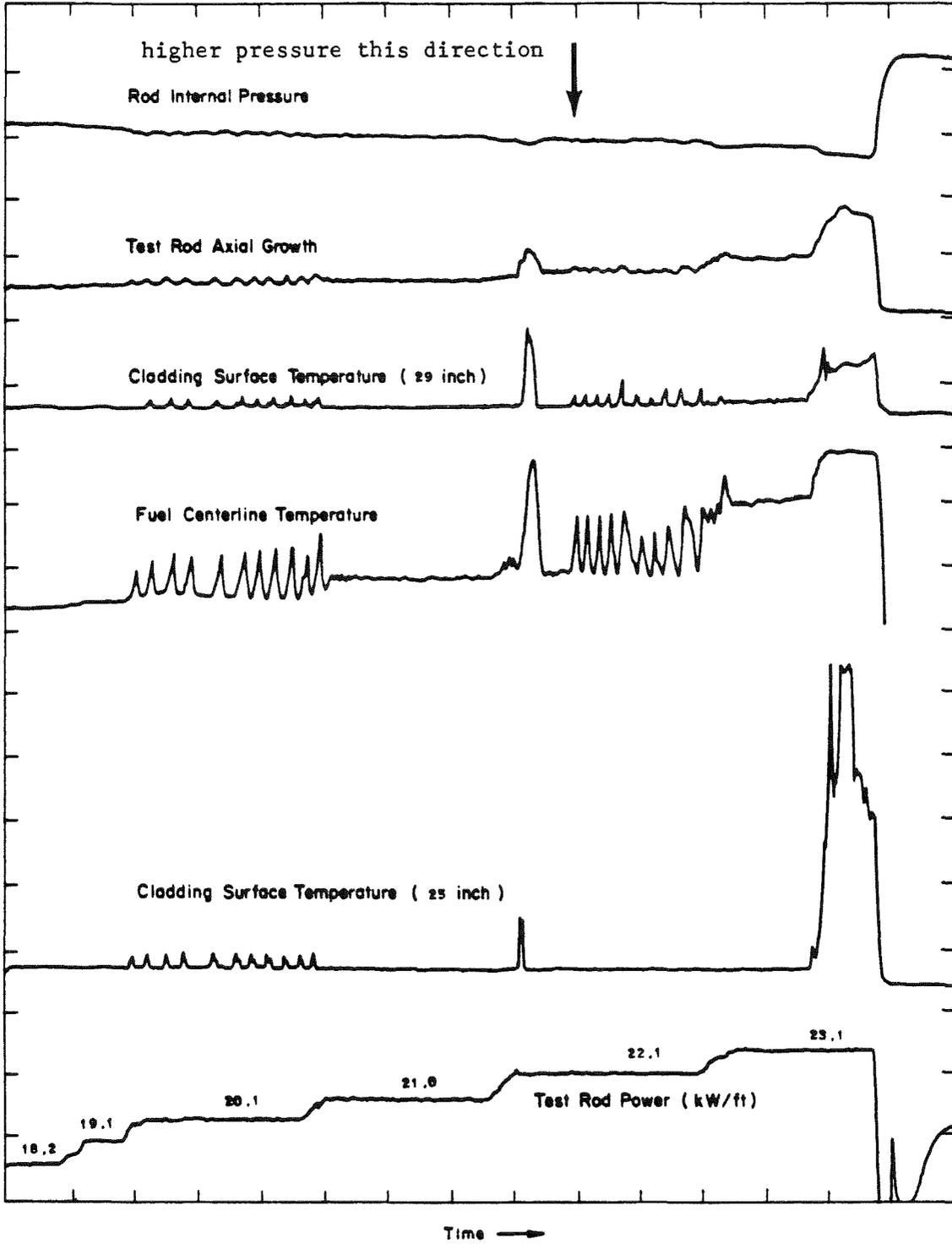


FIGURE 41



Fuel rod power, cladding surface temperature, fuel temperature, axial length, and internal pressure versus time during Test 8-IRS (CHF Power Cycle No. 3).

FIGURE 42

KEY PCM TEST MEASUREMENTS

PRE-TEST MEASUREMENTS

- FUEL ROD DIMENSIONS
- CLADDING AND FUEL CHARACTERIZATION
- MATERIAL PHYSICAL AND CHEMICAL PROPERTIES
- FUEL ROD RADIOGRAPHY AND PHOTOGRAPHY

TEST DYNAMIC MEASUREMENTS

- CLADDING TEMPERATURE
- FUEL CENTERLINE TEMPERATURE
- COOLANT TEMPERATURE, PRESSURE, FLOW
- FUEL ROD INTERNAL GAS PRESSURE
- FUEL ROD POWER
- FUEL ROD AXIAL EXPANSION
- CLADDING STRAIN

POST-TEST MEASUREMENTS

- FUEL ROD DIMENSION
- METALLOGRAPHIC EXAMINATION
- FUEL ROD RADIOGRAPHY AND PHOTOGRAPHY

JAHRESKOLLOQUIUM 1976

des

PROJEKTS NUKLEARE SICHERHEIT

Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Niederdruckphase
eines Kühlmittelverluststörfalles

U. Müller

Institut für Reaktorbauelemente

1. Vorbemerkungen

Der Kühlmittelverluststörfall gilt im Rahmen von Genehmigungsverfahren für Leichtwasserreaktoren gegenwärtig als der größte anzunehmende Störfall (GAU). Zur konservativen Abschätzung der Schäden geht man zur Zeit in der Regel davon aus, daß dieses hypothetische Ereignis mit einem doppelseitigen Bruch (Guillotinebruch) im kalten Strang des Primärsystems startet. Dieser Sachverhalt führt dann zu einer raschen Austreibung des Kühlmittels aus dem Reaktorkern im Druckgefäß. Als Folge davon schaltet sich der Reaktor ab.

Im abgeschalteten Core wird jedoch auch danach noch Nachzerfallswärme frei, Diese Nachwärme würde schwere Schäden am Reaktorkern verursachen, wenn nicht als Gegenmaßnahme eine ausreichend schnelle Flutung des Kerns durch die Einspeisung von Kühlwasser aus Primärkreislauf -unabhängigen Notkühl-systemen sichergestellt würde.

In vielen Ländern wird nun von Seiten der Genehmigungsbehörden für den Bau von Leichtwasserreaktoren der Nachweis gefordert, daß eine ausreichende Kühlung im Falle eines Kühlmittelverluststörfalles gewährleistet ist. Als Standardkriterien gelten dafür nach wie vor die im Jahre 1974 von der Atomic Energy Commission (heute NRC) formulierten Leitlinien /1/. Sie lauten in einer auf hiesige Verhältnisse von der Reaktorsicherheitskommission (RSK) übertragenen Formulierung:

Die Kernnotkühlung muß so ausgelegt sein, daß

1. die berechnete maximale Brennstabhüllentemperatur 1200°C nicht überschreitet,
2. die berechnete Oxidationstiefe der Hülle an keiner Stelle den Wert von 17 % der tatsächlichen Hüllrohrwandstärke überschreitet,
3. bei der Zirkon-Wasser-Reaktion nicht mehr als 1 % des gesamten in den Hüllrohren enthaltenen Zirkoniums reagiert,
4. infolge von Hüllrohrschäden nicht mehr als 10 % des Jodinventars und 0,1 % der festen Spaltprodukte freigesetzt werden,
5. keine Änderungen in der Geometrie des Reaktorkerns auftreten, die eine ausreichende Kühlung des Kerns verhindern.

An Hand solcher Kriterien haben Gutachter zu beurteilen, ob die Konservativität der Gesamtanalyse garantiert ist. Die Beurteilung muß für jede Kernkraftwerksanlage gesondert vorgenommen werden.

Unzureichende Detailkenntnisse im Ablauf hypothetischer Störfälle hat man bisher durch konservative Annahmen bei der Sicherheitsanalyse abgedeckt. Es ist ein wesentliches Anliegen von Forschungs- und Entwicklungsarbeiten in vielen Ländern, u.a. den USA und der BRD durch ein besseres Verständnis der Einzelvorgänge beim Störfallablauf die bisherigen konservativen Annahmen durch physikalische Modellvorstellungen abzulösen. Man erwartet, daß zum besseren Verständnis besonders eine modellmäßige Beschreibung der Vorgänge durch Rechenprogramme beitragen kann.

Das Primärsystem eines Leichtwasserreaktors stellt ein hochkompliziertes hydraulisches System dar. Es ist daher einleuchtend, daß der Ablauf eines Kühlmittelverluststörfalles von einer großen Zahl von Einflußgrößen bestimmt wird. Eine Analyse und Bewertung dieser Einflußgrößen kann, wie die Erfahrung gelehrt hat, durch globale Versuche nicht erzielt werden. Zur Erarbeitung eines Rechenverfahrens geht man daher allgemein nach folgender Strategie vor, die hier im wesentlichen nach einer Formulierung von F. Mayinger /2/ angegeben wird:

1. Experimentelle und theoretische Untersuchungen der Einzelphänomene unter einfachen und eindeutigen Bedingungen.

2. Experimentelle Untersuchungen von Kombinationen dieser Einzelphänomene und theoretische Beschreibung der Wechselwirkungen.
3. Erstellung eines hochentwickelten Rechenprogramms (Code), das unter Anwendung der Bilanzgleichungen der Kontinuumsmechanik die Einzelphänomene und ihre Wechselwirkungen modellmäßig beschreibt; das Modell sollte den gesamten Ablauf des LOCA und die ganze Zeitspanne der Kernnotkühlung erfassen; es soll fernerhin auf Teststrecken und Kernkraftwerkssysteme anwendbar sein.
4. Durchführung integraler Versuche mit dem primären Ziel, Daten für eine Überprüfung des Rechenprogramms bereitzustellen und gegebenenfalls eine Verbesserung der mechanistischen Modelle im Programm vorzunehmen.

Bei diesem stufenweisen, analytischen und synthetischem Vorgehen dient die Erstellung des Rechenprogramms im wesentlichen dazu, die bestehenden Lücken in der Ähnlichkeitsmechanik beim Übergang von den geometrisch relativ kleinen Versuchsbedingungen auf reaktortypische Verhältnisse zu schließen, d.h. es gilt das sogenannte "Scale up"-Problem zu lösen.

2. Problemabgrenzung

Der Problemkreis eines Kühlmittelverluststörfalls läßt sich zeitlich mit Blick auf den Druckverlauf im Primärsystem in natürlicher Weise in zwei Bereiche aufteilen, nämlich eine Hoch- und eine Niederdruckphase. Die erste Phase ist dabei durch das Austreiben des Kühlmittels aus dem Druckgefäß nach Bruch der Leitung, der zweite Abschnitt durch das Einspeisen von Kühlmittel in das Druckgefäß aus dem Notkühlsystem charakterisiert. Die Hauptgefahrenmomente durch überhöhte Temperaturen liegen bei einem derartigen Störfall in der Niederdruckphase. Ein Aufheizen der Brennstäbe auf zu hohe Hülltemperaturen kann unter Stabinnendruck zum Aufblähen oder Bersten der Brennstabhüllen führen. Dabei würde es zu Kühlkanalverengungen und unter Umständen zu einer Beeinträchtigung der Kühlbarkeit von gewissen Brennstabbereichen kommen. Insbesondere wäre eine Kühlkanalblockade unerwünscht. In Bild 1 ist dieses Szenario in Form eines Flußdiagramms festgehalten.

Die weiteren Ausführungen werden sich auf zwei zentrale Fragen beschränken, nämlich den Brennstabversagensmechanismus während der Aufheizphase und auf

das Problem der Kühlbarkeit deformierter Brennstäbe. Diesbezügliche Überlegungen beschränken sich jedoch auf die Verhältnisse in Druckwasserreaktoren. Diese Fragen werden im Institut für Reaktorbauelemente untersucht. Die Bearbeitung dieses Problemabschnitts erfolgt ganz im Sinne der zuvor dargelegten Strategie. Das Schwergewicht liegt dabei auf der Erzeugung experimenteller Informationen zur Verifikation und Weiterentwicklung des Programmsystems SSYST /3/. Die Programmentwicklung selbst erfolgt zunächst unabhängig und ohne den Blick auf spezifische Experimente zu richten an anderer Stelle.

3. Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zirkaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung (PNS 4238) /4/.

Die bisher zu diesem Fragenkreis in verschiedenen Forschungsinstitutionen durchgeführten Experimente hatten primär thermohydraulische oder metallkundliche Fragestellungen zum Gegenstand. Diese Versuche wurden nicht immer unter definierten und realistischen Bedingungen durchgeführt. Insbesondere gibt es bisher keine gezielten, experimentellen Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen dem Aufblähvorgang der Zirkaloy-Hülle und der einsetzenden Kühlwirkung eines Dampf-Wasser-Gemisches. Bei den bisher bekannt gewordenen Dehnungsexperimenten wurde die Verformungsgeschichte nicht experimentell gemessen und ausgewertet. Diese Versuche können daher den Ansprüchen einer Codeverifizierung für das Brennstabverhalten nicht in vollem Umfang genügen.

3.1 Zielsetzung und Merkmale der Untersuchungen

Primäres Ziel der genannten Fragestellung ist die Bereitstellung experimenteller Daten zur Überprüfung einzelner Programmteile (Moduln) im Programmsystem SSYST. Dieses Ziel wird in mehreren Stufen mit steigendem Schwierigkeitsgrad angesteuert.

Zunächst werden in Vorversuchen Einzeleffekte zum Verhalten des elementaren aber wichtigsten Bausteins des gesamten Versuchsprogramms, nämlich des Brennstabsimulators abgeklärt. Im einzelnen beziehen sich diese Vorversuche auf:

- Wärmetransport im Brennstabsimulator
- Gasströmung im Spalt zwischen Pellet und Zirkaloy-Hülle vom Plenum zur

aufblähenden Stelle am Hüllrohr,

- Mechanismus der Hüllrohrverformung.

Die Hauptversuche sind auf das integrale Verhalten der Brennstabsimulatoren ausgerichtet, nämlich im einzelnen auf folgende Gesichtspunkte:

- Einfluß der einsetzenden Kühlung auf den Aufblähprozess am Einzelstab,
- Thermische und mechanische Wechselwirkung benachbarter Stäbe beim Aufblähen im Stabbündel,
- Versagensfortpflanzung,
- Ausmaß und Verteilung von Kühlkanalversperrungen.

Bei der Planung wurde besonderer Wert darauf gelegt, möglichst reaktor-spezifische Versuchsbedingungen zu realisieren.

Diese Aussage bezieht sich vor allem auf die geometrischen Abmessungen und die thermischen und mechanischen Eigenschaften des Brennstabsimulators. Dies geschah auch im Hinblick darauf, die Zahl der zu variierenden Parameter während der Versuchsdurchführung möglichst klein zu halten. Weiterhin wurde besonderer Wert auf eine zeitliche Erfassung des Aufblähvorgangs gelegt. Dementsprechend wurde bei den versuchsvorbereitenden Arbeiten auf die Entwicklung eines qualifizierten Brennstabsimulators, einer empfindlichen Visualisierungstechnik für Deformationsvorgänge und auf die Bereitstellung einer schnellen Datenerfassungsanlage große Sorgfalt verwendet.

3.2 Die Versuchsanordnung

Die Hauptversuche werden in einem Kreislauf durchgeführt, der die Kühlbedingungen im Reaktor simuliert. In der Teststrecke selbst kommen elektrisch beheizte Brennstabsimulatoren zum Einsatz, die weitgehend reaktorähnlich sind in bezug auf Abmessung, axiales Leistungsprofil, Wärmekapazität und Leitvermögen. Damit kann ein repräsentativer zeitlicher Temperaturverlauf während der Niederdruckphase eines Kühlmittelverluststörfalls erreicht werden. Der Aufbau des Kreislaufs ist schematisch in Bild 2 zu sehen, die zugehörigen Daten sind in Tab.1 aufgeführt.

- Stabileistung	24 - 80 W/cm
- Axiales Leistungsprofil	stufen- bzw. cosinusförmig
- Hüllrohrtemperatur bei Flutbeginn	600 - 800 °C.
- Stabinnendruck	70 - 130 bar
- Systemdruck	1 - 4,5 bar
- Flutgeschwindigkeit (kalt)	1 - 30 cm/sec.
- Flutwassertemperatur	25 - 65 °C.

Tab. 1

Für die Hauptversuche sind zur Zeit vier getrennte Versuchsserien vorgesehen. Sie reichen von Einzelstabversuchen in Dampfatmosfera bis zu 5 x 5 Stabbündeln unter Flutbedingungen. Das Programm ist in Bild 3 skizziert. Durch unterschiedliche Positionierung von instrumentierten Stäben wird eine Klärung der zuvor aufgeworfenen Fragen erwartet.

Die transienten Versuchsbedingungen erfordern die Erfassung und Speicherung großer Meßdatenmengen. Dieser Prozess wird mit Hilfe eines Prozeßrechners erfolgen. Die Leistungsfähigkeit des Datenerfassungs- und Übertragungssystems ist im wesentlichen durch die Rasterfrequenz von 10 KHz und 128 Datenübertragungskanälen, d.h. 128 potentiellen Meßstellen, die alle 0.1 sec. angesprochen werden, charakterisiert. Eine Auswertung der gespeicherten Daten erfolgt davon getrennt digital auf einer IBM-Anlage. Mit Videoanlagen können darüberhinaus die Meßdaten während des Versuchsablaufs direkt verfolgt werden.

Prüfstand sowie Datenerfassungs- und Übertragungsanlage wurden erfolgreich einer Funktionsprüfung unterzogen und stehen derzeit zur Aufnahme der Hauptversuche bereit.

3.3 Besondere Entwicklungsarbeiten

3.3.1 Der Brennstabsimulator

Da die Qualität der Versuchsergebnisse ganz wesentlich von den Eigenschaften des Brennstabsimulators bestimmt wird, wurden an seine Entwicklung besonders hohe Anforderungen gestellt. Dies bezieht sich in besonderem Maße auf das thermische Verhalten bei stark transienten Vorgängen und das thermische und interne gasdynamische Verhalten während des Aufblähens der Hülle. Technische Einzelheiten über seinen Aufbau und seine axiale Lei-

stungsverteilung können dem Bild 4 entnommen werden. Ohne zu speziell zu werden, seien die markantesten Eigenschaften des Brennstabsimulators zusammengefaßt:

Die reaktortypische Hülle aus Zirkaloy wird über eine Kette ringförmiger Al_2O_3 Pellets indirekt durch Wärmeleitung von einem im Innern der Ringpellets liegenden elektrischen Heizleiter erwärmt (für nähere Einzelheiten vergl. /3/). Das bei Beginn des nuklearen Betriebes auftretende cosinusförmige Leistungsprofil wird beim Simulator durch eine Anzahl axial verteilter Leistungsstufen approximiert.

Es ist einleuchtend, daß für die Herstellung eines im Aufbau so komplizierten Gebildes eine subtile Fertigungstechnik erforderlich ist.

Um sicher zu gehen, daß die praktische Ausführung des Simulators den Anforderungen genügt, wurde an Prototypen das thermische Verhalten mit Experimenten unter stationären und transienten Bedingungen geprüft. Parallel dazu erfolgten mit dem Auslegungsprogramm WAELP und einem Modul aus dem Programmsystem SSYST Temperaturberechnungen. Die exzellente Übereinstimmung von Experimenten und Theorie berechtigt an dieser Stelle zu der Aussage, daß der konzipierte Brennstabsimulator alle an ihn gestellten Erwartungen erfüllt (vergl. dazu /3/).

3.3.2 Meßtechnik

Für die zeitliche Auflösung des Aufblähvorgangs in bedingt transparenter, hochtemperierter Umgebung wurde die Anwendung, Anpassung und Entwicklung von nicht konventionellen Meßverfahren notwendig.

Zur berührungsfreien Temperaturmessung im Bereich der sich deformierenden Hülle wurde ein Zwei-Farbenpyrometer so weiterentwickelt, daß Hüllentemperaturen ab $530^{\circ}C$ aufwärts erfaßt werden können.

Die Drucktransiente im Bereich der Beule wird über Kapillaren von über 2 m Länge, die im Innern des Brennstabsimulators geführt werden, mit Hilfe eines DMS-Druckgebers registriert.

Der Deformationsprozess selbst wird mit Hilfe von Röntgenstrahlen kinematographisch verfolgt. Dabei gestattet die Anwendung von Röntgenstrahlen, die Beulvorgänge nicht nur bei Einzelstabversuchen, sondern auch in Stabbündeln ohne den Einbau von optischen Fenstern in den Wänden der Teststrecke sichtbar zu machen.

3.4 Erste Ergebnisse

Die bisher durchgeführten Experimente und Rechnungen beziehen sich hauptsächlich auf die Untersuchung von Einzelphänomenen.

Um erste Informationen über das Verformungsverhalten der Zirkaloy-Hülle zu erhalten, wurden Vorversuche mit verkürzten Brennstabsimulatoren durchgeführt. Die zugehörige Versuchsanordnung und die Meßvorrichtungen sind schematisch in Bild 5 dargestellt. Die Temperaturmessung an der Hülle erfolgt durch Pt/Pt-Rh Thermoelemente von 0.1 mm \emptyset , die auf der Hülloberfläche durch Punktschweißung befestigt waren. Der Aufblähprozess der Hülle wurde mit der Röntgenkinematografie verfolgt. Bei der Fertigung der verkürzten Simulatoren wurde in besonderem Maße auf die Einhaltung der Toleranzen für Durchmesser, Wandstärke und zylindrische Geometrie des Hüllrohrs sowie auf eine gleichmäßige Temperaturverteilung am Heizstab des Simulators geachtet. In einer Serie von 50 Einzelversuchungen wurde bei einer konstanten Heizleistung von 50 W/cm der Innendruck im Simulator zwischen 70 und 130 bar variiert. In Bild 6 sind einige verformte und geborstene Hüllrohre aus dieser Versuchsreihe zu sehen.

Es ist typisch, daß sich die Hülle über eine beträchtliche Länge konisch abhebt und das Bersten der Hülle ohne ein begleitendes, blasenförmiges Ausbuchen lokal begrenzt auftritt. Es fällt weiterhin auf, daß die Mantellinie mit der Bruchstelle in den meisten Fällen gerade verläuft. Einige Male konnten jedoch auch konkave Krümmungen der Mantellinie beobachtet werden. Das bedeutet, daß die Hülle sich in diesen Bereichen von den wärme-spendenden Pellets nicht abgehoben hat und somit der Bruch an der heißesten Stelle der Hülle erfolgt. Der kältere Teil der Hülle entfernt sich während der Aufheizperiode in wachsendem Maße von der darunter liegenden Struktur des Simulators. Dieser Effekt ist noch einmal deutlich im Röntgen-Bild 7 zu erkennen. Das Bild macht darüberhinaus deutlich, daß eine meßbare Verbiegung des Heizleiters nicht vorliegt und somit nicht die Ursache für die beobachtete spezifische Hüllrohrform sein kann.

Erste Überlegungen zur Deutung dieser Phänomene wurden auf eine ungleichmäßige Temperaturverteilung am Umfang des Simulators gerichtet. Diese könnten etwa durch Verschiebung der Al_2O_3 -Pellets oder durch nicht zentrische Anordnung des Heizleiters verursacht werden.

Tatsächlich wurden bei Temperaturmessungen auf dem Umfang des Simulators mit Hilfe von Pt/Pt-Rh Thermoelementen beträchtliche Temperaturdifferenzen festgestellt. In Bild 8 ist die Temperaturgeschichte für fünf am Umfang der

Hülle verteilte Meßpunkte aufgezeichnet. Von Beginn des Aufheizvorgangs an können kleine Temperaturunterschiede zwischen den verschiedenen Meßpunkten beobachtet werden, die bis zum Bersten der Hülle auf Werte von bis zu $T \approx 100^\circ\text{C}$ anwachsen. Die Temperaturverläufe bestätigen die Vermutung, daß die Hülle an der heißesten Stelle (Thermoelement Nr. 7) versagt. Es ist ferner zu erkennen, daß Meßstellen, die zu Beginn des Heizprozesses höhere, bzw. niedrigere Temperatur anzeigten, auch zu allen späteren Zeiten bis zum Bersten relativ zu anderen Meßstellen die höhere, bzw. niedrigere Temperatur bei gleichzeitig wachsender Temperaturdifferenz aufweisen. Dieser Tatbestand erhärtet die frühere Feststellung, daß auf Grund des unterschiedlichen Wärmeübergangs von den Pellets zur Hülle das Abheben der Hülle auf der kälteren Seite erfolgt. Der heißere Hüllbereich liegt an der Pelletsäule an, und ein Versagen tritt infolge zu starker Temperaturerhöhung und dadurch ausgelöst, stark plastischem Verhalten des Hüllwerkstoffes auf. Da diese markanten Eigenschaften im Temperaturverlauf in allen Versuchen der Serie reproduziert wurden, darf daraus geschlossen werden, daß ein Versagen der Zirkaloy-Hülle an den Heißstellen zu erwarten ist. Dabei haben Filmaufnahmen zusätzlich gezeigt, daß der eigentliche Berstvorgang sehr schnell abläuft ohne daß es zu massiven Umfangsdehnungen kommt. Eine detaillierte physikalische Deutung dieses Sachverhalts steht zur Zeit noch aus.

Es erscheint nicht unrealistisch, daß ungleichmäßige Temperaturverteilungen am Umfang auch bei nuklearen Brennstäben auftreten. Heißstellen dürften daher auch dort zum auslösenden Moment eines sehr ähnlichen verlaufenden Deformationsvorgangs an der Hülle werden.

Der Verlauf der Umfangsdehnung während des Beulprozesses ist in Bild 9 festgehalten. Dieses Bild ist im wesentlichen das Ergebnis einer Auswertung von Röntgenfilmen. Dabei wurden Versuche für Stabinnendrucke von 70, 100 und 130 bar durchgeführt. Im Bild sind gleichzeitig der zeitabhängige Druck und die Temperatur auf der sich abhebenden Hülle eingetragen.

Die Temperatur an der Hülle steigt stetig bis sich die Hülle vom Untergrund merklich abhebt. Danach tritt eine leichte Absenkung der Temperatur, verbunden mit einer zeitlich stark anwachsenden Dehnung ein. Dieser Vorgang wird schließlich durch den Bruch der Hülle terminiert. Dabei ist der steile Verlauf der Dehnung beim Abheben der Hülle in typischer Weise mit einem flachen Kurvenverlauf der Temperatur, verursacht durch eine Verschlechterung des Wärmeübergangs im Spalt verknüpft.

Beim Druck im Brennstab beobachtet man zunächst einen durch Temperaturerhöhung verursachten leichten Anstieg. Nach Beginn der Hüllendeformation nimmt der Druck unter der abhebenden Hülle ab.

Im Hinblick auf die Gesamtdehnung lassen die Versuche den Schluß zu, daß höhere Innendrucke zu kleineren Gesamtdehnungen am Umfang führen. Die größte Dehnung mit $\epsilon = 36\%$ wurde bei einem Innendruck von 70 bar festgestellt. Die Ermittlung der mittleren Dehnungsrate $\dot{\epsilon}_m(t)$ aus den Dehnungsverläufen $\epsilon(t)$ ergab Werte zwischen etwa $1,5 \cdot 10^{-2}$ und $3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$. Diese Werte entsprechen einem normal plastischen Verhalten der Hülle für die relevanten Temperatur- und Druckbereiche. Diese Feststellung sollte Theoretikern, welche sich um die Bereitstellung entsprechender Korrelationen für die Codeentwicklung bemühen, von Bedeutung sein.

Als Zwischenergebnis sei hier vermerkt, daß die Vorversuche erste wichtige Aufschlüsse über das Hüllrohrversagen geliefert haben, die für die weitere Planung, Durchführung und Beurteilung der Hauptversuche wegweisend sein werden.

4. Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalls PNS 4239 /5/

Das Genehmigungsverfahren für Kernkraftwerke verlangt den Nachweis, daß das Core auch dann kühlbar bleibt, wenn durch Verformung der Hüllrohre während eines Kühlmittelverluststörfalls Kühlkanäle blockiert würden. Besonders ungünstig wäre die Situation, wenn sich mehrere nebeneinander liegende Stäbe in der gleichen Ebene im Bündel u.U. durch wechselseitige Beeinflussung aufblähen würden. Durch einen solchen Vorgang käme es zur Blockade ganzer Teilbereiche eines Bündels. Wenn ein solcher Prozess auch sehr unwahrscheinlich ist, so fehlen bisher doch Versuche von so hoher Präzision, daß dieses Ereignis ausgeschlossen werden kann. Es ist daher notwendig, den Einfluß von Kühlkanalblockaden auf den Wärmeübergang in der Umgebung von Blockaden zu studieren. Daher wurde ein Versuchsprogramm definiert, mit dem gezielt Wärmeübergänge im Bereich der Blockaden untersucht werden sollen. Das Versuchsprogramm geht von der denkbar ungünstigsten Situation aus, nämlich:

- Alle Beulen an den Brennstäben liegen in einer Ebene.
- Alle Kühlkanäle sind gleichmäßig blockiert.

4.1 Zielsetzung und besondere Merkmale

Es ist das Ziel des Versuchsprogramms den Wärmeübergang in der Umgebung von Kühlkanalblockaden während eines Flutvorgangs unter definierten Bedingungen zu studieren und Wärmeübergangskorrelationen für die Entwicklung eines Flutcodes bereitzustellen. Präziser gefaßt bedeutet dies: Es ist die zeitliche und räumliche Abhängigkeit der Temperatur an den Hüllen und des Wärmeübergangs in der Nähe der Blockade unter Variation der folgenden Parameter zu bestimmen:

- Geometrie der Blockade (Form, Querschnittversperrung),
- Anfangswert der Stabtemperatur,
- Temperatur des Kühlwassers am Kühlkanaleintritt,
- Flutrate,
- Systemdruck,
- Nachwärmeleistung (ANS-Standard)

Als Naheziel wird darüberhinaus in einer mehr qualitativen Voruntersuchung angestrebt, die für die Kühlung der Brennstäbe ungünstigste Blockadeform zu ermitteln. Diese Vorarbeiten sollten vor allem dazu dienen, bei umfangreichen und kostenintensiven Bündelversuchen ¹⁾ die Zahl der zu variierenden Parameter möglichst klein zu machen. Wie bei den Untersuchungen zum Hüllrohrversagen werden auch bei den Blockadeversuchen Brennstabsimulatoren von reaktorspezifischen Abmessungen verwendet; hier mit dem Ziel, die Zeitmaßstäbe für den Ablauf der Flutung möglichst genau nachzubilden.

4.2 Die Versuchsanordnung

Voraussetzung für die Gewinnung präziser und reproduzierbarer Versuchsdaten, welche die Herleitung zuverlässiger Wärmeübertragungskorrelationen ermöglichen, ist die Bereitstellung einer entsprechend qualifizierten Versuchsanordnung. Hohe Anforderungen sind daher im einzelnen an den Versuchskreislauf, die Test-

¹⁾Die Durchführung umfangreicher Bündelversuche ist bei der Kraftwerksunion (KWU) Erlangen vorgesehen.

strecke, die Meßtechnik und das Datenerfassungs- und Verarbeitungssystem zu stellen. Bis zu diesem Zeitpunkt lag daher das Hauptgewicht der Arbeiten auf der Planung und Ertüchtigung der Versuchsanordnung. Im folgenden werden einige wesentliche Merkmale und das Leistungsvermögen der Anlage skizziert. Der Aufbau des Kreislaufs (vergl. Tab. 1) ist schematisch in Bild 10 zu sehen; die zugehörigen Daten sind in Tab. 2 aufgeführt.

Beheizte Länge	2,90 m	(3,90 m)
Stableistung	7 - 28 W/cm	
Axiales Leistungsprofil	stufenförmig	
Niveau der Nachwärmeleistung (ANS Standard)	80 - 110 %	
Hüllrohrtemperatur bei Flutbeginn	600 - 900 °C	
Systemdruck (konstant während eines Flutvorgangs)	1 - 4,5 bar	
Flutgeschwindigkeit (kalt)	3 - 30 cm/sec.	
Flutwassertemperatur	40 - 80 °C	
Geometrie der Blockade	Gitterplatte Aufgesetzte Beulen ungestörte Kanäle	
Freier Kühlkanal in Blockaden zu ungestörtem Kanal	10; 25; 38; 100 %	

Tab. 2

Die Hauptversuche werden aus derzeitiger Sicht mit zwei Stabanordnungen durchgeführt. Zunächst werden Temperaturen und Wärmeübergänge in einer Stabreihe mit 5 Simulatoren studiert; später werden die Untersuchungen auf ein 5 x 5 Stabbündel ausgedehnt (s. Bild 11).

Zur Simulierung der aufgelähten Hüllrohre sind Blockadekörper verschiedener Geometrien und Abmessungen vorgesehen, die über die Brennstabsimulatoren geschoben und nach Bedarf gewechselt werden können. Ihre Form reicht von der einfachen Lochplatte bis zu langgezogenen zylindrischen Körpern, die einander flächenhaft berühren. Für die Temperaturmessung sind die Brennstabsimulatoren mit Thermoelementen bestückt, die sich auf die Umgebung der Versperrung (besonders stromab) konzentrieren. Die Position der Meßpunkte ist ebenfalls in Bild 11 festgehalten.

Die weiteren Ausführungen werden sich auf die Anordnung für die erste Versuchsserie, nämlich die Stabreihe beziehen.

Es erhebt sich hier mit Recht die Frage, ob diese praktisch zweidimensionale Anordnung die thermohydraulischen Verhältnisse in einem Bündel überhaupt erfassen kann. Dazu kann man folgende Überlegungen anstellen:

Zur Simulation der Kühlung von Brennstäben in Bündeln mit reduzierter Geometrie kommt es wesentlich darauf an, daß das Fortschreiten der Benetzungsfront an den Stäben nicht wesentlich durch anders temperierte Kastenwände beeinflußt wird. Für den Fall einer Stabreihe bedeutet dies, daß durch entsprechende Beheizung der Kastenwände die benachbarten Stabreihen simuliert werden. Dabei hat die Beheizung der Wände so zu erfolgen, daß beim Fluten die Benetzungsfront an Stäben und an der Kastenwand mit gleicher Geschwindigkeit fortschreitet. Vorversuche zu diesem Fragenkomplex haben gezeigt, daß dies für die gefertigte Teststrecke durch eine entsprechend abgestimmte Wandbeheizung weitgehend erreicht werden kann.

Die Vorzüge der geometrisch einfachen 5-Stabanordnung sind evident. Durch den Einbau von Quarzglasscheiben in die die Stäbe umgebenden Kastenwände wird eine visuelle Beobachtung des Flutvorgangs möglich. Dies ist deshalb von so großer Bedeutung, weil für eine spätere Wärmeübergangsrechnung auf der Kühlmittelseite eine Verknüpfung der gemessenen Fluttemperaturen mit dem im allgemeinen zweiphasigen Zustand der Kühlflüssigkeit benötigt wird.

Die Teststrecke mit der 5-Stabanordnung hat eine Funktionsprüfung erfolgreich bestanden und erste Versuche mit ungestörter Geometrie wurden bereits durchgeführt. Versuche mit blockierten Kanälen stehen unmittelbar bevor.

4.3 Meßtechnik

4.3.1 Filmmeßtechnik

Im Zusammenhang mit der Strömungsvisualisierung mußten folgende Probleme gelöst werden:

- Verhinderung einer Temperaturabsenkung der Brennstäbe im Bereich der Sichtfenster,
- eine Sichtbehinderung durch vorzeitiges Einsetzen einer Benetzung der Scheiben ist zu verzögern,
- Erstellung scharfgezeichneter Filmaufnahmen für detaillierte und quantitative Auswertung.

Die beiden ersten Fragen wurden dadurch gelöst, daß

- a) Doppelscheiben aus einem Material verwendet wurden, die im Infrarotbereich besonders stark absorbieren,
- b) durch Einstrahlung von außen mit Hilfe von Infrarotstrahlen Wärmeenergie an die Scheiben zugeführt wird.

Um auch bei Tropfengeschwindigkeiten von mehr als 10 m/s scharf gezeichnete Filmaufnahmen zu erhalten, wurde eine Blitzeinrichtung mit Einzelblitzen von etwa 20 ns verwendet.

4.3.2 Temperaturmessungen

Die Messung der Temperatur in der Hülle des Simulators geschieht mit Mantelthermoelementen (0.5 mm Durchmesser), die über die ganze Länge des Simulators in Nuten verlegt sind, um die Kanalgeometrie und das Benetzungsverhalten nicht zu verändern und um die Paßform und Austauschbarkeit der Blockadeaufnahmen nicht zu beeinträchtigen.

4.4 Auswertung der Versuchsdaten

Die Ermittlung des Wärmeübergangs aus den gemessenen Temperaturen erfolgt numerisch mit Hilfe des Computerprogramms HETRAP [5]. Dieses Programm hat die Lösung des Randanfangswertproblems der Wärmeleitungsgleichung für den Brennstabsimulator zum Gegenstand. Bei dem verwendeten numerischen Verfahren handelt es sich um ein explizites Differenzenverfahren. Es ist bekannt, daß Differenzenverfahren auf statistische Schwankung in Rand- und Anfangswerten sehr empfindlich reagieren und diese u.U. verstärken. In unserem Fall gehen die gemessenen Temperaturen an der Hülle, die durch Rauschsignale eine gewisse Schwankungsbreite besitzen, als Randwerte in die Rechnung ein. Es mußten daher in das Differenzenverfahren besondere Glättungsverfahren eingebaut werden, um die Schwankungen der Temperaturmessungen nicht verstärkt in die resultierenden Wärmeübergangszahlen zu übertragen. Das Resultat einer Proberechnung mit schwankenden Temperaturwerten als Eingabedaten ist in Bild 13 zu sehen.¹⁾ Eine Schwankungsbreite von $\pm 2\text{K}$ in den Eingabewerten für die Temperatur führt zu vergleichbar glatten Resultaten für die Wärmeübergangszahl. Eine Rechnung ohne Glättungsprozess bei gleichen Eingabedaten liefert dagegen praktisch unbrauchbare Resultate (vergl. Bild 14).

¹⁾Die in Bild 13 und 14 dargestellten Kurven geben als Beispiel den Wärmeübergangskoeffizienten für einen "blow down" -Vorgang an.

4.5 Ergebnisse aus Vorversuchen

In Vorversuchen wurde die Visualisierung des Flutvorgangs in einer Teststrecke mit zwei Brennstabsimulatoren erprobt. Bild 15a, b zeigt Einzelaufnahmen des Dampfwassergemisches, das sich bei einer Einspeisegeschwindigkeit von 21 cm/s in der Teststrecke ausbildet. Die Bilder sind einem Zeitdehnereilm mit einer Bildfrequenz von 300 s^{-1} aufgenommen. Die Benetzungsfront lag im Bild 15a etwa 2 m, in Bild 15b nur 50 cm unterhalb des Beobachtungsbereichs. Die Temperatur der Staboberflächen und der Kastenwände lag bei Versuchsbeginn bei etwa $700 \text{ }^{\circ}\text{C}$. Die Auswertung der Hochgeschwindigkeitsfilme läßt quantitative Aussagen über Tropfengeschwindigkeit und Tropfenverteilung in den Kühlkanälen zu. So wurden zu Beginn der Flutphase Tropfengeschwindigkeiten von 13 m/s und Tropfendurchmesser bis zu 1 mm gemessen. Zu späteren Zeiten wird bei einer Abnahme der Geschwindigkeit ein deutliches Anwachsen der Tropfengrößen und die Ausbildung von unregelmäßigen Tropfenformen beobachtet. Beobachtungen haben ferner gezeigt, daß bei Variation der Flutrate oder der Anfangstemperatur pulsierende Strömungen auftreten können, die bei Drücken unter 1 bar zu kürzeren Flutzeiten führten.

Bei der Bewertung dieser Versuche muß jedoch beachtet werden, daß sie hauptsächlich der Ertüchtigung der Visualisierungstechnik dienen.

Bei der Erprobung der eigentlichen Versuchsstrecke mit 5 Stäben wurden bisher 40 Flutversuche vorgenommen. Dabei waren jedoch noch keine Kanalblockaden eingebaut. Bild 16 zeigt eine typische Temperaturgeschichte an der Hülle des Brennstabsimulators etwa auf halber Stablänge. Mit Einsetzen der Dampfströmung zeigt sich ein leichter Temperaturrückgang, dem bei Benetzung ein abrupter Abfall auf die Flutwassertemperatur folgt. Erste Versuche in dieser Teststrecke mit scheibenförmigen Kühlkanalblockaden werden zur Zeit vorbereitet.

5. Schlußbemerkungen

Die Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen sind ein wichtiger Beitrag zum LWR-Sicherheitsforschungsprogramm der Bundesregierung. Diese Untersuchungen finden im Rahmen einer internationalen Zusammenarbeit, insbesondere mit den USA statt. In der GfK sind im Rahmen des PNS an diesen Arbeiten neben dem Institut für Reaktorbauelemente, die Abteilung Reaktorbetrieb, das Institut für Material- und Festkörperforschung und das Institut für Reaktorentwicklung maßgeblich beteiligt.

Die Arbeiten im IRB, über die berichtet wurde, begannen 1973. Sie basieren auf Erfahrungen die auf Grund ähnlich gelagerter, früherer Forschungsarbeiten zur Verfügung steht. Durch sorgfältige Planung und den Aufbau der Versuchsanordnung konnte bis zu diesem Zeitpunkt die Basis für Experimente geschaffen werden, die nicht nur hochwertige Versuchsdaten, sondern darüberhinaus zum Verständnis der physikalischen Phänomene einen deutlichen Beitrag liefern werden. Die ersten Ergebnisse haben auf internationalen Tagungen im Herbst dieses Jahres bereits allgemeine Beachtung gefunden.

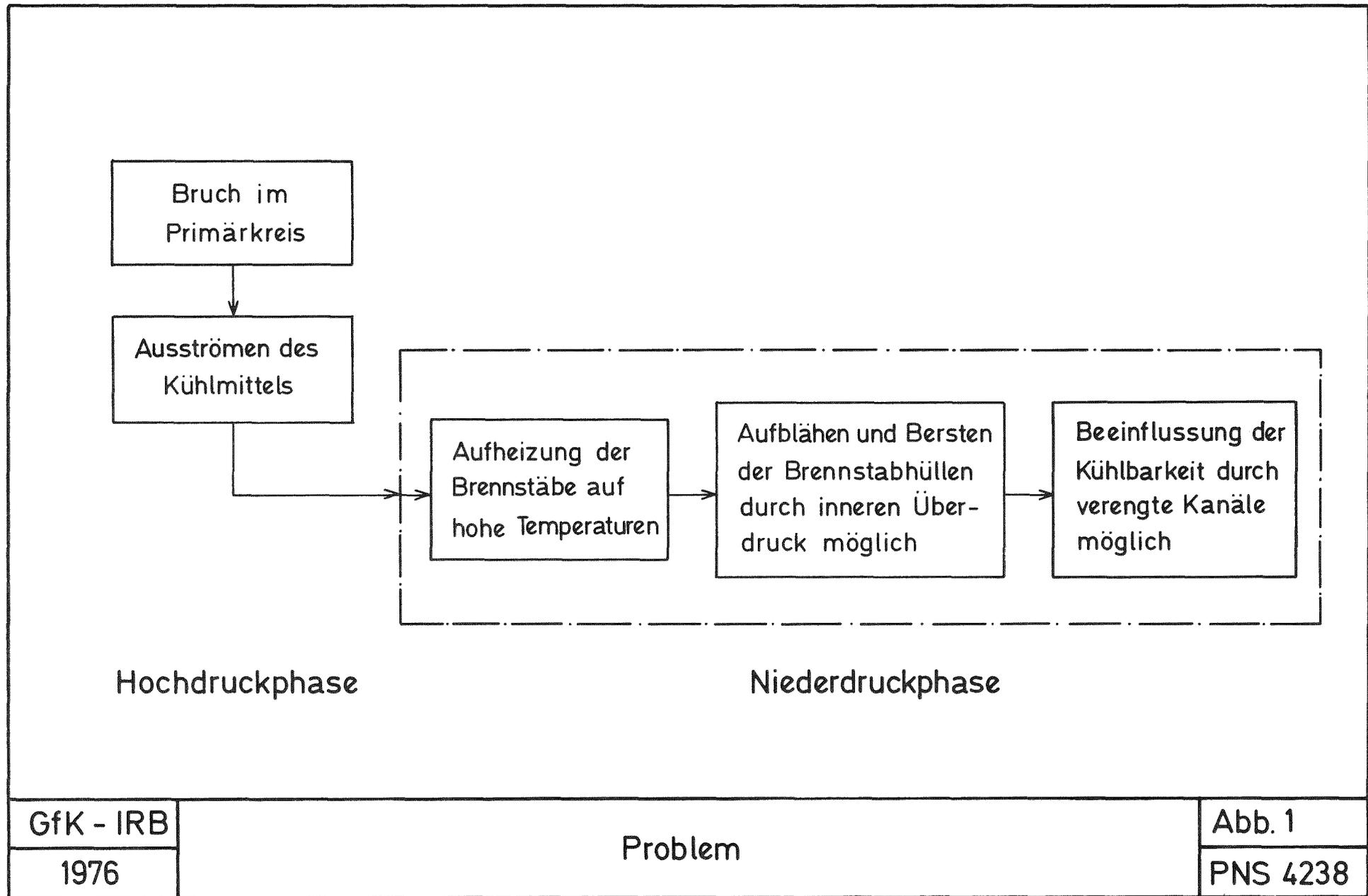
Die Arbeiten im Institut für Reaktorbauelemente zum Brennstabverhalten in der Niederdruckphase eines Kühlmittelverluststörfalles werden von einer großen Zahl engagierter Mitarbeiter getragen. Diesen Mitarbeitern möchte der Autor an dieser Stelle seine Anerkennung und seinen Dank für die Ausführung der Arbeiten ausdrücken. Dies gilt besonders für die mit der Planung und verantwortlichen Durchführung der Arbeiten betrauten Herren:

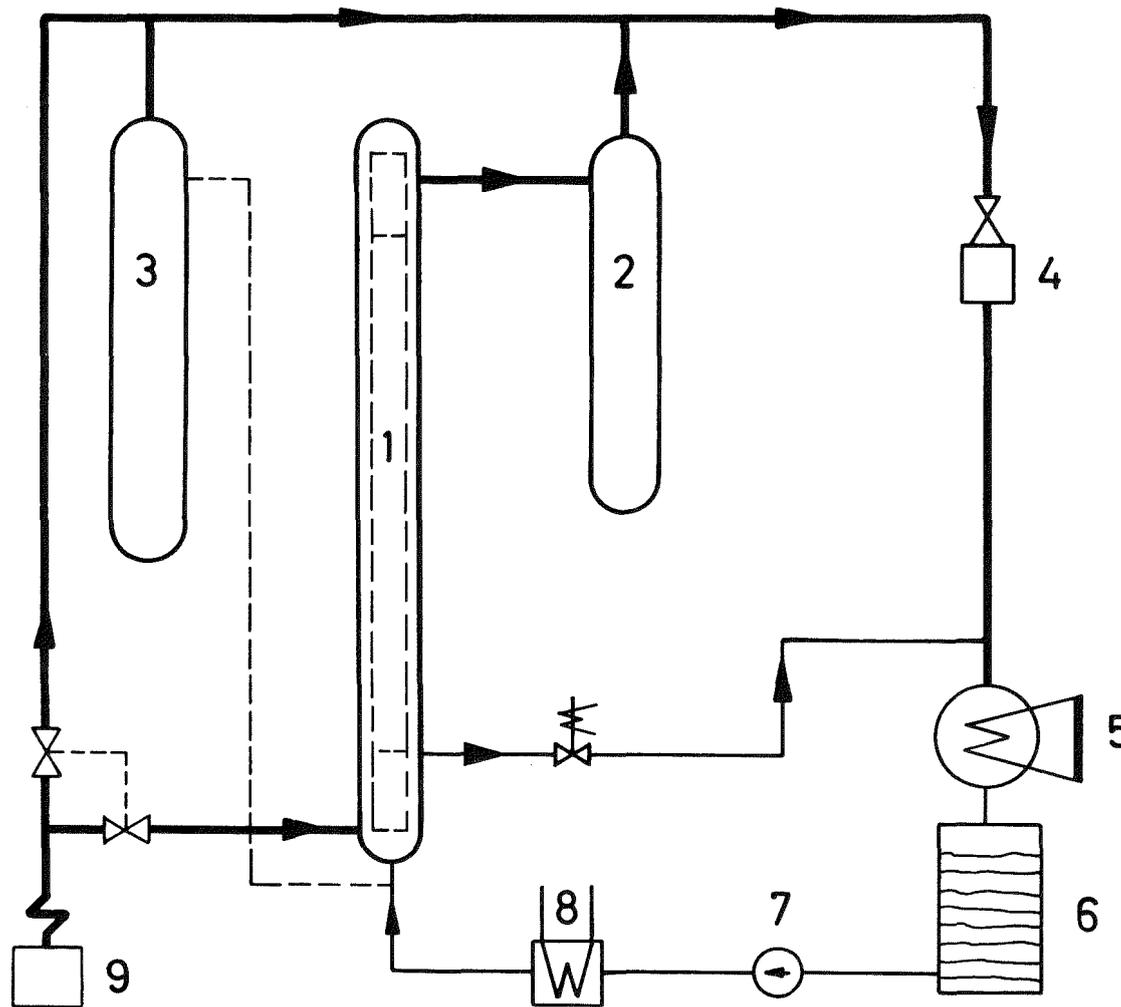
F. Erbacher, G. Hofmann, P. Ihle,
S. Malang, J.H. Neitzel, M. Reimann, K. Rust, Ha. Schmidt, K. Wiehr

Für kritische Bemerkungen bei der Abfassung des Manuskripts dankt der Autor den Herrn F. Erbacher und S. Malang.

Literatur:

- /1/ Atomic Energy Commission; Acceptance Criteria for Emergency Core Cooling Systems for Light Water-Cooled Nuclear Power Reactor, Federal Register, Vol. 38, No. 3 - Friday, Friday, January 4, 1974
- /2/ F. Mayinger European Two-Phase Flow Meeting, Erlangen, Juni 1976
- /3/ W. Gulden Ein Programmsystem zur Berechnung des Brennstabverhaltens bei einem Kühlmittelverlustunfall, Dokumentation von SSYST-MOD-I (1975, unveröffentlicht)
- /4/ F. Erbacher, H.J. Neitzel, M. Reimann, K. Wiehr, Out-of-pile experiments on ballooning in zircaloy fuel rod claddings in the low pressure phase of a loss-of-coolant accident, Specialists Meeting on the Behavior of Water Reactor Fuel Elements under Accident Conditions, Spatind, Nord-Torpa (Norway), September 13-16, 1976
- /5/ S. Malang, S. Barth, E. Eggert, W. Götzmann, U. Harten, K. Hitzig, P. Ihle, H. Kreuzinger, A. Megerle, K. Rust, Ha. Schmidt. He. Schneider, Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles, Projekt Nukleare Sicherheit, 9. Halbjahresbericht, 1. Halbjahr 1976, KFK 2375
- /6/ S. Malang HETRAP: A heat transfer analysis program, ORNL-TM-4555, Sept. 1974





- 1 Teststrecke
- 2 Abscheidebehälter
- 3 Containmentsimulator
- 4 Dampfumformer
- 5 Kondensator
- 6 Wasserbehälter
- 7 Einspeisepumpe
- 8 Vorwärmer bzw. Kühler
- 9 Dampferzeuger

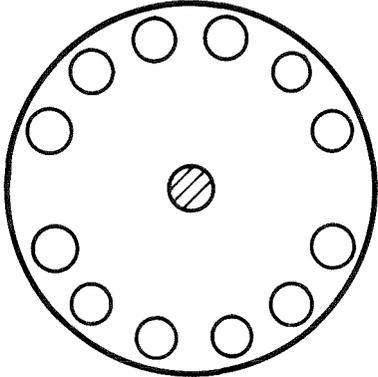
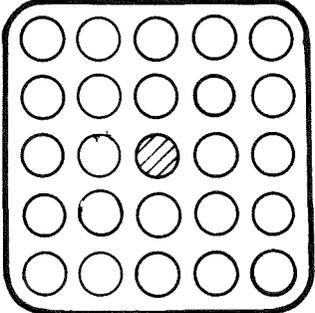
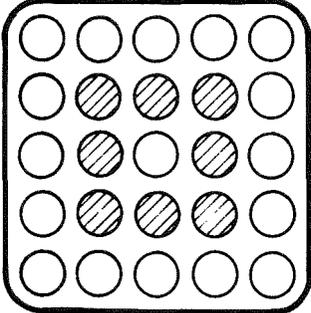
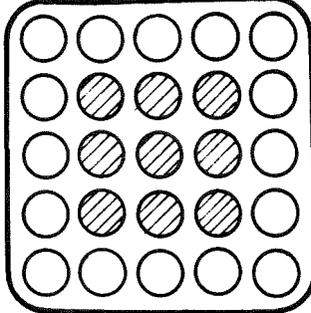
GfK - IRB

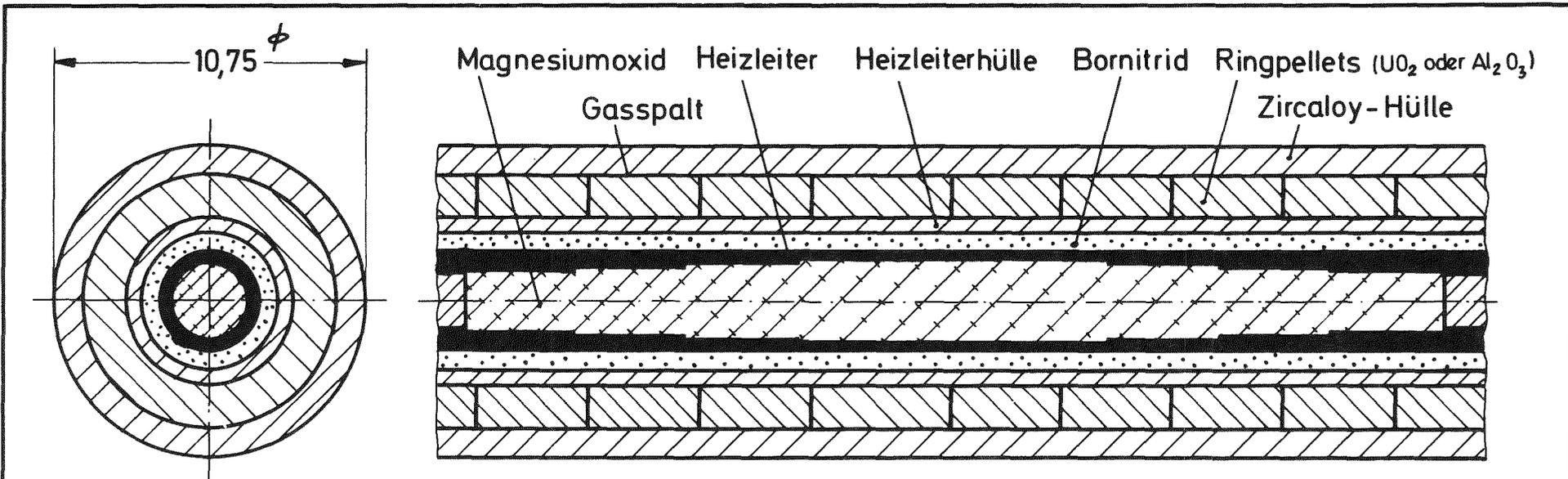
1975

Versuchsstand (schematisch)

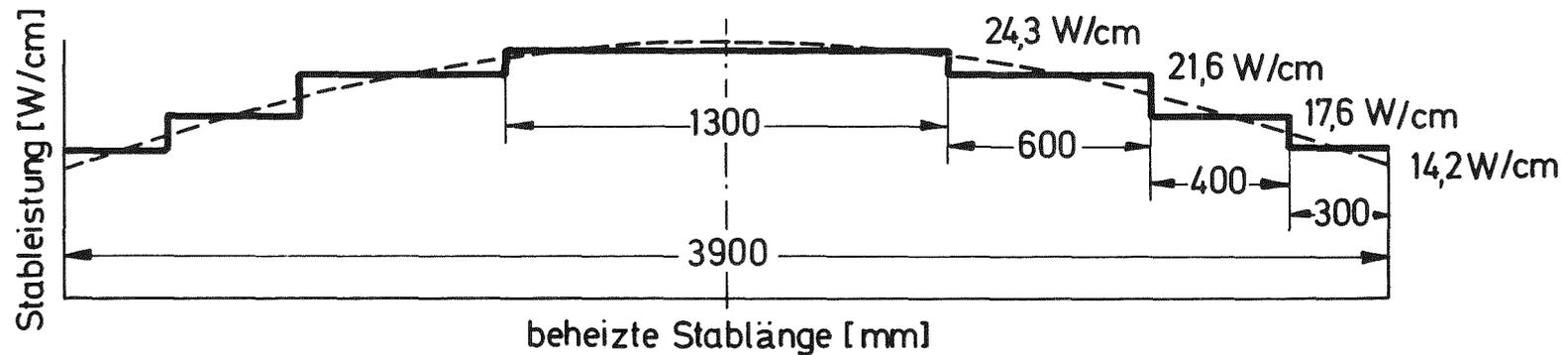
Abb. 2

PNS - 4238

Versuchsprogramm	Versuchsanordnung	
<p>Einzelstabversuche in Dampfatmosfera</p>		
<p>Einzelstabversuche mit Fluten</p>		
<p>Bündelversuche mit Fluten, gut instrumentierter Zentralstab</p>		
<p>Bündelversuche mit Fluten, Beeinflussung benachbarter Stäbe</p>		
<p> Simulator mit Zircaloy-Hülle und Innendruck</p>	<p> Simulator mit Inconel-Hülle ohne Innendruck</p>	
<p>GfK - IRB</p>	<p>Versuchsprogramm</p>	<p>Abb. 3</p>
<p>1975</p>		<p>PNS - 4238</p>

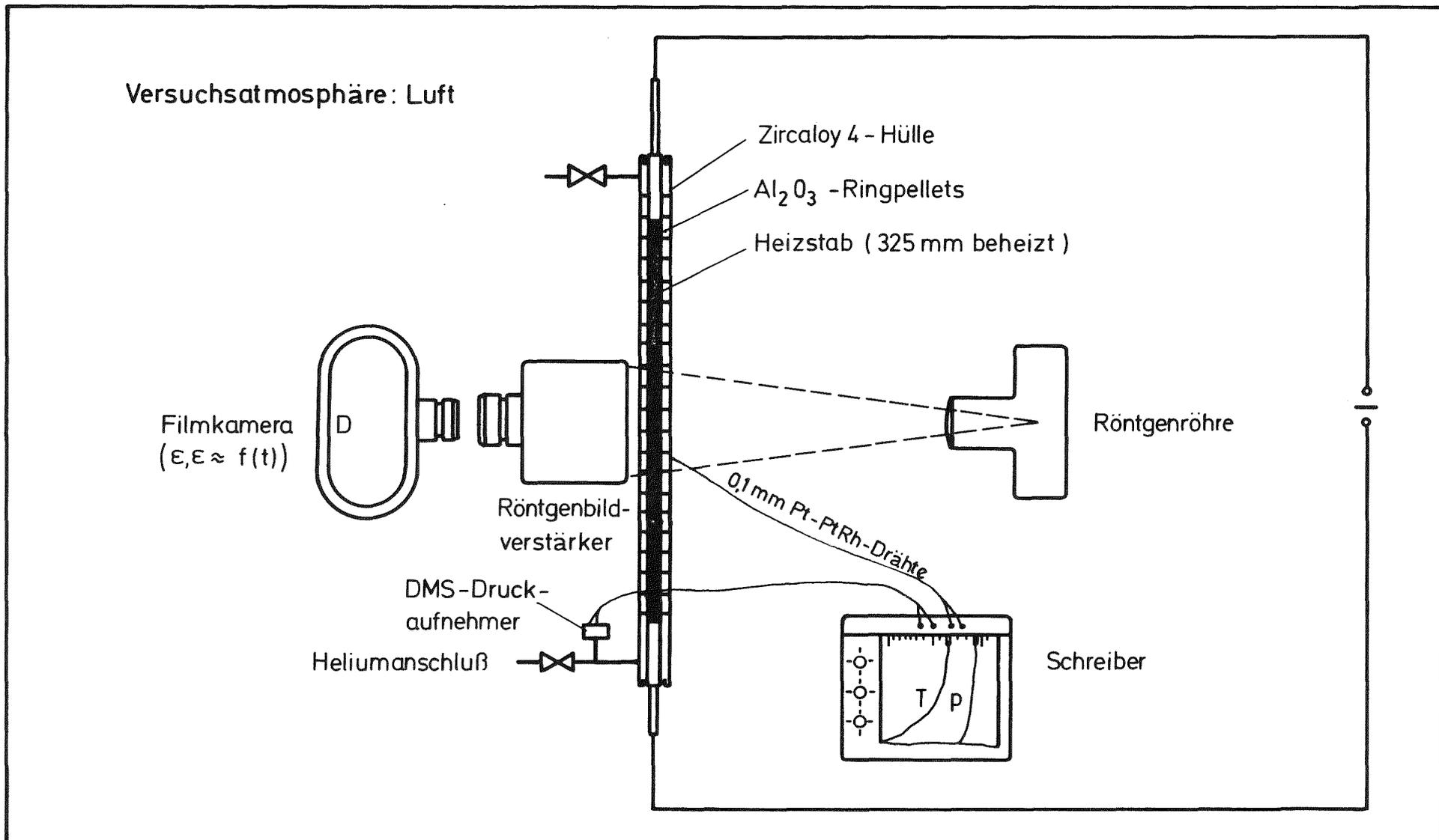


Schematischer Aufbau



axiale Leistungsverteilung

GfK - IRB	Brennstabsimulator	Abb. 4
1975		PNS - 4238



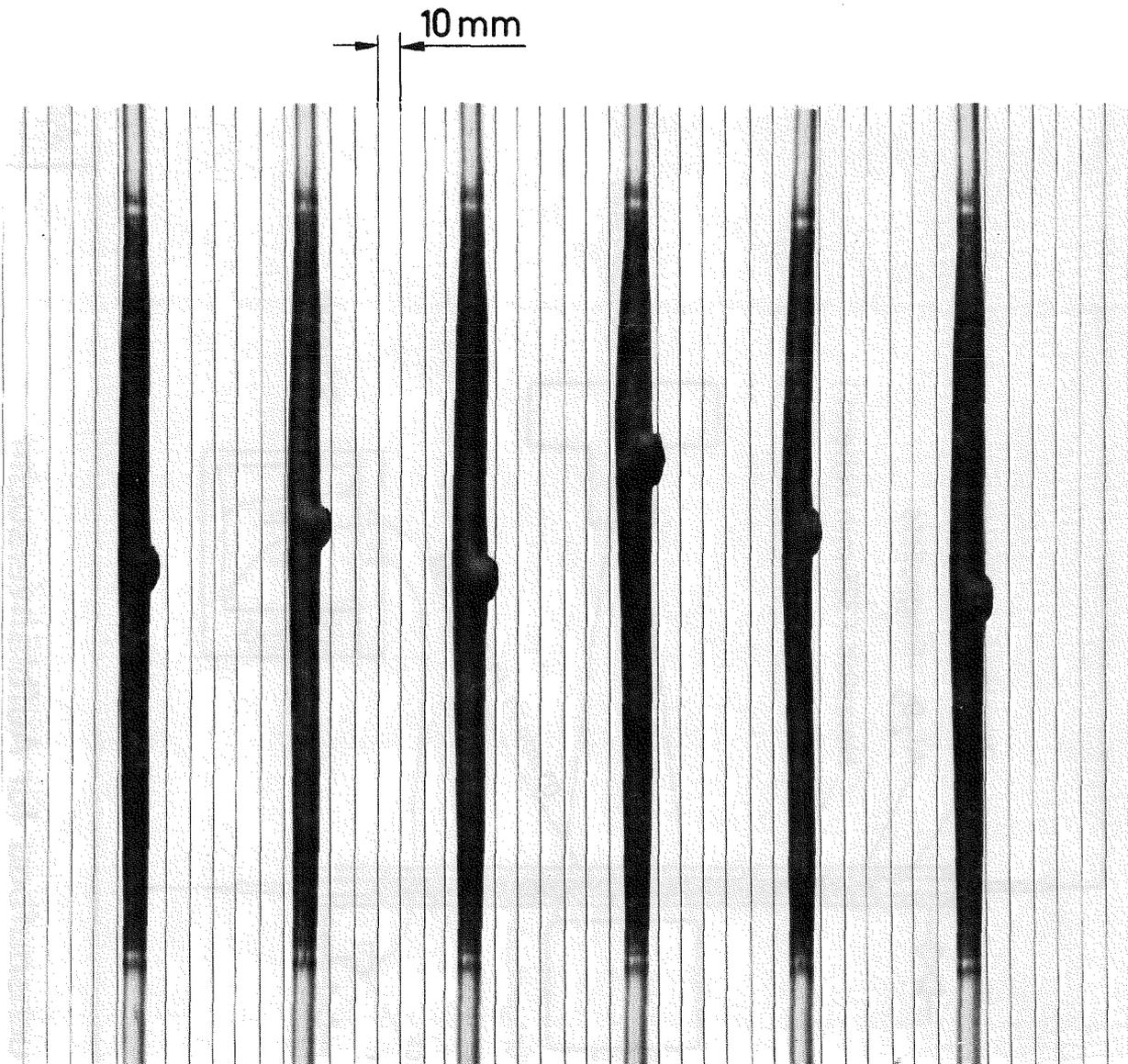
GfK - IRB

1976

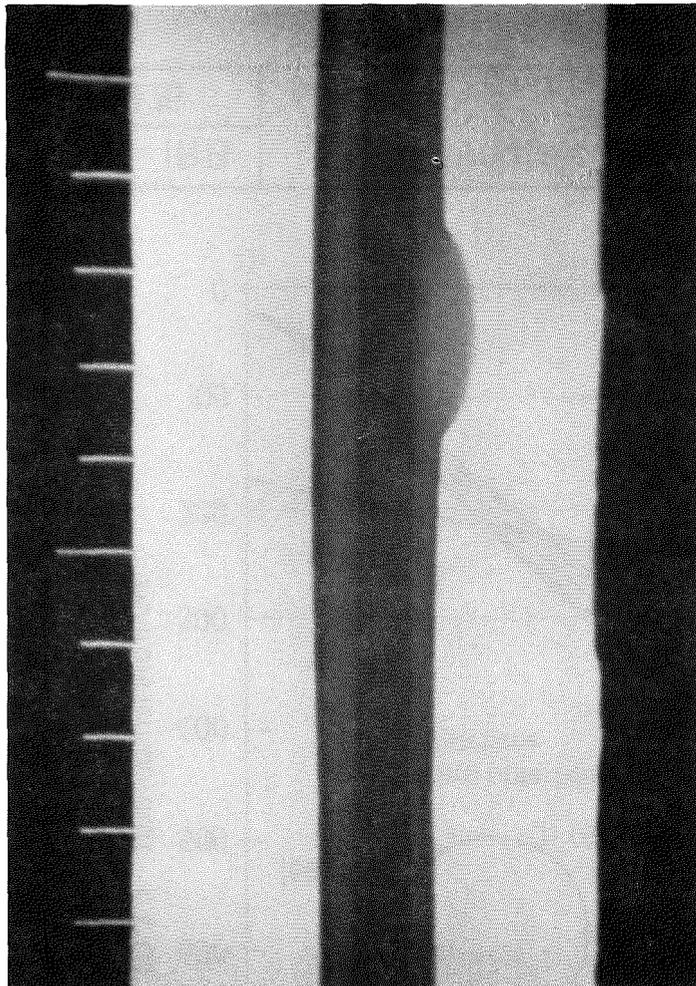
Versuchsaufbau für Aufblähversuche

Abb. 5

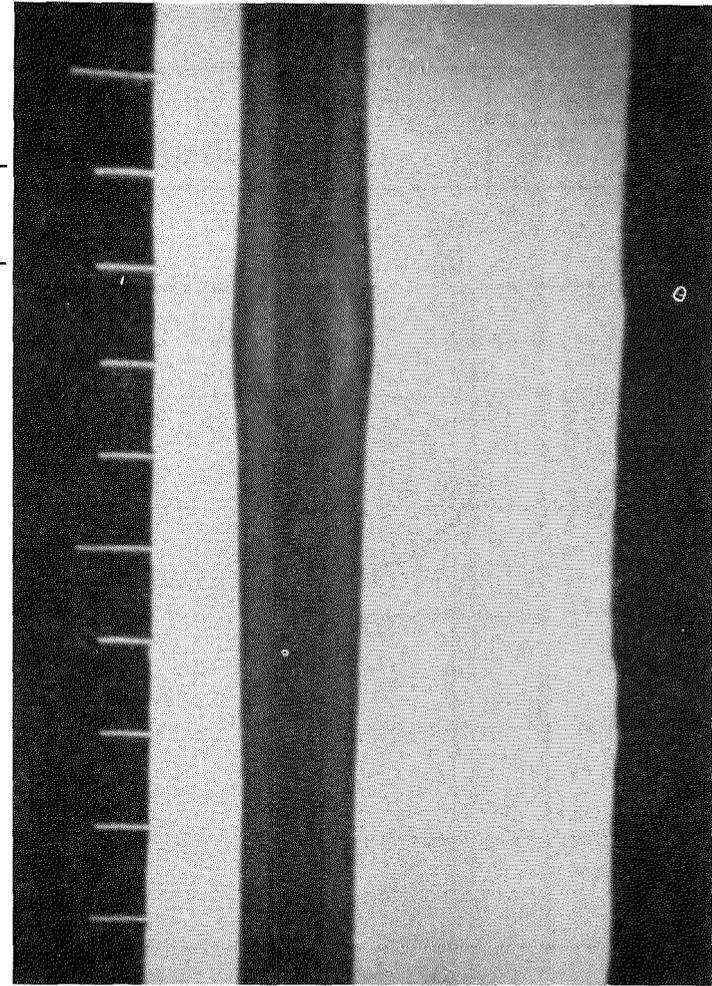
PNS - 4238



beheizte Länge : 325 mm
konstante Stableistung : 50 W/cm
Innendruck : 100 bar
Versuchsatmosphäre : Luft , 1 bar



↓
10mm
↑



Seitenansicht

Draufsicht

aufgeblähte und geborstene Zirkaloy-Hülle

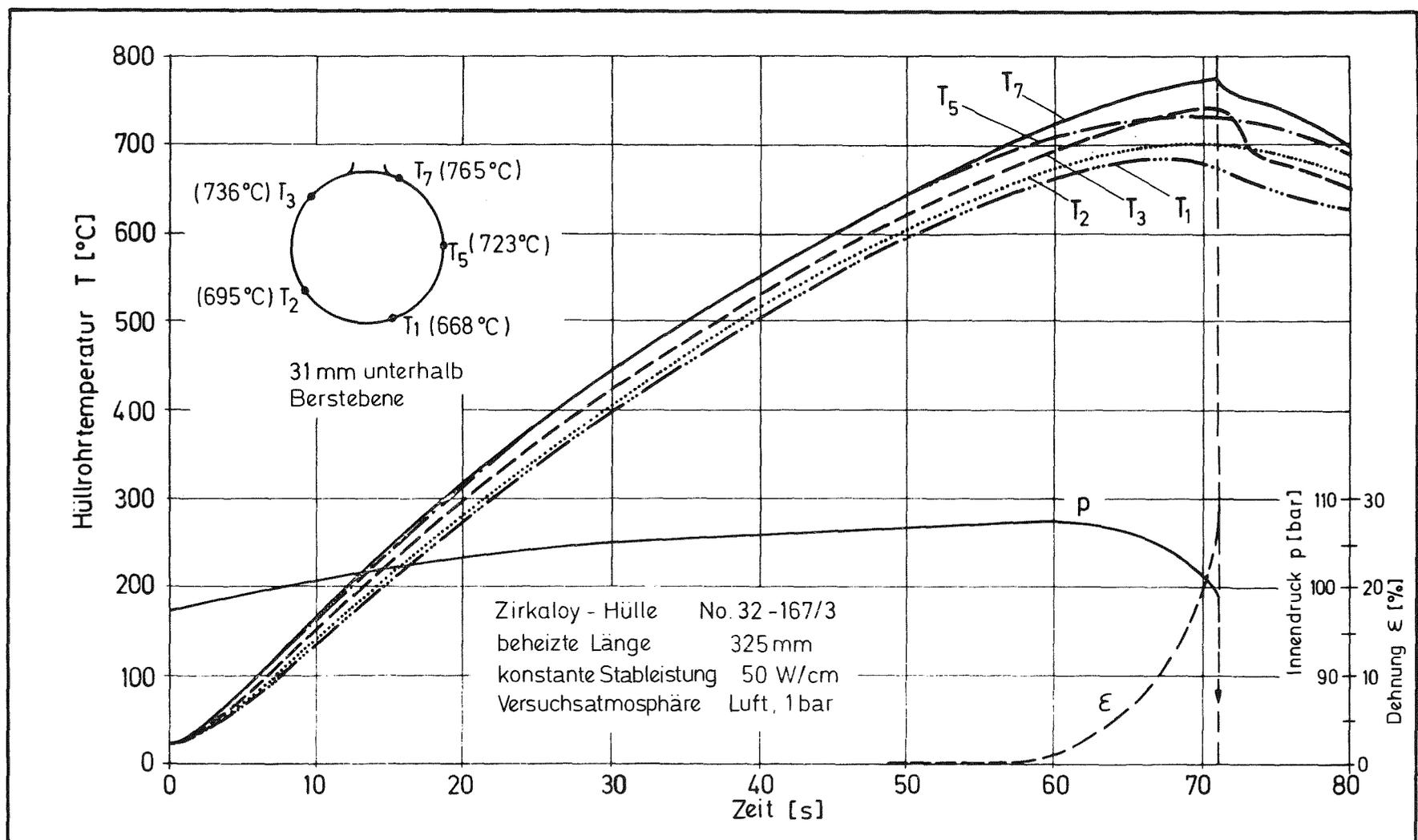
GfK - IRB

1976

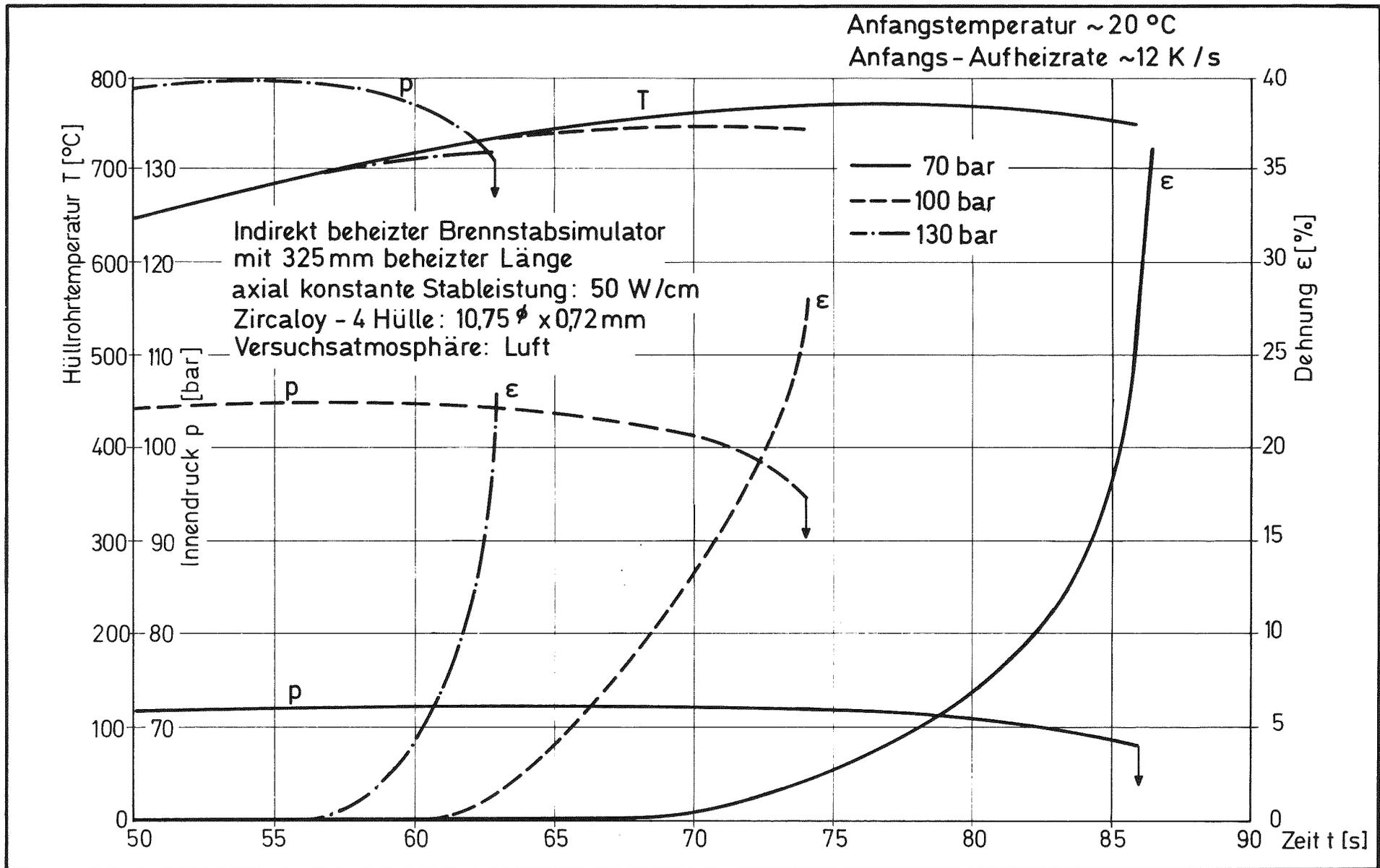
Röntgenbild des Brennstabsimulators

Abb. 7

PNS-4238



GfK - IRB	Azimutale Temperaturverteilung beim Aufblähvorgang einer Zirkaloy - Hülle	Abb. 8
1976		PNS-4238



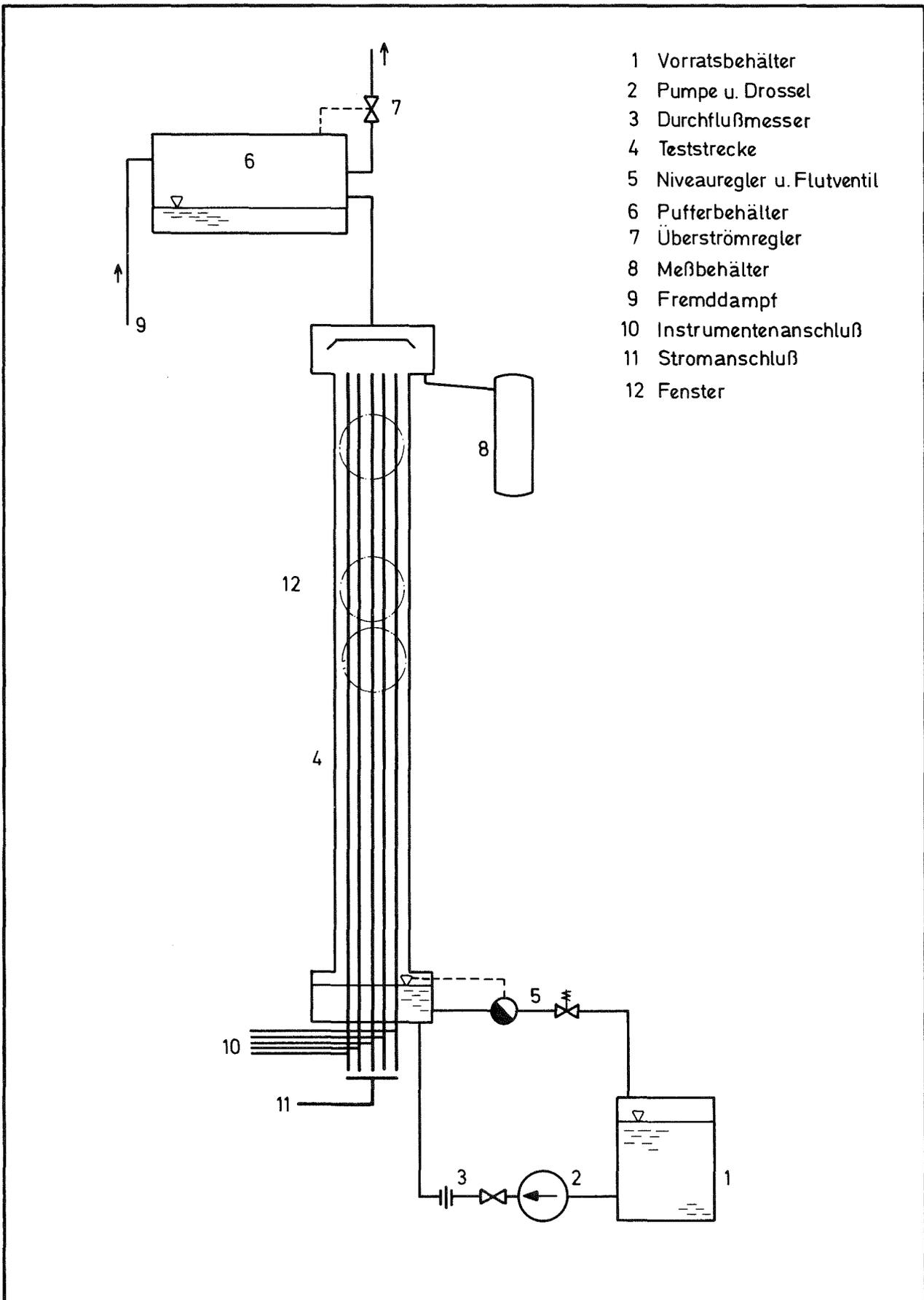
GfK - IRB

1975

Aufblähvorgang einer Zircaloy - 4 Hülle
(Meßergebnisse)

Abb. 9

PNS - 4238



GfK - IRB

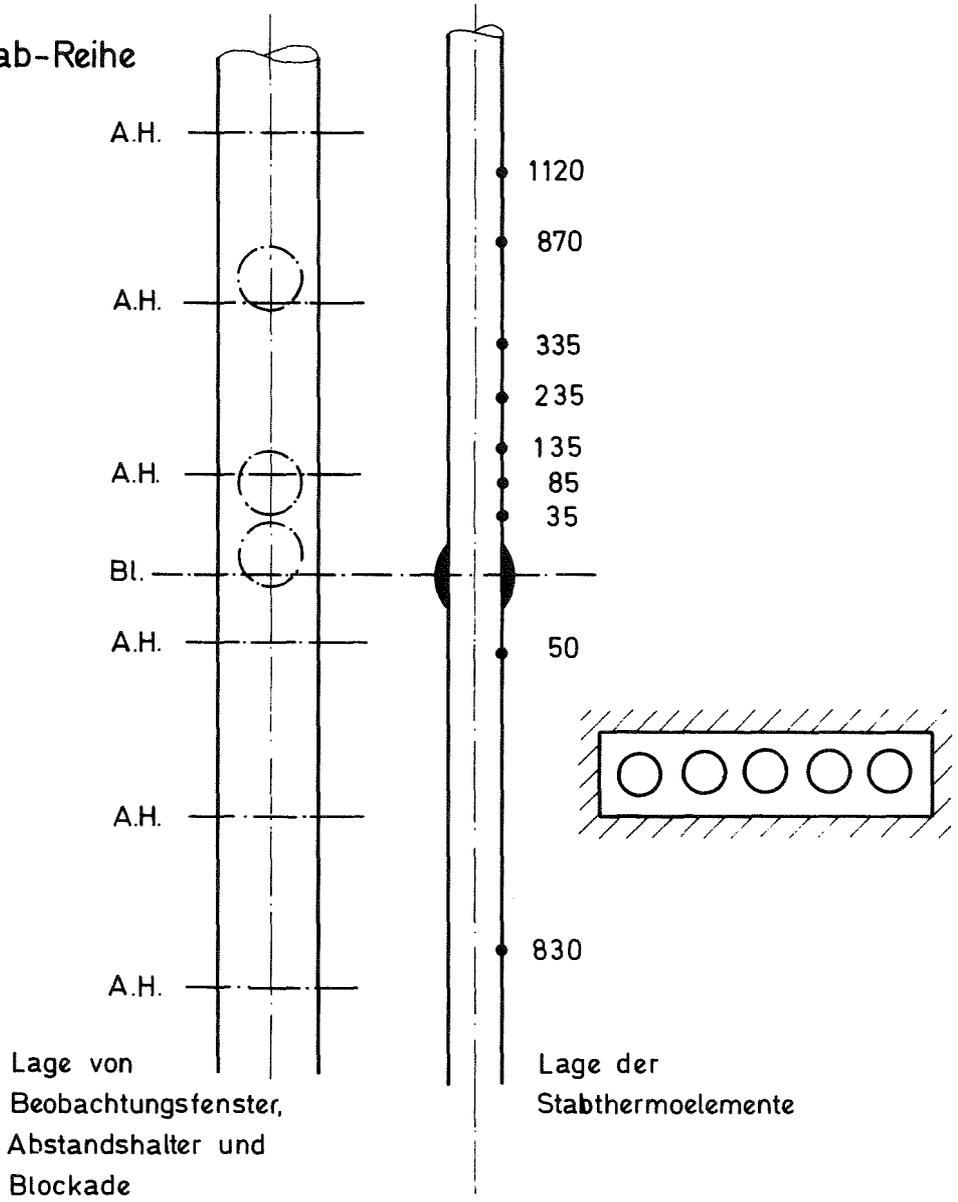
1976

Versuchsaufbau (schematisch)

Abb. 10

PNS 4239

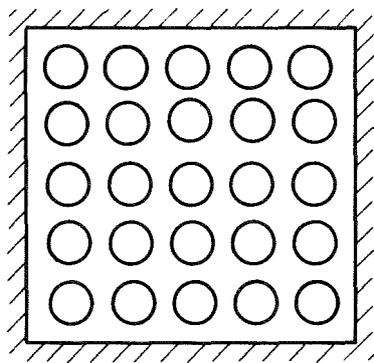
5-Stab-Reihe



Lage von
Beobachtungsfenster,
Abstandshalter und
Blockade

Lage der
Stabthermoelemente

25-Stab-Bündel



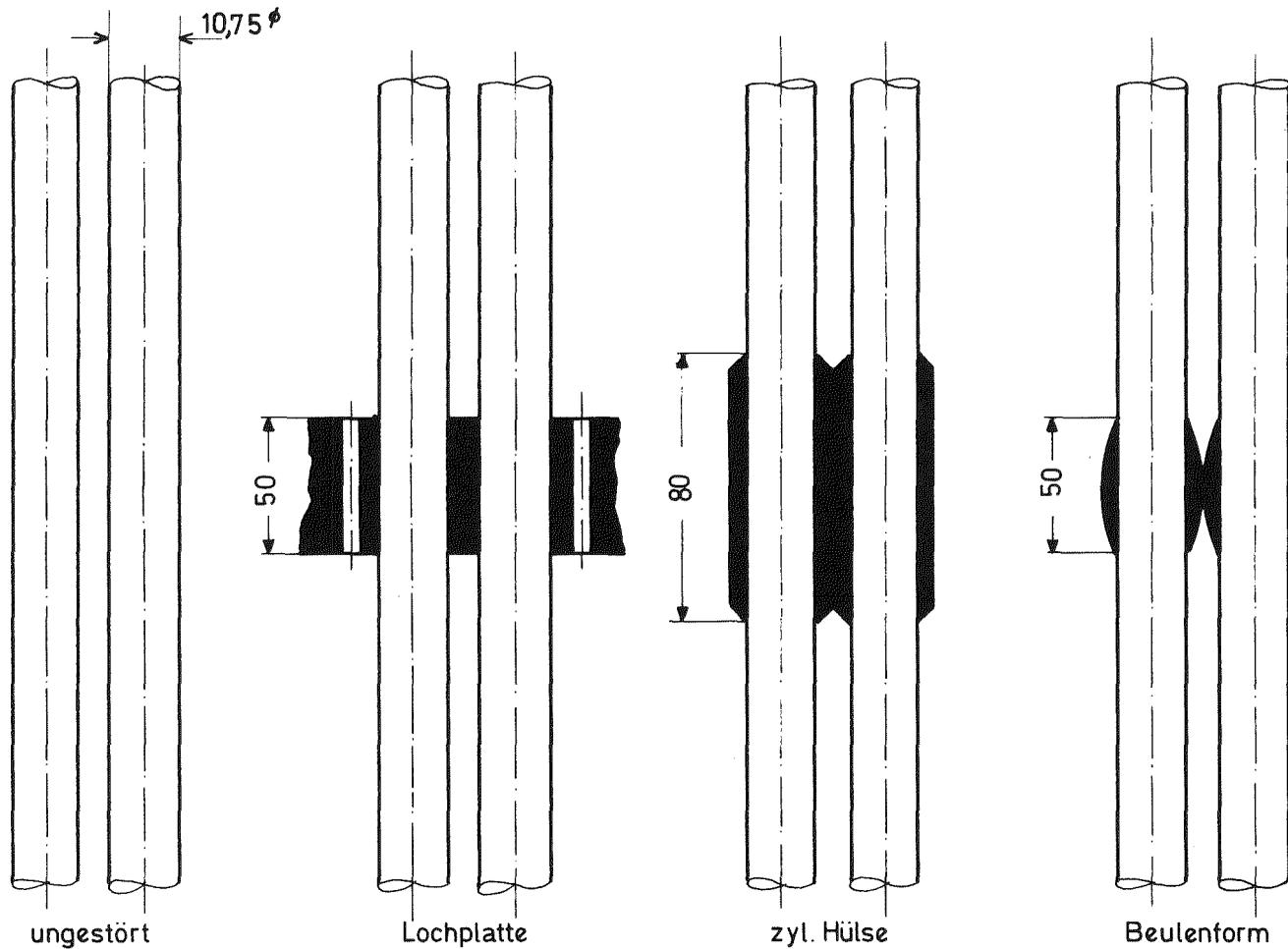
GfK - IRB

1976

Testanordnung Stabreihe - Stabbündel

Abb. 11

PNS 4239



freier Kühlkanal in Blockade zu ungestörtem Kanalquerschnitt 10; 25; 38; 100 %

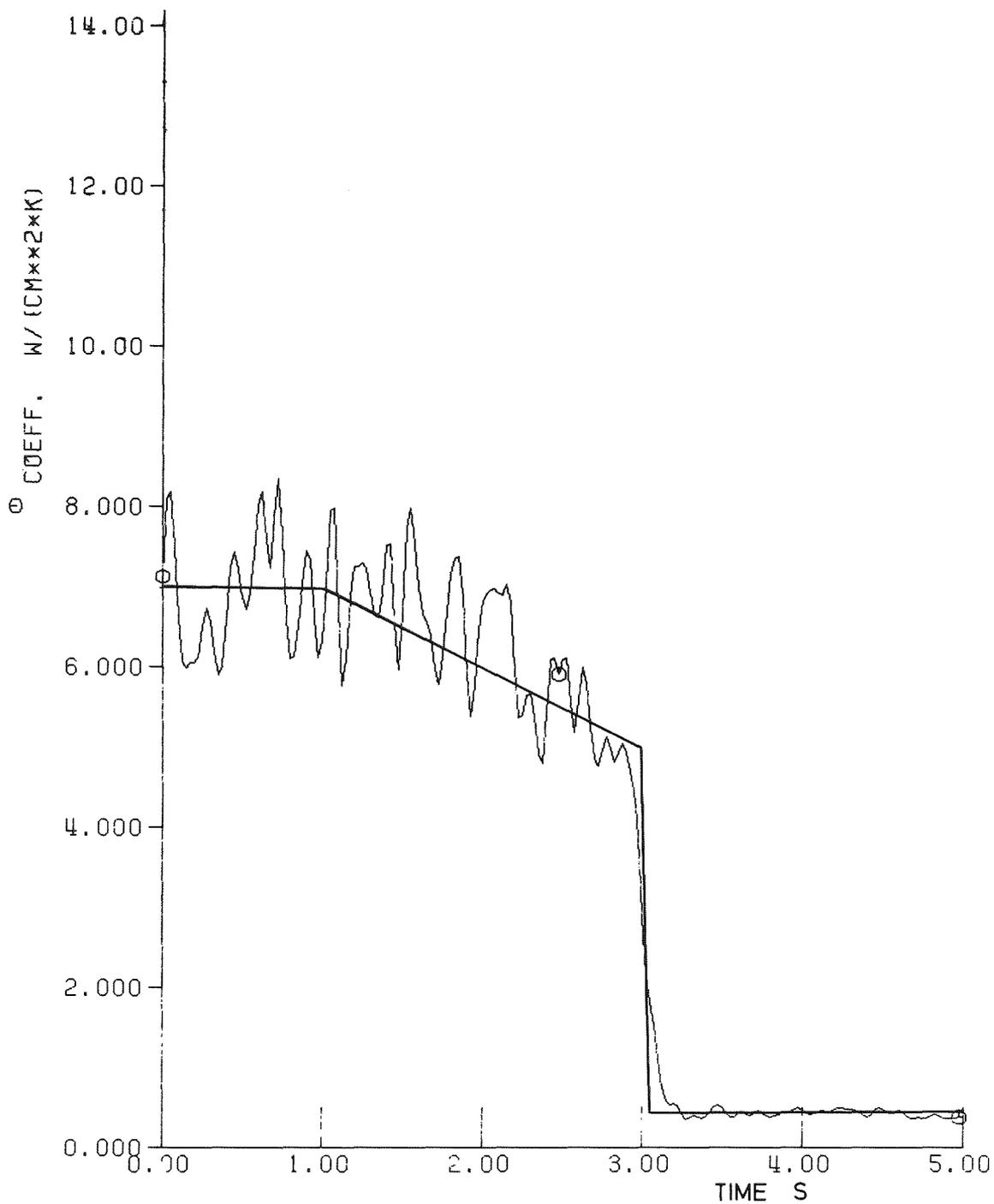
GfK-IRB

1976

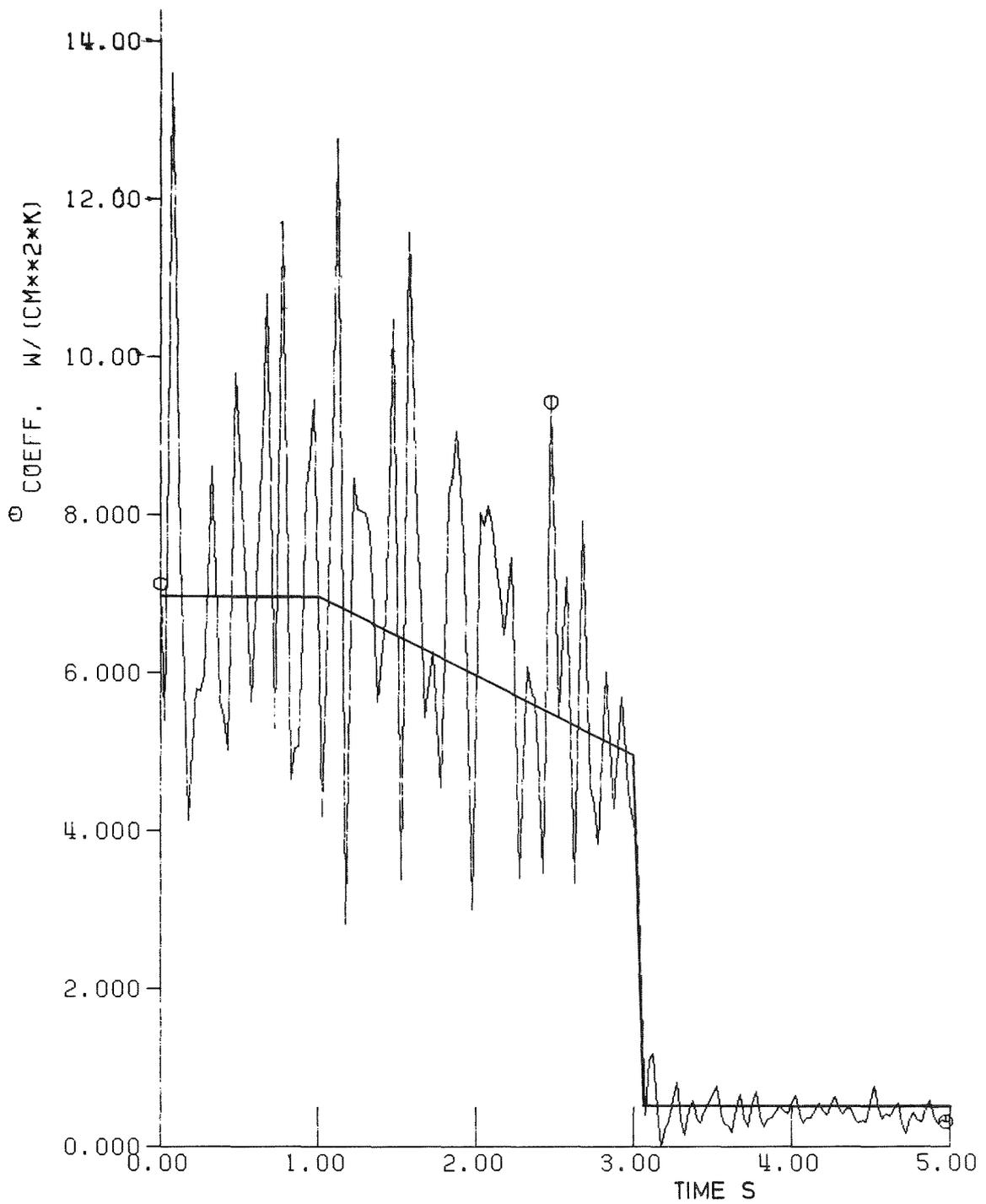
Blockadetypen

Abb. 12

PNS 4239



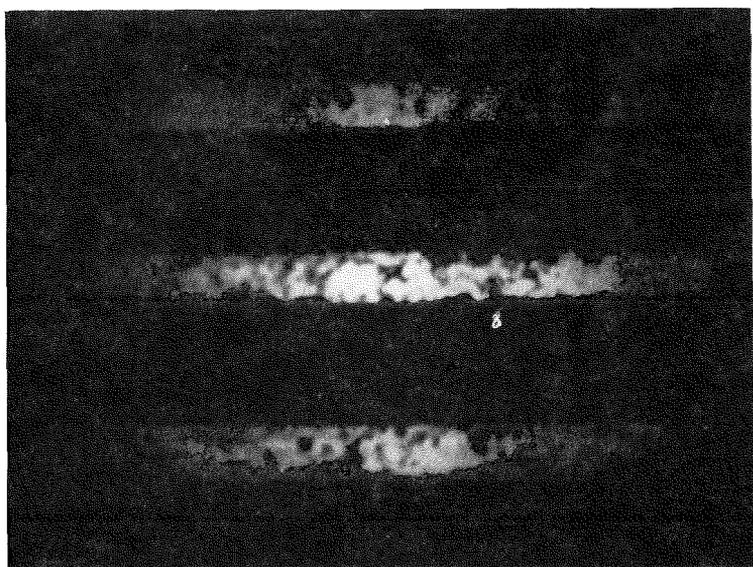
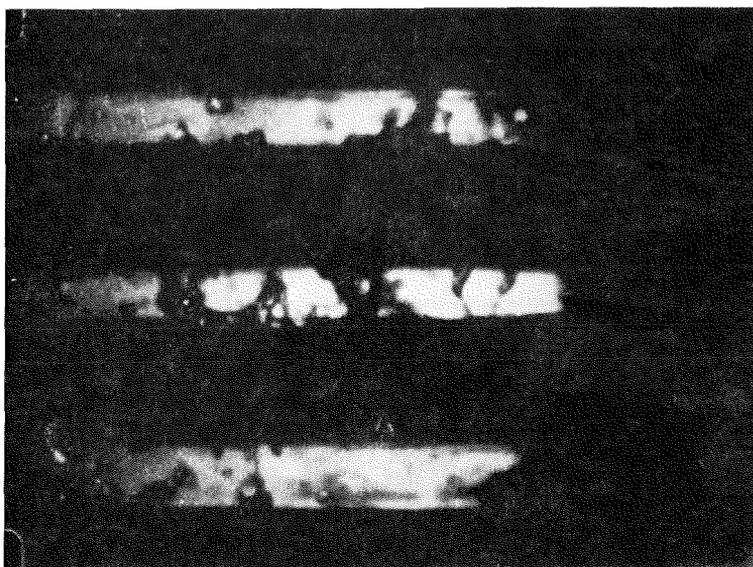
GfK - IRB	Berechnete Wärmeübergangszahlen mit Dämpfung	Abb. 13
1976		PNS 4239



GfK - IRB
1976

Berechnete Wärmeübergangszahlen
ohne Dämpfung

Abb. 14
PNS 4239



H
10 mm

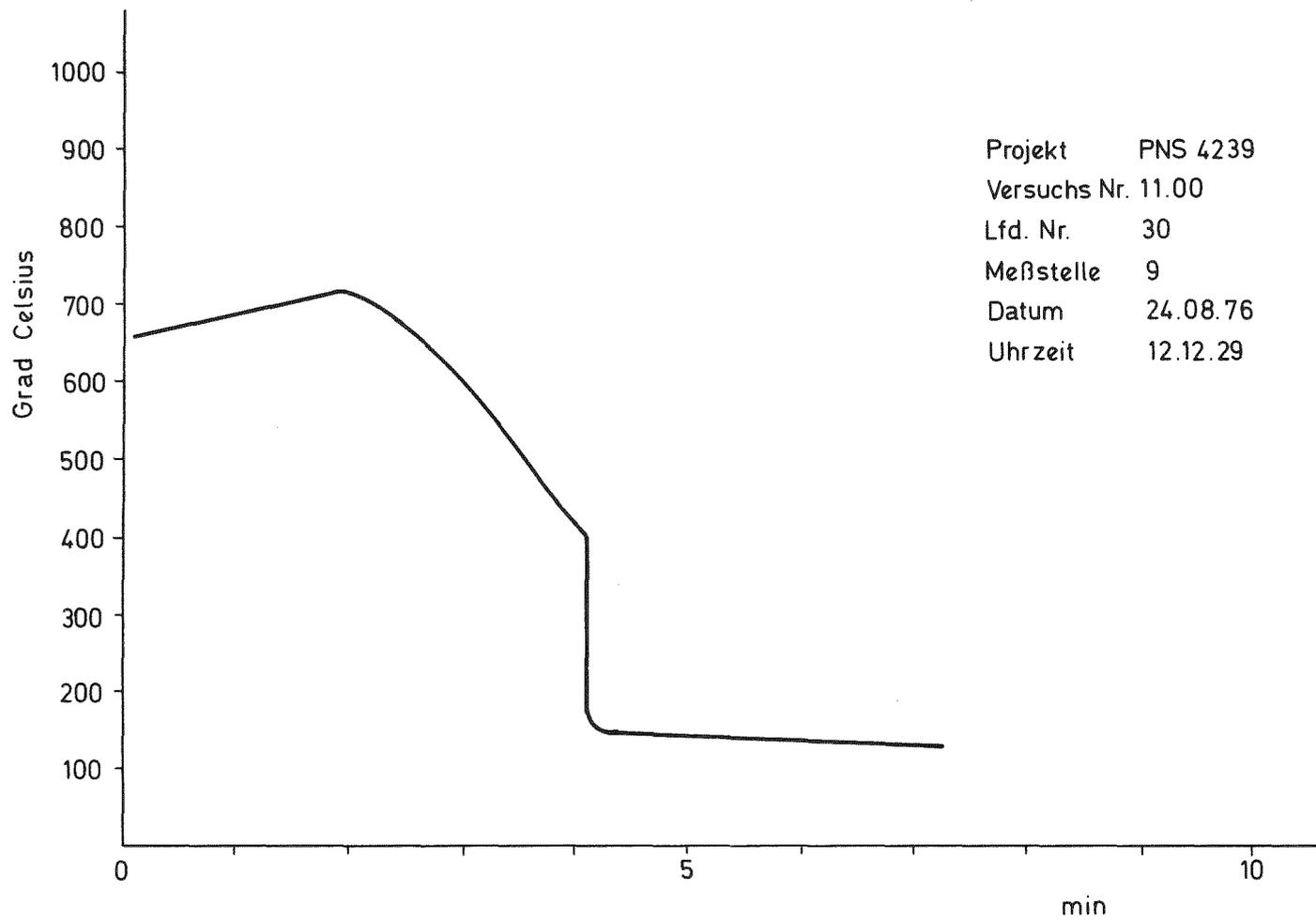
GfK - IRB

1976

Strömungszustände beim Fluten

Abb. 15

PNS-4239



Projekt PNS 4239
 Versuchs Nr. 11.00
 Lfd. Nr. 30
 Meßstelle 9
 Datum 24.08.76
 Uhrzeit 12.12.29

GfK - IRB

1976

Typische Staboberflächentemperatur beim Fluten

Abb. 16

PNS 4239

JAHRESKOLLOQUIUM 1976
des
PROJEKTS NUKLEARE SICHERHEIT

Modellrechnungen zum Brennstabverhalten beim
Kühlmittelverluststörfall mit dem Programmsystem SSYST-MOD 1

R. Meyder
Institut für Reaktorentwicklung

1. Einleitung

Zur Beurteilung der Sicherheit von Leichtwasser-gekühlten Kernkraftwerken wird unter anderem die Frage behandelt: Wie verhalten sich die Brennstäbe eines Reaktors während eines angenommenen Störfalls?

Die betrachteten Störfallarten reichen dabei von Kühlmittelverluststörfällen, d.h. Leitungsbrüchen, die mehr oder weniger große Querschnitte freilegen, bis zu Störfällen, bei denen Wärmeerzeugung und Kühlung unbeabsichtigt aus dem Gleichgewicht kommen (power-cooling-mismatch).

Wichtige Daten zur Beurteilung der Sicherheit des Reaktors während bzw. nach derartigen Störfällen sind das Überschreiten kritischer Temperaturen, das Bersten des Hüllrohres und/oder seine bleibende Verformung.

Von der Vielfalt der Störfälle wird derzeit der Kühlmittelverluststörfall vordringlich behandelt. Er führt dazu, daß das Hüllrohr über eine gewisse Zeit bei Innendruckbeanspruchung erhöhten Temperaturen ausgesetzt ist. Diese Beanspruchung führt, abhängig vom Innendruck und der Hüllrohrtemperatur, zu Verformungen des Hüllrohres, wie sie z.B. in Abb. 1 dargestellt sind.

in inerter Atmosphäre

Man sieht darin, daß die Hüllrohre je nach Innendruck und Temperatur Dehnungen von 100 % und mehr erreichen können. Berücksichtigt man, daß bei den heute üblichen Stababstand zu Stabdurchmesserhältnissen eine gegenseitige Berührung der Hüllrohre schon bei 30 % Dehnung vorliegt, so erkennt man, daß die Kühlbarkeit der Brennstäbe lokal beeinträchtigt werden kann. Die Bezeichnung lokal wurde deshalb gewählt, weil sich die Brennstäbe in einem Reaktor nach ihrer Leistung, d.h. ihrer Temperatur während eines Störfalles und in ihrem Innendruck unterscheiden. Solche Unterschiede haben aber, wie aus Abb. 1 ersichtlich, einen sehr starken Einfluß auf die erreichbare Enddehnung.

Die Ermittlung der Anzahl der Stäbe, die Dehnungen von z.B. mehr als 30 % erreichen, erfolgt für Genehmigungszwecke derzeit in zwei Schritten. Zunächst wird der Temperaturverlauf des Hüllrohres während des Störfalles ohne Rückwirkung der Hüllrohrverformung auf das Stabverhalten bestimmt. Für die Erfassung der Rückwirkungen werden dann Experimente mit Brennstabsimulatoren herangezogen, die einen vergleichbaren Temperaturverlauf für das Hüllrohr aufweisen. Aus diesen Experimenten wird dann die erreichbare Dehnung abgelesen.

Um zu Aussagen für das Verhalten des ganzen Cores zu kommen, teilt man die Brennstäbe des Cores in Klassen, die nach Leistung und Innendruck gestuft sind, ein. Dabei wird angenommen, daß die Verformung eines Stabes einer Klasse repräsentativ für die Verformung aller Stäbe dieser Klasse ist. Die Mittelwerte und Variationsbreiten von Leistung und Innendruck für die einzelnen Klassen werden derart gewählt, daß insbesondere der Bereich großer Dehnungen, wie er in Abb. 1 dargestellt ist, mit ausreichender Genauigkeit erfaßt wird.

Die vom Projekt Nukleare Sicherheit getragene und vom IRE/GfK und IKE/Stuttgart gemeinsam durchgeführte Programmentwicklung SSYST /2/ zur analytischen Beschreibung des Brennstabverhaltens bei Kühlmittelverluststörfällen hält an dem eingeschlagenen Weg der Betrachtung von Einzelstäben und dem Konzept der Klassenbe-

trachtung fest. Ihr Ziel ist, in Ergänzung des Verfahrens der ungekoppelten Betrachtung

- a) die physikalischen Vorgänge im Brennstab wie
 - Thermo- und Fluidodynamik im Unterkanal
 - Wärmeleitung im Brennstab
 - Wärmeübergang im Spalt
 - Oxidation des Hüllrohres
 - Brennstabinnendruck
 - Mechanik des Brennstoffs und der Hüllein ihrer Wechselwirkung zu beschreiben.
- b) nach einer Überprüfung des erstellten Programmsystems an in-pile und out-of-pile Versuchen zu quantitativen Aussagen über maximale Temperaturen und Verformungen bzw. Bersten am Einzelstab zu kommen.
- c) durch Anwendung statistischer Methoden das oben erwähnte Klassenkonzept zu verfeinern.

Um diese Ziele zu erreichen, wurde das Programmsystem SSYST erstellt, das einmal Modelle für alle unter a) aufgeführten Vorgänge enthält und durch seine Konzeption als Programmsystem die Untersuchung von Einfluß und Wechselwirkung einzelner Modelle auf einfache Weise ermöglicht. Gulden /3/ hat darüber vor zwei Jahren an dieser Stelle berichtet.

Der Stand der Programmentwicklung kann so charakterisiert werden: SSYST-MOD 1, die erste Version des Programmsystems, befindet sich in der Anwendung. Untersucht wird derzeit der Einfluß und die Wechselwirkung einzelner Modelle. In geringerem Umfang werden auch einzelne Modelle an Experimenten überprüft. Ein globaler Vergleich zwischen SSYST-MOD 1 und der von der US NRC getragenen Entwicklung FRAPT /4/, zur Beschreibung des Brennstabverhaltens bei Störfällen, zeigte eine weitgehende Übereinstimmung der Ergebnisse.

2. Modellrechnungen zum Brennstabverhalten während der Blowdown-Phase

Ein Kühlmittelverluststörfall wird in drei Abschnitte unterteilt, nämlich "Blowdown", "Refill" und "Reflood", also der Druckabbau-phase des Primärsystems bis zum Druckausgleich mit dem Containment, der Wiederauffüllphase, bis der Flüssigkeitsspiegel die Coreunterkante erreicht hat und der Flutphase, bis das gesamte Core mit Wasser aufgefüllt ist.

Für die Verformung der Hüllrohre ist dabei das Ende der Blowdown-Phase und die Refillphase besonders ungünstig, da in diesem Zeitraum der Stab unter vollem Innendruck bei nur schwacher Kühlung steht. Die in dieser Zeit erreichbaren Hüllrohrtemperaturen hängen von der während der Blowdown-Phase erzielten Abkühlung bzw. Entspeicherung des Stabes ab, und wie in Abb. 1 ersichtlich, können selbst kleine Unterschiede in der Temperatur zu großen Unterschieden in den Dehnungen führen.

Die nachfolgend zu diskutierenden Rechnungen zielen auf den Nachweis des sinnvollen Zusammenspiels der im Programmsystem enthaltenen Modelle. Dazu werden beginnend mit einer reinen Wärmeleitrechnung alle in SSYST enthaltenen Modelle nacheinander zugeschaltet. Auf diese Weise wird der Einfluß und die Wechselwirkung einzelner Modelle deutlich. Nicht zugeschaltete Modelle werden dadurch überbrückt, daß ihre Ergebnisse für den stationären Zustand auch für die Transiente übernommen werden.

Der Umfang der durchgeführten Rechnungen ist in Tabelle 1 zusammengestellt.

2.1 Randbedingungen und Eingabedaten

Betrachtet wird das Verhalten eines Brennstabsimulators, wie er in etwa auch in dem out-of-pile Blowdown- Versuchsstand PNS 4236 eingesetzt werden wird. Der Stab besitzt eine beheizte Länge von 50 cm, daran schließen sich in unseren Rechnungen unmittelbar das untere Gasplenum mit ca. 16 cm^3 und das obere Gasplenum mit ca. 9 cm^3 an. Die Spaltweite beträgt im kalten Zustand $50 \text{ }\mu\text{m}$ radial. Die Heizleistung wurde für diese Rechnungen mit 600 W/cm angenommen, es wird keine axiale Leistungsverteilung modelliert. Der stationäre Innendruck beträgt 70 bar.

Die Randbedingungen im Unterkanal für die SSYST-Analyse wurden mit einer RELAP3 /5/ Rechnung, die das Verhalten des Kreislaufs beschreibt, bestimmt. Da die axiale Variation dieser Daten, nämlich Temperatur, Druck und Wärmeübergangszahl ins Kühlmittel, gering war, wurden Mittelwerte gebildet und diese konstant entlang der gesamten Stablänge vorgegeben.

Aufgrund der axial konstanten Randbedingungen genügt es, für eine axiale Position Temperatur, Wärmeübergang und Radian aufzuzeigen.

2.2 Ergebnisse

Abb. 2 zeigt den Verlauf der Zentral- und Hüllrohrtemperatur für Fall 1, in dem nur Wärmeleitung gerechnet wird und die Wärmeübergangszahl im Spalt konstant bleibt. Man erkennt, daß sich zunächst ein steiler Temperaturanstieg im Hüllrohr einstellt, der auf die Reduktion der Wärmeübergangszahl ins Kühlmittel um ca. zwei Größenordnungen zurückzuführen ist. Da praktisch gleichzeitig mit der Reduktion der Wärmeübergangszahl ins Kühlmittel auch die Leistung im Stab auf wenige Prozent der nominellen ($\hat{=}$ Nachzerfallsleistung) fällt, wird auch der radiale Temperaturgradient von anfänglich ca. 2000 K auf ca. 200 K reduziert. Die Maximaltemperatur im Hüllrohr wird bei ca. 5 sec mit 1350 K erreicht. Am Ende des Blowdown beträgt sie ca. 1000 K. Diese Werte sind nur begrenzt auf Reaktorbedingungen übertragbar, da die hier zugrunde gelegte Stableistung von 600 W/cm sich am betrachteten Versuchsstand PNS 4236 orientiert.

Da im Fall 2 nur die Brennstabmechanik zugeschaltet wird, und deren Auswirkung auf die Wärmeübergangszahl im Spalt in diesem Fall nicht berücksichtigt wird, sind im Fall 1 und 2 die Temperaturverläufe praktisch identisch.

Abb. 3 zeigt den Verlauf der Spaltweite, die durch den Radius der Brennstoffoberfläche und den Radius der Hüllrohrinnenseite gegeben ist, im Vergleich zu Fall 1. Der Radius der Brennstoffoberfläche nimmt geringfügig ab, gemäß der Absenkung der mittleren Temperatur im Brennstoff. Der Innenradius der Hülle nimmt zunächst aufgrund thermischer Dehnung zu; da mit zunehmender Temperatur aber auch die Festigkeitseigenschaften der Hülle abnehmen, genügt der Druck im Unterkanal, um die Hülle nach ca. 2 sec wieder auf den Brennstoff zu drücken. Erst nach ca. 7 sec ist der Druck im Unterkanal unter 70 bar gesunken. Ab etwa diesem Zeitpunkt setzt infolge des wachsenden Differenzdruckes ein sehr rascher Anstieg im Hüllrohrinnenradius ein.

Im Fall 3 wird die Rückwirkung der infolge geänderter Spaltgeometrie veränderten Wärmeübergangszahl im Spalt auf die Wärmeleitung berücksichtigt. Abb. 4 zeigt den starken Abfall der Spaltwärmedurchgangszahl ab etwa der 12. Sekunde. Dieser Abfall hat zur Folge, daß die thermische Kopplung zwischen Brennstoff und Hülle abnimmt und die Hüllrohrtemperatur in diesem Zeitbereich stärker abfällt, wie in Abb. 5 dargestellt. Die Temperaturdifferenz zwischen Fall 2 und 3 beträgt ca. 40 K. Da die Verformung des Hüllrohres stark temperaturabhängig ist, wird die Enddehnung für den betrachteten Blowdown auf etwa $\frac{1}{3}$ reduziert, wie aus Abb. 6 erkennbar ist.

In den bis hierher vorgeführten Rechnungen war der Innendruck des Stabes konstant auf 70 bar gesetzt. Im Fall 4 wird nun der Stabinnendruck unter Verwendung des aktuellen Gasvolumens, d.h. der Berücksichtigung der Verformung und der aktuellen mittleren Temperatur im Gasvolumen, bestimmt.

Abb. 7 zeigt den Verlauf des Druckes im Unterkanal und des Druckes im Stab für Fall 3 und 4. Man erkennt daraus, daß die Innendruckbelastung für beide Fälle etwa zum gleichen Zeitpunkt ein-

setzt, daß aber die Verformung der Hülle, die nach dem Beginn der Innendruckbelastung einsetzt, den Innendruck um mehr als 10 bar herabsetzt.

Die so bewirkte Herabsetzung der treibenden Druckdifferenz am Hüllrohr führt zu einer Reduktion der Dehnung des Hüllrohres, wie dies auch in Abb. 8 zum Ausdruck kommt.

Wie wir aber von Fall 3 her wissen, bedeutet eine geringere Spaltweite eine höhere Wärmeübergangszahl im Spalt (Abb. 9), und diese bewirkt, wie ebenfalls aus Fall 3 hervorging, eine erhöhte Hüllrohrtemperatur (Abb. 10). Es ist jedoch deutlich erkennbar, daß diese Kette von Wirkungen in ihrem Einfluß auf nachgeordnete Vorgänge abnimmt.

Im Fall 5 wurde die Berechnung des Innendruckes mit einem anderen Modell vorgenommen. Bei diesem Modell wird unterschieden zwischen dem Gasdruck im Spalt und dem Gasdruck in den Spaltgasplena. In Abb. 11 wurde für den Fall 5 nur der für die Verformung maßgebende Gasdruck im Spalt eingetragen, der Druckverlauf in den Spaltgasplena ist in den Fällen 4 und 5 praktisch gleich. Man sieht in Abb. 11, daß jetzt zwar früher als im Fall 4 die Innendruckbelastung einsetzt, da aber die Gasplena noch einen kleineren Druck haben, genügen kleine Verformungen der Hülle, um die Druckdifferenz an ihr klein zu halten. Da nennenswerte Spannungen und Dehnungen erst dann auftreten, wenn auch im Bereich der Spaltgasplena Innendruckbelastung vorliegt und sich dieser Zeitpunkt gegenüber Fall 4 nicht verschoben hat, ist der Verlauf von Spaltweite und Temperatur unverändert.

Im Fall 6 wurde im Vergleich zu Fall 5 noch die Oxidation im Hüllrohr mitberechnet. Sie bewirkt eine Wärmequelle im Hüllrohr und eine Korrektur des Wärmeübergangs ins Kühlmittel aufgrund der unterschiedlichen Wärmeleitfähigkeit von Zirkaloy und Zirkondioxid.

Für diese Variation konnten gegenüber dem Fall 4 zwar die Effekte, wie höhere Verformung und reduzierter Wärmeübergang im Spalt, festgestellt werden, sie sind aber graphisch dargestellt nicht mehr sichtbar.

Der in diesen für den Blowdown-Versuchsstand durchgeführten Rechnungen festgestellte Einfluß einzelner Modelle ist teilweise klein. Daraus alleine läßt sich aber ihre Bedeutung für den gesamten LOCA bezogen auf die Enddehnung der Hülle nicht ableiten, da diese, wie schon eingangs erwähnt, darüberhinaus von den Vorgängen während der Refill und Refloodphase beeinflußt wird.

3. Schlußbemerkung

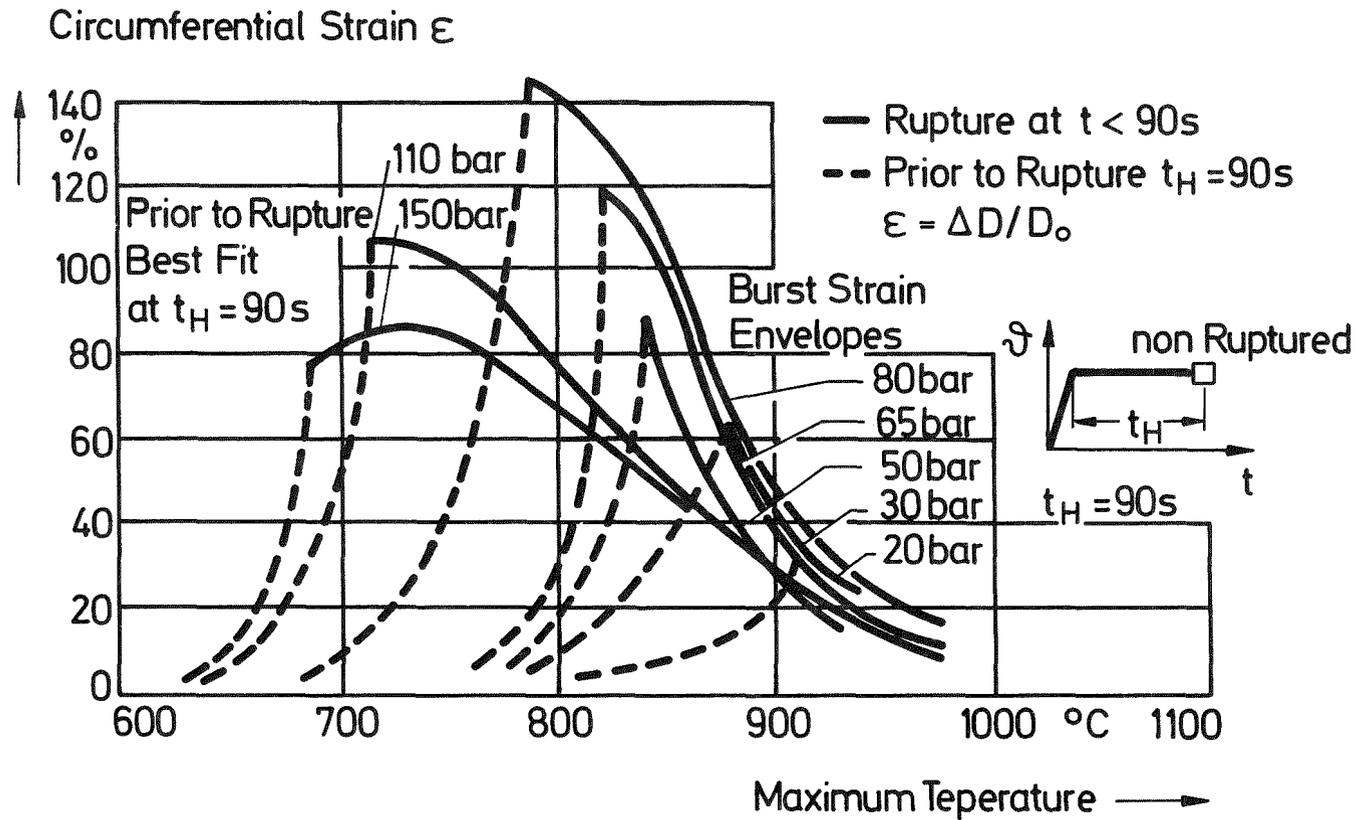
Auf der Basis des vorgestellten Programmsystemes SSYST-MOD 1 wird zur Zeit eine Störfallanalyse für das Core eines Reaktors nach dem oben erwähnten Klassenkonzept durchgeführt. Daneben wird begonnen, das Problem der Schadensfortpflanzung abzuschätzen. Es handelt sich dabei um die Klärung der Frage, ob die Störung der lokalen Kühlbedingungen, verursacht durch einen stark verformenden Brennstab, bei einem benachbarten Stab zu großen Verformungen führen kann, wenn dieser alleine betrachtet nur schwach verformt.

Mit diesen Informationen wird dann eine obere Grenze der Anzahl versagender Stäbe gezogen werden können. Eine Verbesserung, d.h. Reduktion dieser Zahl wird erwartet, wenn uns die im IRE in Entwicklung befindlichen Methoden der Statistik zur Verfügung stehen, die die Häufigkeit des gleichzeitigen Auftretens mehrerer ungünstiger Einflüsse berücksichtigen.

Wenn auch bisher noch keine detaillierten Vergleiche zwischen den Ergebnissen von SSYST-Rechnungen und integralen Experimenten vorliegen, hat die bisherige Anwendung des Programmsystems SSYST-MOD 1 gezeigt, daß das Brennstabverhalten unter Störfallbedingungen zufriedenstellend wiedergegeben wird.

Literatur

- /1/ H.G. Weidinger, G. Cheliolis, H. Watzinger, H. Stehle:
LOCA Fuel Rod Behaviour of KWU Pressurized Water Reactors
Specialist meeting Spatind, Nord Torpa (Norway)
13. - 16. September 1976
- /2/ W. Gulden et.al.:
Das Programmsystem SSYST-MOD 1 zur Berechnung des
LWR Brennstabverhaltens
Reaktortagung 1976 Düsseldorf
- /3/ W. Gulden, R. Meyder:
Die analytische Beschreibung des Brennstabverhaltens beim
Kühlmittelverluststörfall von LWR mit dem Programmsystem SSYST
PNS Jahreskolloquium 1974, KFK 2101
- /4/ I.A. Dearien et.al.:
FRAPT 2 - A Computer Code for the Transient Analysis
of Oxide-Fuel Rods. Vol. 1
RE-S-76-169, Sept. 76
- /5/ W.H. Rettig:
RELAP 3 - A Computer Program for Reactor Blowdown Analysis,
IN - 1321 (June 1970).



Umfangsdehnung über der Maximaltemperatur aus Kriechburstversuchen IRE bei verschiedenen Innendrücken aus [1]

GfK
Abb. 1

→ Modell

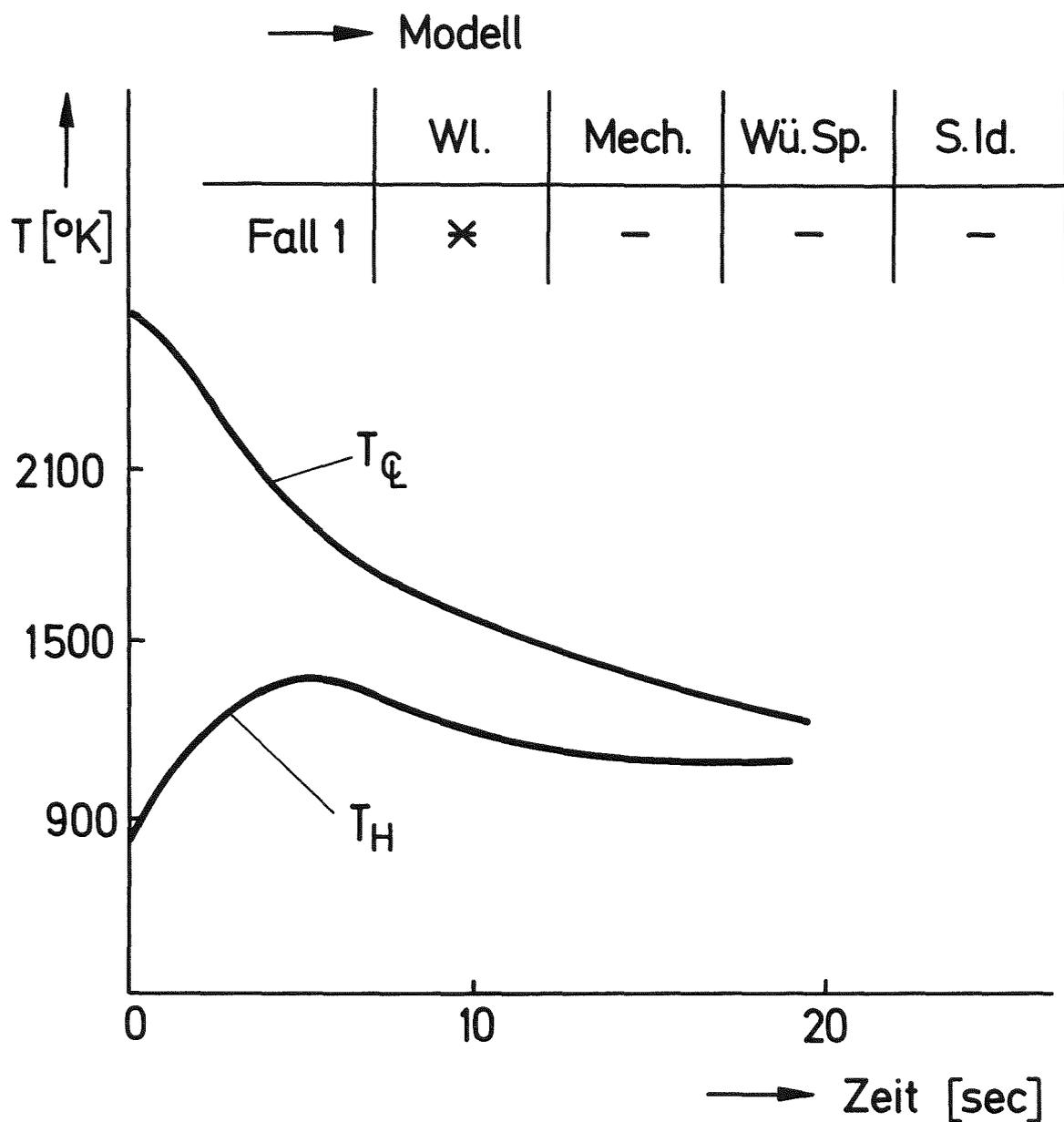
	Wärme leitung (Wl.)	Stab Mechanik (Mech.)	Wärmeüber- gang Spalt (Wü.Sp.)	Stab Innendruck (S.Id.)	Oxidation d. Hülle (Ox.)
Fall 1	✖	—	—	—	—
Fall 2	✖	✖	—	—	—
Fall 3	✖	✖	✖	—	—
Fall 4	✖	✖	✖	global	—
Fall 5	✖	✖	✖	lokal	—
Fall 6	✖	✖	✖	lokal	✖

- 135 -

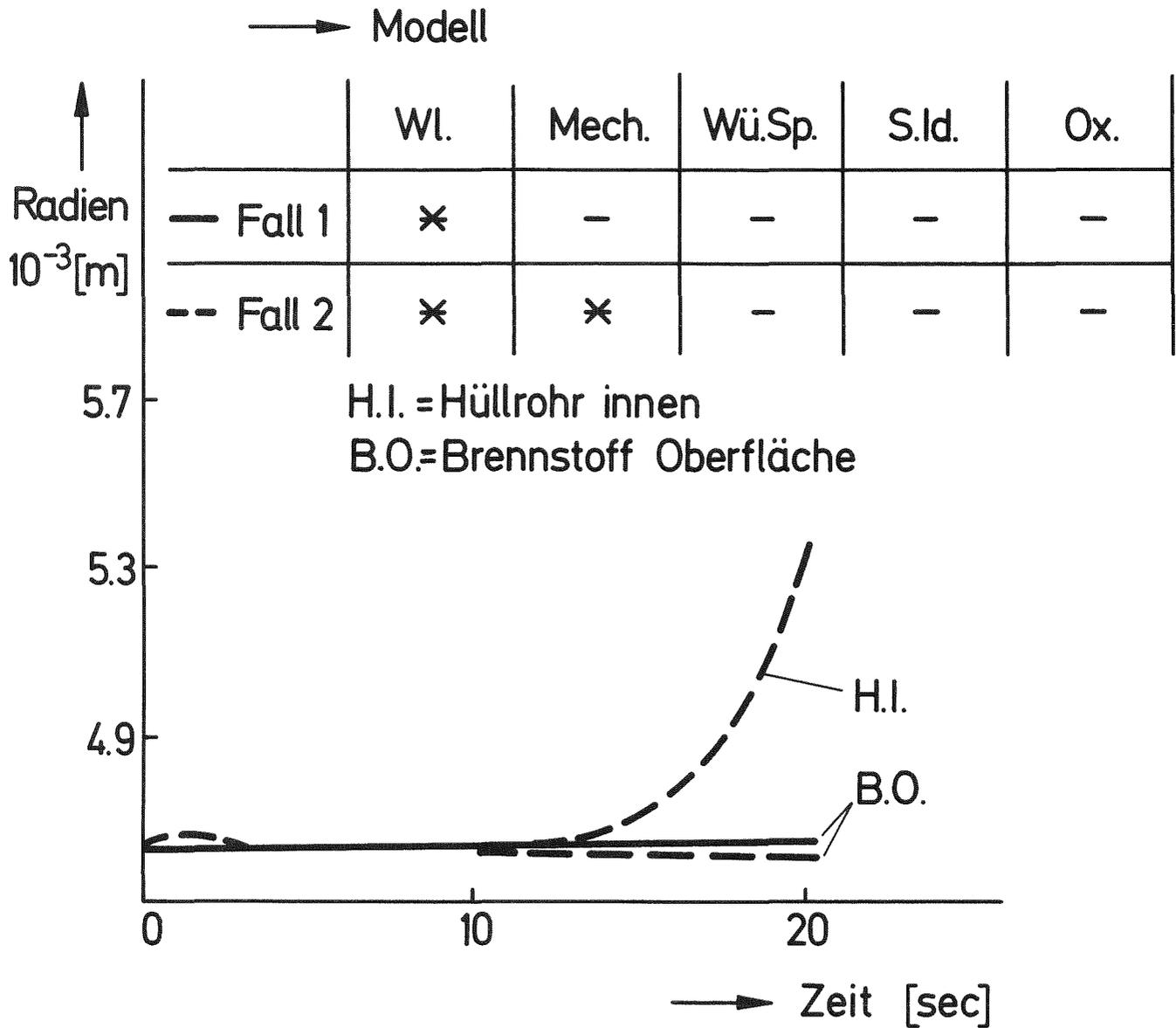
Zusammenstellung der durchgeführten Rechnungen

GfK
IRE
Tab. 1

7000-7

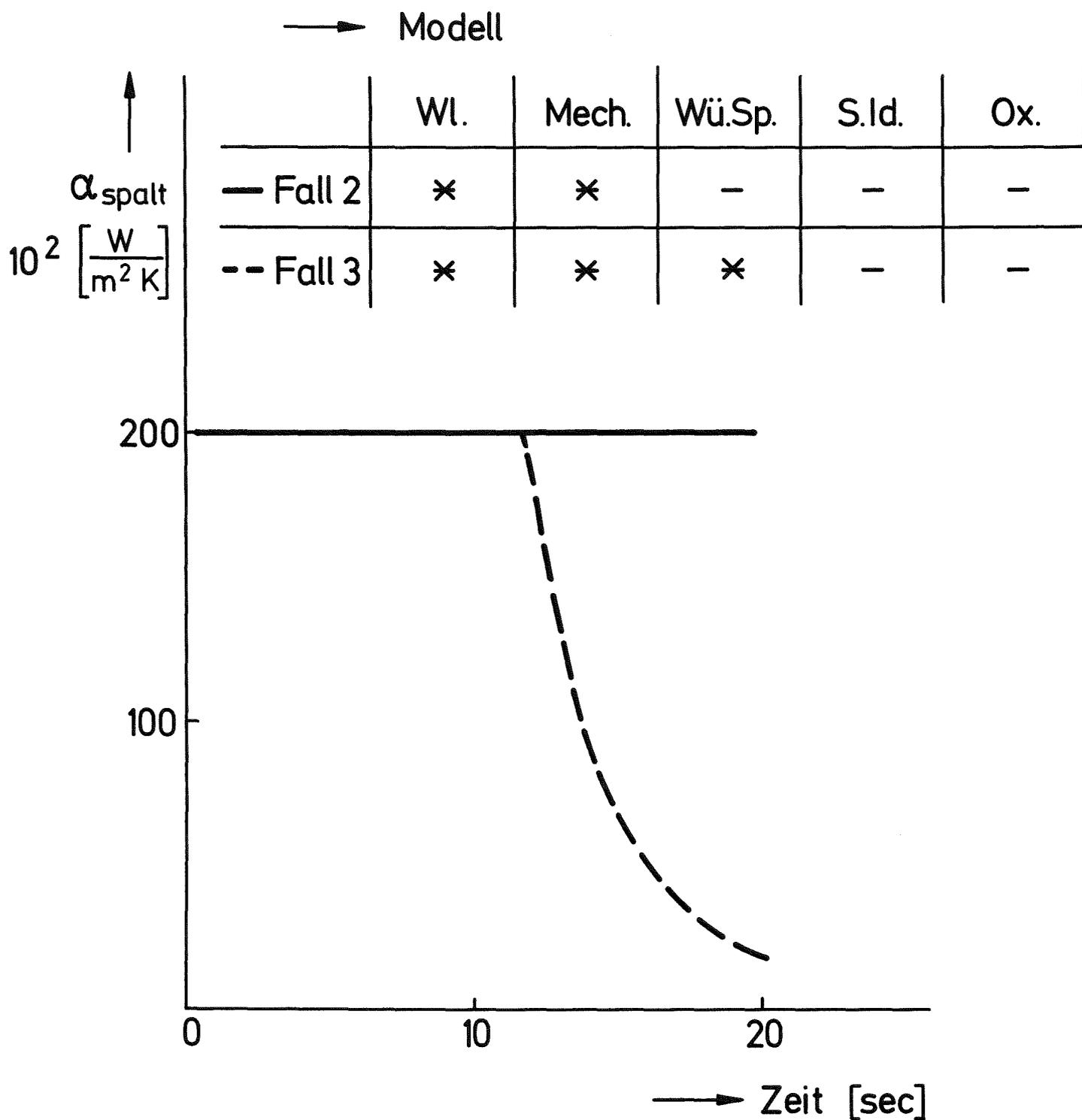


Zentral- und Hüllrohrtemperatur für Fall 1.



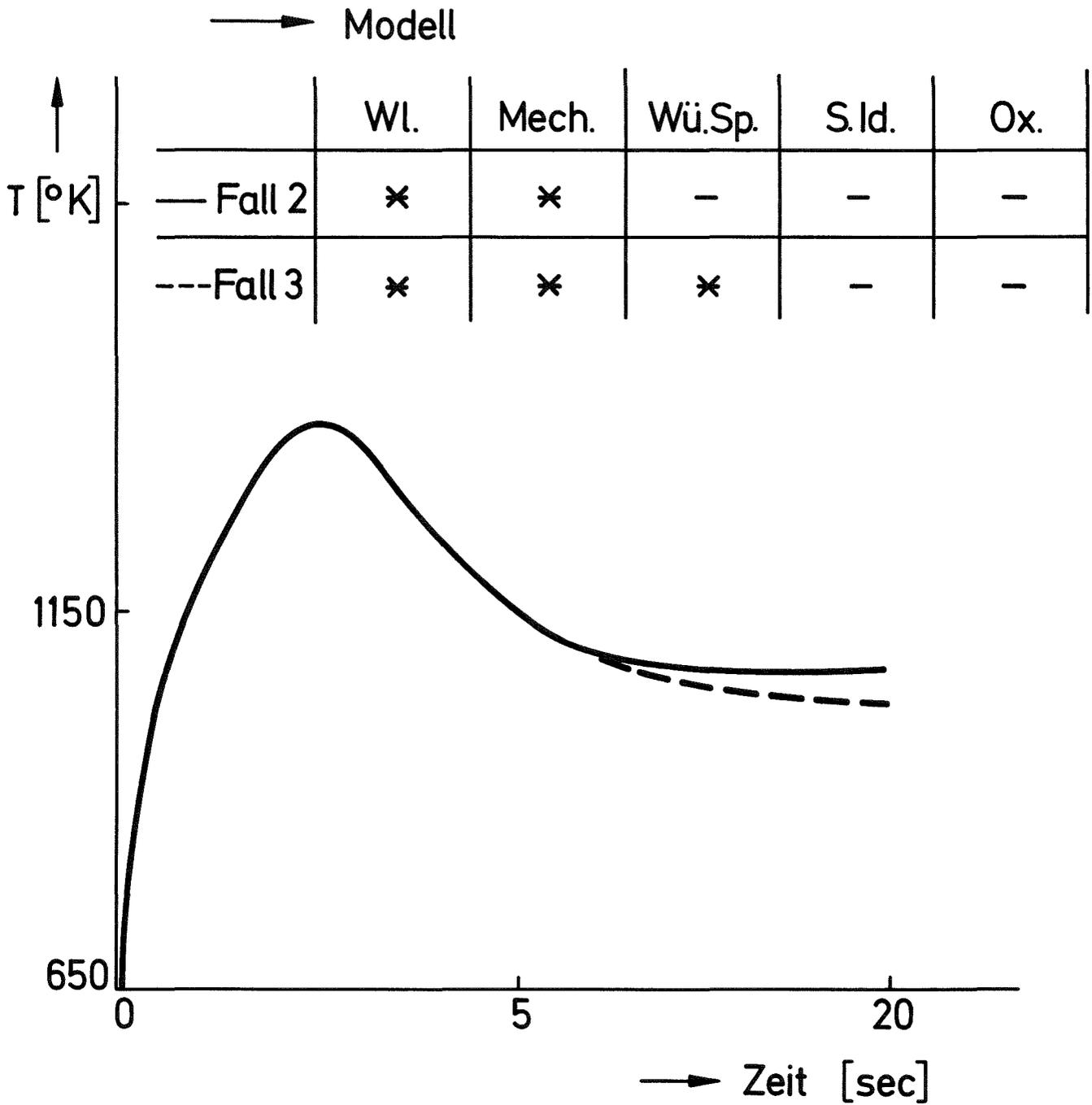
Vergleich der Spaltweite zwischen
Fall 1 und Fall 2

GfK
IRE
Abb. 3



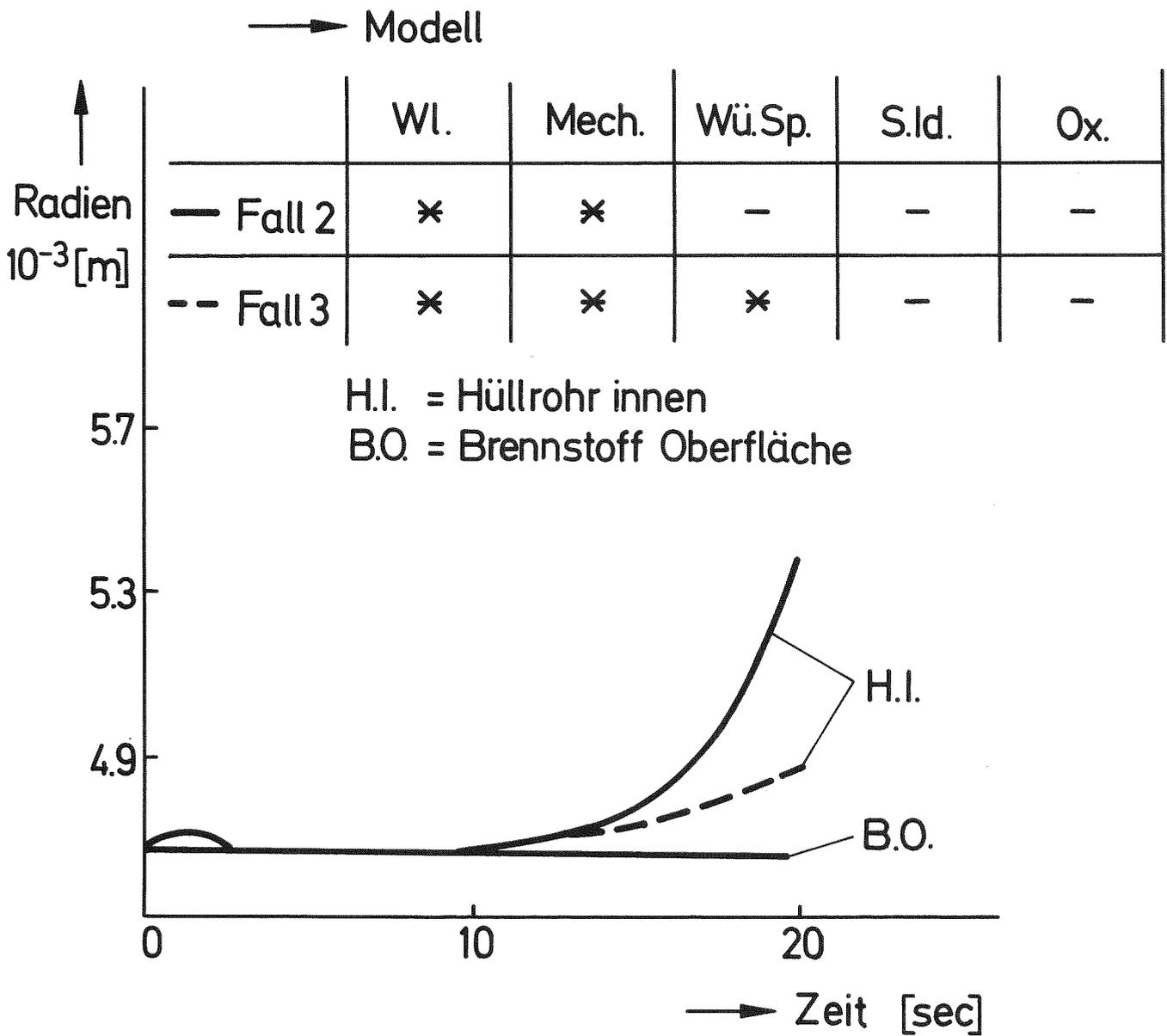
Einfluß der Spaltweite auf die Wärmeübergangszahl im Spalt

GfK
IRE
Abb. 4



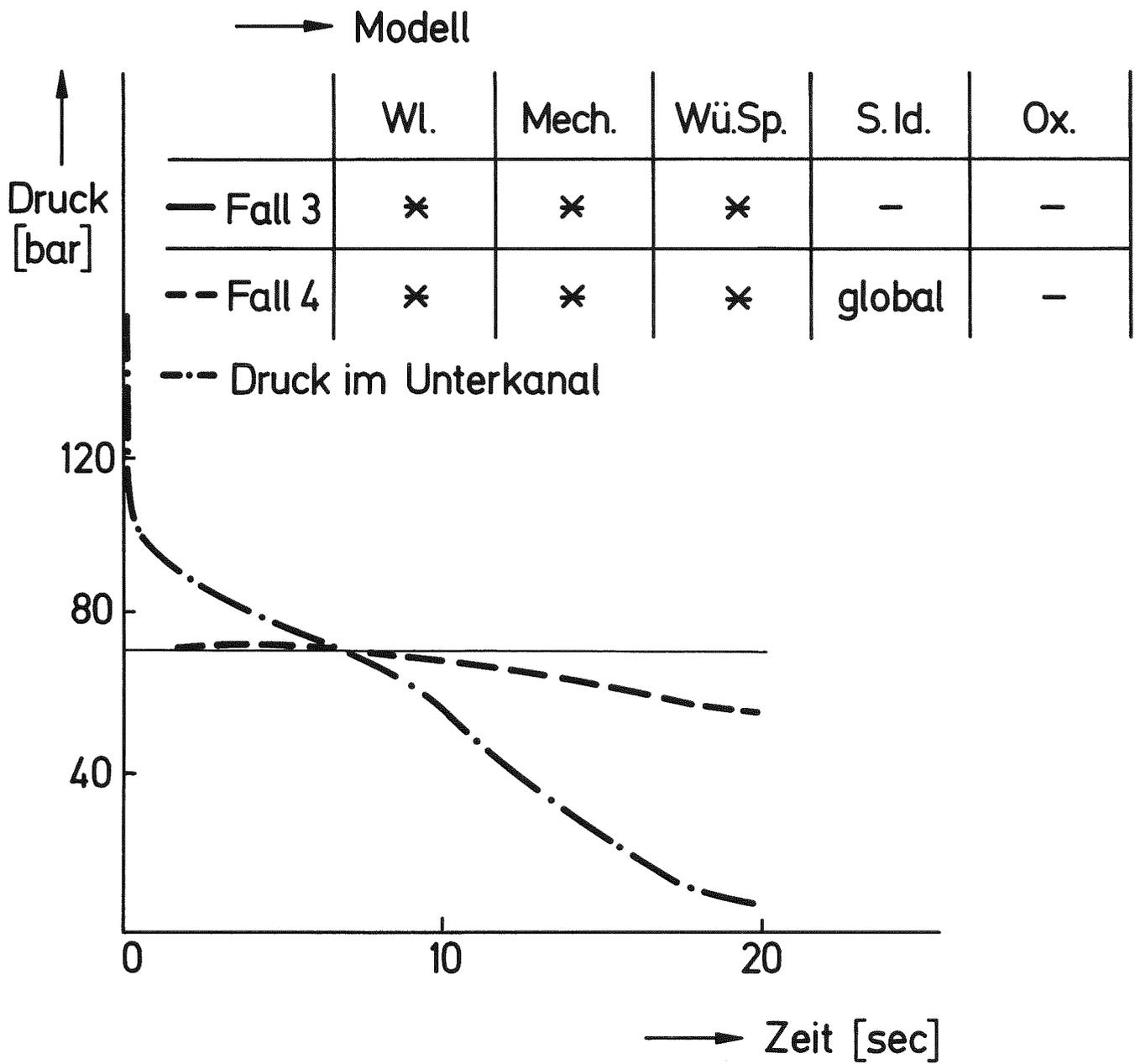
Einfluß der veränderten Wärmeübergangszahl
im Spalt auf die Hüllrohrtemperatur

GfK
IRE
Abb. 5



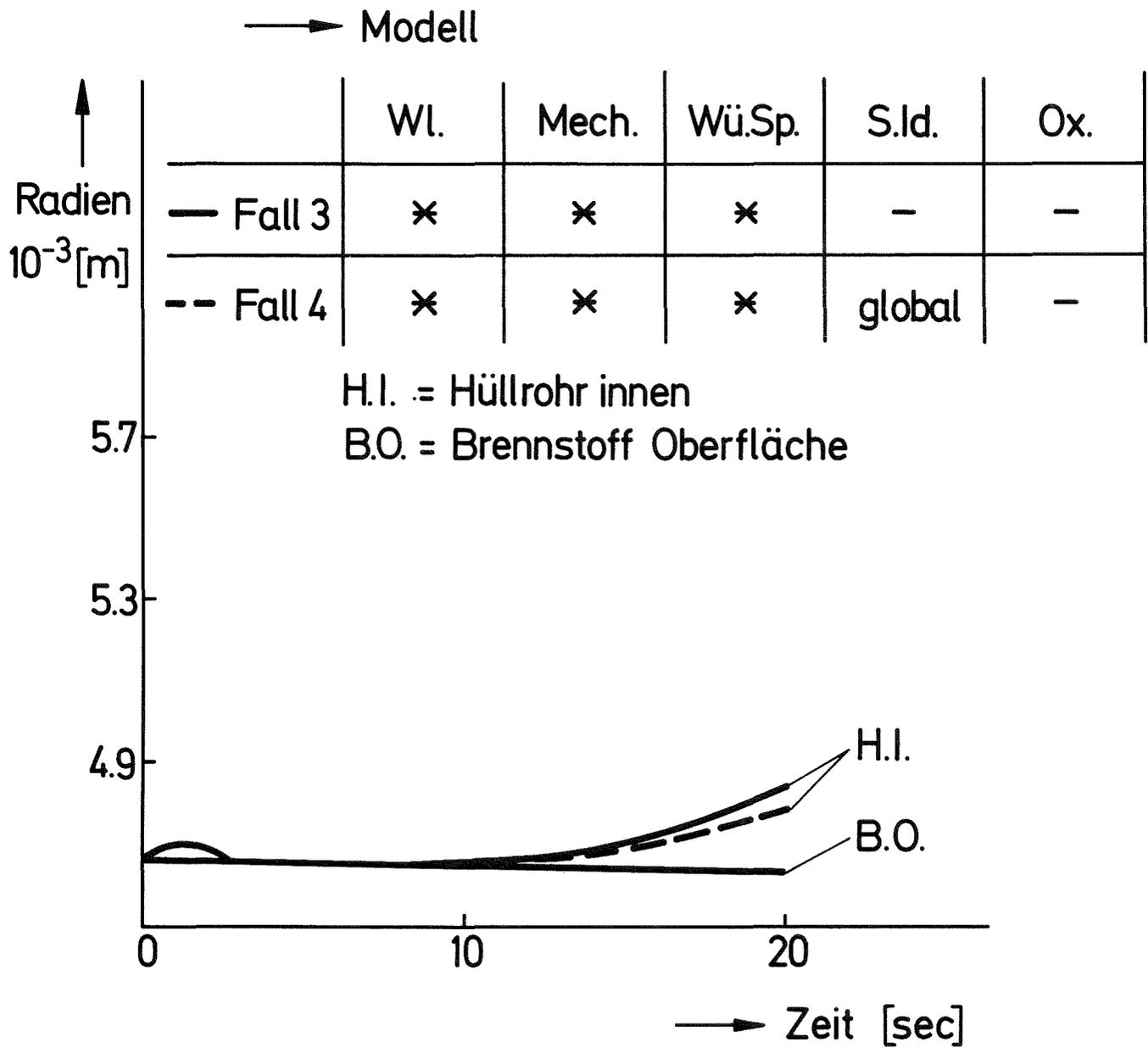
Einfluß des Wärmeübergangmodells
im Spalt auf die Spaltweite

GfK
IRE
Abb. 6



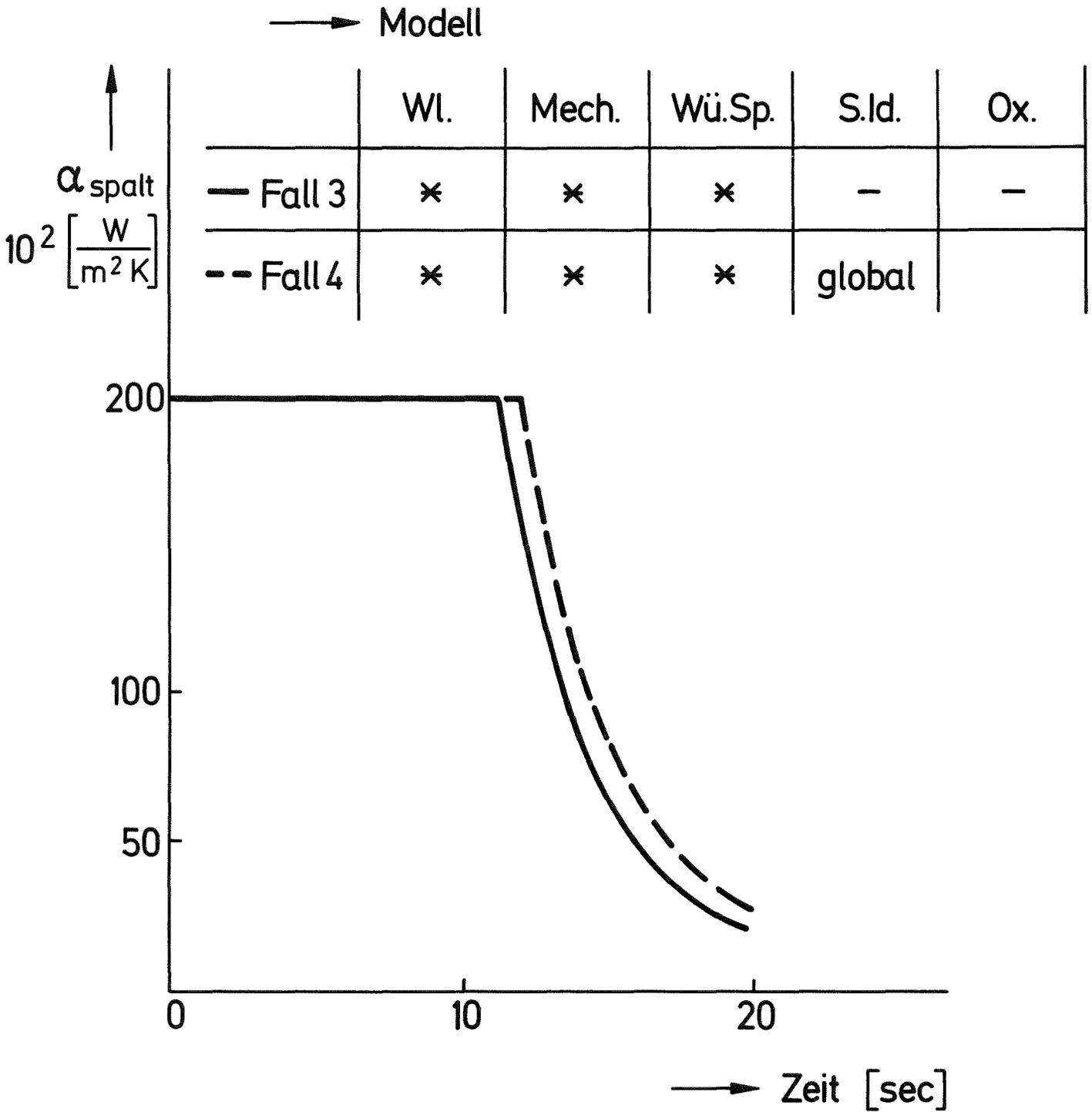
Einfluß des globalen Innendruckmodells
auf den Druckverlauf im Stab

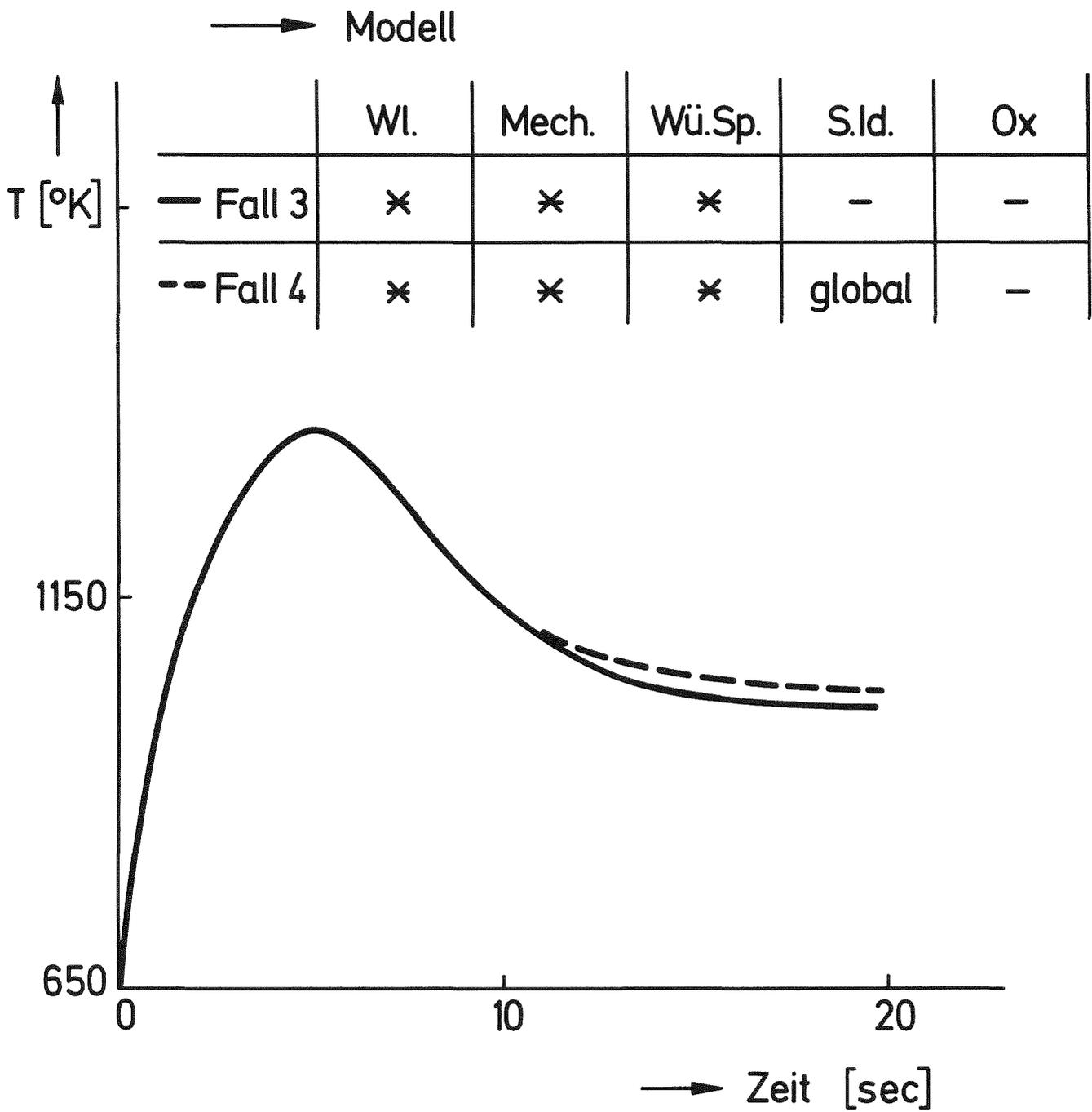
GfK
IRE
Abb. 7



Einfluß des Druckmodells auf den
Verlauf der Spaltweite

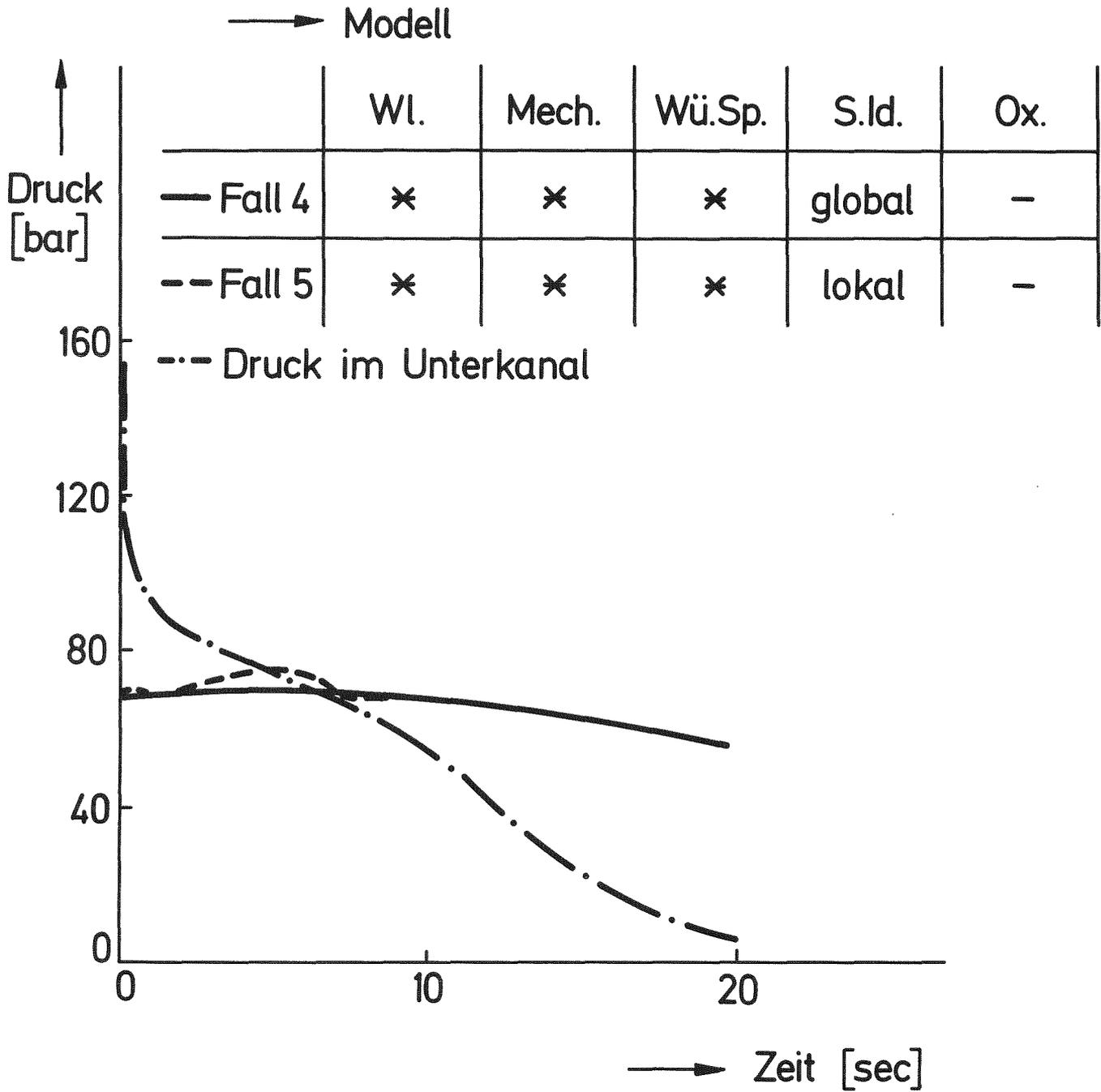
GfK
IRE
Abb. 8





Einfluß des Innendruckmodells auf
die Hüllrohrtemperatur

GfK
IRE
Abb. 10



Einfluß des lokalen Innendruckmodells auf die Druckdifferenz am Hüllrohr im Bereich des Brennstoffes

GfK
IRE
Abb. 11

JAHRESKOLLOQUIUM 1976

des

PROJEKTS NUKLEARE SICHERHEIT

Zum Verlauf hypothetischer LWR-Kernschmelzunfälle

K. Hassmann, KWU Erlangen

E. Herkommer, IRS Köln

J.P. Hosemann, GfK/PNS Karlsruhe

Obwohl das Eintreten eines Kernschmelzunfalls im Leichtwasserreaktor äußerst unwahrscheinlich ist, hat die Deutsche Bundesregierung bereits im Jahr 1971 ein Grundlagenforschungsprogramm zur Klärung der physikalischen Phänomene eines solchen rein hypothetischen Störfallablaufs initiiert.

Von Anfang an war das Projekt KERNSCHMELZEN damit Bestandteil des Forschungsprogramms Reaktorsicherheit des Bundesministeriums für Forschung und Technologie.

Bei der Programmdurchführung zog der BMFT Fachleute zur Beratung hinzu. Diesem Sachverständigenkreis obliegt es, Probleme zu formulieren, Vorschläge zu beurteilen, den Arbeitsfortschritt zu bewerten und Zielsetzungen zu empfehlen. Mit der Koordinierung der laufenden Forschungsarbeiten wurde die Abteilung Forschungsbetreuung im Institut für Reaktorsicherheit vom BMFT beauftragt.

Das Anfang 1973 voll angelaufene Forschungsprogramm⁺⁾ ist insbesondere gekennzeichnet durch die enge Verknüpfung sämtlicher Vorhaben miteinander und durch die Notwendigkeit, Grundlagenunter-

^{+) Im Anhang befindet sich die vollständige Liste der bereits abgeschlossenen und z.Z. laufenden Forschungsvorhaben des Projekts Kernschmelzen.}

suchungen zur Lösung der anstehenden Probleme in größerem Umfang durchführen zu müssen.

Das Projekt Nukleare Sicherheit der Gesellschaft für Kernforschung in Karlsruhe arbeitet seit seiner Gründung im Jahre 1972 an diesem Gesamtprogramm Kernschmelzen maßgeblich mit.

Der nachfolgende Überblick soll allgemein über die Grundzüge der wichtigsten Untersuchungen zum hypothetischen Kernschmelzen in Deutschland informieren und er soll insbesondere auch ermöglichen, die Aktivitäten des PNS in das Gesamtprogramm einzuordnen.

Aus Gründen einer besseren Überschaubarkeit sei anstelle von Einzelzitataten auf die Zusammenstellung im Anhang verwiesen.

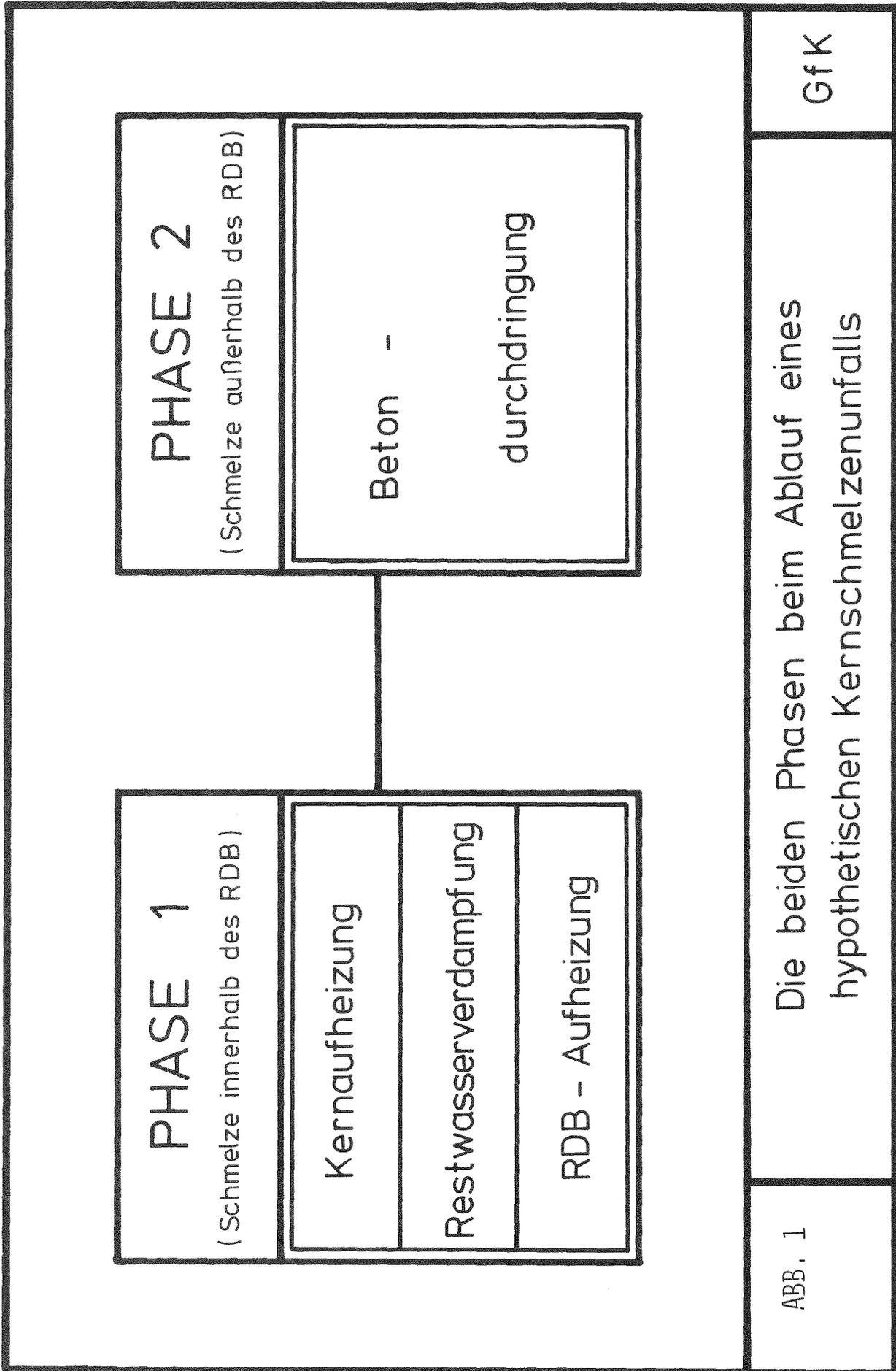
Neben denkbaren anderen Ereignissen, die zum Schmelzen des Reaktorkerns führen könnten, wird der Kühlmittelverluststörfall mit der Hypothese eines vollständigen Versagens der Notkühlsysteme als einleitendes Ereignis betrachtet.

Auf Empfehlung des Sachverständigenkreises Kernschmelzen wurden die folgenden beiden Fälle als Ausgangssituationen für den Kernschmelzunfall postuliert:

Nach Beendigung der Blowdown- und der Wiederauffüllphase bzw. nach noch möglicher Flutung des Kerns sei

1. der Restwasserstand = Kernunterkante, oder
2. der Restwasserstand = Kernoberkante.

Bevor wir den heutigen Wissensstand über den Verlauf des hypothetischen Kernschmelzunfalls in groben Zügen wiedergeben, wollen wir noch den gesamten Unfallablauf in 2 Phasen aufteilen (Abb. 1). Während der Phase 1 befindet sich die Schmelze nur innerhalb des RDB. Es lassen sich hier 3 phänomenologische Abschnitte unterscheiden: Die Kernaufheizung mit dem Abschmelzen des größten Teils der Brennelemente, die



Restwasserverdampfung und die RDB-Aufheizung, die mit dem Durchschmelzen des RDB beendet wird. Anschließend kommt Kernschmelze mit dem Fundamentbeton in Kontakt. Die folgenden Vorgänge gehören zur Phase 2, die mit der Betonzerstörung charakterisiert werden kann.

Zur Phase 2 lassen sich 3 Hauptfragen stellen, auf deren Beantwortung alle Arbeiten für diese Phase ausgerichtet werden müssen:

1. Reicht der verbleibende Rest der Nachwärmeleistung der Schmelze noch aus, um das gesamte Betonfundament zu durchdringen?
2. Folgt ein Versagen der Containmenthülle aus dem Verlauf des Kernschmelzenunfalls infolge des Massen- und Energietransports in die Containmentatmosphäre während der beiden Phasen?
3. Wieviel Radioaktivität ist luftgetragen im Containment zu jedem Zeitpunkt eingeschlossen?

Bei der Beschreibung des Ablaufs eines Kernschmelzunfalls wollen wir uns

auf eine DWR-Standardanlage und auf den Ausgangszustand: Restwasserstand = Kernoberkante

beziehen, der sich nach dem Blowdown und dem Wiederauffüllen beim Kühlmittelverluststörfall einstellt. Der eigentliche Kernschmelzunfall beginnt dann mit der "Kernaufheizung" der Phase 1 (s. Abb. 1), wenn das vollständige Versagen der Notkühlsysteme hypothetisch angenommen wird.

Während der Kernaufheizung wird zunächst ein Teil der Nachwärmeleistung des Kerns verbraucht, um das Restwasser zu verdampfen. Die vom Wasser nicht mehr bedeckten Stabteile werden

durch ihre Nachwärmeleistung sowie durch die Energie aus der Zirkon-Wasserdampf-Reaktion aufgeheizt. Nach Erreichen der Schmelztemperatur der Brennstäbe werden die Vorgänge komplex. Sie sind ohne ein begleitendes umfangreiches experimentelles Versuchsprogramm nicht mehr vorherbestimmbar.

Aus diesem Grunde wurden neben theoretischen Arbeiten schon sehr frühzeitig vom BMFT auch experimentelle Untersuchungen initiiert und gefördert.

Über das Abschmelzverhalten von einzelnen Stäben in unterschiedlicher Umgebungsatmosphäre wurden beim PNS bereits sehr weitreichende Erkenntnisse gewonnen, die schon ganz zu Anfang zu einem Umdenken gegenüber vorherigen Annahmen führten.

Erwähnt sei hier nur die Tatsache, daß das Abschmelzen der Brennstäbe in der Übergangszone Hüllrohr/ UO_2 -Pellet bei Temperaturen von etwa $1900\text{ }^\circ\text{C}$ beginnt. Infolge der eutektischen Mischung von Zirkon und UO_2 wird damit Brennstoff weit unterhalb seines Schmelzpunktes ($2850\text{ }^\circ\text{C}$) flüssig.

Erste analytische Betrachtungen der Kernaufheizphase sind von der KWU mit einem einfachen Modul des Programms BILANZ durchgeführt worden, das auf der Bilanzierung der in Frage kommenden Energien beruht. Die Kernaufheizung wird dabei durch das Verhalten eines Brennstabs mit mittlerer Leistung simuliert. Als Wärmequelle wird neben der Nachwärmeleistung auch die stark exotherme Zirkon-Oxidation durch Wasserdampf berücksichtigt. Der repräsentative Brennstab wird in axiale Abschnitte unterteilt. Sobald ein axialer Abschnitt von oben nach unten die experimentell bestimmte und inzwischen auch theoretisch erklärbare Versagenstemperatur der Brennstäbe von $1900\text{ }^\circ\text{C}$ erreicht hat, wird die Nachwärmeleistung des betroffenen Abschnitts um den Anteil der leichtflüchtigen Spaltprodukte reduziert, die nun dem Containment zugeschlagen werden.

Es wurde im Modell weiter angenommen, daß der Brennstoff samt dem zugehörigen Zircaloy in das Restwasser stürzt. Dort

trägt er mit seiner Nachwärme zur Verdampfung des Restwassers bei. Im Rechenprogramm BILANZ wird ein Versagen der Kerntragestruktur in dem Augenblick angenommen, in dem gerade $2/3$ des repräsentativen Brennstabes das genannte Versagenskriterium erfüllt haben.

In Abbildung 2 ist das Ergebnis der Analyse der Kernaufheizphase zusammengefaßt und zwar die Kühlmittelabsenkung sowie das Fortschreiten der Schmelzfront nach Abschalten des Reaktors. Man denke sich dabei den repräsentativen 4 m langen Brennstab senkrecht in das Diagramm gestellt und bewege ihn in Gedanken auf der Zeitachse nach rechts. Der Wasserspiegel hat nach erfolgter Blowdown- und Wiederauffüllphase innerhalb von 26 Minuten (1500 s) die Kernunterkante gerade erreicht.

In dieser Zeit sind 2,35 m, also 60 % des Kerns von oben nach unten abgeschmolzen. Kurz nachdem der Wasserspiegel die Kernunterkante erreicht hat, muß damit gerechnet werden, daß die Kerntragestruktur versagt und Teile des Reaktorkerns in das noch nicht verdampfte Restwasser im unteren Teil des RDB abstürzen.

Das beschriebene Modell für die Kernaufheizphase ist sehr einfach, genügt jedoch zunächst den Ansprüchen einer ersten Gesamtablaufanalyse. Für eine Reihe von Fragestellungen ist eine detailliertere Beschreibung der Kernaufheizung nötig. Es wird daher das Rechenprogramm MELSIM beim IKE erstellt. Das für die Beschreibung der Kernaufheizphase besonders wichtige Unterprogramm ABSINK, das den Materialtransport nach dem Erreichen von Versagensgrenzen im Kern beschreibt, soll aus der analytischen Beschreibung der PNS-Einzelstab- und Bündelexperimente abgeleitet werden.

Dabei wird auch zu berücksichtigen sein, daß sich im Verlauf des Abschmelzens Reaktionsprodukte mit völlig anderem Materialverhalten als dem der beteiligten Komponenten bilden. Dieses Materialverhalten muß zuvor experimentell untersucht und theoretisch verstanden werden. Das Modell zur Beschreibung der Abschmelzexperimente soll zugleich die Basis für denjenigen Modul des umfassenden Freisetzungs- und Aktivitätstransport-Codes sein, der die Spaltprodukt-Freisetzung während der Kern-

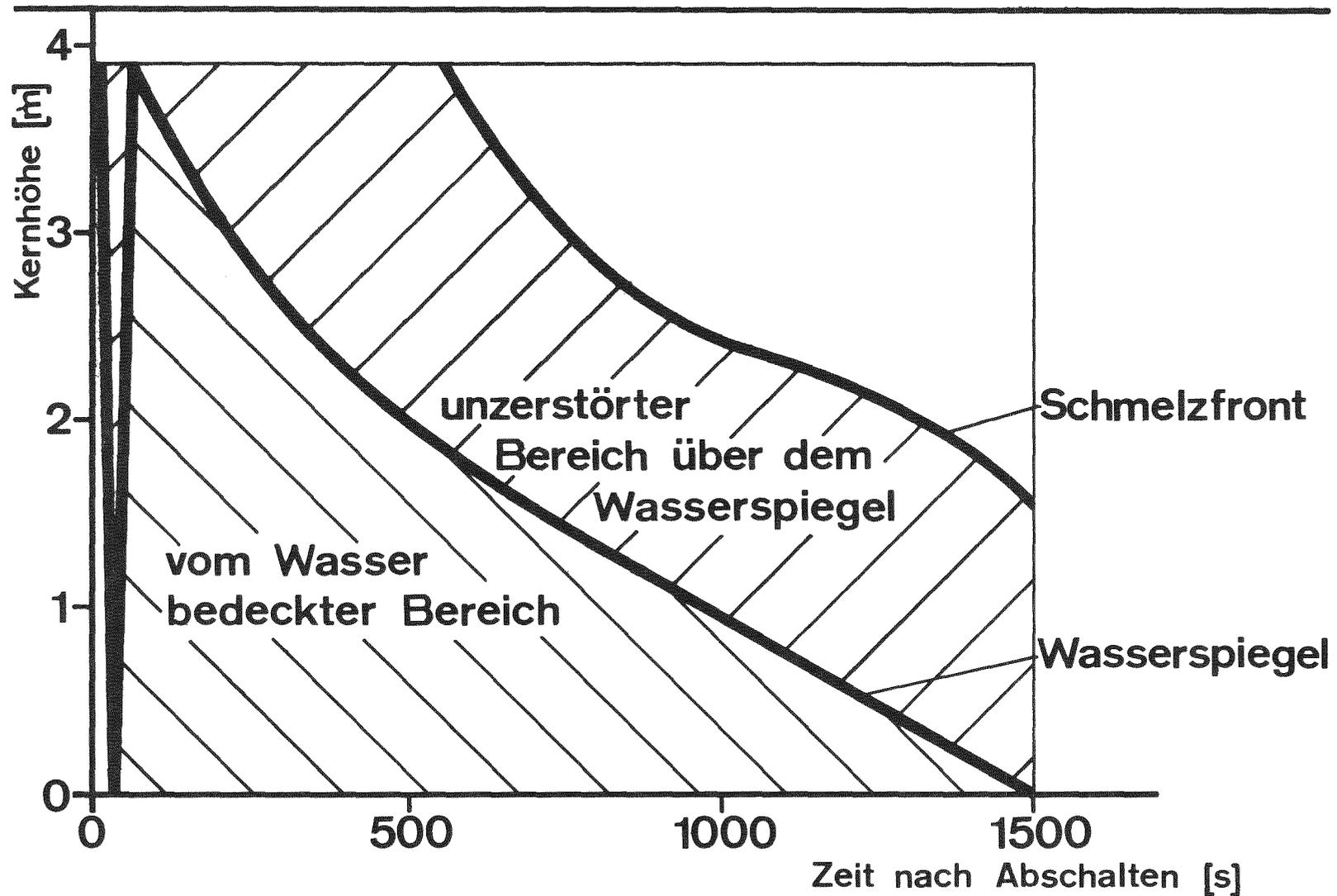


ABB. 2 DWR Kühlmittelabsenkung bzw. Fortschreiten der Schmelzfront während der Kernaufheizphase

aufheizung und des Kernabsinkens beschreibt.

Gleich zu Beginn aller Überlegungen zum möglichen Ablauf eines hypothetischen Kernschmelzunfalls hat man im Projekt Kernschmelzen des BMFT auch die Hypothese vom möglichen Auftreten einer Wasserdampf-Explosion nach dem Versagen der Kerntragestruktur und dem Absturz von teilweise geschmolzenen Kernteilen in das Restwasser diskutiert.

Schon in der Rasmussen-Studie wurde die Eintrittswahrscheinlichkeit für eine solche Explosion sehr niedrig eingeschätzt. Wir wissen aber heute, daß sie noch erheblich niedriger angesetzt werden darf.

Mit Kernmaterialien konnten bei den bisher in Ispra durchgeführten Experimenten noch keine nennenswerten Druckanstiege gemessen werden. Auch deuten die Ergebnisse zum Abschmelzverhalten von Brennstäben darauf hin, daß die Temperaturen der ins Wasser gelangenden Schmelze weit niedriger als angenommen ist und daß auch die Menge der gleichzeitig ins Restwasser des RDB-Bodens einfließenden Schmelze weit weniger als befürchtet ist. In Übereinstimmung mit den theoretischen Ergebnissen des IKE zu den Auslösemechanismen von Dampfexplosionen kann daher die Eintrittswahrscheinlichkeit für eine solche Explosion stark herabgesetzt werden.

Der Zeitabschnitt der Restwasserverdampfung während der ersten Phase des Kernschmelzenunfalls, also die Zeitspanne vom Versagen der Kerntragestruktur bis zur Ausbildung eines schmelzflüssigen Sees am Boden des RDB, während der noch ca. 50 m^3 Restwasser verdampft werden müssen, dauert etwa 30 Minuten. Eine Detaillierung und genauere Analyse der Vorgänge während der Restwasserverdampfung ist der Inhalt weiterer Forschungsvorhaben.

Neben den aufeinanderfolgenden Vorgängen im RDB und neben der Aktivitätsfreisetzung während der Phase 1 des Kernschmelzenunfalls interessiert die Belastung des Containments durch Druck und Temperatur. Abbildung 3 zeigt den Gesamtdruck der Dampf-Luft-Atmosphäre im Containment nach dem Blowdown. Bei

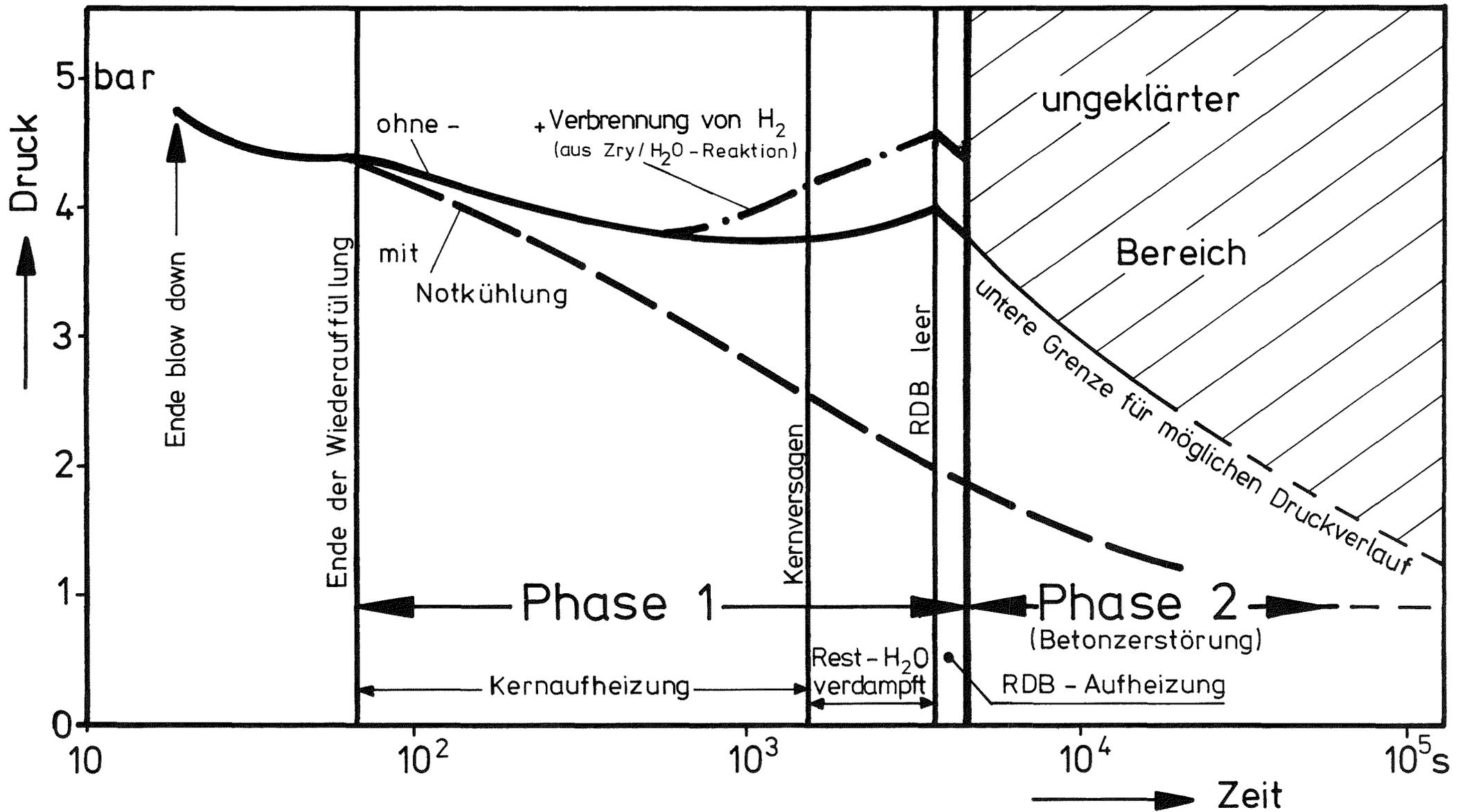


ABB. 3

Druckverlauf im DWR Containment bei hypothetischem Kernschmelz -
 unfall (Restwasserstand = Kernoberkante)
 aus Abschlußbericht RS 72 a,b ; Abb. 23 , KRAFTWERK UNION

der Berechnung der Kurven wurden der Energie- und der Massentransport in das Containment berücksichtigt, ebenso die Wärmeabgabe an die Stahl-Beton-Einbauten, an die Stahlhülle und an die Betonsekundärabschirmung. Demnach wird während der Kernaufheizung der maximale Druck nach Blowdown-Ende von ca. 4,8 bar nicht mehr erreicht. Auch mit der Annahme, daß in der Containmentatmosphäre der bei der Zirkon-Wasserdampf-Reaktion entstehende Wasserstoff vollständig verbrennt, steigt der Druck nicht über die 4,8 bar an. Zum Vergleich ist gestrichelt der Druckverlauf beim Blowdown, und ungestörter Funktion der Notkühlung eingetragen. Während der relativ kurzen Zeit der RDB-Aufheizung, die noch zur ersten Phase gehört, wird kein Wasser mehr verdampft, der Druck im Containment nimmt deshalb wieder ab.

Die Phase der RDB-Aufheizung ist - obwohl recht kurz, besonders für die Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten aus der Schmelze wichtig. Die flüssige Schmelze in der unteren Kalotte des RDB wird durch thermohydraulische Vorgänge umgewälzt. Die Berechnung dieser Schmelzbadbewegung und der Temperaturverteilung in der Schmelze kann mit dem Computer-Code THEKAR der TU Hannover erfolgen.

Es darf nicht übersehen werden, daß die Schmelzbadbewegung das Abdampfen von Spaltprodukten und damit auch den Verlust von Wärmequellen beeinflusst. Auch hängt die Thermohydraulik von der Zusammensetzung der Schmelze ab, von den chemischen Verbindungen, die die Komponenten der Schmelze bilden können, und von den Reaktionen, die in der Schmelze ablaufen. Dies alles beeinflusst sich wechselseitig und hat damit auch gemeinsam Einfluß auf die Freisetzung von luftgetragener Radioaktivität in das Containment.

Nach dem Durchschmelzen des RDB beginnt die Phase 2. Hier sind zur Zeit nur recht grobe Abschätzungen möglich. Wir wollen dennoch versuchen, einen zusammenfassenden Überblick über das Gesamtproblem zu geben, das sich aus den Wechselwirkungen der Kernschmelze mit dem Reaktorbeton ergibt, um dann später aufzuzeigen, welche Forschungsaktivitäten zur

Analyse der Vorgänge bereits begonnen worden sind.

Zur Orientierung sollen nochmals anhand des Querschnitts durch einen DWR (s. Abbildung 4) die 3 Hauptfragen wiederholt werden:

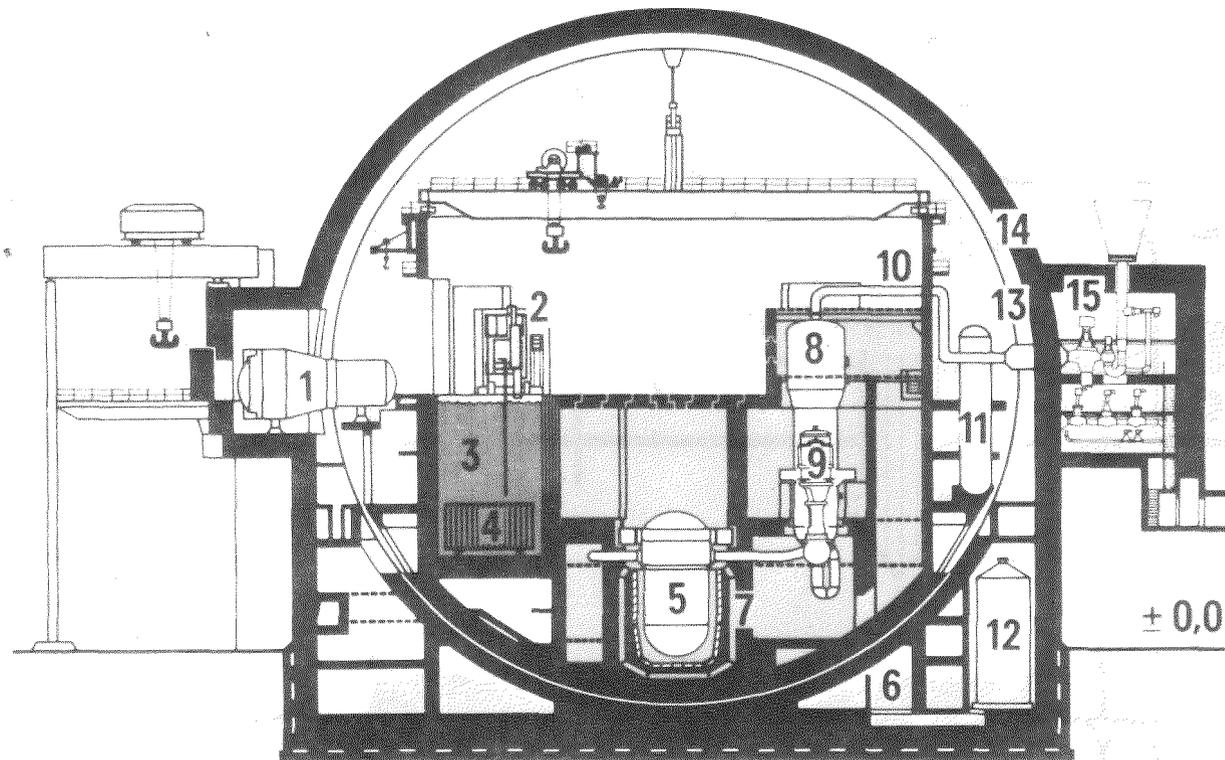
1. Kann die Schmelze im Fundamentbeton zurückgehalten werden?
2. Wieviel Spaltprodukte werden während der Phase 2 noch in das Containment freigesetzt?
3. Hält das Containment stand?

Falls die Schmelze, die den RDB verläßt, nicht bereits vollständig oxidiert ist, wird es im Schmelzsee über dem sich auflösenden Beton zur Segregation des metallischen Anteils kommen, da die Dichte des Stahls bei den in Frage kommenden hohen Temperaturen vermutlich größer ist als die Dichte der oxidischen Anteile der Schmelze.

Die flüssigen Betonbestandteile vermischen sich in jedem Fall mit der oxidischen Phase der Schmelze, was schnell zu deren weiteren Dichteabnahme führt, so daß man von den in Abb. 5 gezeigten Gegebenheiten ausgehen kann. Die verschiedenen Zeilen stellen hier die Containmentatmosphäre, die oxidische Schmelze, die metallische Schmelze und den festen Beton dar. Grenzsichten und mechanische Vermischungssichten sind in der Abbildung nicht berücksichtigt.

Zu unterst im nun zu betrachtenden System wird sich immer fester Beton mit Stahlarmierung befinden. Neben anderem enthält der Beton unterschiedliche Mengen von Silikaten, Karbonaten und Wasser, nämlich sowohl das Kapillar- als auch das Kristallwasser.

Das Wasser wird in 3 unterscheidbare Stufen zwischen 100 °C und 850 °C ausgedampft, der Beton verflüssigt sich bei ca. 1350 °C, die Stahlarmierung schmilzt. Dadurch wird der metallische Anteil der Schmelze - falls er existiert - vermehrt.

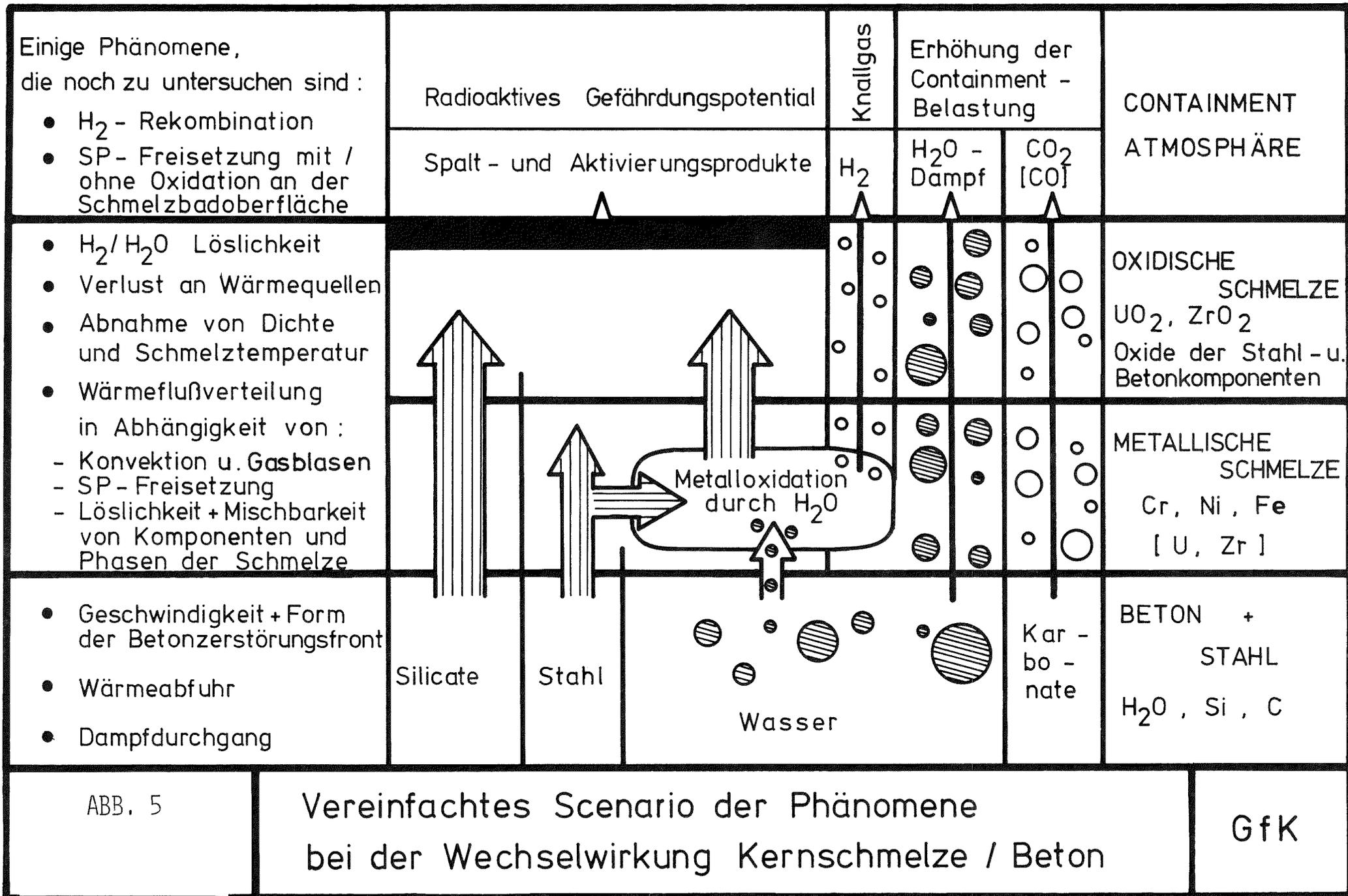


- 1 Materialschleuse
- 2 Lademaschine
- 3 Brennelementbecken
- 4 Brennelement-Beckengestell
- 5 Reaktordruckbehälter
- 6 Nachkühlpumpen
- 7 Biologischer Schild
- 8 Dampferzeuger
- 9 Hauptkühlmittelpumpe
- 10 Frischdampfleitung
- 11 Druckspeicher
- 12 Flutbehälter
- 13 Sicherheitshülle
- 14 Stahlbetonhülle
- 15 Frischdampf- und Speisewasser-Armaturen

Während des Betriebs
 nicht begehbar

ABB. 4

**Kernkraftwerke mit Druckwasserreaktor
 Reaktorgebäude**



Gleichzeitig wird aber Metall durch den Wasserdampf oxidiert. Oxidiertes Metall mischt sich in der keramischen Phase während der übrigbleibende Wasserstoff in das Containment entweicht. Etwa im Beton vorhandene Karbonate geben Kohlendioxid ab, das ebenfalls entweicht. CO_2 kann möglicherweise bei hohen Temperaturen in eine Austauschreaktion mit Wasserstoff treten. Dadurch wird Kohlenmonoxid gebildet. Silikate gehen ganz überwiegend in die oxidische Phase über. Wir wissen inzwischen, daß flüssige Betonbestandteile und UO_2 vollständig ineinander löslich sind, so daß die oxidische Schmelze vermutlich makroskopisch homogen sein dürfte.

Bei der bisherigen Darstellung haben wir noch nicht die Schmelzbadbewegungen und Temperaturverteilungen in der Schmelze erwähnt. Hier spricht viel dafür, daß der H_2 - oder auch der Wasserdampfblasendurchgang durch die Schmelze das Geschehen so stark dominiert, daß innerhalb der Schmelze völlige Durchmischung und gleiche Temperatur vorliegt. Noch ungeklärt sind die Temperatur- und Dichtegradienten im Bereich der Schichtgrenzen. Die Wärme flußverteilung wird aber auch davon abhängen, welche Spaltprodukte sich als Wärmequellen bevorzugt in der metallischen und welche in der oxidischen Phase aufhalten.

Außer durch Abdampfen an der turbulenten Schmelzbadoberfläche kann Material auch dadurch freigesetzt werden, daß es innerhalb der Schmelze in Dampf- und Gasblasen hineindiffundiert und mitgerissen wird. Die möglichen Angriffe auf die Integrität des Containments sind in der obersten Zeile der Abbildung 5 angedeutet. Es handelt sich um den langfristigen Druckaufbau durch Wasserstoff, Wasserdampf und je nach Art der Zuschläge des Betons auch durch CO_2 oder CO . Die Freisetzung von größeren H_2 -Mengen erhöht das Risiko einer Knallgasexplosion, oder auch nur H_2 -Verbrennung. Daneben ist die Zunahme luftgetragener Radioaktivität im Containment angedeutet, die das Gefährdungspotential für den Fall von Leckagen erhöht.

Wie sollen nun die beschriebenen komplexen Verhältnisse nach und nach aufgeklärt werden?

Im BMFT-Projekt Kernschmelzen stehen die theoretischen und experimentellen Arbeiten zur Wechselwirkung von Beton mit der Kernschmelze und die Entwicklung brauchbarer Modelle sowohl für die Betondurchdringung als auch für die Spaltproduktfreisetzung und die H_2 -Bildung durch Stahloxidation im Vordergrund. Eine Ingenieurstudie hat zum Ziel, die Größenordnung der H_2 - und der Dampffreisetzung in das Containment realistisch abzuschätzen.

Damit soll eine Wichtung der oben genannten 3 Hauptfragen ermöglicht werden.

Auch bei den Arbeiten zur Untersuchung der dominierenden Mechanismen und der Möglichkeiten zur Eindämmung eines Kernschmelzunfalls besteht das grundsätzliche Vorgehen in der Wechselwirkung zwischen Modelltheorie, den experimentellen Untersuchungen von Einzeleffekten und den abschließenden integralen Versuchen, die für die Verifizierung der entwickelten Rechenprogramme unerlässlich sind. Das heißt, daß auch beim Kernschmelzen eine Verkopplung der Einzelphänomene und eine Verifizierung der Rechenprogrammsysteme mit Hilfe eines scale-up-Experiments notwendig ist, um auf Reaktordimensionen extrapolieren zu können. Dabei ist es gerade beim Kernschmelzen klar, daß die notwendige und hinreichende Größenordnung eines solchen Experiments sehr sorgfältig untersucht werden muß. Ein solches experimentelles Programm verbunden mit begleitenden theoretischen Analysen wird beim PNS zur Zeit als Vorprojekt ausgearbeitet. Die Vorstellungen aller, die an den Untersuchungen zum Kernschmelzen des BMFT-Forschungsprogramms Reaktorsicherheit beteiligt sind, müssen bei der Realisierung dieses Programms berücksichtigt werden.

Im gesamten Bereich der Reaktorsicherheitsforschung stellt die konsequente analytische Verfolgung eines Kernschmelz-

unfalls zumindest in dem Sinne einen gewissen Schlußpunkt dar, als es unvernünftig wäre, sich mit hypothetischen Unfällen zu beschäftigen, deren Eintrittswahrscheinlichkeiten noch kleiner als die des Kernschmelzunfalls sind. Vielleicht läßt sich ein solcher Unfall auch garnicht ausdenken.

Die Aufgaben, die im Zusammenhang mit dem Kernschmelzen stehen, stecken darüber hinaus einen Bereich ab, der der Forschung eben gerade noch zugänglich ist im Hinblick auf eine Beschreibung der dominierenden Effekte und eine quantitative Analyse des gesamten Unfallablaufs. Obwohl das Eintreten eines solchen Unfalls extrem unwahrscheinlich ist und die Folgen bezogen auf diese geringe Wahrscheinlichkeit ebenfalls gering sind - Dank der Rasmussen-Studie ist das nun auch mit Zahlen belegbar - hat die Sicherheitsforschung zum Ziel, die quantifizierbaren Folgen eines Kernschmelzunfalls noch weiter einzudämmen. Dazu ist es zuerst notwendig, das Kernschmelzen sowohl wissenschaftlich als auch technisch zu verstehen.

A N H A N G

Nachfolgend befindet sich die vollständige Zusammenstellung aller Forschungsvorhaben des Projekts KERNSCHMELZEN des BMFT-Forschungsprogramms Reaktorsicherheit.

In Tabelle I sind die Vorhaben aufgeführt, die zur Zeit bearbeitet werden (Stand November 1976). Die Beiträge des Projekts Nukleare Sicherheit (PNS) der GfK befinden sich geschlossen am Ende der Tabelle. Soweit die Finanzierung dieser Vorhaben nicht über das IRS abgewickelt wird, werden die Vorhaben mit der PNS-Kennzeichnung geführt. Für die Institute und Abteilungen der GfK, die im Rahmen des PNS mitarbeiten, gelten folgende Abkürzungen:

- INR: Institut für Neutronenphysik und Reaktor-
technik
- RBT: Abteilung Reaktorbetrieb und Technik
- IMF I: Institut für Material- und Festkörperperfor-
schung
- IRB: Institut für Reaktorbauelemente
- IRCH: Institut für Radiochemie
- LAF I: Laboratorium für Aerosolphysik und Filter-
technik

In Tabelle II sind alle die Vorhaben des Projekts Kernschmelzen aufgeführt, die bereits mit Erreichen des Ziels abgeschlossen sind (Stand November 1976).

Tabelle I: Laufende Vorhaben zum Projekt KERNSCHMELZEN des
BMFT-Forschungsprogramms Reaktorsicherheit
(Stand November 1976)

Nr.	Titel	Forschungsstelle
RS 76a	Experimentelle Untersuchung der thermischen Interaction zwischen geschmolzenem Reaktormaterial und Wasser	Euratom Ispra
RS 154	Untersuchung der Wechselwirkung zwischen Kernschmelze und Reaktorbeton	KWU Erlangen
RS 166	Verhalten der Kernschmelze beim hypothetischen Reaktorstörfall	TU Hannover
RS 183	Energiebilanzen nach hypothetischem RDB-Versagen	KWU Erlangen
RS 197	Studie über die Relevanz und die Durchführbarkeit von Messungen der Wärmetönungen chemischer Reaktionen beim Kernschmelzen und über den integralen Wärmeinhalt von Kernschmelzen	Battelle Frankfurt
RS 205	Nachrechnung von Stabexperimenten und Absicherung von MELSIM: EX-MEL	IKE Stuttgart
RS 206	Theoretische Simulation von Dampfexplosionen in Tankgeometrie, Entwicklung geeigneter Fragmentationsmodelle	IKE Stuttgart
RS 211	Analyse der Zwischenphase Kernversagen-Schmelzsee und Integration von MELSIM in BILANZ zur Berechnung der Energiebilanzen nach hypothetischem RDB-Versagen	IKE Stuttgart
RS 212	Integrale Abschätzung des Einflusses von Ungenauigkeiten - INTAB	IKE Stuttgart
RS 214	Messung der Viskosität von Reaktorkore-Materialien	Battelle Frankfurt
RS 237 PNS	Abschätzung der H ₂ -Entwicklung aus der mit Beton wechselwirkenden Kernschmelze	KWU Erlangen GfK/PNS
PNS 4242	Untersuchungen zur Wasserstoff-Bildung und Rekombination beim LWR-Coreschmelzen (seit 1.1.1976 zurückgestellt)	GfK/INR

Fortsetzung Tabelle I

Nr.	Titel	Forschungsstelle
PNS 4241	Experimentelle Untersuchungen zum Abschmelzen von UO_2 -Zircaloy-Brennstäben	GfK/RBT
PNS 4244	Konstitution und Reaktionsverhalten v. LWR-Materialien beim Coreschmelzen	GfK/IMF I
PNS 4245	Technologie und Stoffdaten zum LWR-Coreschmelzen (RS 200: Herstellung und Charakterisierung von Corium-EX1-Schmelzproben)	GfK/IMF I
PNS 4247	Experimentelle und modelltheoretische Untersuchungen zum thermischen und hydrodynamischen Verhalten von heterogenen Schmelzen	GfK/IRB
PNS 4243	Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Kernschmelzen	GfK/IRCH RBT
PNS 4311	Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und Aerosolen aus LWR-Containments	GfK/LAF I
PNS 4248	Entwicklung eines Codes zur analytischen Beschreibung der Aktivitätsfreisetzung und des -Transports im LWR-Containment	GfK/INR, IRCH, IMF I, IRB, LAF I
PNS 4246	Experimente zur Simulation großer Kernschmelzen (Vorprojekt)	GfK/RBT, IRCH, IMF I

Tabelle II: Abgeschlossene Vorhaben zum Projekt KERNSCHMELZEN
des BMFT-Forschungsprogramms Reaktorsicherheit
(Stand November 1976)

Nr.	Titel	Forschungsstelle
RS 48/1	Thermohydraulik der Schmelze	TU Hannover
RS 55	Feasibility-Studie über theoretische und experimentelle Untersuchungen zum Problem des Kernschmelzens	AEG-Telefunken, Frankfurt/Main
RS 56	Feasibility-Studie über theoretische und experimentelle Untersuchungen zum Problem des Kernschmelzens	Battelle Frankfurt
RS 57	Untersuchungsprogramm zur Klärung grundsätzlicher Fragen beim Kernschmelzen	Siemens AG, Erlangen
RS 71	Messung der Viskosität von geschmolzenen Corematerialien sowie Verträglichkeitsuntersuchungen zwischen diesen Materialien und Tiegelwerkstoffen	Battelle Frankfurt
RS 72 a	Theoretische Aufstellung der Energiebilanzen Bilanzgrenze RDB-Wand	KWU Erlangen
RS 72 b	Theoretische Aufstellung der Energiebilanzen Bilanzgrenze Containmentwand	KWU Erlangen
RS 72 c	Auswertung von WASH 1400 bezüglich der Energiebilanzen im deutschen Kernschmelzenprogramm	KWU Erlangen
RS 74 a	Wechselwirkungen zwischen Schmelze und RDB-Wand	KWU Erlangen
RS 74 b	Feasibility-Studie in Ergänzung zu Vorhaben RS 74 a	KWU Erlangen
RS 79	Wärmeleitfähigkeit und Emissionsgrad von festem Urndioxid. a) Literaturstudie b) Empfindlichkeitsstudie	IKE Stuttgart
RS 119	Untersuchung des Einflusses einiger Parameter durch Variation	IKE Stuttgart

Fortsetzung Tabelle II

Nr.	Titel	Forschungsstelle
RS 128 PNS	Studie über die theoretischen und experimentellen Möglichkeiten zur Bestimmung der Stoffwerte von Corium	IKE Stuttgart GfK/PNS
RS 129	Beitrag zur Studie über die theoretischen und experimentellen Möglichkeiten zur Bestimmung der Stoffwerte von Corium	Battelle Frankfurt

JAHRESKOLLOQUIUM 1976
des
PROJEKTS NUKLEARE SICHERHEIT

Untersuchung des Abschmelzverhaltens von LWR-Brennstäben;
Experimentelle Ergebnisse

S. Hagen, C. Politis

Abteilung Reaktorbetrieb und Technik, Ingenieurtechnik
Institut für Material- und Festkörperforschung

Einleitung

Das Abschmelzen eines Reaktorkerns ist ein Ereignis von extrem kleiner Wahrscheinlichkeit. Im vorhergehenden Beitrag dieses Heftes: "Zum Verlauf hypothetischer LWR-Kernschmelzunfälle" sind die Gründe angegeben, warum wir uns trotz dieser äußerst geringen Wahrscheinlichkeit mit den Vorgängen beim Kernschmelzen beschäftigen. Die gleichen Argumente gelten auch für die von uns untersuchte Abschmelzphase.

Das Brennelement des Druckwasserreaktors besteht aus UO_2 -Pellets, die sich in Zircaloy-4-Hüllrohren befinden. Die einzelnen Stäbe werden durch Abstandshalter aus Inconel zusammengehalten. Unter den angenommenen Bedingungen würde die Atmosphäre im Reaktor im wesentlichen aus Wasserdampf bestehen.

Wegen der Wechselwirkung zwischen UO_2 , Zircaloy und Inconel einerseits und dem Einfluß der äußeren Atmosphäre durch Oxidation infolge der Metall-Wasserdampfreaktion andererseits, wird der Abschmelzvorgang nicht einfach aus dem aufeinanderfolgenden Abschmelzen der einzelnen Komponenten bestehen, sondern viel komplizierter ablaufen.

Die Bestimmung des Verlaufs des Abschmelzvorgangs im Zusammenspiel der oben angegebenen Faktoren und die Interpretation der beobachteten Phänomene ist das Ziel unserer Arbeit.

Die Untersuchung des Abschmelzvorganges hilft uns, nicht nur das Versagensverhalten besser zu verstehen, sondern liefert uns darüber hinaus auch Aussagen zu anderen Fragestellungen. So gibt uns z.B. das Austreten der Schmelze aus der oxidierten Hülle Hinweise auf das Freisetzungsverhalten der Spaltprodukte beim Aufheizen. Die Schmelztemperaturen und die Art und Weise des Abschmelzens gestatten Schlüsse zur Frage der Dampfexplosion. Wie ferner die Versuche zum Verhalten der Kernschmelze in der unteren Kalotte des Druckbehälters zeigen, hat die Zusammensetzung der Schmelze einen deutlichen Einfluß auf das Abdampfverhalten und damit auch auf die Freisetzung der Spaltprodukte. Darüber hinaus wird von der Zusammensetzung der Kernschmelze die Phasenbildung innerhalb der Schmelze beeinflusst. Sie entscheidet, ob sich eine homogene oder zwei nicht mischbare Schmelzen bilden. Es ist also für den weiteren Verlauf des Kernschmelzens wichtig zu wissen, in welchem Zustand, d.h. insbesondere mit welchem Oxidationsgrad das abgeschmolzene Material sich in der unteren Kalotte sammelt.

Versuchsübersicht

Wir haben zwei Arten und Untersuchungen vorgesehen:

1. Konstitutionsuntersuchungen am System U-Zr-O

Diese Untersuchungen liefern Aussagen über die in dem System möglichen Phasen und über die Schmelztemperaturen bei den verschiedenen Zusammensetzungen. Die homogenen Proben befinden sich hier im thermodynamischen Gleichgewicht.

2. Dynamische Experimente an Brennstabsimulatoren mit den zu erwartenden Aufheizgeschwindigkeiten

Die Abschmelzexperimente gliedern wir in 4 Gruppen:

1. Abschmelzversuche an Einzelstäben

Hier spielt die Wechselwirkung zwischen UO_2 und Zircaloy und der Einfluß der Oxidation eine wesentliche Rolle.

2. Abschmelzversuche an Einzelstäben mit Abstandshalter

Bei ihnen kommt der zusätzliche Einfluß des Inconels in Konkurrenz zur Oxidation durch den Wasserdampf zur Wirkung.

Diese ersten beiden Versuchsgruppen sind im wesentlichen durchgeführt.

3. Abschmelzversuche von Stabbündeln

Mit diesen Experimenten soll der gegenseitige Einfluß der Stäbe untersucht werden. Wir werden Aussagen über den Einfluß der austretenden Schmelze auf die benachbarten Stäbe erhalten und werden lernen, wie das von den verschiedenen Stäben herrührende Schmelzgut zusammenwirkt und in den kalten Bereichen erstarrt.

Die Bündelversuche werden mit Abstandshalter durchgeführt, so daß deren Einfluß berücksichtigt ist. Gleichzeitig kann in der Bündelanordnung das Verhalten der Führungsrohre mit verschiedenen Steuerstäben untersucht werden.

4. Schließlich wollen wir untersuchen, ob die Veränderungen des Brennstabes, die im Notkühlbereich auftreten können, den Abschmelzvorgang merklich beeinflussen. Insbesondere soll die Frage geklärt werden, wie die aufgeblähten Bereiche der Hülle abschmelzen werden.

Es wäre denkbar, daß z.B.

- a) durch das Aufblähen die inneren nicht oxidierten Schichten der Hülle nach außen gebracht werden,
- b) ein weiteres Oxidieren durch die Kanalblockade vermindert wird,
- c) auf den aufgeblähten Bereich, der den Kanal verengt, abschmelzendes Abstandshaltermaterial tropft und
- d) durch Legierungsbildung die Aufblähung wegschmilzt.

Damit wäre es möglich, daß durch diesen inhärenten Sicherheitsmechanismus auch bei verzögert eintretender Notkühlung die Kühlbarkeit des Cores erhalten bleibt.

Experimenteller Aufbau

Im Unfallreaktor werden die Brennelemente durch die nukleare Nachwärme und ab ca. 1000 °C zusätzlich durch die exotherme Zirkon-Wasserdampf-Reaktion aufgeheizt. Nach Abschätzungen ändert sich dabei die Aufheizgeschwindigkeit je nach der Position im Core zwischen 0,5 und 5 °C/sec. Wir simulieren dieses Aufheizen durch elektrisches Erwärmen. Hierbei benutzen wir zwei verschiedene Anordnungen.

In der ersten Anordnung wird die Wärme mit Hilfe eines zentralen stromdurchflossenen W-Stabes im Innern des Brennstabsimulators erzeugt. In Abb. 1 sieht man links eine schematische Darstellung des Versuchskessels und rechts eine Photographie der Bündelanordnung von 7 x 7 Stäben im geöffneten Kessel. Die schematische Darstellung zeigt, daß der zentrale Stab getrennt durch die mittlere Elektrode und den linken Galgen mit Strom versorgt wird, während die restlichen Stäbe durch die mittlere Elektrode und den rechten Galgen ihren Heizstrom erhalten. Man kann in dieser Anordnung auch Einzelstäbe aufheizen. Der Brennstabsimulator besteht im wesentlichen aus dem zentralen W-Heizstab mit den UO_2 -Ringpellets und dem Zircaloy-4-Hüllrohr. Das Zircaloy-4-Hüllrohr hat radiale Druckwasserreaktor-Dimensionen, d.h. 10,75 mm Außendurchmesser und 9,29 mm Innendurchmesser. Der Wolfram-Stab hat einen Durchmesser von 6 mm. Die Simulatorlänge kann bis zu 1 m betragen.

Die zweite Versuchsanordnung, in der wir auch Stäbe mit Vollpellets untersuchen können, ist in Abbildung 2 wiedergegeben. Die Erwärmung erfolgt hier durch Einstrahlung von außen. Die schematische Darstellung zeigt den Brennelementstab im Zentrum, umgeben vom Heizrohr, vom beheizten Strahlenschirm und vom unbeheizten Strahlenschirm. Die Photographien zeigen das Heizrohr und die beiden Strahlenschirme.

Durchgeführte Experimente

Von den in der Übersicht vorgestellten Versuchen haben wir die Konstitutionsuntersuchungen (1, 2) und die Experimente an Einzelstäben (3, 4) durchgeführt. Die Stäbe wurden dabei für sich allein oder in Kontakt mit dem Abstandshalter untersucht. Die Atmosphäre im Versuchskessel war Wasserdampf, Luft oder Helium. Die Atmosphäre im Unfallreaktor wird aus Wasserdampf bestehen. Nur bei extrem wenig Wasser im Druckbehälter wird Luft in den Kern eindringen können. Es wird daher im folgenden

nur über die Versuche in Wasserdampf berichtet, zumal in Luft sich praktisch das gleiche Verhalten wie in Wasserdampf ergeben hat. Die entstehenden Oxidschichten in Luft waren nur rauher und nicht so dicht wie in Wasserdampf.

Die Versuche in He sollten das Grenzverhalten der Stäbe bei Wasserdampfmangel aufzeigen. Vor allem sollten sie aber die Wechselwirkung der Brennelementkomponenten untersuchen, ohne durch die Oxidation beeinflusst zu sein. Das wichtigste Ergebnis dieser Wechselwirkung ist, daß das UO_2 zusammen mit dem Zircaloy abschmilzt, wenn die Schmelztemperatur des Zircaloy erreicht ist. Den Beginn dieses Prozesses sieht man in Abbildung 3. Sie zeigt den Querschnitt und einen vergrößerten Ausschnitt für einen Stab, der auf 1850°C aufgeheizt wurde. An der Grenze Hülle-Pellet startet der Angriff des Zircaloy auf das UO_2 . Die Einbuchtungen zeigen, wie das Zircaloy ins UO_2 einzudringen beginnt. In der Vergrößerung kann man neben diesem Eindringen auch deutlich das Auflösen des UO_2 im Zircaloy erkennen.

Dieses Verhalten ist in voller Übereinstimmung mit den Konstitutionsuntersuchungen zum System U-Zr-O. Die Abb. 4 zeigt die Phasenverteilung bei 1500°C und 2000°C in diesem System. Zirkon kann bis zu 30 At % Sauerstoff lösen. Dieses sauerstoffreiche Zirkon bleibt bis zum Schmelzpunkt in der α -Phase, während sauerstoffarmes Zirkon bei ca. 900°C in die β -Form übergeht. Die Phasenverteilung zeigt, daß auf der Verbindungslinie UO_2 -Zr, die dem Kontakt Pellet-Hülle in inerter Atmosphäre entspricht, kein quasibinäres Gleichgewicht zwischen UO_2 und dem β -Zirkon besteht. Wir haben ein 3-Phasen-Gleichgewicht $\text{UO}_2 + \alpha\text{Zr(O)} + (\text{U}, \beta\text{Zr})$ -Mischphase auf der UO_2 -Seite und ein 2-Phasen-Gleichgewicht $\alpha\text{Zr(O)} + (\text{U}, \beta\text{Zr})$ -Mischphase auf der Zr-Seite. Das Zirkon im Kontakt mit dem UO_2 wird infolgedessen dem UO_2 Sauerstoff entziehen, um $\alpha\text{Zr(O)}$ zu bilden, was auf der anderen Seite zur Bildung der (U,Zr)-Mischphase führt. Bei 1500°C ist für höhere U-Konzentrationen diese Mischphase bereits in flüssigem Zustand.

Die Schmelztemperaturen im System U-Zr-O gibt die Abb. 5 wieder. Auf der Verbindungslinie U-Zr findet man Schmelztemperaturen ab 1500 °C. Man muß jedoch bedenken, daß die dort wiedergegebenen Werte für ein homogenes System gültig sind, das sich im Gleichgewichtszustand befindet. Der Brennstab ist ein inhomogenes System, in dem die Einstellung der Mischung durch die Dynamik des Aufheizens beeinflußt wird. Ausreichende gegenseitige Durchdringung wird beim relativ schnellen Aufheizen erst dann stattfinden, wenn eine Komponente flüssig ist. Deswegen ist der Beginn des makroskopischen Abschmelzens erst dann zu erwarten, wenn die Schmelztemperatur des Zircalloys erreicht ist.

Experimente in Wasserdampf

Beim Aufheizen der Stäbe in Wasserdampf kommt als zweiter wesentlicher Faktor die Oxidation des Zircaloy-4-Hüllrohres ins Spiel. Der durch die Zirkon-Wasserdampf-Reaktion entstandene Sauerstoff diffundiert von außen in die Hülle. Bei genügender Anreicherung des Sauerstoffs wandelt sich das Zirkon in ZrO_2 um. Es entsteht eine feste, den Stab umhüllende Schicht. Abb. 6 zeigt Beispiele dieser Oxidschicht für verschieden stark durchoxidierte Hüllen. Bei gleicher Temperatur ist die Dicke der Oxidschicht umso dünner, je größer die Aufheizgeschwindigkeit ist. Die im oberen Teil des Bildes mit $1/3$ °C/sec aufgeheizte Hülle ist bis 1800 °C praktisch durchoxidiert. Die untere hat dagegen mit einer Aufheizgeschwindigkeit von 2 °C/sec nur ungefähr die Hälfte der Schicht bis zur gleichen Temperatur in ZrO_2 umgewandelt.

Bei weiterem Temperaturanstieg kommt es innerhalb des Zirkon-Oxidmantels zum Aufschmelzen des UO_2 durch das Restzircaloy. Abb. 7 zeigt in Wasserdampf mit Temperatursteigerungsraten von 0,75 - 3,5 °C/sec auf 2000 °C aufgeheizte Stäbe. Jeweils rechts oben neben dem Stab ist der radiale Querschnitt seiner Oxidschicht

in vergrößertem Maßstab wiedergegeben. Diese radialen Querschnitte sollen die relative Abnahme der Oxidschichtdicke mit steigender Aufheizrate verdeutlichen. Von der ursprünglichen Zr-Hülle sind dabei gut 80 % bis knapp 40 % oxidiert.

Während des Temperaturanstiegs war bei allen Stäben eine glatte, gleichmäßige, den Stab voll umschließende Hülle vorhanden, wie auf der Abbildung noch bei dem links stehenden Stab mit der kleinsten Aufheizgeschwindigkeit zu sehen ist. Die hier auf den Bildern fehlenden Hüllstücke sind erst beim Abkühlen abgeplatzt. Dieses Verhalten wurde bei der Durchführung der Versuche beobachtet. Man erkennt aber auch an den glatten Flächen ohne Pelletstruktur, die unter den abgeplatzen Hüllpartien sichtbar werden, daß die Hülle geschmolzenes Material eingeschlossen hatte. Also kann sie auch erst beim Abkühlen, nachdem die Schmelze erstarrt war, abgeplatzt sein. Die Bilder der abgekühlten Stäbe auf der Abbildung zeigen aber, daß die Stabilität der Oxidschichten mit der Aufheizgeschwindigkeit abnimmt, da die Oxidhüllen den gleichen Abkühlvorgang umso schlechter überstehen, je schneller sie aufgeheizt wurden und je dünner sie damit sind.

Ab 1900 °C bildeten sich Löcher und Risse in der Oxidschicht, aus denen die Schmelze austrat. Da die Schmelze aus der Wechselwirkung zwischen UO_2 und dem Rest-Zircaloy entstanden ist, würde sie im Reaktor auch den entsprechenden Anteil an Spaltprodukten enthalten. Mit dem austretenden UO_2 wird daher auch ein merklicher Anteil an Spaltprodukten freigesetzt.

Experimente mit Abstandshalter in Wasserdampf

Zircaloy bildet mit den Bestandteilen des Inconels - Nickel, Chrom, Eisen - Eutektika, mit Schmelztemperaturen ab ca. 950 °C. Damit wäre auch eine Wechselwirkung zwischen Abstandshalter und Hüllrohr möglich. Man muß aber beachten, daß das Einstellen der für die Schmelzpunkterniedrigung notwendigen Konzentration von Zircaloy und Inconel ein Prozeß ist, der erst beim Aufheizen selber ablaufen muß, da als Ausgangssituation die unvermischten

Materialien sich nur berühren. Bei den Versuchen in Dampf ohne Abstandshalter haben wir gesehen, daß die Stäbe sich beim Aufheizen mit einer fest haftenden Oxidschicht überziehen. Diese wird auch hier an den Kontaktstellen Abstandshalter-Hülle entstehen und kann damit die Wechselwirkung behindern.

In Abb. 8 sehen Sie Stäbe mit Abstandshalter, die in Dampf bis zu den angegebenen Temperaturen aufgeheizt wurden. Bei 1200 °C Can-Temperatur ist noch keine gegenseitige Beeinflussung festzustellen. Die erste leichte Veränderung des Abstandshalters macht sich bei 1250 °C an der Berührungsstelle des Federungssteges mit der Hülle bemerkbar. Bei 1450 °C kann man eine Verformung des Steges und bei 1550 °C eine Verformung des gesamten Abstandshalters beobachten. Bei 1830 °C ist der Abstandshalter zusammengeschmolzen.

Die beim Aufheizen entstandene Oxidschicht hat eine Reaktion des Abstandshalters mit der Hülle verhindert. Die veränderte Benetzbarkeit der Oxidschicht läßt die ablaufende Schmelze des Abstandshalters am Stab nicht mehr haften. Die Oxidschicht der Hülle außerhalb des Abstandshalterbereiches ist vollkommen erhalten. Merkliche Mengen Inconelschmelze haften nur im Bereich des Abstandshalters am Stab. Aber auch im Bereich des Abstandshalters ist die Oxidschicht bis auf Risse und kleine Löcher erhalten geblieben. Dies ist auf Abb. 8 zu erkennen, die einen Querschnitt des auf 1830 °C aufgeheizten Stabes im Bereich des Abstandshalters zeigt. Die Vergrößerung im unteren Teil der Abb. 8 zeigt auf der linken Seite deutlich diese Oxidschicht. Sie ist von außen mit erstarrtem Schmelzgut bedeckt. Eine merkliche Reaktion ist hier nicht zu erkennen.

Diskussion der Ergebnisse

Vergleicht man die Ergebnisse der Abschmelzexperimente unter den verschiedenen Bedingungen, so sieht man, daß der Abschmelzverlauf durch zwei Erscheinungen wesentlich beeinflußt wird.

1. Durch die Wechselwirkung zwischen den am Abschmelzvorgang teilnehmenden Materialien werden auch die höher schmelzenden Komponenten unterhalb ihres Schmelzpunktes angegriffen. So können beispielsweise die Brennelementpellets schon bei der Schmelztemperatur des Zircalloys aufgeschmolzen werden. Das Abschmelzen der UO_2 -Pellets weit unter der Schmelztemperatur des reinen UO_2 hat aber nicht nur einen Einfluß auf die Zeitskala. Es beeinflusst auch den weiteren Verlauf in günstiger Richtung. Aus experimentellen und theoretischen Untersuchungen ist bekannt, daß die Wahrscheinlichkeit für eine Dampfexplosion umso geringer ist, je niedriger die Temperatur der ins Wasser fallenden Kernschmelze ist. Bleibt die Temperatur der Schmelze in der Nähe der Schmelztemperatur, so ist eine Dampfexplosion nicht möglich. Der gesamte Abschmelzverlauf zeigt, daß auch die weiteren Voraussetzungen für eine Dampfexplosion, nämlich Abschmelzen des Kerns innerhalb sehr kurzer Zeiten und Fragmentierung der Schmelze nicht gegeben sind.
2. Der zweite, das Abschmelzen wesentlich beeinflussende Faktor ist die Oxidation der Brennelemente. Der Grad der Oxidation wird beeinflusst durch
 1. Das Dampfangebot und
 2. die Aufheizgeschwindigkeit.

Das Dampfangebot ist abhängig von den Unfallbedingungen. Diese könnten als Ausgangssituation für das Kernschmelzen von einem trockenen Kern mit einer kleinen Wassermenge in der unteren Kalotte bis zu einem voll mit Wasser gefüllten Kern reichen.

Die Aufheizrate nimmt im Kern von außen nach innen zu. Für Temperaturen über $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$ ändert sie sich von ca. $0,5$ auf $5\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{sec}$. Dadurch entstehen bei ausreichendem Dampfangebot Oxidschichten zwischen nahezu 100% der Hüllstärke am Rande bis 25% in der Mitte des Kerns. Die Abnahme der Oxiddicke hat wiederum eine Abnahme der Stabilität des Stabes zur Folge.

Das bei steigenden Temperaturen anfälligste Teil des Brennelements ist der Abstandshalter. Aber gerade sein Einfluß auf das Versagen des Brennelements wird durch die oxidierende Wirkung des Wasserdampfes stark reduziert. Schon relativ dünne Oxidschichten (50 - 100 μ) reichen aus, um das Abschmelzen des Cans aufgrund der Wechselwirkung mit dem Abstandshalter zu vermeiden. Die im Wasserdampf entstehenden Oxidschichten bleiben auch im Bereich des Abstandshalters stabil. Das Zusammenschmelzen der Abstandshalter wird daher zwar die seitliche Führung der Brennstäbe verschlechtern, nicht aber zum Zusammenstürzen der Stäbe führen.

Ab ca. 1900 °C wird Schmelzgut aus dem Innern der Oxidhülle austreten. Das endgültige Zusammenstürzen der Stäbe wird im Zentrum beginnen und sich nach außen fortsetzen, da die inneren Bereiche des Kerns schneller höhere Temperaturen erreichen und die Stäbe hier wegen der dünneren Oxidschicht auch weniger stabil sind. Die beim Abschmelzen des Kerns entstehende Schmelze hat einen zunehmenden Oxidationsgrad des in ihr enthaltenen Zircalloys.

Literaturhinweise:

1. C. Politis; KFK 2167 (1976)
2. C. Politis; Fachberichte der Reaktortagung Düsseldorf (1976), 272
3. S. Hagen, H. Malauschek; KFK-Nachrichten 7 (1976)
Nr. 3, S. 45
4. S. Hagen, H. Malauschek; Fachberichte der Reaktortagung
Düsseldorf (1976), 244

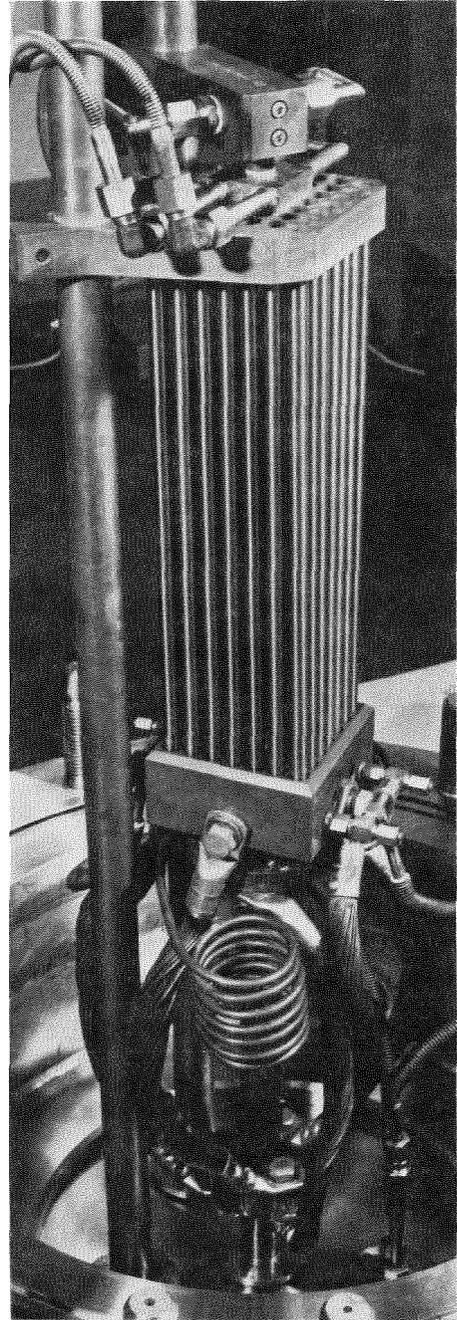
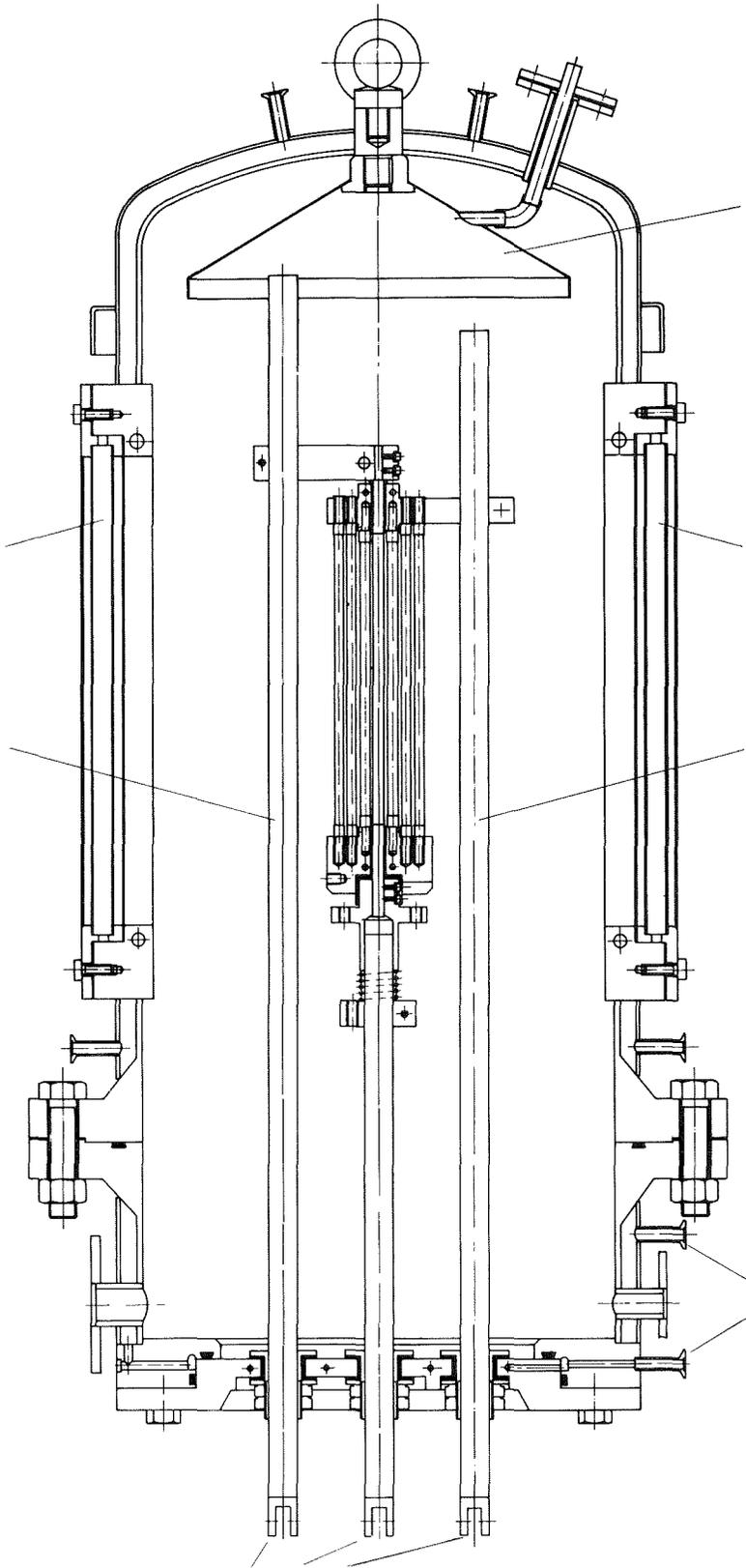


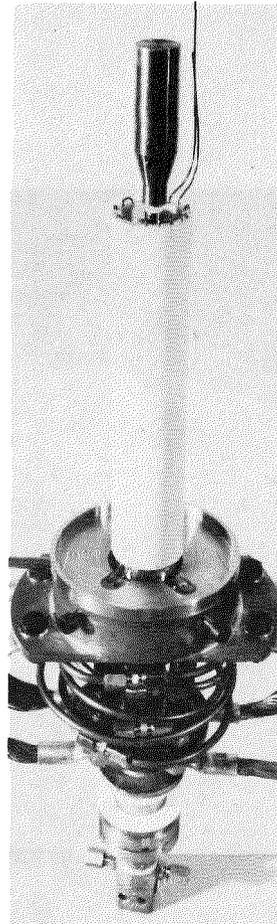
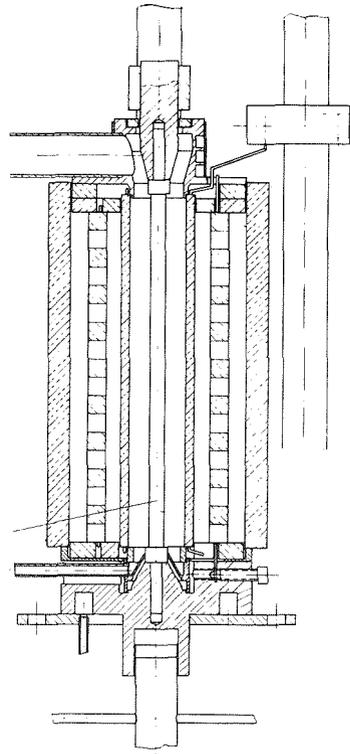
ABB.: 1

PNS
4241

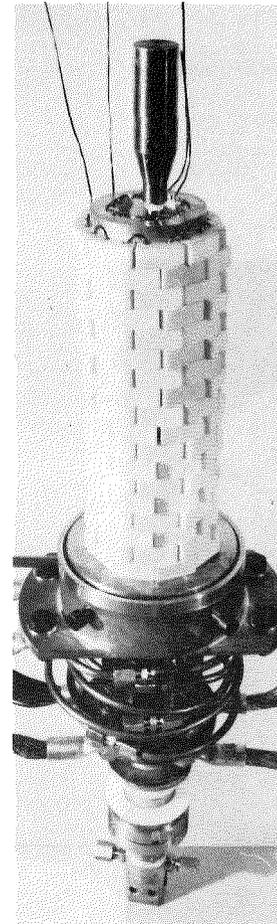
Geöffneter Versuchskessel mit
Bündelanordnung (7x7 Stäbe)

GfK
RBT

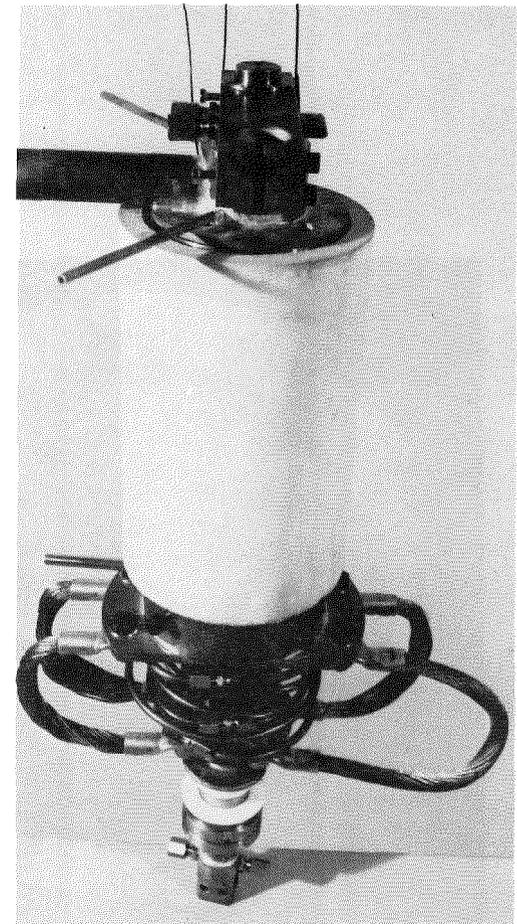
Brennstab



Heizrohr



beheizter Strahlenschirm



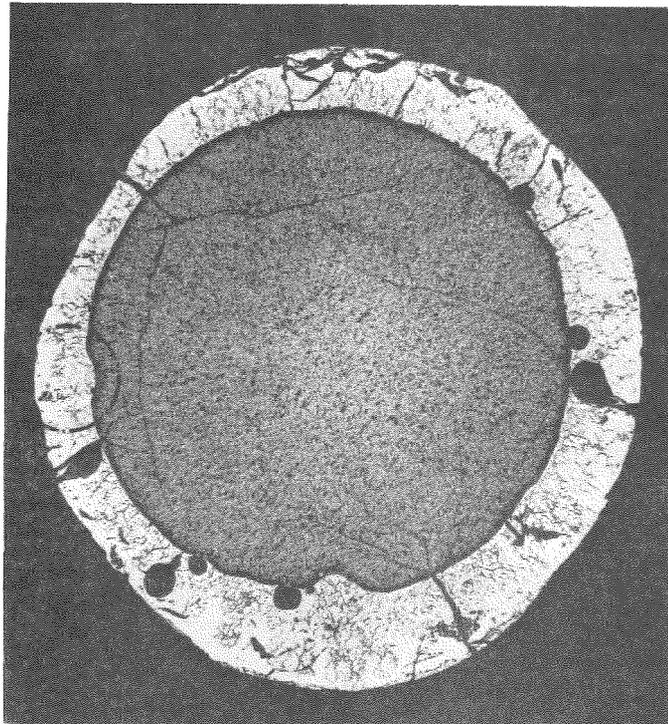
unbeheizter Strahlenschirm

ABB. : 2

PNS
4241

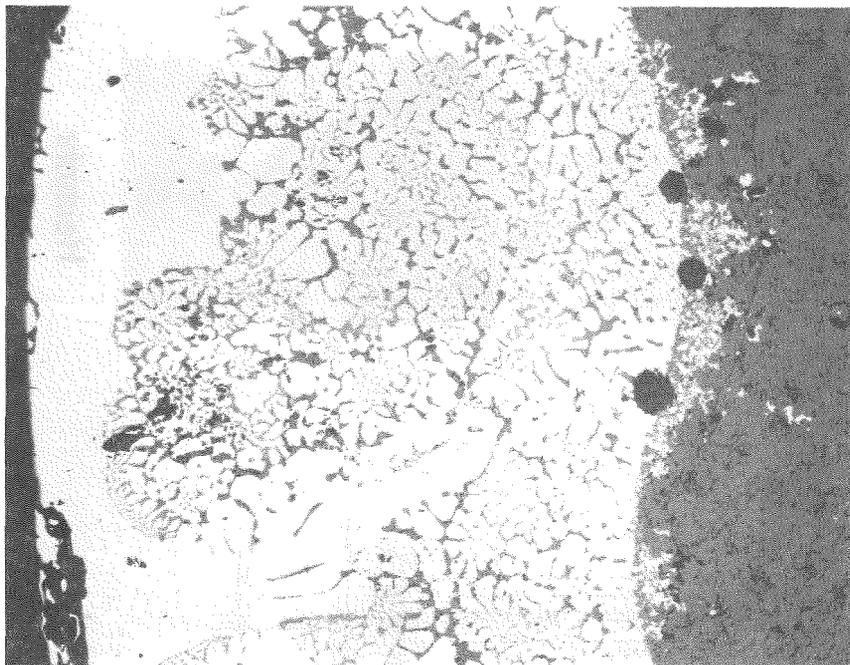
Strahlungsofen für Stäbe mit Vollpellets

GfK
RBT



10:1

Ausschnitt 100:1



Zirkaloy \longleftrightarrow UO₂

ABB.: 3

PNS

Wechselwirkung Hülle - Pellet eines im Strahlungssofen auf 1850°C aufgeheizten Brennstabes.

GfK

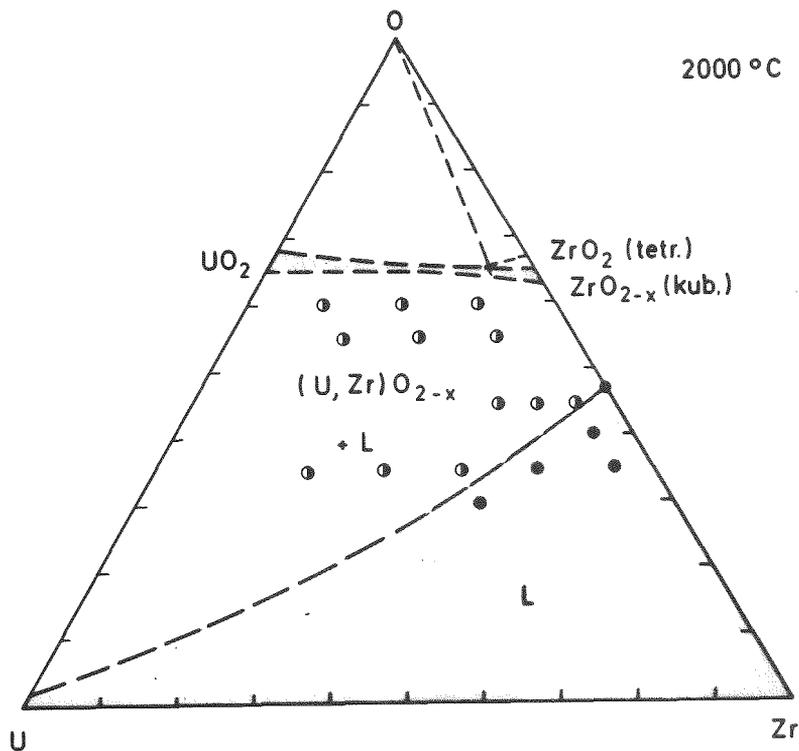
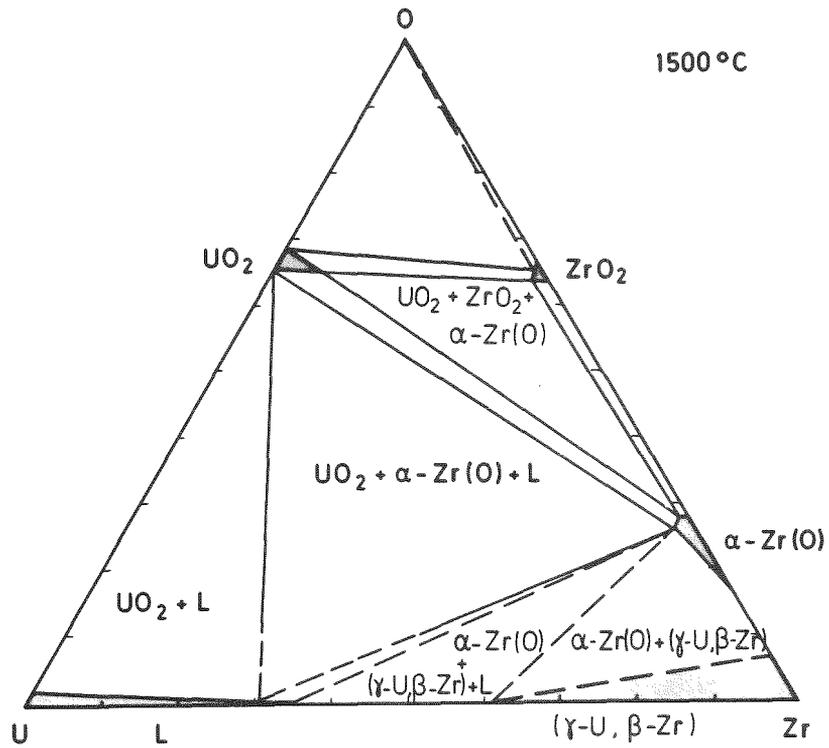


ABB.: 4

PNS
4244

Phase distribution in the isothermic plans at 1500°C and 2000°C for the U-Zr-O system.

GfK
IMF

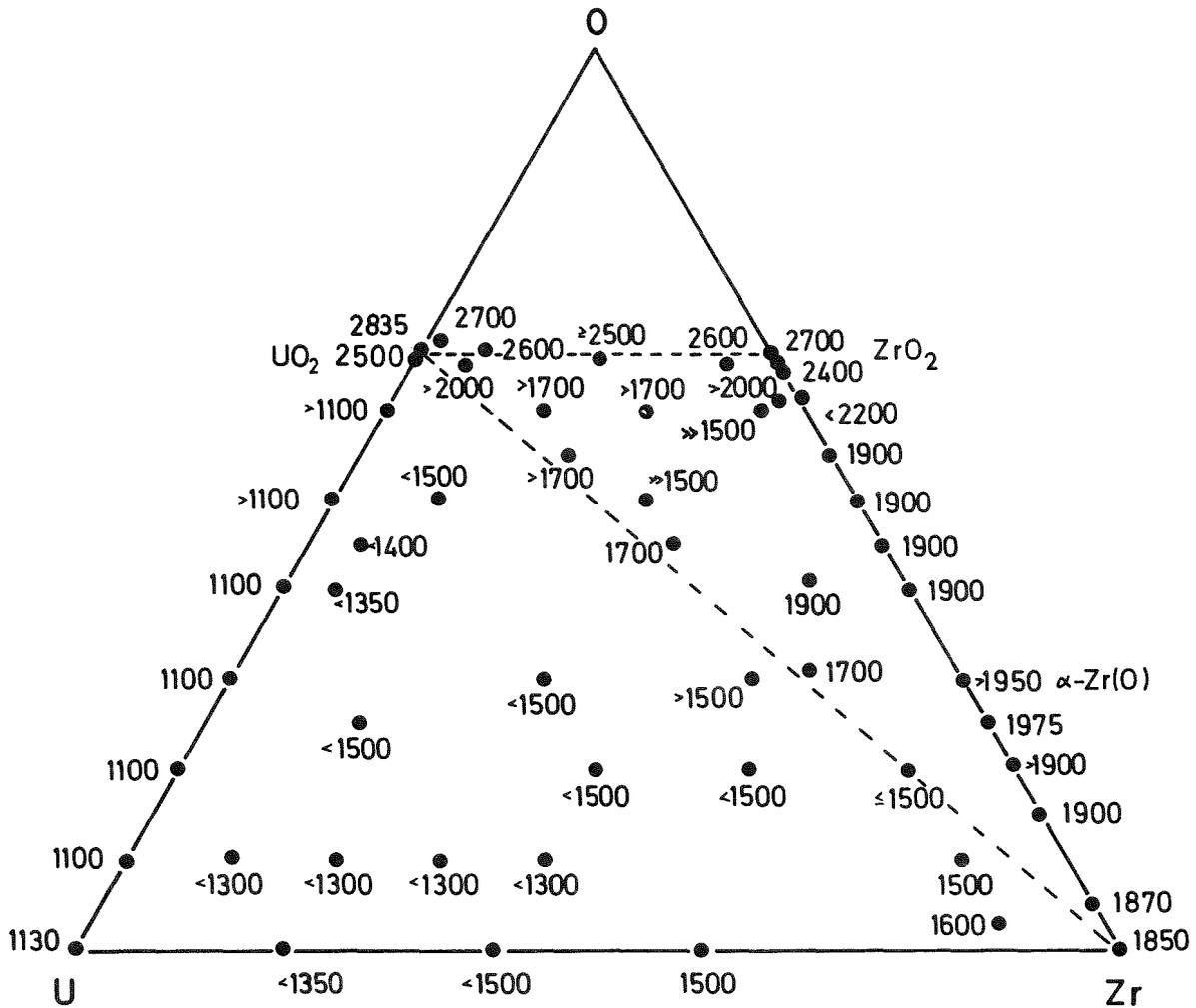
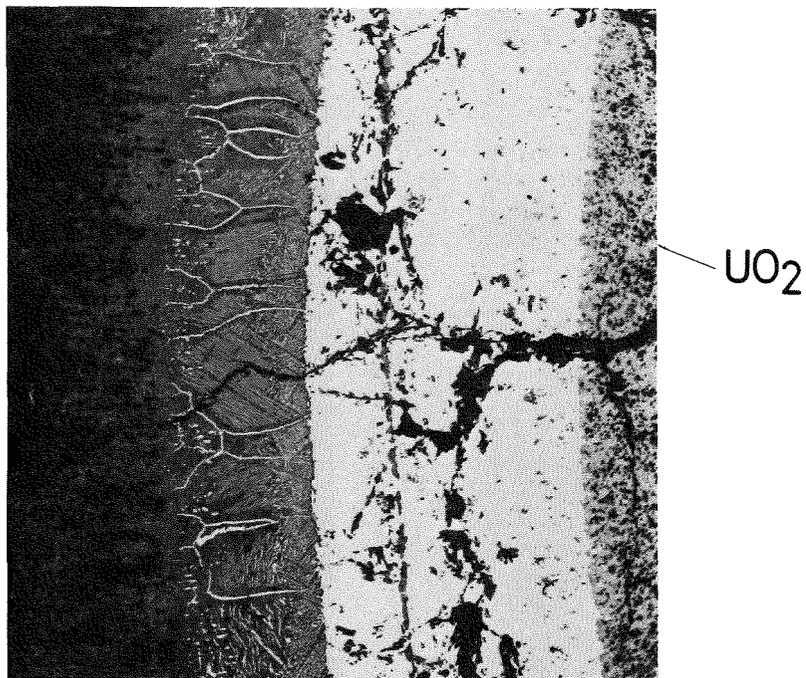
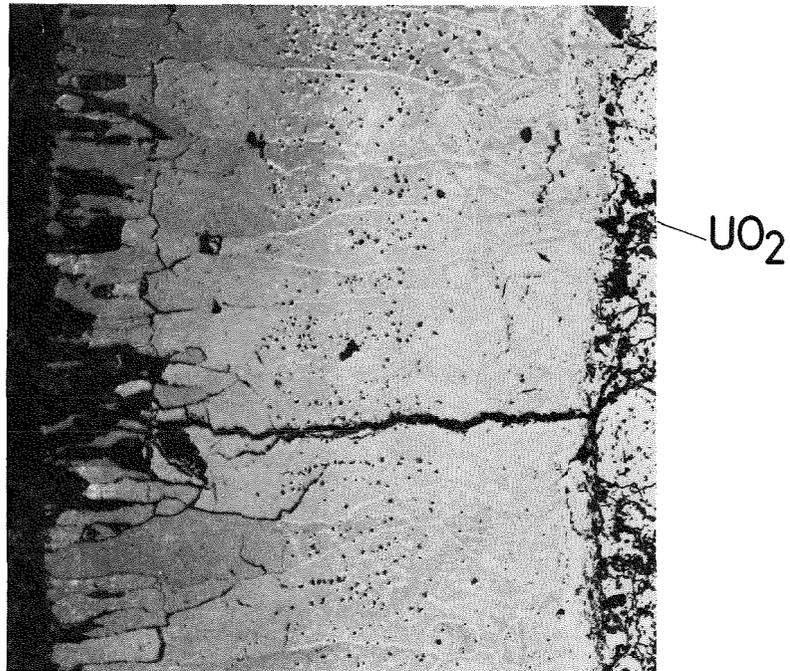


ABB.: 5

<p>PNS 4244</p>	<p>Melting temperatures in the system U-Zr-O</p>	<p>GfK IMF</p>
---------------------	--	--------------------



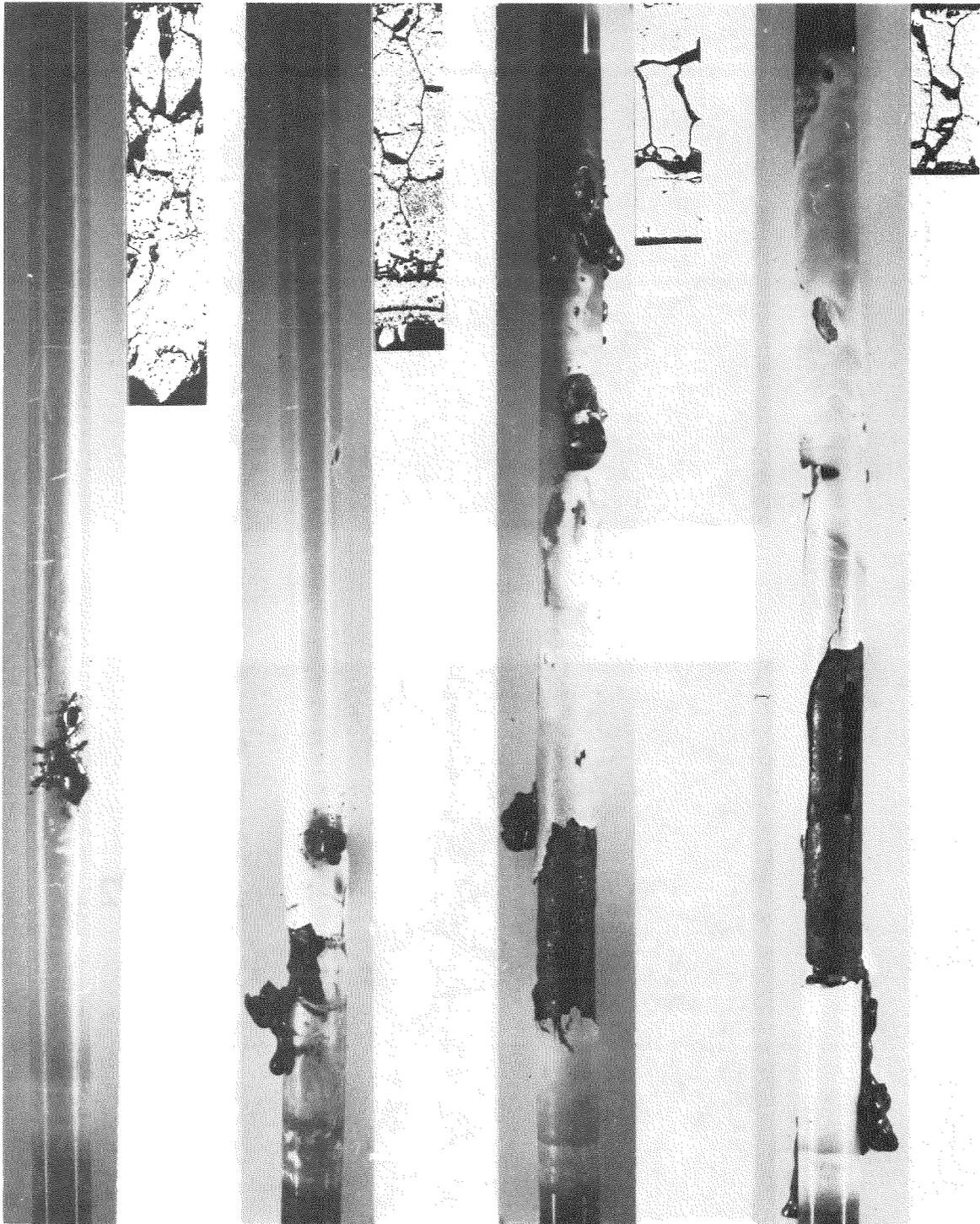
ZrO₂ ↔ Zirkaloy

ABB.: 6

PNS

Ausbildung der Oxidschicht an Stäben die mit verschiedenen Temperaturanstiegen aufgeheizt wurden.

GfK



0,75 °C/sec

1,5 °C/sec

2,5 °C/sec

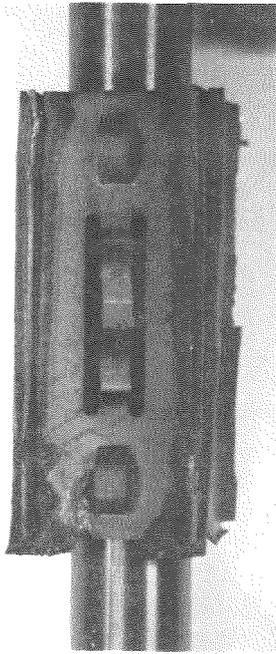
3,5 °C/sec

ABB.: 7

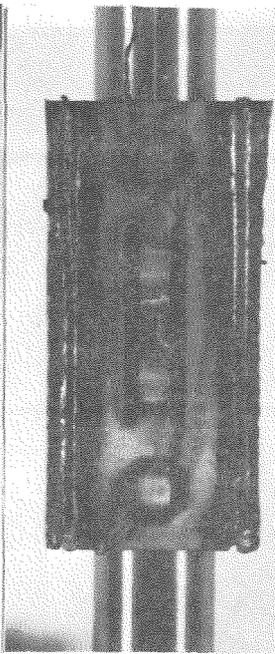
PNS
4241

In Wasserdampf mit verschiedenen Temperaturanstiegen abgeschmolzene Stäbe.

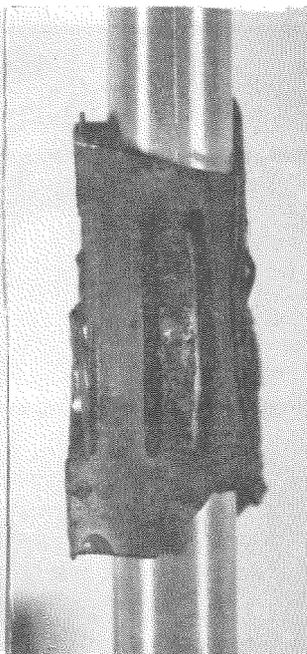
GfK
RBT



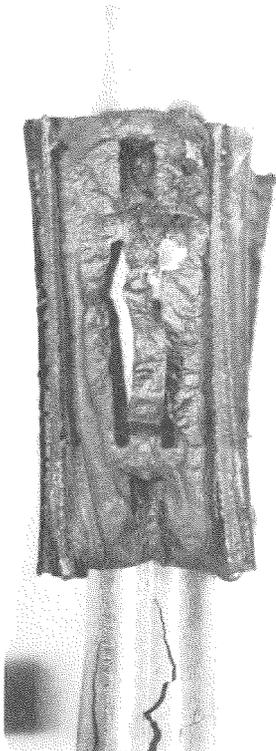
1200°C



1250°C



1450°C



1550°C



1780°C



1830°C

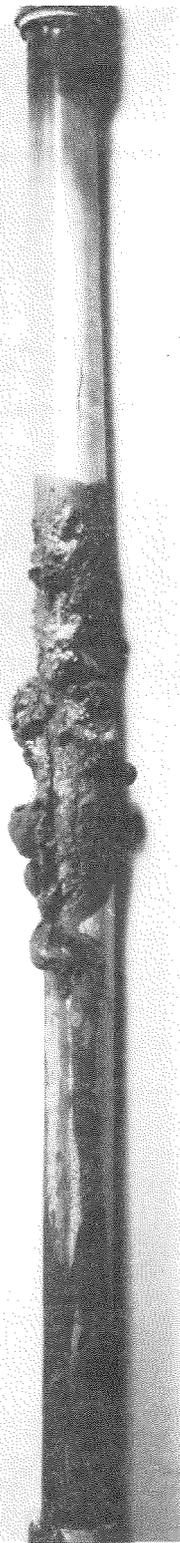
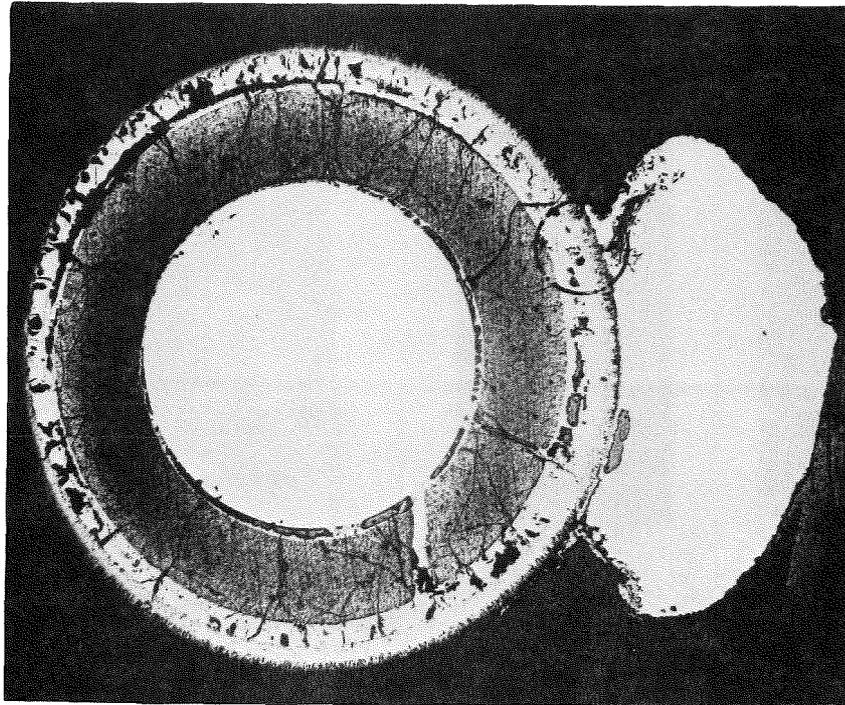


ABB.: 8

PNS
4241

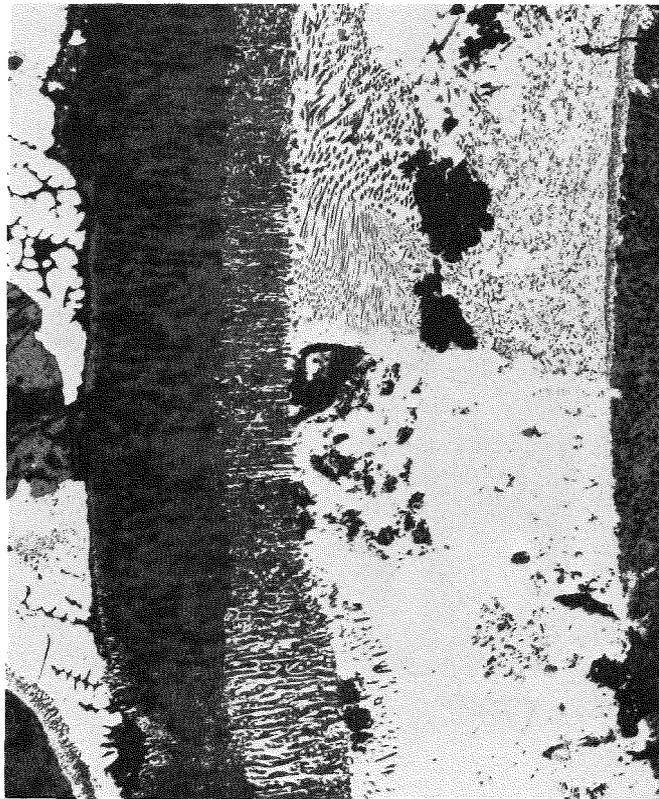
Abschmelzverhalten der Stäbe mit Abstandshalter in Dampf. Verschiedene Maximaltemperaturen.

GfK
RBT



10:1

Ausschnitt 100:1



UO_2

ABB.: 9

ZrO_2 \longleftrightarrow Zirkaloy

PNS

Querschnitt eines in Wasserdampf in Kontakt mit dem Abstandshalter auf 1830°C aufgeheizten Brennstabsimulators.

GfK

JAHRESKOLLOQUIUM 1976

des

PROJEKTS NUKLEARE SICHERHEIT

Reaktionsverhalten von Reaktormaterialien unter Einbeziehung von Beton
beim Kernschmelzen

H. Holleck, P. Hofmann, A. Skokan

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Institut für Material- und Festkörperforschung

Das Reaktionsverhalten von LWR-Materialien beim Kernschmelzen läßt sich in drei Abschnitten betrachten:

- Die Reaktionen, die beim Abschmelzen ablaufen,
- das Reaktionsverhalten der geschmolzenen Komponenten im RDB (Reaktor-druckbehälter)
- das Verhalten der Schmelze nach Durchschmelzen des RDB mit dem Beton des Containments.

Die Betrachtung des Abschmelzvorganges - über den im vorhergehenden Vortrag ausführlich berichtet wurde - liefert uns wichtige Aussagen über die zeitliche Entstehung der Schmelze und damit über zeitabhängige Konzentrationsparameter der Schmelzenzusammensetzung. Wesentliche Parameter dieser Art sind der Oxidationsgrad, der Stahlgehalt sowie der Spaltproduktgehalt.

Der zweite Abschnitt, nämlich die Charakterisierung der Konstitution der Kernschmelze im RDB in Abhängigkeit von den Anteilen der aufgeschmolzenen RDB-Einbauten, vom Oxidationsgrad und von der Temperatur, liefert uns die Daten, die notwendig sind, um das weitere Verhalten der Schmelzen zu beschreiben, z.B. im Hinblick auf die Verteilung der Corekomponenten in der Schmelze, auf die Verteilung der Schmelzen im RDB, auf die Verteilung der hochaktiven Spaltprodukte und Actinoide in der Schmelze, auf das Abdampfverhalten von Corekomponenten und Spaltprodukten aus der Schmelze und schließlich auf die Art und Weise des Durchschmelzens des RDB.

Wenn dieses Durchschmelzen durch den RDB vollzogen ist, so befinden wir uns im dritten Abschnitt, wo Konstitution, Verteilung und Temperaturen der Schmelzen, Abdampfverhalten und Reaktionsverhalten der Spaltprodukte in Beton betrachtet werden müssen.

Im folgenden wurden zuerst einige wesentliche neuere Ergebnisse unserer Untersuchungen zum Verhalten der Coreschmelze im RDB mitgeteilt (die Charakterisierung dieses Verhaltens im RDB ist ganz wesentlich für das Verständnis der weiteren Vorgänge, sei es Spaltproduktfreisetzung oder Reaktionen im Beton) - und gegen Ende wird auf einige Ergebnisse der Untersuchungen in Beton eingegangen.

Entstehung der Schmelzen

Als wesentlichste Materialien sind im LWR vor dem Schmelzen im Kontakt miteinander: UO_2 + Spaltprodukte mit Zry sowie Zry mit Stahl. Hinzu kommt schon vor einem hypothetischen Unfall eine Teiloxidation sowohl an der Innenseite des Zry als auch an der Hüllaußenseite. Die Temperaturen des Schmelzbeginns an diesen Kontaktstellen, die in Abb.1 wiedergegeben sind, werden durch eine zunehmende Oxidation erhöht, so daß man für den realistischen Fall mit den Temperaturen der zumindest teiloxidierten Systeme rechnen kann. Das Schmelzintervall, d.h. der Bereich zwischen dem Auftreten der ersten Schmelze und dem vollständigen Schmelzen, wird teilweise beträchtlich verringert, wie vor allem bei den Schmelzen der Mischung der drei Hauptkomponenten (in Abb.1 rechts) deutlich wird.

Menge und Zusammensetzung der Schmelzen

Die Schmelzen, die sich im wesentlichen an den genannten Kontaktstellen bilden, nehmen im Laufe des Abschmelzens weiter Sauerstoff auf, so daß im RDB ein teiloxidiertes System vorliegt, d.h. es enthält sowohl flüssige Oxidphasen als auch Metallschmelzen. Diese sind bei Temperaturen, welche nicht allzusehr oberhalb der Schmelztemperatur der Komponenten liegen, nicht mischbar wie es im linken Teilbild der Abb.2 in Tiegelversuchen demonstriert ist.

Der Mengenanteil der Oxidschmelze bzw. der Metallschmelze im RDB hängt vom Oxidationsgrad und von der Menge der aufgeschmolzenen Stahlbestandteile ab. Die Zusammensetzung der beiden Teilschmelzen die im rechten Teilbild wiedergegeben ist wird im wesentlichen vom Oxidationsgrad bestimmt. Wenn der Sauerstoff in die Schmelze nur durch den Brennstoff eingebracht wird (inerte Bedingungen), so besteht die Oxidschmelze aus flüssigem $(U,Zr)O_2$, die Metallschmelze enthält neben Stahl etwa aequimolare Mengen U und Zr gelöst. Mit steigender Oxidation der Gesamtschmelze

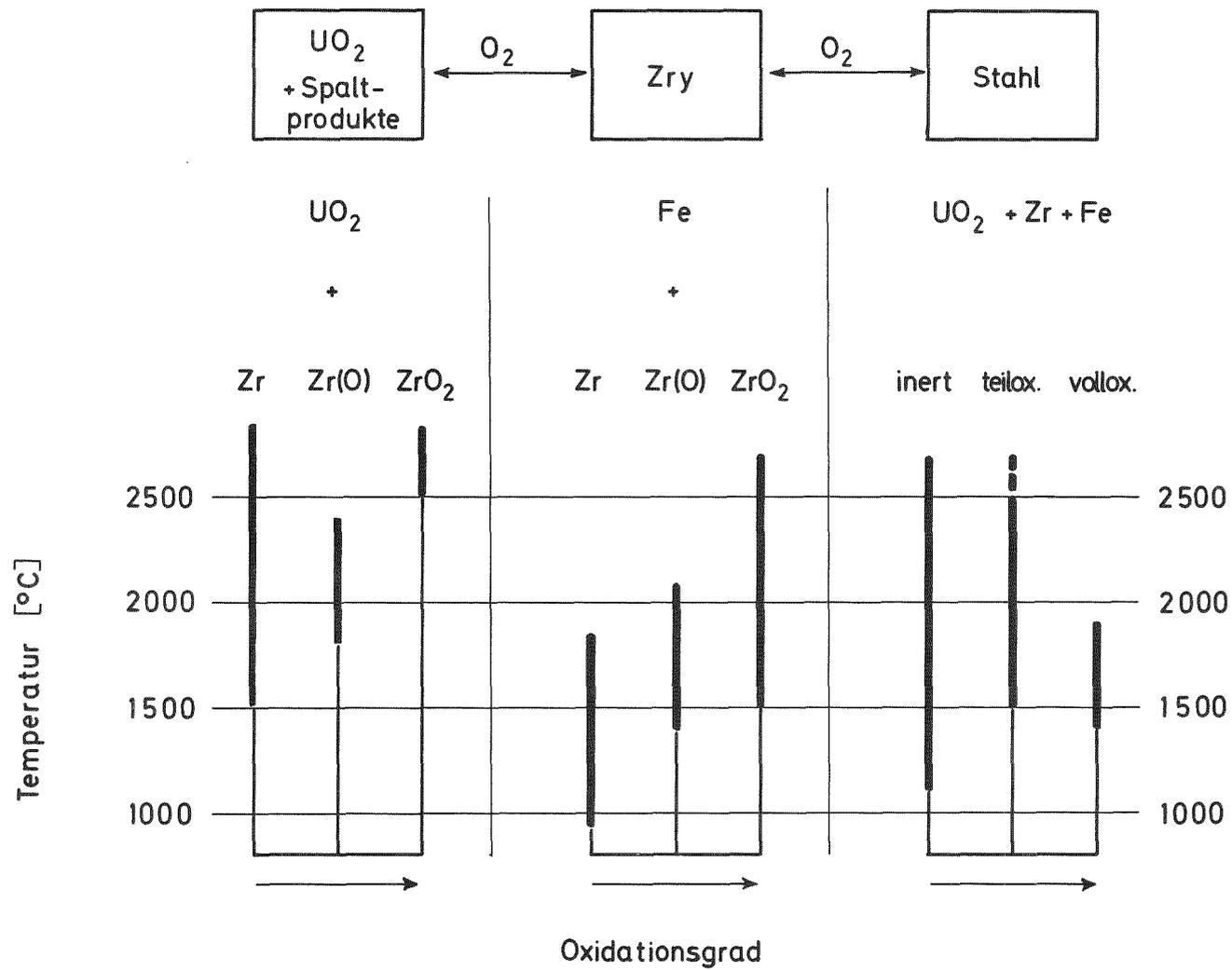
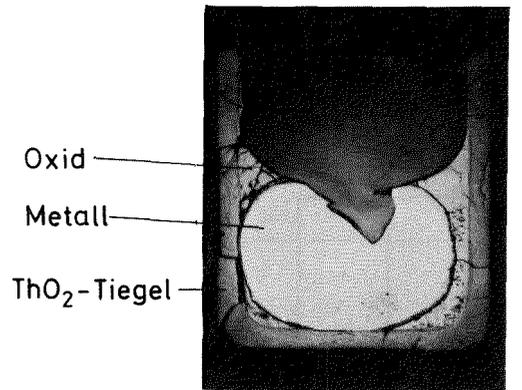
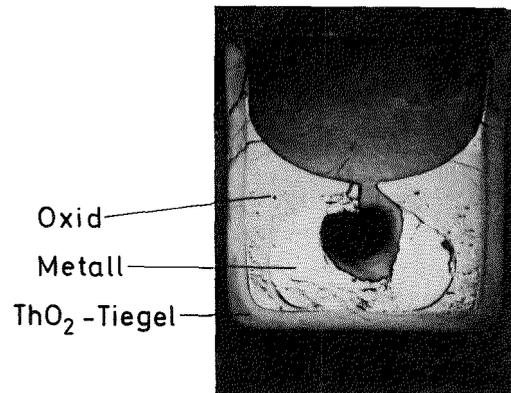


Abb. 1: Zum Auftreten flüssiger Phasen (Balken=Schmelzbereiche) zwischen Corematerialien in Abhängigkeit vom Oxidationsgrad



inert,55 Stahl (Gew.%)



inert,17 Stahl (Gew.%)

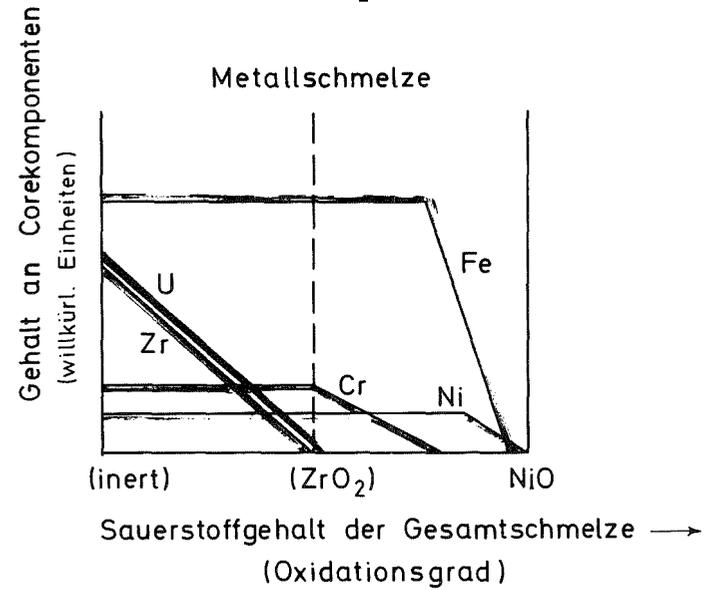
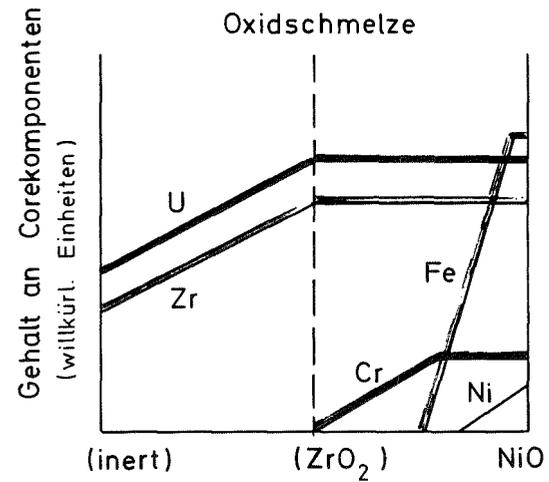


Abb. 2: Mengenanteile (linkes Teilbild) und Zusammensetzung (rechtes Teilbild) der Schmelzen in Abhängigkeit vom Stahl und Sauerstoffgehalt

nimmt der Uran- und Zirkongehalt in der Metallschmelze ab, die Menge der Uran-Zirkon-Mischoxid-Schmelze zu. Erreicht man den teiloxidierten Zustand, wo alles Zr_y oxidiert ist (in Abb.2 durch ZrO₂ auf der Abszisse angedeutet, - der realistische Fall einer Coreschmelze dürfte nahe dieser Zusammensetzung liegen), so enthält die Metallschmelze weder Uran noch Zirkon, sondern ist eine reine Stahlschmelze. Eine weitere Oxidation führt zuerst zu einer Anreicherung des Chroms in der Oxidschmelze, verbunden mit einer Abreicherung in der Metallschmelze. Dem Chrom folgen dann Eisen und zuletzt Nickel, das die instabilsten Oxide bildet.

Mit diesen Änderungen in der Zusammensetzung der einzelnen Schmelzen ändern sich natürlich auch die Eigenschaften. Betrachtet man z.B. die Dichten der Oxidschmelze einerseits und der Metallschmelze andererseits, so erhält man ausgehend von etwa gleichen Dichten für Oxid und Metall bei inerten Bedingungen (vgl. Abb.2) bei weiterer Oxidation für die Oxidschmelze eine gleichbleibende Dichte bis zum Zustand der Teiloxidation (ZrO₂) gefolgt von einer Abnahme durch Lösung oxidiertes Stahlkomponenten; für die Metallschmelze erhält man eine Abnahme der Dichte bis zum Zustand der Teiloxidation, bei weiterer Oxidation bleibt die Dichte im wesentlichen konstant.

Verteilung der Schmelzen

Für die Frage der Verteilung der Schmelzen im RDB spielt allerdings neben der Dichte auch das Benetzungsverhalten (in diesem Falle mit dem RDB) und die Thermohydraulik eine entscheidende Rolle. Es ist in Abb.3 eine Corium-A-Schmelze (Corium-A: Definitionsgemäß eine typische Zusammensetzung für eine Schmelze aus Brennelementen, Abstandshaltern, Trageplatte, Corium-E: enthält alle übrigen Coreeinbauten des RDB⁺ aus Stahl) zu sehen, erschmolzen einmal im ThO₂-Tiegel und zum anderen im W-Tiegel. Die Dichten der Oxidschmelze einerseits und Metallschmelze andererseits sind hier sehr ähnlich. Man erkennt, daß im ersten Fall der Thoriumoxid-tiegel von der Oxidschmelze gut benetzt wird, die Metallschmelze in die Oxidschmelze eingeschlossen ist, daß im Fall des Wolfram-Tiegels eine Schichtung auftritt, wobei die Metallschmelze eine große Oberfläche zum Tiegel sucht. Beide Tiegel sind natürlich nicht wechselwirkungsfrei gegenüber der Schmelze. Im einen Falle dringen Oxidkomponenten in das Tiegelmaterialein (oberes rechtes Teilbild) im anderen Falle Wolfram in die Metallschmelze (unteres rechtes Teilbild). Das Tiegelproblem ist bei all

+ M. Peehs (KWU Erlangen), persönliche Mitteilung 1974

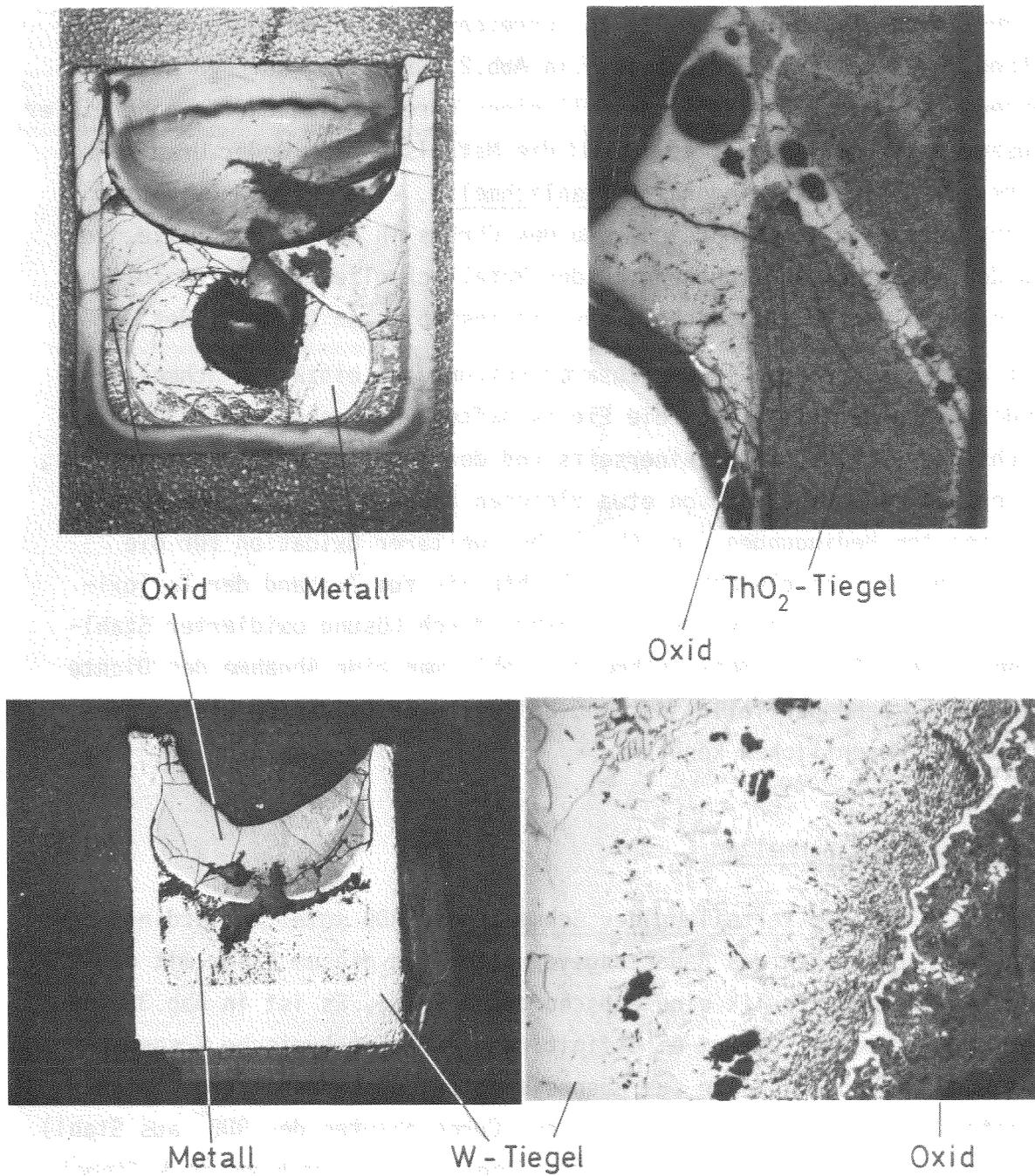


Abb.3: Verteilung der Teilschmelzen (Corium-A) und Wechselwirkung mit Tiegeln bei Erschmelzen im ThO₂-Tiegel (obere Teilbilder) bzw. im W-Tiegel (untere Teilbilder)

diesen Hochtemperaturuntersuchungen nicht auszuschließen. Es geht immer darum, den für den speziellen Fall optimalen Tiegel zu finden.

Abdampfverhalten

Das Abdampfverhalten von Komponenten aus der Schmelze ändert die Zusammensetzung und entzieht der Schmelze Wärme und Wärmequellen. Die Abdampfverluste aus den Schmelzen sind im wesentlichen durch Verdampfung von Stahlbestandteilen und von an sie gebundenen Elementen gegeben. Um dieses Abdampfverhalten zu verstehen, können bei den komplexen Schmelzen nicht ohne weiteres die Dampf- und Partialdrücke der reinen Komponenten oder Verbindungen herangezogen werden. Dennoch sind in Abb.4 auch die Dampfdrücke dieser reinen Komponenten angegeben (ausgezogene Linien). Ausgehend von diesen Werten soll das Abdampfverhalten, so wie es sich in unseren Experimenten im Augenblick darstellt, qualitativ erläutert werden. Betrachtet man die Dampfdrücke der reinen Komponenten in der Metallschmelze, so erkennt man, daß die Drücke z.B. bei 3000 K für Chrom oberhalb von 1 bar, für Eisen und Nickel bei 1 bar, für Uran und Zirkon zwei Größenordnungen niedriger liegen, daß weiterhin bei der gleichen Temperatur die Gesamtdampfdrücke, d.h. die Summe aller Partialdrücke für die Oxidschmelze um 3 bis 5 Größenordnungen niedriger liegen. Berücksichtigt man, daß die Komponenten in Lösungen vorliegen und postuliert man in erster Näherung eine ideale Lösung, so kann man die Dampfdrücke berechnen und erhält bei Kenntnis der Zusammensetzung der Schmelzen die gestrichelten Dampfdruckkurven, die für Chrom, Nickel, Uran, Zirkon, z.B. um eine Größenordnung niedriger liegen als die der reinen Elemente. In ähnlicher Weise werden auch die Dampfdrücke der oxidischen Komponenten erniedrigt. Ein Vergleich zwischen den errechneten UO_2 -Partialdrücken für zwei Zusammensetzungen einer Oxidschmelze mit dem experimentell bestimmten Wert für eine bestimmte Zusammensetzung zeigt befriedigende Übereinstimmung. Die Stahlkomponenten bleiben auch bei diesem Modell die Elemente mit dem weitaus höchsten Dampfdruck, und wenn man berücksichtigt, daß die Abdampfgeschwindigkeit proportional dem Dampfdruck und umgekehrt proportional der Wurzel aus der Massenzahl ist, so unterstreicht dies die Aussage, daß das Abdampfen zumindest bis zu dem Punkt, wo alles Zry oxidiert ist, im wesentlichen von der Metallschmelze ausgeht. Da die Kenntnis des Abdampfverhaltens vor allem im Hinblick auf die Spaltproduktfreisetzung wesentlich ist, sind hier gezielte Untersuchungen im Gange, um die abdampfenden Spezies genauer zu kennen.

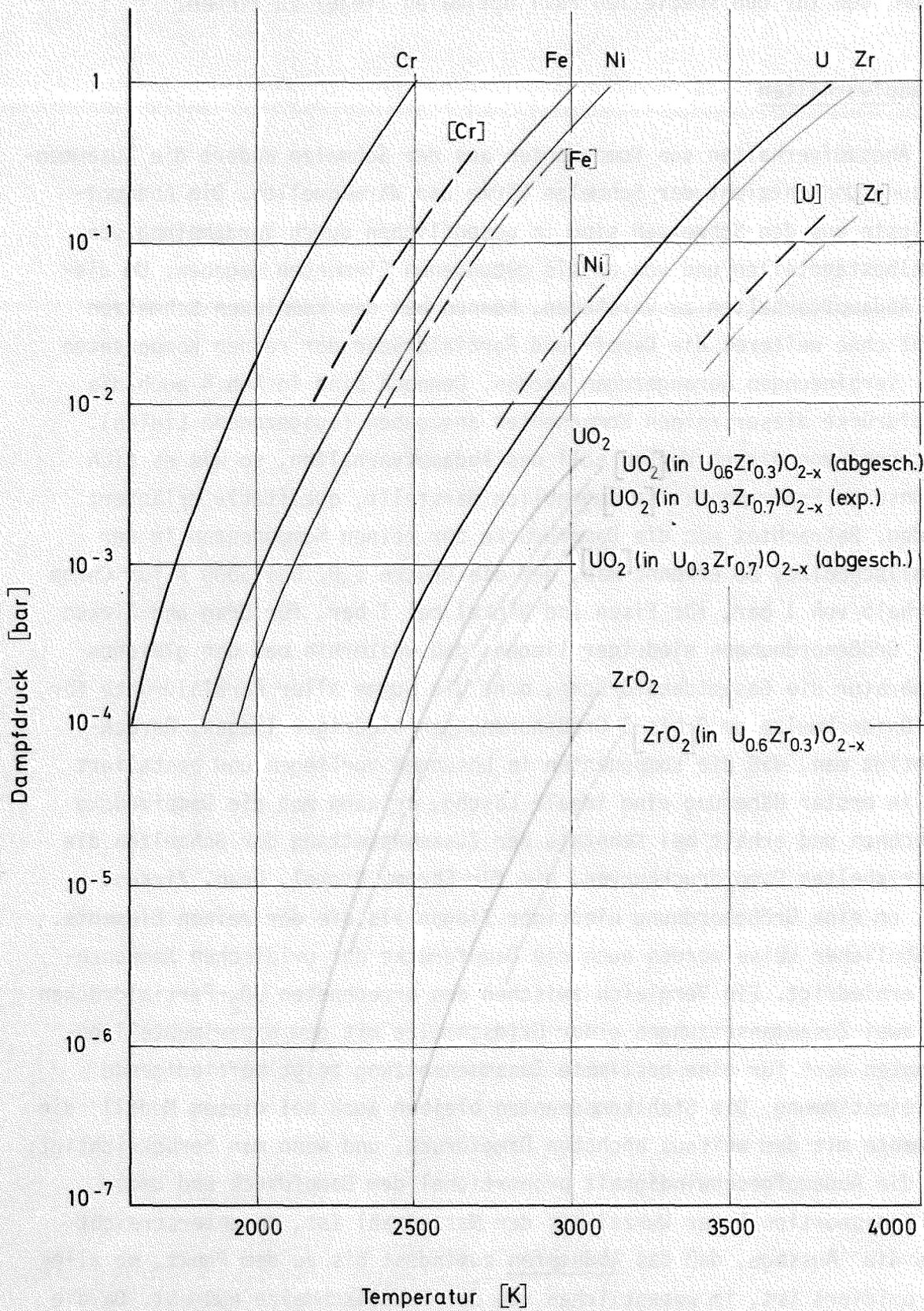


Abb.4: Dampfdrücke einzelner Corekomponenten in reiner Form und in Lösung

Reaktionen der Spaltprodukte

Hier ist nun das Stichwort Spaltproduktfreisetzung gefallen, über die im nächsten Vortrag berichtet wird. Um diese Freisetzung zu verstehen, ist die Kenntnis des Reaktionsverhaltens der Spaltprodukte in der Schmelze Voraussetzung. Nach 10% Abbrand (dieser hohe Abbrand soll in Abb.5 nur ein Bild von den Mengenverhältnissen geben) würde die Menge der Spaltprodukte in molaren Anteilen bei einer Gesamtmenge der Schmelze entsprechend dem Flächeninhalt des großen Kreises, dem Flächeninhalt des kleinen Kreises, entsprechen. Obwohl man nun mit 3-4% rechnet, bleibt die Menge beträchtlich (bei Corium-E sind es wegen des relativen geringen UO_2 -Anteils entsprechend weniger). Hierbei sind auch die Spaltprodukte mitberücksichtigt, die leicht flüchtig sind - in der Abbildung durch das grobe Karo gekennzeichnet - und wahrscheinlich nicht in die Schmelze gelangen werden. Der größere Anteil (die Menge der einzelnen Elemente entspricht der Fläche der Segmente in Abb.5) wird jedoch in der Schmelze gelöst sein. Dies sind die Seltenen Erden, Zr, Mo und Tc, Sr und Ba sowie die Platinmetalle Ru, Rh und Pd.

Typische Ergebnisse unserer bisherigen Experimente über das Reaktionsverhalten der Spaltprodukte in der Schmelze sollen an einem Beispiel dargestellt werden. Abb.6 zeigt die Verteilung der Elemente in der Oxidphase und Metallphase mit Hilfe von Bildern der charakteristischen Röntgenstrahlung der einzelnen Elemente (Corekomponenten oben, Spaltproduktrepräsentanten unten).

Bei inerten oder leicht oxidierenden Bedingungen tritt U und Zr sowohl in der Metallphase wie in der Oxidphase auf, die Stahlkomponenten nur in der Metallschmelze. Die Spaltprodukte aus der Reihe der Seltenen Erden sind homogen in der Oxidphase verteilt. Die Erdalkalimetalle treten in der Oxidphase auf und zeigen hier besondere Tendenz sich an das Zr zu binden. Die Platinmetalle sind homogen in der Metallphase gelöst. Mo tritt ebenfalls in der Metallschmelze auf und zeigt dort Tendenz sich an das Cr des Stahls zu binden.

Obwohl solche Anreicherungen im flüssigen Zustand sicherlich nicht in dieser Form existieren, deuten sie doch auf zusätzliche Bindungskräfte hin, die bei der Spaltproduktfreisetzung möglicherweise manches Verhalten erklären können.

Diese Bindung verschiedener Elemente in bestimmten Phasen oder mit be-

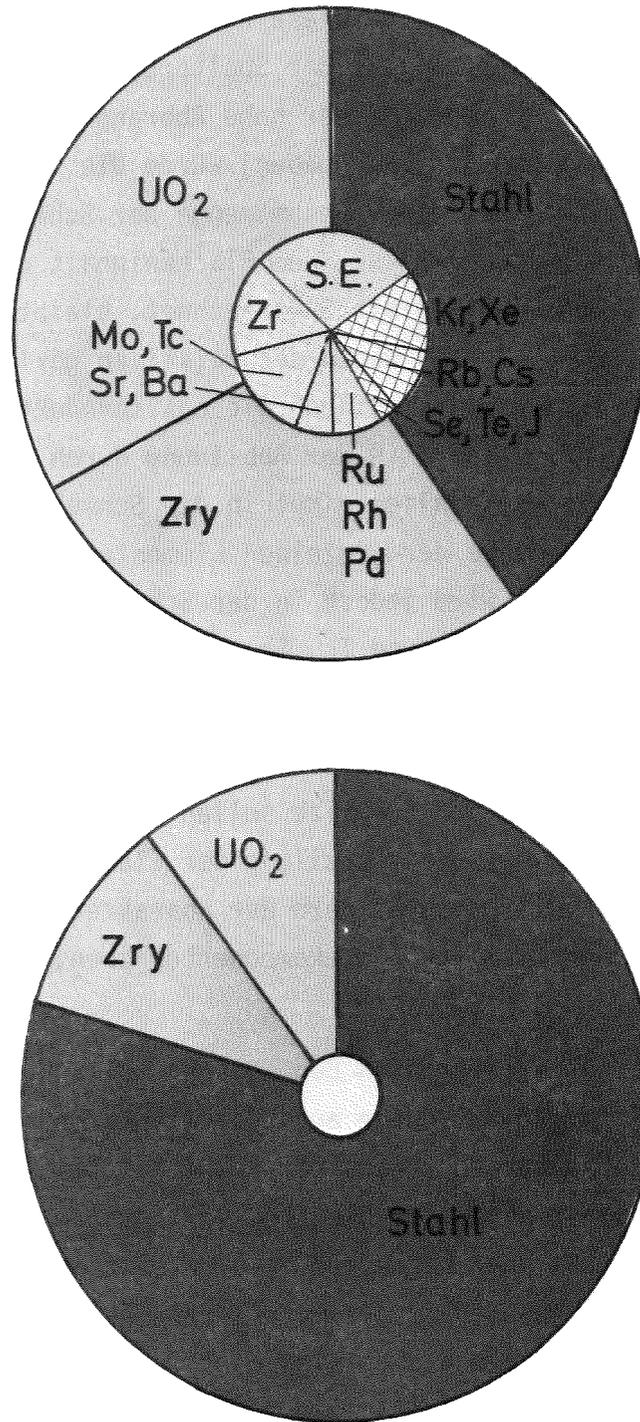
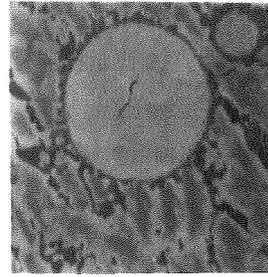
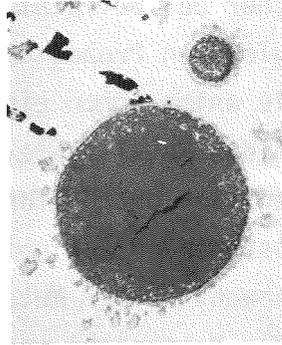
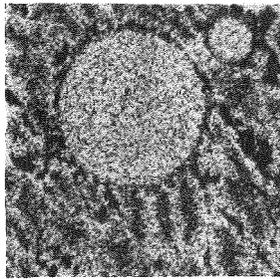


Abb.5: Spaltproduktgehalt (Mol-%) in einer Kernschmelze entsprechend Corium-A und Corium-E nach 10% Abbrand

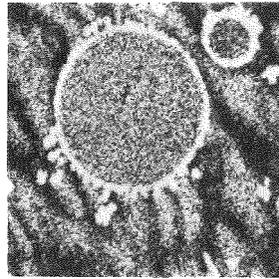


Schliffbild

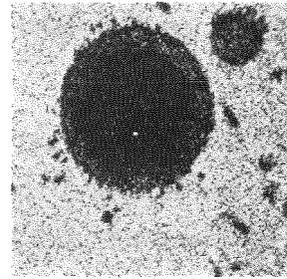
Probenstrombild (neg.)



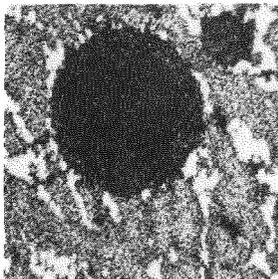
U



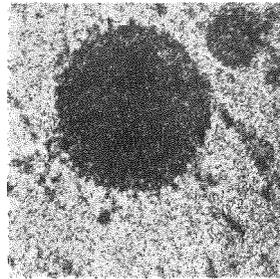
Zr



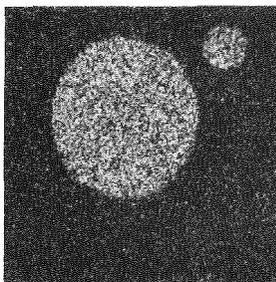
Fe



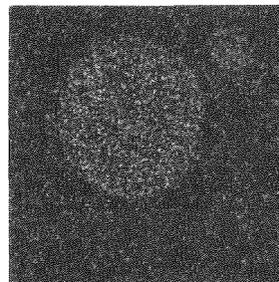
Cr



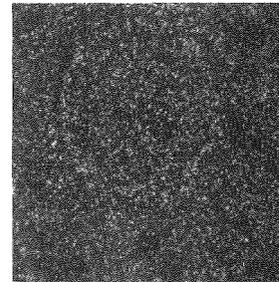
Ni



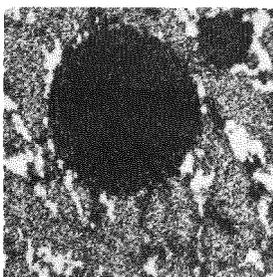
Nd



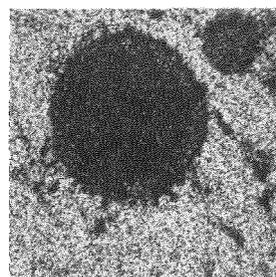
Ce



Sr



Mo



Ru

Abb.6: Röntgenbilder eines Oxidpartikels in der Metallphase einer Corium-A-Probe mit einem simulierten Abbrand von 20%

stimmt anderen Elementen wird noch deutlicher bei Betrachtung der Konzentrationsprofile der Elemente bei der gleichen Probe, die in Abb.7 wiedergegeben sind. Die Konzentrationsprofile entsprechen einer Messung von der Metallphase über den Oxidpartikel in die Metallphase, wie auf dem Schliffbild der Abb.7 angedeutet. Bei den hier durchgeführten experimentellen Untersuchungen konnten die entstehenden Actinoide nicht simuliert werden. Uran tritt, wie gezeigt, sowohl in der Metallphase als auch in der Oxidphase auf, mit zunehmender Massenzahl werden die Actinoide jedoch durch zunehmende Lokalisierung der f-Elektronen den Seltenen Erden ähnlicher, so daß Pu, Am und Cm nur in der Oxidphase zu erwarten sind.

Eine weitere Diskussion des Reaktionsverhaltens muß nun den fortschreitenden Oxidationsgrad der Schmelze berücksichtigen. In Abb.8 sind die freien Bildungsenthalpien als Maß für die Stabilität der Oxide der Corekomponenten und der wichtigsten Spaltproduktgruppen aufgetragen. Die Oxide der Seltenen Erden und Erdalkalimetalle sind so stabil, daß diese Spaltprodukte immer in der Oxidphase auftreten werden. Das Verhalten von U und Zr ist sehr empfindlich vom Oxidationsgrad abhängig. Die Spaltprodukte Mo und Tc werden erst später etwa gleichzeitig mit den Stahlkomponenten oxidiert und die Platinmetalle bilden keine stabilen Oxide, können aber bei hohen Temperaturen (besonders Ru) in Sauerstoff absublimentieren. Diese Oxidation der Corekomponenten und Spaltprodukte, die weniger stabile Oxide bilden, wird sich erst im dritten Abschnitt, der hier betrachtet wird, vollziehen, nämlich wenn der RDB durchgeschmolzen ist und die Coreschmelze mit Beton reagiert.

Reaktionsverhalten der Coreschmelze mit Beton

Die wichtigsten mit diesem Reaktionsverhalten gekoppelten Problemkreise betreffen:

1. Die Art und Weise des Durchschmelzens der Coreschmelze durch Beton (Oxidationskinetik, Phasenbildung, Wärmeübergang)
2. Die Menge des aufgeschmolzenen Betons (Wärmebilanz, Schmelzpunkte)
3. Die Gasfreisetzung in Form von H_2 , H_2O und CO_2 , CO
4. Die Freisetzung hochaktiver Komponenten, insbesondere der Spaltprodukte.

Das bisher schon reichlich komplexe System wird noch erweitert durch die Komponenten des Betons. Abb.9 gibt eine Übersicht über die chemische

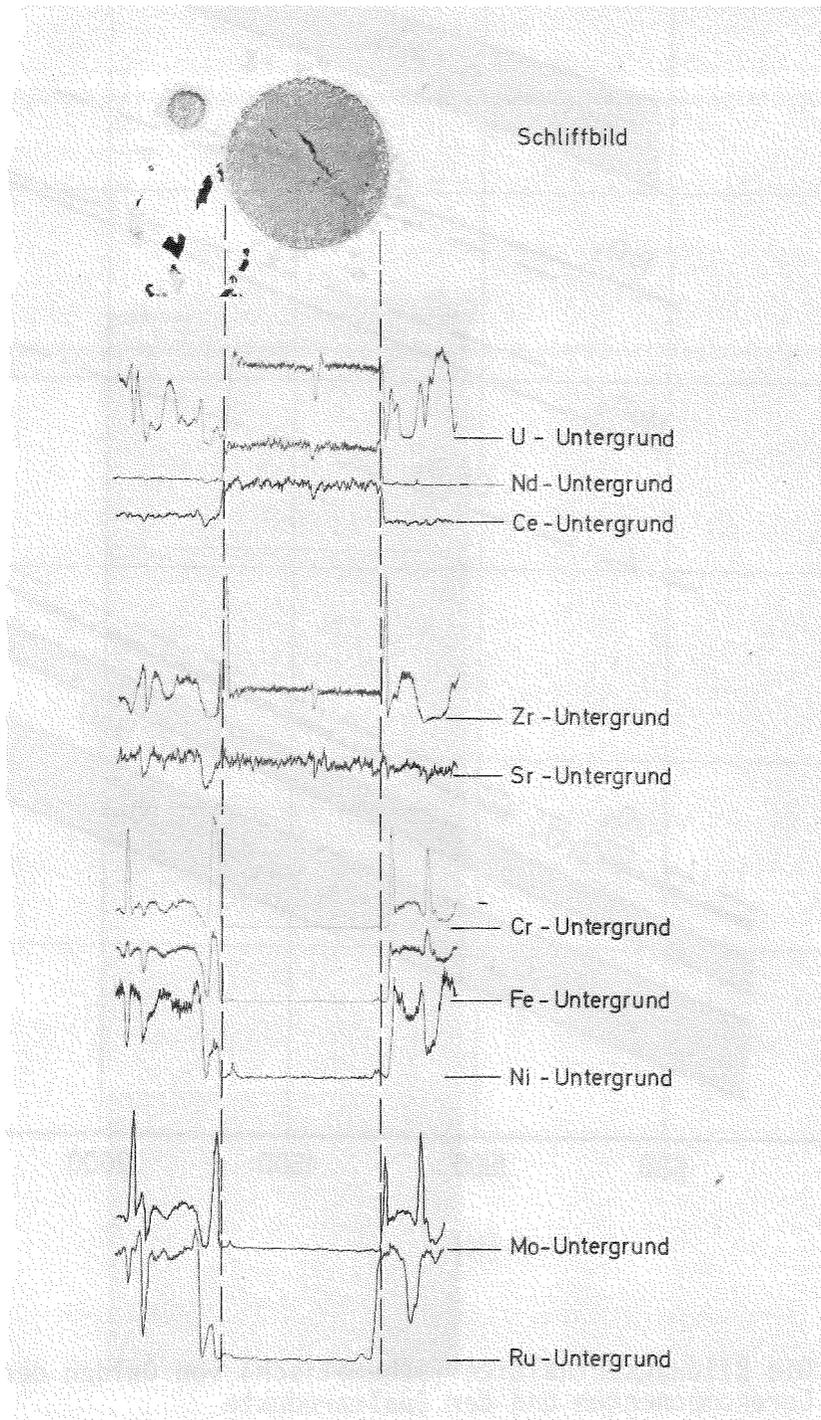


Abb.7: Konzentrationsprofil der Elemente in der Oxid- und Metallphase einer Corium-A-Probe mit einem simulierten Abbrand von 20%

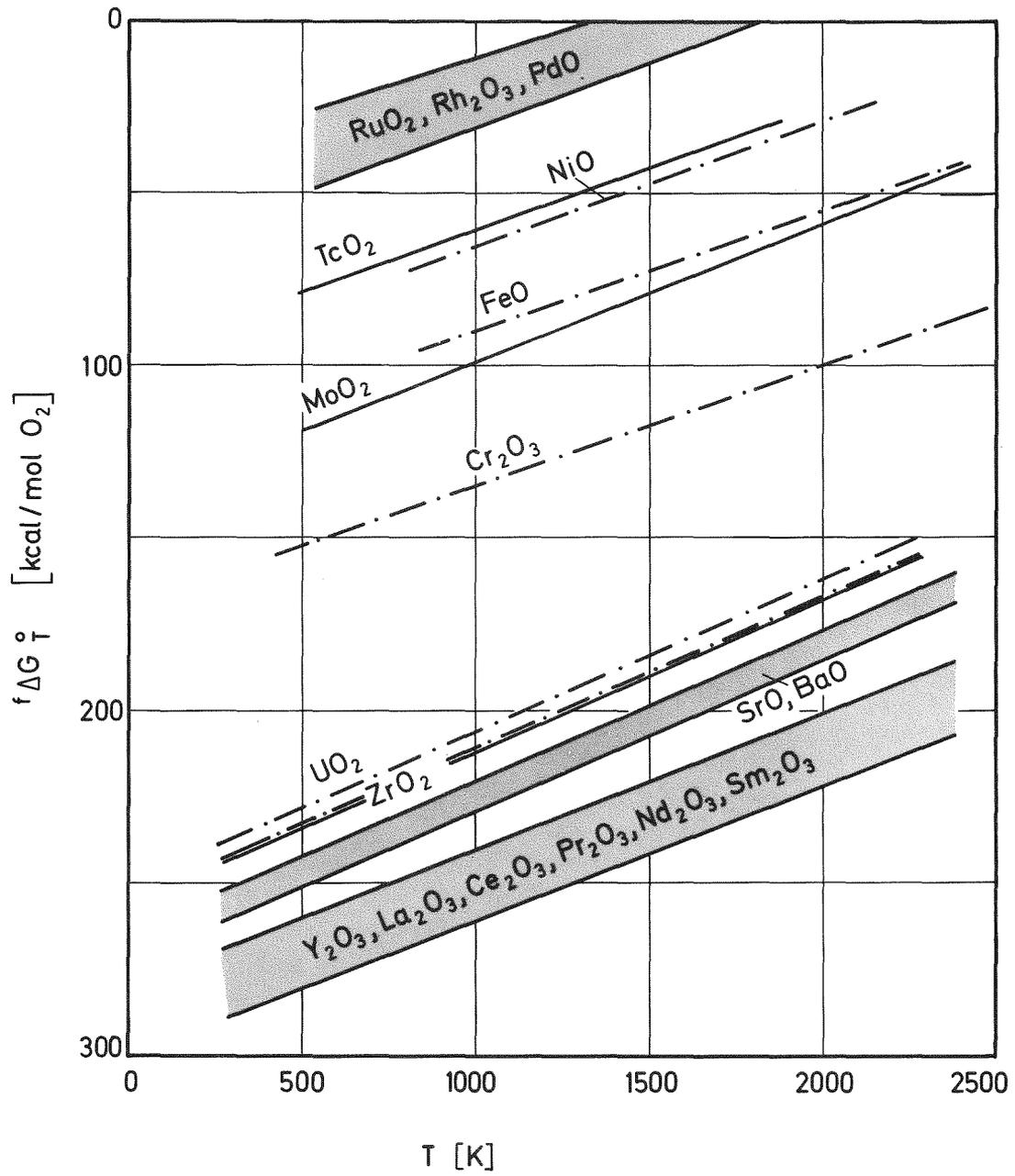


Abb.8: Die Bildungsenthalpien (schematisch) von Oxiden der Corekomponenten und der Spaltprodukte

Normal - Beton
Bn 250

Zement
13,5

+

Zuschlag
81,0

+

Wasser
~ 5,5

Hauptkomponenten:

CaO ~ 8,1
SiO₂ ~ 2,7
Al₂O₃ ~ 0,7
Fe₂O₃ ≤ 0,7
Mn₂O₃ ≤ 0,5
MgO ≤ 0,5
SO₃ ≤ 0,4

SiO₂

bis

(Mg,Ca)CO₃

H₂ (0,5)
O₂ (5,0)

zuzüglich Bewehrungsstahl 1-5 Gew.-%

Abb. 9: Chemische Zusammensetzung von Normalbeton (Gew.%)

Zusammensetzung des Betons. Er enthält im wesentlichen CaO , SiO_2 im Zement, SiO_2 oder $(\text{Mg,Ca})\text{CO}_3$ im Zuschlag und etwa 5,5% Wasser. Dazu kommen etwa 1-5 Gew.% Bewehrungsstahl. Beton schmilzt bei etwa 1300°C . Schon während der Aufheizphase wird jedoch Wasser und bei Carbonatzuschlag auch CO_2 frei. Beide oxidieren den metallischen Teil der Coreschmelze. Die oxidischen Bestandteile des Betons lösen sich in der Oxidphase der Coreschmelze. Mit der Menge des aufgeschmolzenen Betons sinkt der Schmelzpunkt der Oxidphase ab, d.h. zu Beginn der Reaktion hat die Oxidschmelze einen Schmelzpunkt von etwa 2500°C , durch zunehmende Lösung von Beton sinkt der Schmelzpunkt entsprechend der in Abb.10 wiedergegebenen experimentell bestimmten Kurve ab. Die Kenntnis der Schmelzpunkte in jedem Stadium des Durchschmelzens ist wichtig, um ev. Erstarrungsvorgänge und Krustenbildungen einschätzen zu können.

Abb.11 zeigt einige Tiegelversuche zum Reaktionsverhalten der Coreschmelze in Beton. Als Reaktionsprodukte entstehen eine Oxidschmelze $(\text{U,Zr,Si,Ca,Al})\text{O}_{2-x}$ und eine Stahlschmelze. Die Mengenverhältnisse dieser beiden Schmelzen sind abhängig von der aufgeschmolzenen Betonmenge, vom Oxidationszustand der ursprünglichen Coreschmelze sowie vom Zuschlag im Beton (silikatisch oder karbonatisch). Für Silikat-Zuschlag zeigen die Schliffbilder verschiedene Mengenverhältnisse bis hin zum fast vollständigen Verschwinden der Metallschmelze (unteres Teilbild), d.h. hier hat der freigesetzte Wasserdampf fast den ganzen Stahl oxidiert. Diese Stahloxidation verläuft selektiv für die Komponenten des Stahls. Abb.12 zeigt das Konzentrationsprofil einiger Elemente über die Metall- und Oxidphase, wo deutlich wird, daß Cr in der Metall- und Oxidphase etwa zu gleichen Anteilen enthalten ist, während die anderen Stahlkomponenten Fe und Ni nur in der Metallphase vorliegen.

Der Zeitpunkt im Reaktionsverhalten der Coreschmelze mit dem Beton, wo alle metallischen Bestandteile durch die aus Beton freigesetzten Gase oxidiert sind, wo also nur mehr eine Oxidschmelze vorliegt, die den Beton weiter auflöst, ist wichtig zu kennen, sowohl im Hinblick auf das weitere Verhalten der Spaltprodukte als auch für die weitere Gasfreisetzung, da die Gase nicht mehr reduziert werden.

In Abb.13 wird der Versuch unternommen, ganz grob die Laborversuche zu diesem Problem mit realistischen Mengenverhältnissen zu vergleichen. Im oberen Teil der Abbildung ist angegeben, welches Verhältnis von Corium/Beton in der Schmelze notwendig ist, um eine Coreschmelze mit

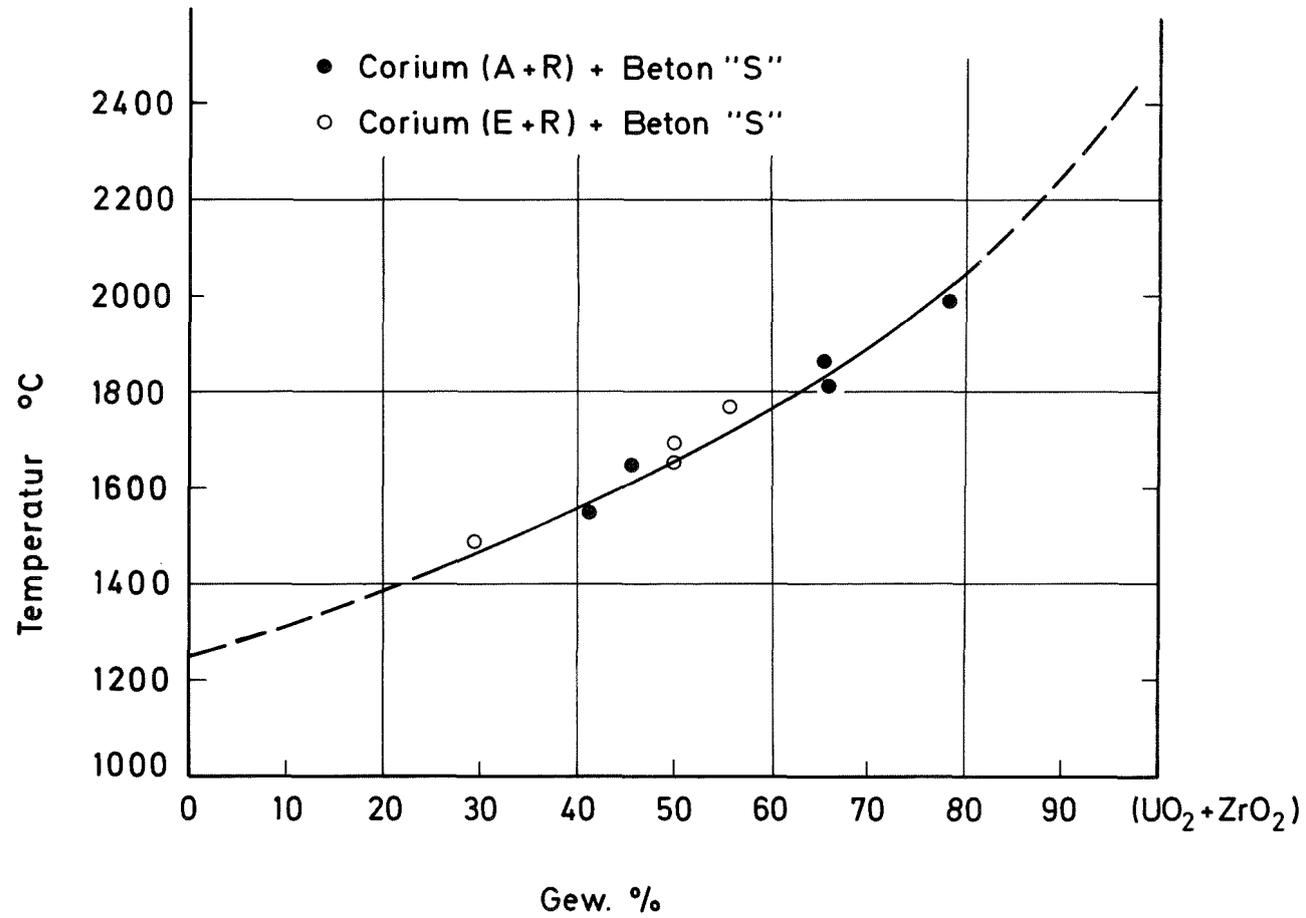
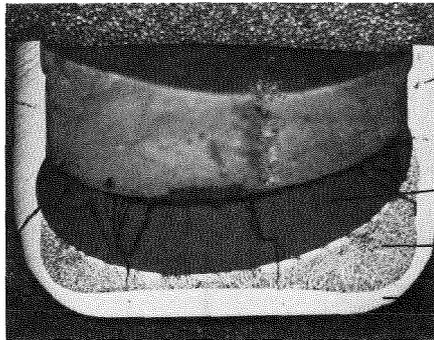
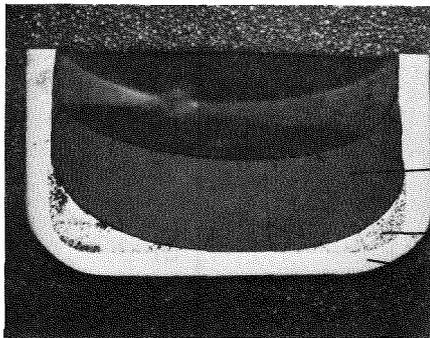


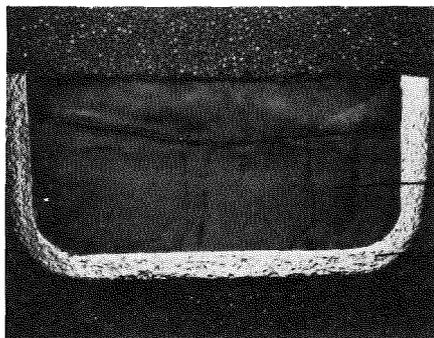
Abb. 10: Schmelztemperaturen der Oxidphase von Corium-Beton (Silikatzuschlag) Schmelzen in Abhängigkeit vom (UO₂+ZrO₂)-Gehalt



Corium E + R (teiloxidiert)
+ Beton (Silikatzuschlag) 3/1
(U,Zr,Si,Ca,Al,Cr.....)O_{2-x}
Stahl
W - Tiegel



Corium A + R (teiloxidiert)
+ Beton (Silikatzuschlag) 3/1
(U,Zr,Si,Ca,Al,Cr.....)O_{2-x}
(Fe,Ni)
W - Tiegel



Corium A + R (teiloxidiert)
+ Beton (Silikatzuschlag) 1/1
(U,Zr,Si,Ca,Al,Cr,Fe,Ni....)O_{2-x}
W - Tiegel

Abb.11: Schliffbilder von teiloxidierten Coriumproben nach Reaktion mit Beton (Silikatzuschlag)

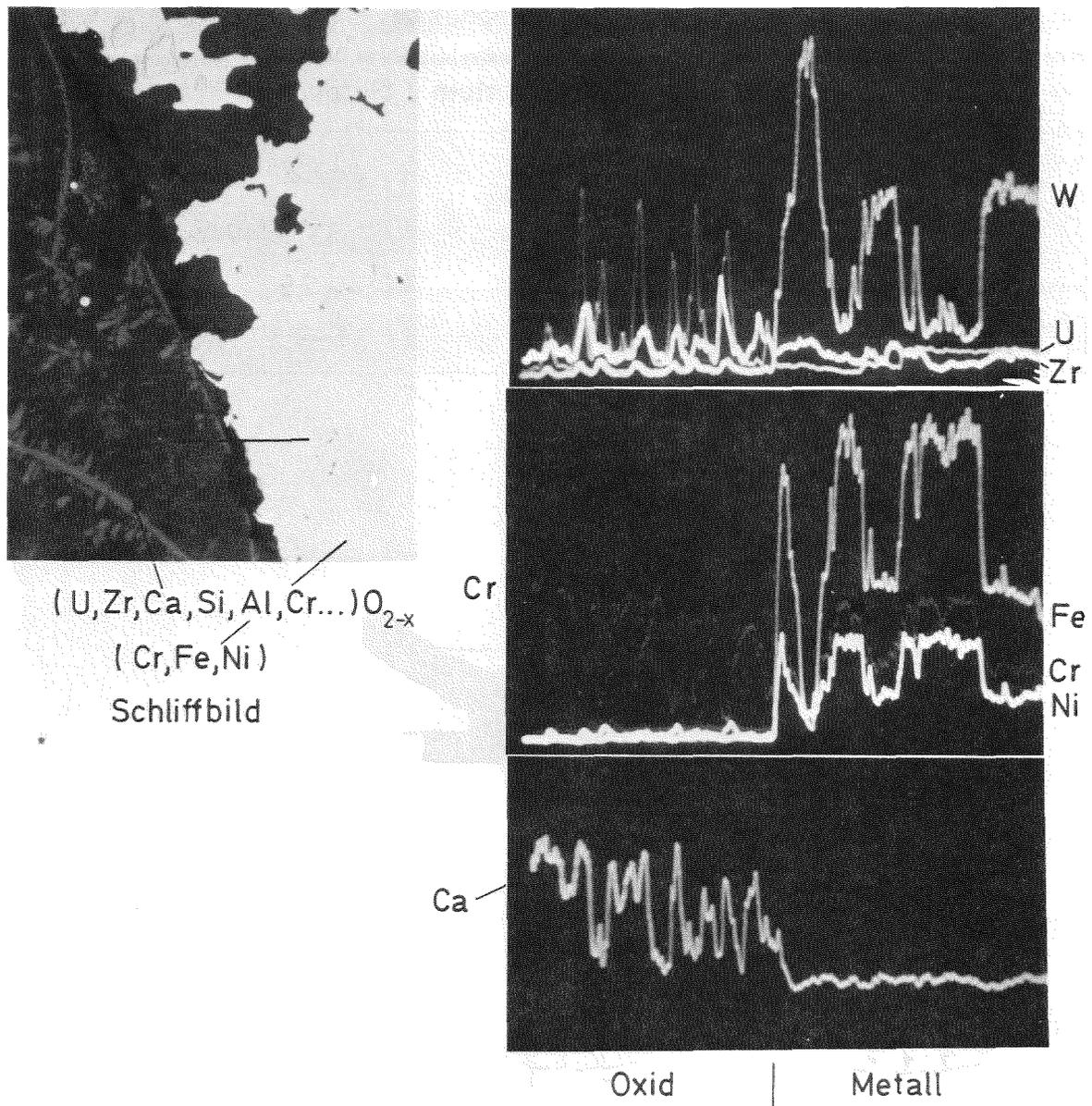
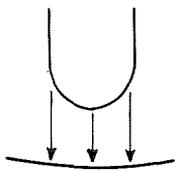
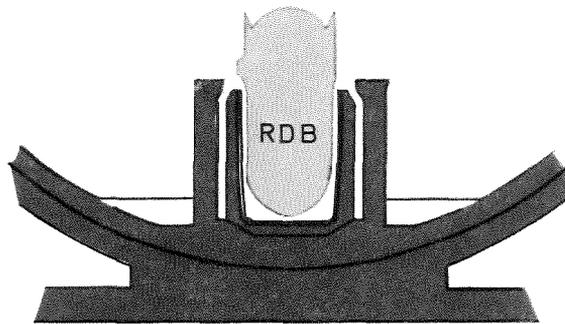


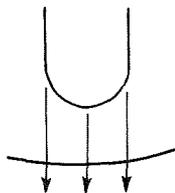
Abb.12: Konzentrationsprofil der Elemente U,Zr,Ca,Cr,Fe,Ni und W (Tiegel) in der Oxid- und Metallschmelze einer teiloxidierten Corium-E + R/Beton (3/1) Probe

Coreschmelze	Oxidationsgrad	aufzuschmelzender Beton zur vollständigen Oxidation → einphasige Oxidschmelze (Gewichtsverhältnis) Corium / Beton "S"
A + R	nicht voroxidiert	1 / 2,5 - 3
A + R	teiloxidiert	1 / 1,5 - 2 (1/2 - 2,7)
E + R	nicht voroxidiert	1 / 4 - 5,5
E + R	teiloxidiert	1 / 3,5 - 4,5 (1/5 - 7)



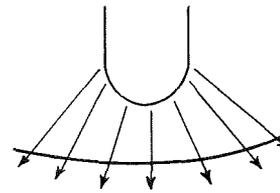
innerhalb
Containment
Ø 6 m , h 2,75m

(A + R) / Beton ~ 1:1
(E + R) / Beton ~ 1:0,5



innerhalb + außerhalb
Containment
Ø 6 m , h 5,75m

~ 1:2
~ 1:1



innerhalb + außerhalb
Containment
Ø 20m , h 5,75m

~ 1:10
~ 1:5

Corium / Beton Verhältnisse bei verschiedenen hypothetischen Aufschmelzstadien

Abb.13: Mengenverhältnisse Coreschmelze/Beton (Gew.%) bei vollständig oxidiertem Schmelze (einphasige Oxidschmelze) sowie im Reaktor (abgeschätzt) bei verschiedenen hypothetischen Durchschmelzstadien

verschiedenem Stahlgehalt und unterschiedlichem Oxidationsgrad vollständig zu oxidieren. Die wahrscheinlich realistischsten Fälle sind schraffiert, d.h. wir haben sicherlich eine teiloxidierte Coreschmelze mit dem Stahlgehalt als Parameter. Um eine teiloxidierte Corium-A+R-Schmelze (R=aufgeschm.RDB-Anteil⁺) vollständig zu oxidieren, benötigt man etwa den doppelten Gewichtsanteil an Beton, bei höherem Stahlanteil entsprechend Corium-E das vierfache.

Um einen Eindruck von den Mengenverhältnissen, die im Reaktor zur Verfügung stehen, zu gewinnen, sind im unteren Teil der Abbildung die Mengenverhältnisse für verschiedene hypothetische Aufschmelzstadien angegeben. Man erkennt, daß das Verhältnis von 1:2, das zur vollständigen Oxidation führt, bei einem senkrechten Durchschmelzen erst erreicht wird, wenn die Schmelze durch den ganzen Beton durchgeschmolzen ist. In diesem Fall ist für höher stahlhaltige Schmelzen immer noch Metallphase vorhanden; hier wäre erst bei sehr breiten Durchschmelzen mit einer homogenen Oxidschmelze zu rechnen, wenn die Oxidation nur durch das Wasser des Betons erfolgt. Bei karbonathaltigem Beton ist mit einer etwas schnelleren Oxidation zu rechnen, da hier auch das CO₂ auf Chrom und Eisen oxidierend wirken kann. In den weiteren Arbeiten wird das Hauptaugenmerk besonders auch dem Karbonatzuschlag, den Reaktionen der Spaltprodukte im Beton sowie dem Oxidationsverhalten im Beton gelten.

Die kurzen Ausführungen sollten die Probleme, die im Rahmen der Untersuchungen zum Materialverhalten beim Coreschmelzen behandelt werden, skizzieren und einen Einblick in die laufenden experimentellen Untersuchungen geben. Vielleicht werden nun noch weiterreichende Schlußfolgerungen aus den Untersuchungen im Hinblick auf die Vorgänge wie sie bei einem hypothetischen Kernschmelzen im Reaktor zu erwarten wären vermißt. Hier spielen auch eine ganze Reihe anderer Vorgänge eine entscheidende Rolle, wie z.B. die Kinetik der Reaktionen, die Eigenschaften der entstehenden Schmelzen oder die Thermohydraulik. Es ist das Ziel der Untersuchungen, gemeinsam mit den Arbeiten auf den eben erwähnten Gebieten, eine möglichst realistische Modellvorstellung zu entwickeln und es sollte gezeigt werden, daß die Kenntnis des Reaktionsverhaltens hierzu eine wesentliche Voraussetzung ist.

⁺ M.Peehs (KWU Erlangen), persönliche Mitteilung 1976

JAHRESKOLLOQUIUM 1976

des

PROJEKTS NUKLEARE SICHERHEIT

Aktivitäts-Freisetzung und -Transport beim Kernschmelzenunfall

H. Albrecht, H. Wild

Institut für Radiochemie

M.F. Osborne

Oak Ridge National Laboratory (Delegierter der USNRC beim PNS)

1. Einleitung

Im Verlauf eines Kernschmelzenunfall würde die Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten aus zwei Gründen eine wichtige Rolle spielen:

1. Durch das Entweichen eines Teils der radioaktiven Stoffe würde die im Brennstoff bzw. in der Schmelze entwickelte Nachwärmeleistung abnehmen; dadurch würde die Aufheizung des Kerns langsamer verlaufen und nicht bis zu so hohen Temperaturen führen, als wenn alle Aktivitätsträger gebunden blieben.
2. Würden jedoch diese radioaktiven Stoffe in die Atmosphäre des Druckbehälters und des Containments gelangen, so käme es ganz entscheidend darauf an, daß die Integrität des Containments nicht durch weitere Ereignisse infrage gestellt wird.

In der Rasmussen-Studie (1) werden bekanntlich einige solcher Ereignisse unterstellt und dann untersucht, welche Mengen an radioaktiven Produkten in die Umgebung des Reaktors gelangen könnten.

Wir sind der Meinung, daß die dort angegebenen Zahlenwerte wahrscheinlich zu hoch sind, weil sie auf Rechnungen mit experimentellen Daten beruhen, die in zu kleinen Laborversuchen und mit zu unrealistischen Randbedingungen ermittelt wurden.

Wir führen daher ein Versuchsprogramm durch - übrigens unter Beteiligung eines von der amerikanischen NRC delegierten Wissenschaftlers-, das eine systematische Untersuchung der Aktivitäts-Freisetzung zum Ziel hat.

Folgende Punkte stehen dabei im Vordergrund:

1. Bestimmung der wichtigsten Spalt- und Aktivierungsprodukte, die während der Aufheizung und aus flüssigen Kernschmelzen verschiedener Zusammensetzung freigesetzt werden.
2. Untersuchung der physikalischen und chemischen Eigenschaften der Freisetzungs-Produkte.
3. Beschreibung des Transport- und Ablagerungsverhaltens in der Nachunfallatmosphäre des LWR-Containments.

2. Beschreibung der Freisetzungsversuche

2.1. Versuchsprogramm

Bei der Beschreibung unseres Vorhabens soll hier insbesondere auf den Punkt 1 der eben genannten Ziele eingegangen werden. Wie die Abbildung 1 zeigt, besteht das Versuchsprogramm aus mehreren Stufen:

In der Schmelzanlage SASCHA werden zunächst mit Proben von 30 g Corium (UO_2 + Zircaloy + Stahl) die technischen Voraussetzungen für die kontrollierte Handhabung von Schmelzen unter verschiedenen Atmosphären bis zu Temperaturen von $3000^\circ C$ entwickelt. Außerdem werden erste systematische Versuche zur Erfassung der Freisetzung durchgeführt; davon wird später noch ausführlicher die Rede sein.

Die erwähnte Schmelzanlage wurde so konzipiert, daß sie auch für Versuche mit Schmelzgutmassen im Kilogramm-Bereich geeignet ist. Die Ergebnisse aus diesen Versuchen wird man sehr sorgfältig mit denen der 30 g-Versuche vergleichen müssen, um zu prüfen, wie gut die Extrapolation über zunächst nur 2 Größenordnungen ausfällt. Möglicherweise zeigt sich dabei, daß z.B. das Oberflächen/Volumen-Verhältnis der Schmelze als weiterer wichtiger Parameter der Freisetzung zu berücksichtigen ist.

Eine Übertragung der auf solche Weise bereits kritisch analysierten Ergebnisse auf Reaktordimensionen würde aber eine Extrapolation um weitere 5

Größenordnungen erfordern. Um die damit verbundenen Unsicherheiten weiter zu reduzieren, ist daran gedacht, in einer 3. Stufe unseres Programms Versuche mit einigen Hundert Kilogramm Schmelzgut durchzuführen. Die Frage, ob solche Versuche mit vertretbarem Aufwand realisierbar sind, wird z.Zt. mit Hilfe einer Feasibility-Studie geklärt.

2.2. Versuchsanordnung

Abgesehen von diesen Voruntersuchungen befindet sich unser Vorhaben seit etwa 1 Jahr im Stadium der Versuchsstufe 1. Die Abbildung 2 zeigt eine schematische Darstellung der experimentellen Anordnung, deren Kernstück die Schmelzanlage SASCHA bildet. Sie besteht aus einem Hochfrequenzgenerator (40 kW, 350 kHz), einem doppelwandigen, bis auf 140°C thermostatisierbaren Ofenkessel und einer einwindigen Induktionsspule aus Kupfer, die mit Wasser bzw. Öl gekühlt wird. Im Spuleninnern befindet sich die Tiegelanordnung bestehend aus einem äußeren Tiegel aus Al_2O_3 und dem eigentlichen Schmelztiegel aus ThO_2 . Der Zwischenraum zwischen beiden Tiegeln wird zum Zwecke der Wärmeisolation mit ThO_2 -Pulver ausgefüllt.

Die induktive Aufheizung erfolgt durch Ankopplung der metallischen Komponenten des Schmelzgutes (Stahl, Zircaloy) an das Magnetfeld.

Zur Temperaturmessung ist über dem Ofen ein Quotientenpyrometer angebracht, das durch eine Luke im Ofenkessel und mit Hilfe einer speziellen Optik die Strahlungsintensität der Schmelzbadoberfläche mißt. Für die Atmosphäre im Ofen sind durch Verwendung von Luft, Wasserdampf, Argon und einer Mischung aus Argon und Wasserstoff alle während eines Kernschmelzen-Unfalls denkbaren Bedingungen simulierbar, nämlich sowohl oxidierende, als auch neutrale und reduzierende Bedingungen.

Die aus dem Schmelzgut freigesetzten Stoffe werden durch ein kugelförmiges Glasgefäß direkt oberhalb der Tiegelöffnung und das daran anschließende Rohrsystem zu einer Filterstrecke geführt und dort auf Membranfiltern abgetrennt.

Dieses Filtersystem besteht aus 3 parallelen Strängen, die während verschiedener Versuchsphasen eines Experiments benutzt werden und dadurch zusätzliche Aussagen über die Zeit- und Temperatur-Abhängigkeit der Freisetzung ermöglichen.

2.3. Schmelzgut

Zur Schmelzgut-Zusammensetzung sind einige besondere Erläuterungen notwendig. Bisher wurde ausschließlich inaktives Schmelzgut in Form von Corium-E eingesetzt, das folgende Zusammensetzung aufweist:

55 Gew.-% Stahl 4550, 35 Gew.-% UO_2 und 10 Gew.-% Zircaloy; Massenverteilung einer 30 g Probe auf die Elemente (g):

Fe	Cr	Ni	Mn	Co	Mo	Sb	Sn	Zr	U
11.4	2.9	1.3	0.18	0.02	0.04	0.003	0.04	2.9	9.8

(alle Werte aktivierungsanalytisch bestimmt).

Abgesehen von den Elementen Mo, Sb, Sn und Zr, die hier als Bestandteile des Stahls bzw. des Zircaloy aufzutreten, waren damit noch keine Spaltprodukt-Elemente im Schmelzgut enthalten. Dies war für die Bearbeitung der meisten Fragen von Versuchsstufe I auch nicht erforderlich; denn die Schmelztechnik, die Temperatur-Messung oder das Schmelzgutverhalten im Tiegel unter verschiedenen Atmosphären werden durch die Anwesenheit der Spaltprodukte in der Schmelze nicht wesentlich beeinflusst.

Zur Erfassung der eigentlichen Spaltprodukt-Freisetzung wird anstelle von echt vorbestrahltem Brennstoff sog. Fissium verwendet, eine synthetische Mischung aus UO_2 und den wichtigsten Spaltprodukten in schwach aktiver Form. Dieses Fissium weist eine Reihe sehr wichtiger Vorteile auf:

- a) Über die Konzentration der Spaltprodukt-Zusätze lassen sich Abbrände beliebiger Größenordnung simulieren.
- b) Durch die radioaktive Markierung der Zusätze ist es möglich, den Transport der freigesetzten Produkte zu den Filtern bereits während der Schmelzversuche meßtechnisch zu verfolgen und die räumliche Verteilung der Spaltprodukte außerhalb der Schmelze auf einfache Weise gamma-spektrometrisch zu bestimmen.
- c) Wegen seiner geringen Aktivität von nur wenigen mCi kann das Fissium in Handschuhboxen, d.h. ohne umfangreiche Strahlenschutzmaßnahmen gehandhabt werden, im Gegensatz zu bestrahltem Brennstoff, der bei realistischen Abbränden auch nach langer Kühlzeit noch eine Aktivität von mehreren Ci pro Pellet aufweist.

ELEMENT	REPRÄSENTATIV FÜR	CHEMISCHE FORM	NUKLID	HALBWERTS-ZEIT
I	I, Br	CsJ	I-131	8,05 d
Cs	Cs, Rb	CsJ, CsOH	Cs-134	2,1 a
Se	Se, Te	Se	Se-75	120 d
Mo	Mo	Mo, MoO ₃	Mo-99	66 h
Sb	Sb	Sb, Sb ₂ O ₃	Sb-124	60,3 d
Ru	Ru, Rh, Pd	Ru	Ru-103	39,4 d
Ag	Ag	Ag	Ag-110 ^m	250 d
Zr	Zr	ZrO ₂	Zr-95	65 d
Nb	Nb	Nb ₂ O ₅	Nb-95	33 d
Ba	Ba, Sr	BaO, Ba(OH) ₂	Ba-131/133	11,5 d/10,5 a
Ce	Ce	CeO ₂	Ce-144	284 d
Nd	Y, La, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd	Nd ₂ O ₃	Nd-147	11,1 d

Tabelle 1: Für das Fissium vorgesehene Spaltprodukt-Zusätze; sie werden in Konzentrationen, die einem Abbrand von ca. 40 000 MWd/t entsprechen, mit UO₂-Pulver vermischt und dann zu Pellets verpreßt. (J-131 wird durch Bestrahlung von Te hergestellt.)

In der Tabelle 1 ist die Zusammensetzung des Fissiums wiedergegeben. Die 2. Spalte enthält - abgesehen von den Edelgasen Kr und Xe - alle wichtigen Spaltprodukt-Elemente. Da sich einige von ihnen zu Gruppen mit sehr ähnlichen chemischen Eigenschaften, also auch ähnlichem Freisetzungsverhalten zusammenfassen lassen, genügt es, daß im Fissium nur jeweils 1 Element dieser Gruppen vertreten ist. Diese Repräsentanten sind in Spalte 1 aufgeführt, ihre chemische Form in Spalte 3.

Bevor man diese Bestandteile homogen mit UO₂-Pulver vermischt und anschließend zu Pellets verpreßt, werden sie im Reaktor aktiviert, wobei hauptsächlich die in Spalte 4 aufgelisteten Nuklide entstehen; Spalte 5 enthält die zugehörigen Halbwertszeiten.

Der Einfluß des Betons auf die Aktivitätsfreisetzung läßt sich auf zweierlei Weise ermitteln:

- a) Man fügt zu den Corium- und Fissium-Bestandteilen des Schmelzgutes im ThO₂-Tiegel noch Betonproben hinzu und schmilzt alles gemeinsam auf.

- b) Man benutzt einen aus Beton geformten Tiegel mit dicker Wandstärke (v.a. mit einem dicken Tiegelboden) und erhitzt das Schmelzgut induktiv in diesem Tiegel. Auf diese Weise läßt sich die Schmelze auch während ihrer Ausbreitung im Beton noch eine gewisse Zeit nachbeheizen und so die Wirkung der inneren Wärmequellen simulieren. Dieses Konzept wurde in der Schmelzanlage SASCHA bereits erfolgreich erprobt.

2.4. Bisher durchgeführte Versuche

Neben einer Reihe orientierender Versuche, die zur Entwicklung und zum Test der einzelnen Anlagenkomponenten notwendig waren (vgl. Abb. 1), wurden bisher nahezu 30 Freisetzungsversuche mit inaktivem Corium durchgeführt. Tabelle 2 enthält eine Zusammenstellung über den Variationsbereich der dabei erfaßten Parameter

Anzahl der Versuche	27
Masse der Schmelzproben	30 g
erfaßter Temperatur-Bereich	2150-2900°C
Haltezeit der Schmelze	≤ 10 min
Aufheizgeschwindigkeit	120°C/min
Atmosphäre	Luft, Argon, Wasserdampf
Druck	0,8-2,2 bar
Gasdurchfluß	1-10 l/min

Tabelle 2: Angaben zu den Freisetzungsversuchen mit inaktivem Corium

Zur quantitativen Analyse der Freisetzungsprodukte wurden sowohl die Ablagerungen auf den Glasteilen des Absaugsystems als auch auf den Membranfiltern aktivierungsanalytisch bestimmt. Im Falle der Glasteile geschah das durch chemisches Ablösen der Niederschläge (mit kochender, halbkonz. HNO_3), durch Eindampfen der Lösung und anschließender Bestrahlung eines Lösungsaliquots im FR2. Im Falle der Filterniederschläge erwies es sich als zweckmäßig, diese zusammen mit dem Filterpapier zu bestrahlen, denn in dem organischen Material (Zellulose-Azetat) entsteht keine störende Untergrundaktivität (2).

3. Ergebnisse

Der Schwerpunkt der bisherigen Experimente lag bei der Untersuchung der Freisetzung unter Luft. Auf diese Atmosphäre beziehen sich daher die meisten der nachfolgend mitgeteilten Ergebnisse.

Die Abbildung 3 zeigt zunächst die Massenverteilung der freigesetzten Stoffe auf den ersten 3 Teilstücken des Transportsystems und auf den Membranfiltern. Die angegebenen Zahlenwerte stellen Mittelwerte aus 6 verschiedenen Versuchen dar, bei denen Maximaltemperaturen zwischen 2700 und 2850°C erreicht wurden. Es ist zu sehen, daß der Anteil der Ablagerungen in der Transportstrecke in Richtung auf die Filter sehr schnell abnimmt. Aus Abbildung 4 geht hervor, daß das Transportverhalten nicht für alle Elemente gleich ist: von der insgesamt freigesetzten Menge der Elemente U, Zr und Mo werden zwischen 80 und 95 % an der Glaswand abgeschieden, von Mn und Sb sind es nur ca. 30 %. Mn und Sb haben im vorliegenden Fall die höchsten Dampfdrücke in der Schmelze, U und Zr dagegen die niedrigsten. Man kann aus diesem Ergebnis schließen, daß im Realfall die inneren Oberflächen des Reaktor-Druckbehälters eine ähnlich starke Rückhaltewirkung auf die schwerflüchtigen Spaltprodukte und auch auf Uran und Plutonium ausüben würden, wodurch der luftgetragene Anteil dieser Elemente schon sehr bald nach der Freisetzung beträchtlich abnehmen müßte.

In Abbildung 5 sind für den gleichen Temperaturbereich wie oben Mittelwerte für die totale relative Freisetzung der Coriumkomponenten angegeben, d.h. die Summe der auf den Glasteilen und auf den Filtern gefundenen Anteile eines jeden Elements, bezogen auf die Ausgangszusammensetzung des Coriums. Hier zeigt sich, daß in der Tat Mn und Sb zu den flüchtigsten im Corium vorkommenden Elementen gehören.

Um einen Vergleich zu einigen hier noch nicht erfaßten Spaltprodukten anzudeuten: für J, Cs und Te werden bei den betrachteten Temperaturen Freisetzungswerte erwartet, die etwa um einen Faktor 2 bis 5 über dem des Mn liegen.

Als wichtigste Einflußgröße auf die Freisetzung erwies sich die während der Versuche erreichte Maximaltemperatur des Schmelzgutes.

Das Ergebnis einer systematischen Untersuchung dieses Einflusses ist in Abbildung 6 dargestellt. Dort sind die auf den Membranfiltern gefundenen relativen Elementanteile als Funktion der jeweiligen maximalen Versuchstemperatur aufgetragen.

In dieser logarithmischen Darstellung zeigt sich für die meisten Elemente ein nahezu linearer Verlauf bis zu den höchsten Versuchstemperaturen. Nur die Kurven von Sb und Mn scheinen sich asymptotisch einem Maximum zu nähern.

Im Zusammenhang mit der hier gezeigten Temperatur-Abhängigkeit stellt sich natürlich die Frage, welche Maximaltemperatur die Schmelze während des Kernschmelzens annimmt; denn die Freisetzung der einzelnen Elemente steigt bei einer Temperatur-Erhöhung um 100°C durchschnittlich auf das Doppelte an. Leider gibt es für die Frage der zu erwartenden Maximaltemperatur bisher keine plausible Antwort.

Nun noch einige weitere experimentelle Ergebnisse:

Die höchste unter Luft ermittelte Gesamt-Freisetzung betrug 360 mg, das sind 1,2 Gew.-% des eingesetzten Schmelzgutes von 30 g.

Eine Abhängigkeit der Freisetzung vom Atmosphärendruck oder vom Luftdurchsatz ließ sich bei der Variation dieser Parameter nicht feststellen.

Bei Freisetzungsversuchen unter Dampf und Argon ist ein ganz anderes Schmelzgutverhalten zu beobachten als unter Luft. Während unter Luft bei Temperaturen $\geq 2400^{\circ}\text{C}$ heftige Oxidationsreaktionen einsetzen, durch welche dichte Rauchschwaden entstehen und glühende Schmelzgutpartikel mit Massen bis zu ca. 1 g aus der Schmelze herausspritzen, und bei höheren Temperaturen das Schmelzgut im Tiegel hochsteigt, verläuft die Aufheizung unter Wasserdampf bis etwa 3000°C ausgesprochen ruhig. Es bilden sich zwar Flammen über dem Tiegel, doch in keinem Fall war ein Auswurf von Schmelzgutpartikeln festzustellen. Die Schmelze verblieb auch während der gesamten Versuchsdauer in der unteren Tiegelhälfte. Offensichtlich als Folge dieses unterschiedlichen Verhaltens ergab sich für Wasserdampf eine wesentlich geringere Freisetzung als für Luft. Quantitative Werte lassen sich vorläufig leider nicht angeben, da die Auswertung noch nicht abgeschlossen ist.

Bei den Versuchen unter Argon ergibt sich bisher folgendes Bild: ab einer Temperatur von ca. 2400°C liegt - ebenso wie unter Luft und Wasserdampf - das gesamte Schmelzgut in flüssiger Form vor. Bis etwa 2700°C sind die Abdampfraten sehr gering, bei weiterer Temperaturerhöhung um $100-200^{\circ}\text{C}$ nimmt die Freisetzung sehr schnell auf das 10- bis 20-fache zu und erreicht dabei einen Anteil von über 5 % der gesamten Schmelzgutmasse.

Dieser Effekt ist vermutlich mit dem Einsetzen von Siedevorgängen in der

Schmelze zu erklären, denn die Siedepunkte der wichtigsten Stahlkomponenten (Fe, Cr, Ni) liegen in dem hier angesprochenen Temperaturbereich zwischen 2700° und 2900°C.

Eine eindeutige Abhängigkeit der Freisetzung vom Atmosphärendruck war auch für Argon und Wasserdampf für Drücke von 0,8-2,2 bar nicht festzustellen.

4. Diskussion der Ergebnisse

Obwohl die bisherigen Freisetzungsversuche noch ohne Spaltprodukte in der Schmelze durchgeführt wurden, sind die Ergebnisse in mehrfacher Hinsicht von Interesse:

- a) Die untersuchten Elemente (vgl. 2.3) bilden während des Reaktorbetriebes eine größere Zahl von Aktivierungsprodukten (z.B. Cr-51, Mn-56, Co-60, U/Np-239), einige von ihnen sind außerdem mit wichtigen Spaltprodukten identisch (Zr, Mo). Der experimentelle Befund, daß die Freisetzung dieser Produkte unter oxidierenden Bedingungen bis $T = 2900^{\circ}\text{C}$ maximal 1,2 Gew.-% ausmacht, läßt den Schluß zu, daß sowohl ihre Aktivität als auch ihre Nachwärmeleistung weitgehend in der Schmelze gebunden bleiben. Für eine Wasserdampf-Atmosphäre und ein geringeres Oberflächen/Volumen-Verhältnis als bei den untersuchten 30 g-Schmelzen dürfte diese Aussage in noch stärkerem Maße zutreffen.
- b) Die über einer Kernschmelze entstehende Wolke aus Kondensationsaerosolen enthält neben den aktiven Spalt- und Aktivierungsprodukten natürlich auch einen wesentlichen Anteil an inaktiven Produkten, z.B. Fe-, Cr- oder Ni-Aerosole. Diese können als Kondensationskeime für die Aktivitätsträger wirken oder durch Koagulation zu deren Partikelwachstum beitragen. Auf diese Weise wird das Transport- und Ablagerungsverhalten der aktiven Stoffe u.U. stark von der Konzentration der freigesetzten inaktiven Komponenten beeinflusst. Erste Werte für solche Konzentrationen lassen sich aus den durchgeführten Experimenten ableiten. Sobald auch die Aerosolkonzentrationen der freigesetzten Spaltprodukte bekannt sind, kann man versuchen, die erwähnte gegenseitige Beeinflussung zu bestimmen. Dazu kommen sowohl Rechnungen mit einer ebenfalls im Rahmen des PNS entwickelten Modelltheorie zum Aerosol-Verhalten im Containment (3) infrage als auch weitere gezielte physikalische Experimente.

In den bisherigen Ausführungen wurde mehrfach darauf hingewiesen, daß man die Versuchsergebnisse über die Freisetzung der einzelnen Elemente nicht ohne weiteres auf den Ablauf eines Kernschmelzen-Unfalls übertragen kann. Man muß vielmehr genau prüfen, welche Parameter in hinreichend realistischer Weise experimentell zugänglich sind bzw. wo sich Einschränkungen bei der Extrapolierbarkeit der Ergebnisse gar nicht vermeiden lassen.

Doch auch diese Fragen sind nicht schlüssig zu beantworten ohne das Verständnis der zahlreichen Einzelphänomene, wie z.B. des Reaktionsverhaltens der Schmelzgutkomponenten oder des gesamten Stofftransportes während des Kernschmelzens.

So ergibt sich aus der wechselseitigen Abhängigkeit der Einzelvorgänge die Notwendigkeit, den Ablauf der Aktivitätsfreisetzung mit Hilfe eines umfassenden Modells zu beschreiben, in das sowohl die experimentell zugänglichen Ergebnisse einfließen als auch diejenigen Aspekte, die nur durch theoretische Berechnungen oder Abschätzungen erfaßbar sind.

Die Grundzüge eines solchen Freisetzungsmodells sind in der Abbildung 7 wiedergegeben. Die meisten der angegebenen Einflußgrößen rechts und links des "Freisetzungspfades" werden innerhalb des BMFT-Forschungsprogrammes KERNSCHMELZEN schon seit mehreren Jahren von verschiedenen Forschungsstellen bearbeitet (4); ein wesentlicher Anteil, insbesondere der experimentellen Untersuchungen wird dabei - wie Sie heute gesehen haben - im Rahmen des Projektes Nukleare Sicherheit abgewickelt (5).

Die Ergebnisse aller dieser Arbeiten lassen sich im Sinne des angegebenen Freisetzungsmodells zur Beschreibung des radioaktiven Quellterms benutzen, den ein Leichtwasserreaktor unter der Voraussetzung eines hypothetischen Kernschmelzenunfalls für die Umgebung darstellen könnte.

Literatur

- (1) U.S. Nuclear Regulatory Commission: Reactor Safety Study, WASH-1400, Oktober 1975
- (2) Projekt Nukleare Sicherheit, Halbjahresbericht 1975/2, KFK-2262, Juni 1976, p. 347-365
- (3) G. Haury, W. Schöck: Modell zum Aerosolverhalten im Containment eines LWR nach einem schweren hypothetischen Störfall, Vortrag auf der KTG-

Fachtagung "Spaltprodukt-Freisetzung bei Reaktorstörfällen", Karlsruhe,
1./2. Juni 1976 (AED-Conf.-76-167)

(4) Forschungsbericht IRS-F-31, September 1976

(5) Projekt Nukleare Sicherheit, Halbjahresbericht 1976/1, KFK-2375,
September 1976

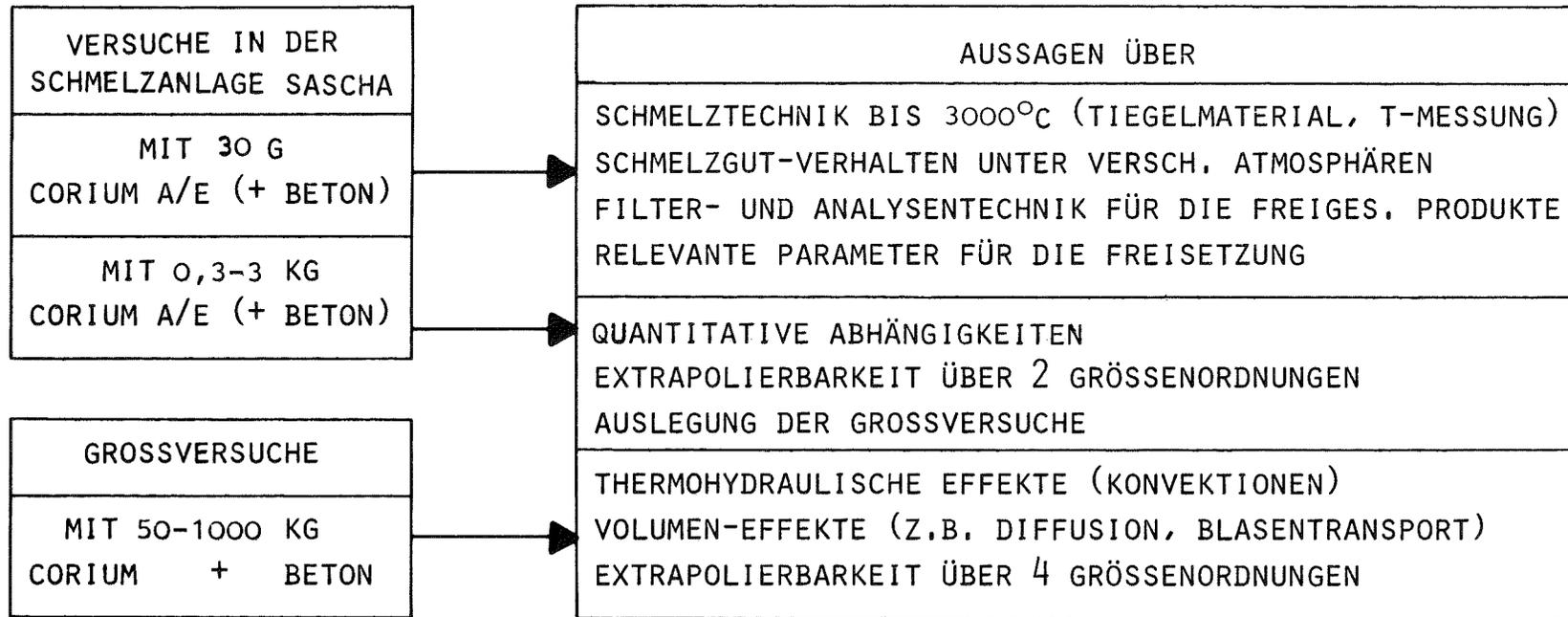


Abb. 1: ARBEITSPROGRAMM ZUR UNTERSUCHUNG DER FREISETZUNG VON SPALT- UND AKTIVIERUNGSPRODUKTEN BEIM KERNSCHMELZEN

GFK
PNS-4243

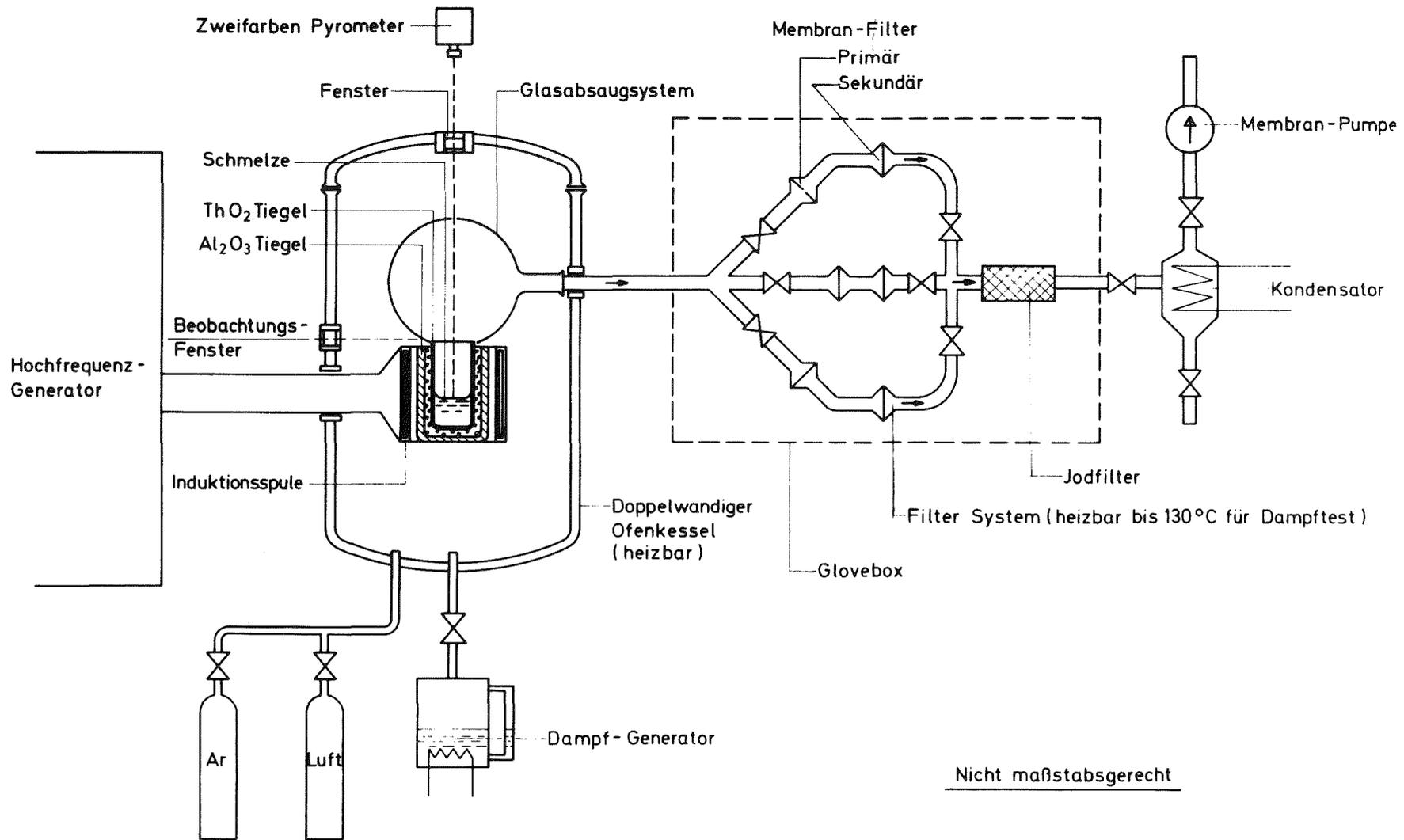


Abb. 2: Schmelzanlage für schwache Aktivitäten (SASCHA)

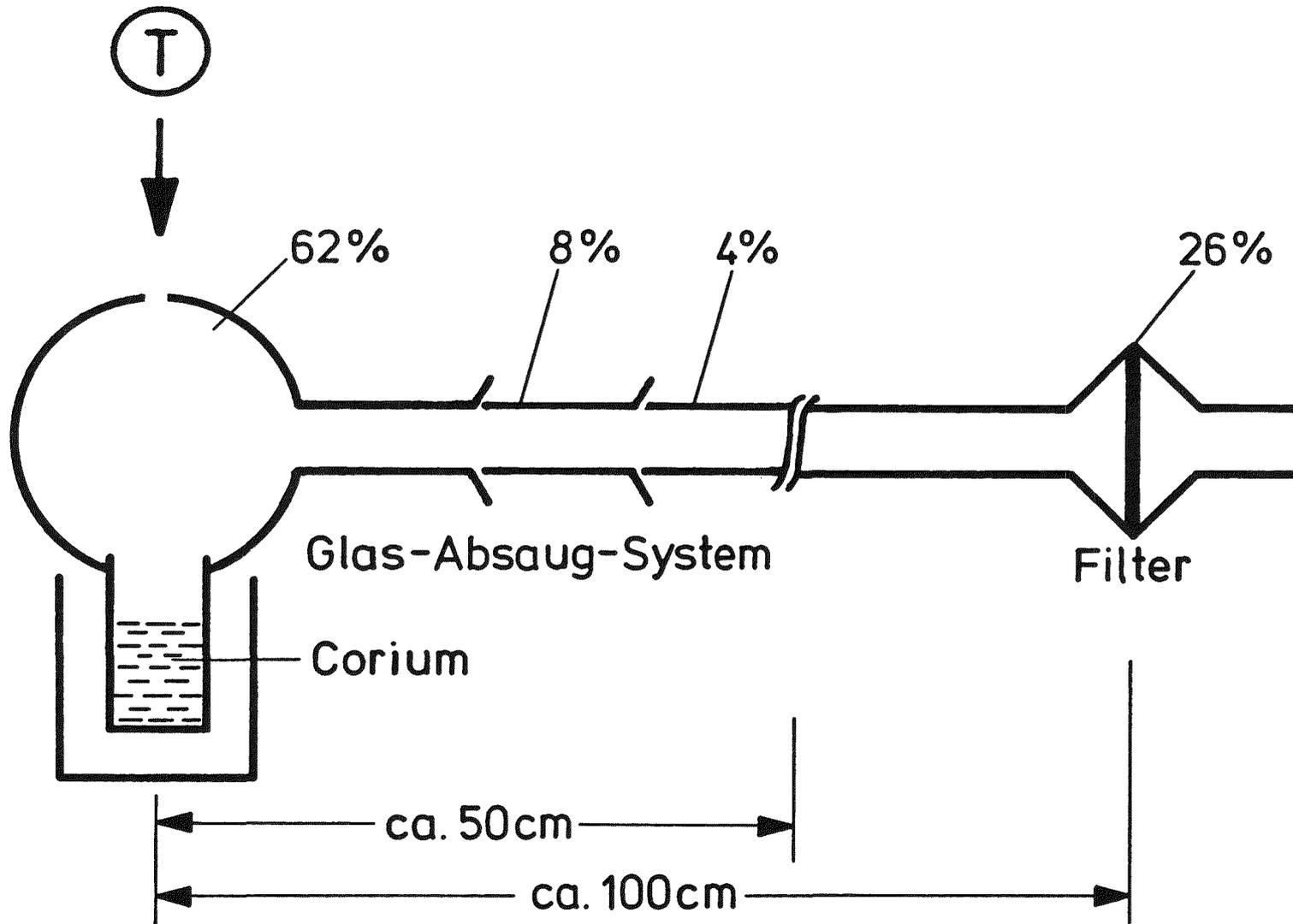


Abb.3: Massenverteilung der Freisetzungsprodukte

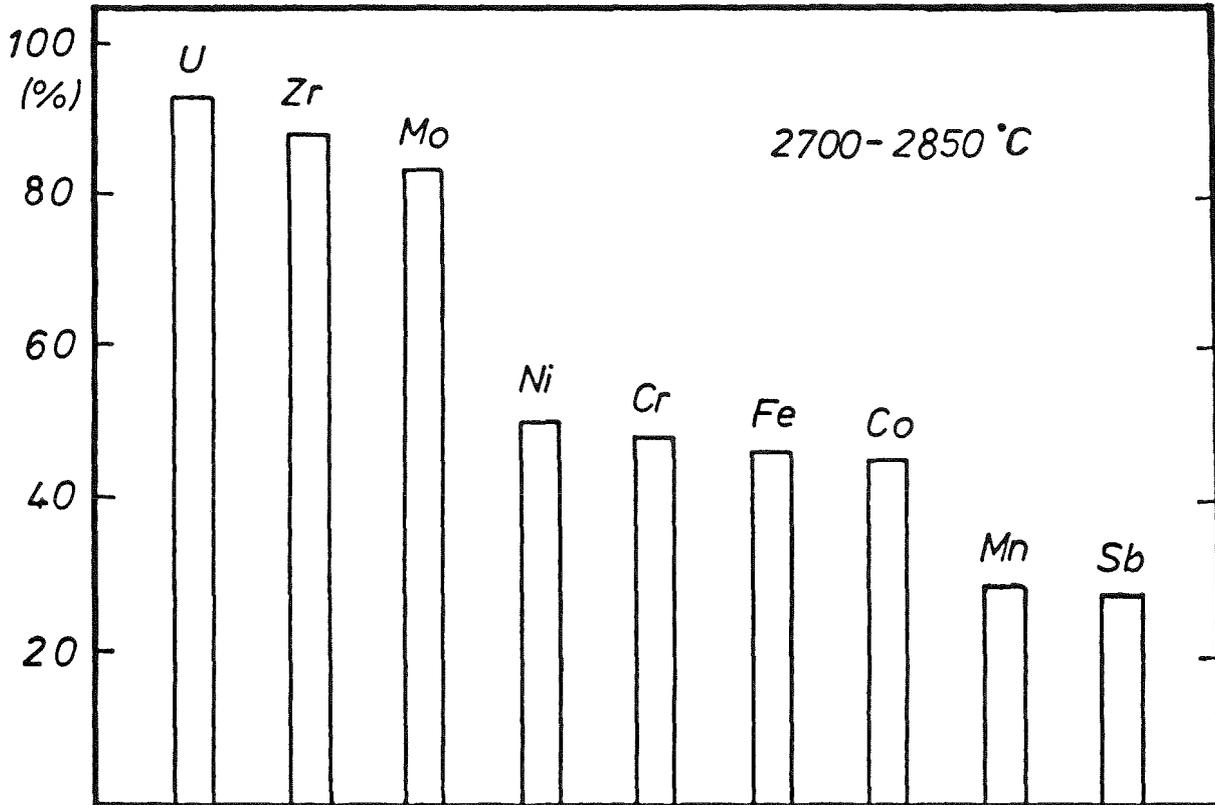


Abb.4: Anteil der Freisetzungsprodukte auf dem Glassystem, bezogen auf die gesamte Freisetzung

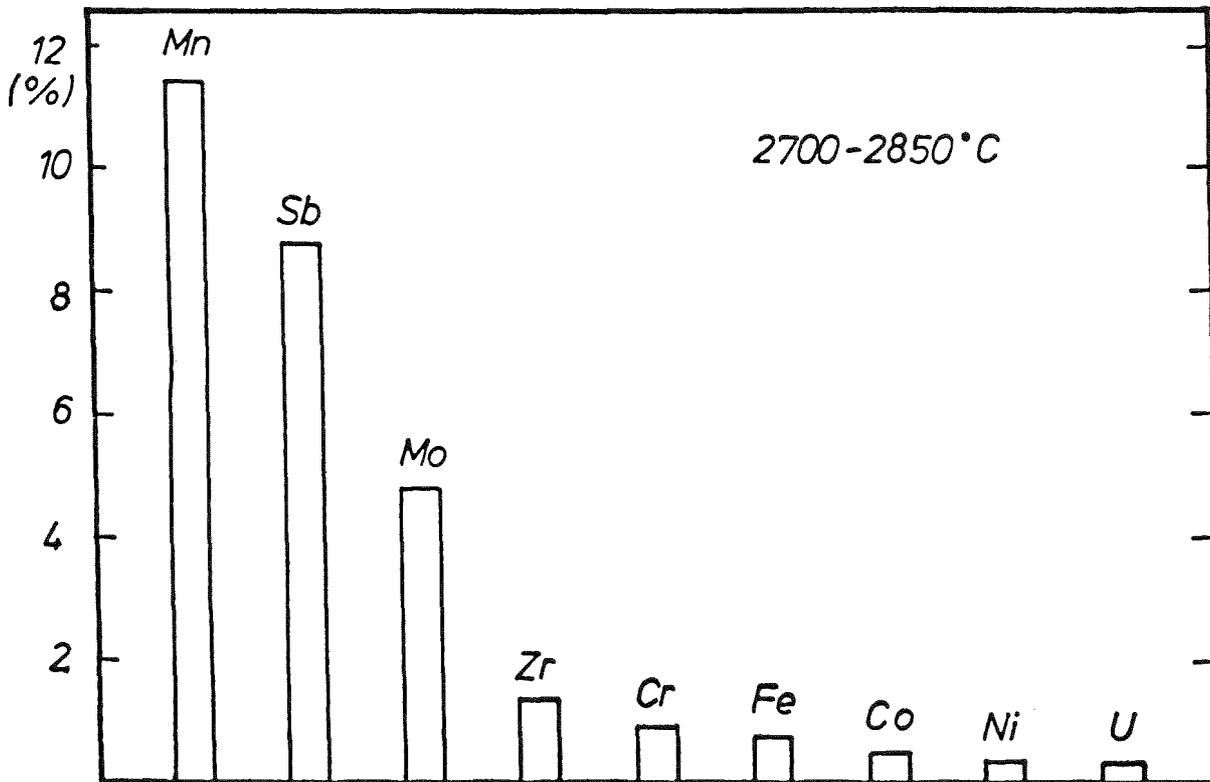


Abb.5: Anteil der insgesamt freigesetzten Elemente, bezogen auf die Ausgangsmengen im Schmelzgut

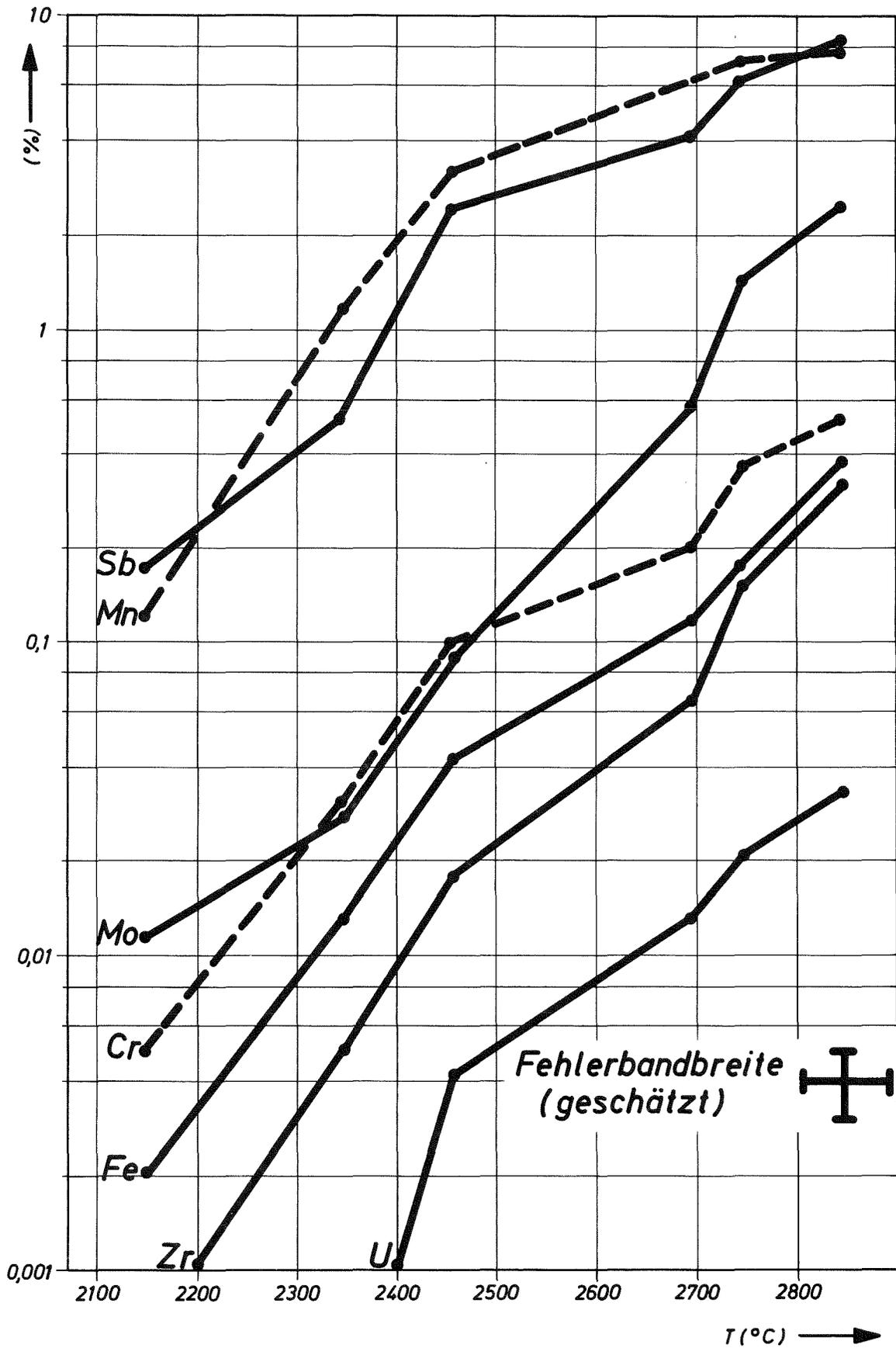


Abbildung 6: Auf den Membranfiltern gefundene, relative Freisetzunganteile der wichtigsten Corium-Komponenten; die Meßpunkte entsprechen einer Integration über die gesamte Zeitdauer eines Versuches, die angegebenen Werte von T sind die jeweils erreichten Maximaltemperaturen (Luft, 1-2 bar).

THEORETISCHE
UNTERSUCHUNGEN:

EXPERIMENTELLE
UNTERSUCHUNGEN:

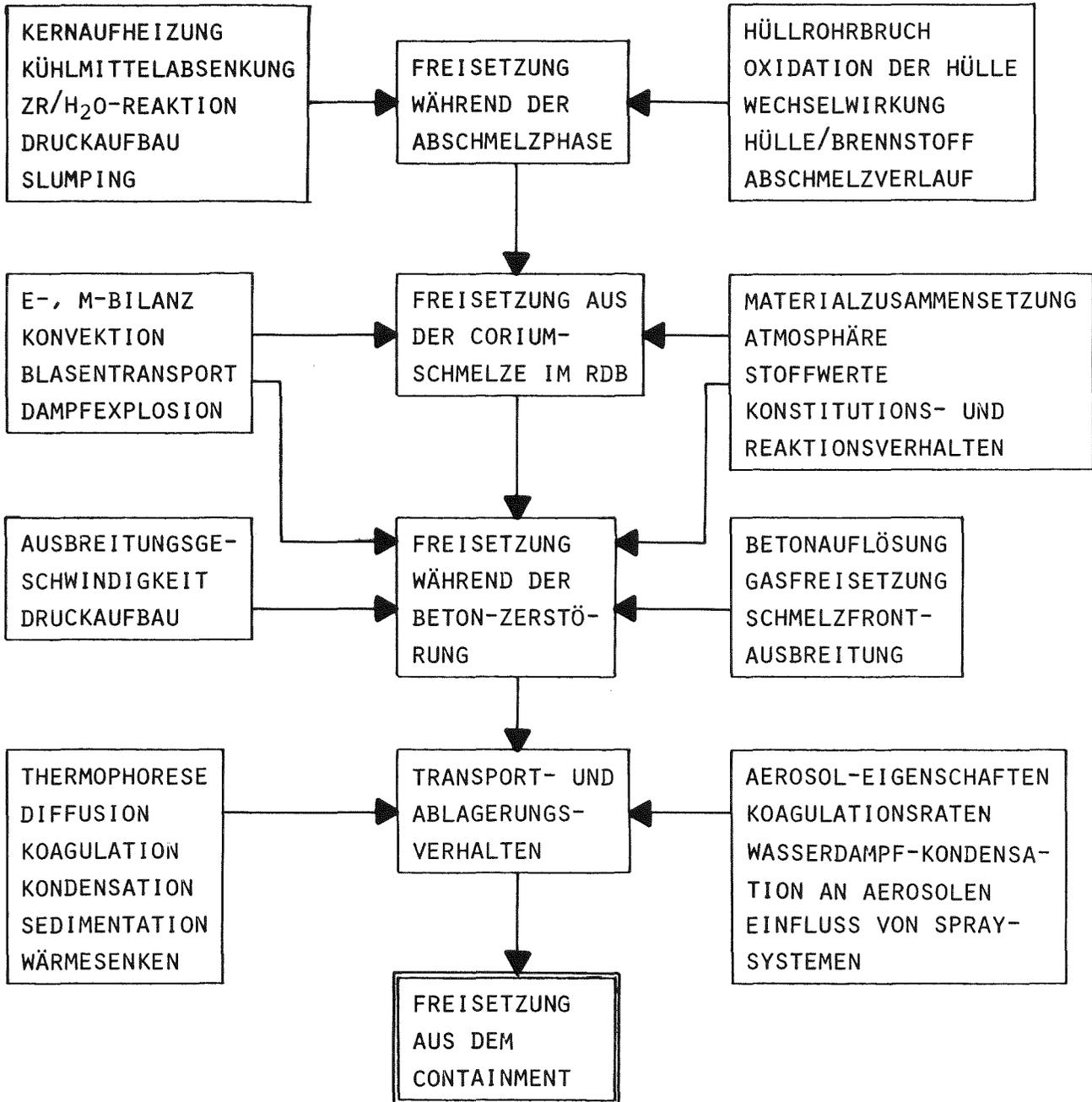


Abb. 7: GRUNDZÜGE EINES FREISETZUNGSMODELLS

GFK
PNS-4243