



Mai 1974

KFK 1983

Institut für Reaktorbauelemente Laboratorium für Isotopentechnik Projekt Nukleare Sicherheit

Messungen zur Verteilung aktivierter Korrosionsprodukte im Primärkreislauf des Kernkraftwerkes Obrigheim

H. John, J. Vehlow



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H.



Als Manuskript vervielfältigt

¥

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

)

.....

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H. KARLSRUHE

## KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

## KFK 1983

Institut für Reaktorbauelemente Laboratorium für Isotopentechnik Projekt Nukleare Sicherheit

Messungen zur Verteilung aktivierter Korrosionsprodukte im Primärkreislauf des Kernkraftwerkes Obrigheim

H. John, J. Vehlow

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG MBH., KARLSRUHE

. .

# Inhalt

1.	Zusammenfassung
2.	Einleitung
3. 3.1 3.2	Durchführung der Messungen γ-spektroskopische Messungen Dosismessungen
4. 4.1 4.2	Auswertung der Messungen γ-Spektren Dosismessungen
5.	Interpretation der Meßergebnisse
6.	Literatur

#### 1. Zusammenfassung

An 5 Rohrleitungsabschnitten vom Primärkreislauf des Druckwasserreaktors Obrigheim wurden γ-spektroskopische und γ-Dosisleistungsmessungen durchgeführt. Es sollte dadurch ein Zusammenhang zwischen den radioaktiven Kontamination mit Korrosionsprodukten und den thermohydraulischen Betriebsparametern gefunden werden. Die Ergebnisse wurden mit Hilfe anerkannter Gesetze zum Stofftransport interpretiert. Es wurde gefunden, daß grenzschichtausbildende Rohreinlaufeffekte einen wesentlichen Einfluß auf den Kontaminationsverlauf haben. Bei einer Einlaufstrecke von 10 Rohrdurchmessern wurde ein mittlerer Abfall der Kontamination auf etwa 25% beobachtet.

Der Einfluß der Re-Zahl auf die Kontamination kann annähernd mit der Beziehung Re/d beschrieben werden.

Durch die gefundenen Abhängigkeiten kann der Schluß gezögen werden, daß bei der Ablagerung radioaktiver Korrosionsprodukte auch in dem bei Druckwasserreaktoren herrschenden Re- und Temperaturbereich die laminaren Grenzschichten von wesentlicher Bedeutung als Transportbarriere sind. Measurements of the Distribution of Activated Corrosion Products in the Primary Circuit of the Obrigheim Nuclear Power Station

#### Abstract

Gamma spectroscopy and gamma dose rate measurements were performed on five pipe sections of the primary circuit of the Obrigheim pressurized water reactor. The measurements were intended to establish a relationship between the radioactive contamination with corrosion products and the thermohydraulic operating parameters. The results were interpreted on the basis of recognized laws on the transport of matter. Pipe inlet.effects giving rise to the generation of boundary layers were found to have a marked influence on the development of contamination. Over a pipe inlet length of 10 pipe diameters a medium decrease of the radioactive contamination to 25% was observed.

The influence of the Re-number on contamination can be described approximately by the Re/d relation.

It can be concluded from the dependences found that laminar boundary layers constitute very significant transfer barriers to the plate-out of radioactive corrosion products also in the ranges of Re-numbers and temperatures encountered in pressurized water reactors. 2. Einleitung

Die Kontamination von Leichtwasserreaktorkreisläufen mit radioaktiven Korrosionsprodukten wird, wie die Erfahrung mit laufenden Kraftwerken zeigt, zu einer ernsten Behinderung und Gefährdung für das Wartungsund Reparaturpersonal.

Nach dem jetzigen Stand der Kenntnisse ist die Kreislaufkontamination von etlichen Parametern abhängig, die in folgende 3 Gruppen zusammengefaßt werden sollen.

- Physikochemische Eigenschaften des Kühlmediums: Temperatur

pH-Wert

H<sub>2</sub>- und O<sub>2</sub>-Gehalt

Löslichkeit für Korrosionsprodukte

Konzentration an Korrosionsprodukten und Zusätzen

- Oberflächenparameter der Freisetzungs- und Ablagerungsflächen für Korrosionsprodukte:

Material der Oberfläche

Art der aufliegenden Korrosionsschicht z.B. eine gezielt aufgebrachte Schutzschicht

- Thermohydraulische Parameter:

Einflußgrößen für die Grenzschichten des Geschwindigkeits-Temperatur- und Konzentrationsfeldes zwischen Strömungsmedium und begrenzender Wand

Strömungsgeschwindigkeit (mittlere)

hydraulischer Durchmesser

Wärmefluß

Wärmeleitzahl

Zähigkeit

Diffusionskoeffizient

Während der Einfluß der physikochemischen und der Oberflächenparameter auf die Kontamination Gegenstand vieler Untersuchungen ist und z.B. durch Steuerung des pH-Wertes und Schutzschichtausbildung bereits Teilerfolge erzielt wurden und erwartet werden, ist der Einfluß der die Grenzschichten beeinflussenden thermohydraulischen Parameter in diesem Zusammenhang weitgehend unbekannt und z.T. umstritten.

Die Messungen in Obrigheim wurden deshalb mit dem Ziel gemacht, Zusammenhänge zwischen der lokalen Kontaminationsstärke des Primärkreislaufes und den seit einigen Jahren bestehenden Strömungszuständen an den jeweiligen Stellen zu finden. Die Meßergebnisse sollen u.a. eine Grundlage fur geplante Out-of-pile-Experimente zur Untersuchung von Kontaminationsmechanismen sein. Es wurden daher Teile des Primärkreises ausgesucht, an denen einerseits hinreichend definierte, jedoch untereinander differenzierte thermohydraulische Betriebsbedingungen herrschen und andererseits gleiche Bedingungen in Bezug auf die Kühlmittelzusammensetzung und das Wandmaterial vorhanden sind.

Es boten sich hierfür drei Rohrleitungssysteme an und zwar die Umwälzleitung des Primärloops NW 700, die hiervon abzweigende Spruhleitung NW 80, die zum Druckhaltesystem führt und die zum Reinigungssystem abzweigende Leitung NW 50. Alle 3 Leitungen unterscheiden sich im Durchmesser, in der Strömungsgeschwindigkeit und der Re-Zahl der Strömung. Sie sind jedoch gleich in Bezug auf ihr Wandmaterial in der Zusammensetzung des durchfließenden Kühlmediums und der Temperatur und dem Druck des Kühlmediums. Lediglich zwischen dem ersten und zweiten Abschnitt der Umwälzleitung findet eine Temperaturabsenkung um ca. 30°C statt.

Abb. 1 und 2 zeigen die beiden Primärkreislaufschleifen des KWO in 2 Ansichten. Man erkennt die 3 Rohrleitungsabschnitte der Hauptkühlmittelleitung zwischen Reaktor und Dampferzeuger, zwischen Dampferzeuger und Umwälzpumpe und zwischen Umwälzpumpe und Reaktor. Von dem letzten Rohrabschnitt zweigen die sogenannte Sprühleitung, die eine ständige Kühlmittelmenge zum Druckhaltekessel führt und die Reinigungsleitung, die zum Reinigungssystem mit Ionentauscher führt, ab. Bis auf die Reinigungsleitung sind alle Rohrsysteme, wie die Abbildungen zeigen, zweimal vorhanden.

Die folgende Tabelle 1 gibt die wesentlichen Abmessungen und Strömungsdaten der 3 Rohrsysteme wieder.

	Rohr- weite [mm]	Wand- stärke [mm]	Durch- satz m <sup>3</sup> /h	Geschwin- digkeit m/s	Re-Zahl
Haupt- leitung	700	45	15000	11	5,9·10 <sup>7</sup>
Sprüh- leitung	71,3	8,8	0,4	0,031	1,54.104
Reinigungs- leitung	49,1	5,6	12	l,7	6,6·10 <sup>5</sup>

Tabelle 1

Die Geschwindigkeit in der Sprühleitung war leider so gering und wegen der unsicheren Durchsatzmenge auch nur so ungenau bestimmbar, daß für diese Leitung keine sicher definierbaren Strömungsverhältnisse angenommen werden können.

Zu den Messungen, die im nächsten Abschnitt ausführlich behandelt werden, soll hier nur einleitend gesagt werden, daß 44 δ-Dosisleistungsmessungen und 7 δ-spektroskopische Messungen am gesamten Rohrsystem durchgeführt wurden. Während die Dosisleistungsmessungen wegen des erheblich geringeren zeitlichen Aufwandes und der besseren Beweglichkeit des Meßgerätes durchgeführt wurden, um möglichst viele Werte von der örtlichen Gesamt-Y-Emission der Rohrwand über Länge und Umfang der Rohre zu bekommen, sollten die Y-spektroskopischen Messungen Aufschluß über die Zusammensetzung der aktiven Rohrablagerungen und evtl. ortlicher Unterschiede derselben geben.

Eine weitere Meßreihe, die zur Messung der Rohrwanddosisleistung mit unabgeschirmten Thermolumineszensdosimetern gefahren wurde, mußte verworfen werden, weil durch den großen Strahlungsuntergrund in der Kreislaufumgebung die Meßwerte zu stark nivelliert wurden.

In den Abb. 1 und 2 sind die Positionen der genannten Dosisleistungsmessungen und der Ge(Li)-Messungen eingetragen. Die nicht ganz systematisch erscheinende Verteilung der Meßpunkte ist auf die örtlichen Meßmöglichkeiten zurückzuführen.

### 3. Durchführung der Messungen

3.1 γ-spektroskopische Messungen mit einem Ge(Li)-Detektor Verwendet wurde ein Ge(Li)-Detektor Canberra 7244 mit einem aktiven Volumen von ca. 30 cm<sup>3</sup>. Seine relative Ansprechwahrscheinlichkeit ist für 1,33 MeV mit 2,15%, die Halbwertsbreite für dieselbe Energie mit 2,3 keV angegeben. Das Peak-Compton-Verhältnis beträgt 14:1.

Es wurde ein Kryostat Union Carbide LD-5 mit 3,85 1 Inhalt benutzt. Das System stand in einem Gestell, an dem auch der Vorverstärker Canberra 1408 C befestigt war. In einem angehängten NIM-Überrahmen befanden sich eine Hochspannungsversorgung CRC 7051 und ein Verstärker Elscint CAV-N 3.

Ein 50 m langes Impulskabel verband den Verstärker mit einem Vielkanal-Analysator DIDAC 4 000.

Wie Abb. 3 zeigt, war der Ge(Li)-Detektor im unteren Teil mit 5 cm dicken Pb-Steinen umbaut, auf die, um den Detektorkopf herum, eine 6 cm dicke Pb-Kappe mit einer Kollimatorbohrung von r = 1,5 cm gesetzt war. Ein Einsatz ermöglichte eine Reduzierung der Kollimatoröffnung auf r = 0,5 cm. Wegen des hohen Aktivitätspegels mußte immer mit dem Einsatz gemessen werden. So konnte die Totzeit des Analysators unter der zuvor für eine einwandfreie Spektrenauswertung notwendig gefundenen Grenze von 25-30% gehalten werden.

Alle verwendeten Geräte und Kabel waren wegen des besonders in den DE-Raumen erheblichen Kontaminationsrisikos mit Polyäthylenfolie abgeklebt.

Die Speicherzeit für ein Spektrum mit 2000 Kanälen betrug 10 min. An jedem Meßpunkt wurden - wenn möglich - je ein Spektrum und ein Untergrundspektrum aufgenommen. Die Spektren wurden mit einem RG 23-Gerät auf Magnetband gespeichert.

#### 3.2 Dosismessungen

Zur Messung der Ortsdosis an den drei Rohrleitungssystemen Primärloop, Sprühleitung und Reinigungsleitung wurde ein Dosismeßgerät Grätz X50 mit kleiner Universalsonde verwendet, um die zur Erreichung einer gewissen Richtwirkung ein 2,5 cm dicker Pb-Mantel gelegt war. Die abgeschirmte Sonde wurde an einer 1,7 m langen Al-Stange befestigt, um auch entferntere Punkte erreichen zu können.

Zwar wäre wegen der erwarteten Raumdosis von ca. 300 mrh<sup>-1</sup> eine stärkere Abschirmung wünschenswert gewesen, doch mußte darauf aus Gewichtsgründen verzichtet werden.

Gemessen wurde jeweils durch Aufsetzen der Abschirmungsöffnung auf die Oberfläche der Wärmedämmung der einzelnen Rohre. So erhält man für alle Messungen an einem Rohrsystem dieselbe Meßgeometrie. Abb. 4 zeigt die Meßanordnung im Einsatz.

#### 4. Auswertung der Messungen

#### 4.1 $\gamma$ -Spektren

Die auf Magnetband gespeicherten Spektren wurden am System CALAS mit dem Programm ISINAA ausgewertet.

Für die weiteren Berechnungen wurden folgende Vereinfachungen gemacht.

Der bei den Messungen am Primärloop erfaßte Teil des Rohres wird jeweils als ebene Scheibenquelle betrachtet. Die von der Rückseite des Rohres stammenden  $\gamma$ -Quanten werden vernachlässigt.

Die Zahl Z der bei einer bestimmten Energie registrierten Impulse wird angesetzt als

$$Z = \phi_u \eta \cdot P$$
 (1)

mit

- n absolute Zählausbeute des Ge(Li) bei der Energie E
- P' Proportionalitätsfaktor, der Geometrieund Umrechnungsgrößen enthält

Für  $\phi_{u}$  gilt  $\Sigma \mu_{i}$ ; · Sec 0

$$\varphi_{u} = \frac{A_{s}}{2} \int \frac{e^{-t}}{t} dt$$
(2)
$$\Sigma_{u:d:}$$

mit A spezifische Flächenaktivität

 $\begin{array}{l} \mu_{i} \\ \text{linearer Absorptionskoeffizient des Stoffes i} \\ d_{i} \\ \text{Dicke des Stoffes i} \\ t = \Sigma \mu_{i} d_{i} \cdot \sec \theta \end{array}$ 

0 halber Öffnungswinkel des Kollimators

Für 0 < 10<sup>0</sup> kann man angenähert schreiben

$$\phi_{\rm u} = \frac{A_{\rm s} \cdot \pi \cdot r^2}{4\pi R^2} e^{-\Sigma_{\mu}; d;}$$
(3)

mit R = Entfernung Detektor - Flächenquelle

r = R tan 0 Radius der erfaßten Quelle Faßt man (1) und (3) zusammen, so erhält man

$$A_{s} = \frac{Z}{\eta \cdot \tan^{2} \Theta \cdot P} e^{\Sigma \mu; d;}$$
(4)

Der Proportionalitätsfaktor P wurde durch Eichmessungen mit Hilfe einer Co-60-Flächenquelle von r = 11 cm und einer spezifischen Aktivität von  $A_s = 2,56 \ \mu \text{Cicm}^{-2}$  bestimmt.

Für die Messungen an der Reinigungsleitung wird die Aktivitätsverteilung als Linienquelle in der Mitte des Rohres mit der Länge 1 = R tan<sup>0</sup> betrachtet. Die spezifische Linienaktivität A<sub>1</sub> wird anschließend auf die 1 cm Rohrlange entsprechende Fläche umgerechnet.

Für eine Linienquelle gilt

$$\phi_{u} = \frac{A_{1}}{2\pi R} \int_{0}^{\theta} e^{-\Sigma_{\mu} d_{j} \sec \theta} d\theta$$
(5)

und für $\theta < 10^{\circ}$  angenähert

$$\phi_{u} = \frac{A_{l} \cdot l}{4\pi R^{2}} e^{-\Sigma_{\mu_{j}} d_{j}}$$
(6)

- 9 -

Kombination mit (1) ergibt

$$A_{i} = \frac{Z \cdot R}{\eta \cdot \tan \theta \cdot P} e^{\Sigma_{\mu}; d}; \qquad (7)$$

Auch für diesen Fall wurde P experimentell mit einer Rohrquelle mit Co-60 in der Geometrie der Messungen  $G_2$  bis  $G_4$ bestimmt. A<sub>1</sub> war 50,5 µCicm<sup>-1</sup>.

Die benötigten energieabhängigen Größen η und tan 0 für die verwendete Anordnung zeigen Abb. 5 und 6.η wurde aus früher gemessenen Daten berechnet, tan 0 mit Punktquellen von Co-60 und Cs-137 experimentell ermittelt.

Abb. 7 zeigt ein typisches  $\gamma$ -Spektrum. Man erkennt die Linien von Co-60 und Co-58. In einigen Spektren ist in geringen Mengen Fe-59, Mn-54 und Cr-51 zu entdecken.

Ausgewertet wurden die Co-60-Linie bei 1,33 MeV und die Hauptlinie des Co-58 bei 0,81 MeV. Für die anderen genannten Nuklide konnten nur grobe Abschätzungen gemacht werden.

Tabelle 2 zeigt die gefundenen Ergebnisse. Da bei den Versuchen G5 und G7 aus technischen Gründen kein Nulleffekt aufgenommen werden konnte, wurde der Nulleffekt von G2 verwendet. Der zu erwartende Nulleffekt sollte höher liegen, so daß die angegebenen Flächenaktivitäten zu hoch sein dürften.

Im Primärloop wurden Aktivitäten zwischen ca. 200 und  $800 \ \mu \ \text{Cicm}^{-2}$  für Co-60 und um 100  $\mu \ \text{Cicm}^{-2}$  für Co-58 gefunden. Das Aktivitätsverhältnis von Co-60 zu Co-58 beträgt ca. 5.

In der Reinigungsleitung ist die Flächenaktivität für beide Nuklide ca. um den Faktor 10 niedriger. Das für die Strahlenbelastung im wesentlichen verantwortliche Nuklid ist also Co-60. Nimmt man an, dass Fe und Ni zu 0,01 % mit Co verunreinigt sind, so entsteht daraus durch eine ( $n\delta$ )-Reaktion um ca. 2 Grössenordnungen mehr Co-60 als durch eine (n,p)-Reaktion aus dem vorhandenen Ni.

Der Fehler der angegebenen Werte setzt sich aus sehr vielen Einzelfehlern bei Auswertungen (bis zu 20% für Z<sub>Co-58</sub>), Eichungen und Literaturwerten zusammen. Er ist in jedem Fall als über 30% liegend anzusehen.

## 4.2 Dosismessungen

Die mit der Universalsonde gemessenen Zählraten können wegen der Abschirmung nicht ohne weiteres mit Hilfe der dem Graetz X 50 beigegebenen graphischen Darstellung in Dosisleistungswerte umgerechnet werden.

Mit Hilfe von Quellen aus Co-60- und Stahllösung (Co-60, Fe-59 und Cr-51), die sich hinter 1 cm dicken Stahlplatten befanden, wurden Eichkurven aufgenommen (s. Abb. 8). Aus der Kurve für die Stahllösung wurden die den gemessenen Zählraten entsprechenden Dosisleistungswerte entnommen.

Das eigentliche Interesse galt natürlich dem Rückschluß von den an den Rohraußenwänden gemessenen Zählraten auf die Höhe der Kontamination der Rohrinnenwand.

Für jede der drei Meßgeometrien sind Absorptions-, Geometrie- und Aufbaufaktor jeweils bei allen Messungen gleich groß. Der γ-Fluß am Meßort ist also proportional der Aktivität im Inneren der Rohre. Obwohl die Zählausbeute des verwendeten G-M-Zählrohres nun nicht proportional dem γ-Fluß ist so korrespondieren die an einem Rohrsystem gemessenen Zählraten mit der Menge der Korrosionsablage-

- 11 -

rungen in diesem System und sind somit untereinander vergleichbar. Eine Eichung der Zählanordnung auf Flächenaktivitäten scheitert an den Höhen der zu handhabenden Aktivitaten.

Es wurde versucht, für jede Rohrgeometrie einen Umrechnungsfaktor von den außen gemessenen Zählraten auf Zählraten zu ermitteln, die in 1 cm Abstand einer Flächenquelle mit der spezifischen Aktivität der Rohrwand gefunden wurden. Auch so erhält man natürlich nur ein Maß, das höchstens größenordnungsmäßig den Unterschied der Ablagerungen in den einzelnen Rohren angeben kann. Als Nuklid wurde wieder Co-60 benutzt.

Fur die Primärloop-Geometrie wurde ein Faktor von etwa 30 zwischen außen und innen gemessenen Zählraten erhalten, fur die Sprühleitung betrug er ca. 2,5 und für die Reinigungsleitung ca 2.

Tabelle 3 zeigt die gemessenen Zählraten und die zugehörigen Dosisleistungen. Am Primärloop erhält man im Mittel eine Zählrate von 5000 ips und damit eine Dosisleistung von ca. 200 mrh<sup>-1</sup>. Die mittlere Zählrate an Sprühleitung und Reinigungsleitung beträgt 6500 ips, was einer Dosisleistung von knapp 400 mrh<sup>-1</sup> entspricht.

Multipliziert man diese mittleren Werte mit den oben für die einzelnen Geometrien angegebenen Faktoren, so erhält man als Zählrate im Inneren des Primärloops 150 000 ips (ca. 5 R/h), in der Sprühleitung 16 000 ips (ca. 1 R/h) und in der Reinigungsrate 13 000 ips (ca. 0,8 R/h). Da diese Werte wenigstens mit der Höhe der Ablagerungen in den einzelnen Rohren korrespondieren sollten, sieht man auch aus den Dosismessungen, daß im Primärloop des Reak-

- 12 -

tors erheblich mehr Material abgelagert wird als in den Hilfsleitungen. Da die Kühlmittelzusammensetzung überall die gleiche ist und die Temperatur sich nur geringfügig ändert, kann dieser Befund nur durch den großen Unterschied in den hydrodynamischen Parametern der verschiedenen Rohrstränge erklärt werden.

### 5. Interpretation der Meßergebnisse

Die an der Rohraußenwand gemessenen, in Tab. 3 aufgeführten Dosisleistungswerte wurden in Abb. 9 über dem maßstäblich abgewickelten Rohrnetz des Primärkreises aufgetragen um einen ersten Überblick zu gewinnen. Da beide Kreisläufe thermohydraulisch und geometrisch annähernd identisch sind, konnten die an beiden Loops gewonnenen Meßwerte über einer Abwicklung dargestellt werden. Die entsprechenden, mit den im Abschnitt 4 erarbeiteten Eichfaktoren multiplizierten Dosisleistungswerte wurden in Abb. 10 über der gleichen Rohrlängskoordinatenabwicklung aufgetragen. Diese relativen Dosisleistungswerte sind aus den im vorigen Abschnitt genannten Gründen als proportional zur Stärke der inneren spezifischen Rohrablagerungen an aktivierten Korrosionsprodukten anzusehen. Trotz der großen Streubreite der Meßwerte kann aus dem Diagramm Abb. 10 folgende Tendenz abgelesen werden.

- Die Ablagerung hat am Anfang eines Rohrabschnittes ihren höchsten Wert und nimmt mit zunehmender ungestörter Länge ab. Nach einer Unterbrechung (Pumpe, Dampferzeuger, Abzweigung) beginnt bei gleichem Rohrdurchmesser die Kontamination ungefähr in der gleichen Höhe, wie am Anfang des vorherigen Abschnittes.

- 13 -

- Die Größe der Ablagerung ist abhängig von der Rohrgeometrie (Durchmesser) und den Strömungsverhältnissen (Geschwindigkeit, Re-Zahl).

Da diese betrachteten Rohrleitungen vom gleichen Medium (in chemischer Hinsicht) durchflossen werden, annähernd die gleichen Temperaturen und Drücke vorherrschen und das gleiche Wandmaterial verwendet wurde, können logischerweise nur strömungstechnische Einflüsse für die Unterschiede der Kontamination, die im Bereich einer Größenordnung liegen, verantwortlich gemacht werden. Eine nennenswerte Verarmung des Strömungsmediums an Ablagerungsstoffen im Verlauf der Rohrlänge ist wegen des unvermindert hohen Kontaminationsanstieges nach einer Rohrunterbrechung auch auszuschließen.

Um für diese zweifellos thermohydraulischen Abhängigkeiten und Einlaufeffekte eine Interpretationsbasis zu haben, soll im Folgenden eine kurze theoretische Betrachtung des Kontaminationsmechanismus durchgeführt werden.

Nach dem Stand der Kenntnisse entsteht der wesentliche Teil der kontaminierenden Korrosionsprodukte auf folgende Weise. Die im ganzen Kühlkreislauf an der Grenzfläche Wand- Kühlmedium entstehenden Korrosionsprodukte stehen in einem ständigen Absorptions-, Transport- und Desorptionsvorgang mit dem Kühlmedium. Der Teil der Korrosionsprodukte, der sich im Core-Bereich, besonders auf den Brennelementen ablagert, wird im Neutronenstrom aktiviert und bildet nach seinem Wiedereintritt ins Kühlmittel die Quelle zur Kontamination. Es handelt sich dabei im allgemeinen um die Nuklide:

CO-60, CO-58, Cr-51, Mn-54, Fe-59

Wegen der großen Halbwertszeit und der großen Energie der ausgesandten  $\gamma$ -Strahlung ist das Co-60 dabei von herausragender Bedeutung. In der Tab. 4 sind diese radioaktiven Korrosionsprodukte mit ihren Halbwertszeiten, den Ausgangsnukliden und ihrer relativen  $\gamma$ -Leistung aufgeführt. Die relative  $\gamma$ -Leistung [5] ist die Energie, die von jeweils der gleichen Menge des entsprechenden Nuklids, das bis zur Sättigung aktiviert wurde, ausgestrahlt wird. Sie ist in diesem Fall auf Co-58 bezogen. Dieser Wert muß mit der Häufigkeit des entsprechenden Nuklids bei den Korrosionsprodukten multipliziert werden, um dessen Bedeutung zu erkennen.

Diese Korrosionsprodukte sind im Kühlmedium in unterschiedlicher chemischer Bindung in gelöster, kolloidaler und Partikel-Dispersion vorhanden und treten mit den Wandoberflächen der Kreislaufteile in Wechselbeziehungen. Es kommt zu Ablagerungen und anschließender Diffusion in die wandanhaftenden Korrosionsschichten, wobei chemische Reaktionen wie z.B. Mischkristallbildungen mit Magnetit-Aufbau wahrscheinlich sind.

Bei Rohrströmungen mit Re-Zahlen, wie sie im behandelten Fall vorliegen (Hauptleitung, Reinigungsleitung), herrscht mit Sicherheit turbulente Strömung vor, die zur Wand hin durch eine dünne, im 1/10 mm Bereich liegende, laminare Grenzschicht begrenzt ist.

Die Ablagerung von Korrosionsprodukten an die Wand tritt zunächst nur aus dieser Grenzschicht ein, die jedoch wegen ihres kleinen Volumens schnell an Ablagerungsstoffen verarmt. Der weitere Transport an die Wand von der Kernströmung, in der wegen der turbulenten Austauschvorgänge nahezu gleiche Konzentrationsverteilung herrscht erfolgt auf verschiedene Weise durch die laminare Grenzschicht. Nach [1] und [2] wird bei Partikeln  $< 0,1 \ \mu m$  die Diffussion und bei Partikeln  $> 1 \ \mu m$  der Transport infolge von Trägheitskräften radial bewegter Partikel überwiegen. Nach Beal [1] ist die Chance, die laminare Grenzschicht zu durchdringen, für Partikel im Bereich von  $0,1 - 1 \ \mu m$  am geringsten.

Nach D.Thomas [2] ist die maximale Eindringtiefe eines Teilchens in die laminare Grenzschicht aufgrund seiner ihm senkrecht zur Rohrachse vermittelten radialen Geschwindigkeit  $V_0$  (beim Eintritt in die Grenzschicht):

$$S_{max} = V_0 \cdot \frac{r^2 \cdot g_F}{45 \cdot \eta_{Fl}}$$

r = Teilchenradius  $S_F$  = Teilchendichte  $\eta_{FI}$  = dynamische Zähigkeit der Flüssigkeit

und

V<sub>o</sub> = 0,04 C C = axiale Strömungsgeschwindigkeit

Ist  $S_{\max}$  kleiner als die laminare Grenzschichtdichte  $\delta$ und  $\underline{S_{\max}} \leq 1$ , so besteht Ablagerungswahrscheinlichkeit für das Partikel.

Das Durchdringen der laminaren Grenzschicht ist danach mit steigender axialer Geschwindigkeit in doppelter Hinsicht begünstigt.

- 1) Die Dicke 3 der laminaren Grenzschicht nimmt mit steigendem C ab.
- 2) Die mittlere radiale Anfangsgeschwindigkeit nimmt mit steigendem C zu.

Die Trennkräfte durch die Strömung nehmen jedoch auch mit C<sup>2</sup> zu, so daß es von der Größe der Haftkräfte, die aus van der Waalschen oder elektrostatischen Kräften bestehen, abhängt, bei welcher Geschwindigkeit die maximale Ablagerung auftritt. Die beobachteten Einlaufeffekte könnten nach dieser Transportart nur damit erklärt werden, daß am Anfang eines Rohres durch strömungstechnisch ungünstige Einlaufverhältnisse (scharfe Umlenkungen, scharfe Kanten usw.) besonders starke Turbulenz mit starken radialen Austauschkomponenten herrscht, die im Verlauf der Rohrlänge sich beruhigt.

Die andere, durch Diffusion bestimmte Transportart für Korrosionsprodukte ist auf molekulare Austauschvorgänge zurückzuführen, die wie beim Wärmetransport mit der braunschen Molekularbewegung erklärt werden. Wegen der Ähnlichkeit von Wärmetransport und Stofftransportvorgängen werden diese auch in Analogie zueinander behandelt. Es soll hier auf die Darstellung der Differentialgleichungen, die in ähnlicher Weise Impuls-, Energie- und Stofftransport beschreiben verzichtet werden. Dafür werden kurz den vom Wärmeübergang her bekannten Begriffen die entsprechenden Stoffübergangsbegriffe gegenübergestellt.

Wärmeübergang:	Stoffübergang	g:
<b>q=∝·∆t-</b> Wärmefluß	$M_{A} = \beta \cdot \Delta S_{A}$	Stoffstrom
$\alpha = \frac{N \upsilon \lambda}{d}$ Wärmeübergangszahl	$\beta = \frac{Sh \cdot D}{d}$	Stoffüber- gangszahl
$N_{u}=f(Re,Pr,(d/l)Nusselt-Zahl)$ $Re = \frac{c \cdot d}{v} -$	Sh=f(Re,Sc,d/L )	Sherwood- Zahl
$\Pr = \frac{a}{\lambda}$ Prandl-Zahl	$Sc = \frac{v}{D}$	Schmidt- zahl

- 17 -

- At = Temperaturdifferenz an der Grenzschicht
- $\Delta S_A$  = Konzentrationsdifferenz des Stoffes A an der Grenzschicht
- $\lambda$  = Wärmeleitzahl des Kühlmediums
- D = Diffusionskoeffizient von A im Kühlmedium
- ✓ = kinemat. Zähigkeit des Kühlmediums
- d = hydraulischer Durchmesser des Strömungskanals
- a = Temperaturleitzahl des Kühlmediums
- L = Längskoordinate der Strömung (axial)

Für die turbulente Rohrströmung stößt die rein mathematische Lösung des Problems auf große Schwierigkeiten. Nach Brauer [3] werden deshalb mit Erfolg halbempirische, aus dem Wärmeübergang abgeleitete Ansätze, für die Sh-Zahl benutzt, die etwa die Form

Sh = k·Re<sup>m</sup>·Sc<sup>n</sup>·(
$$^{d}/_{L}$$
)<sup>r</sup> k, m, n, r = Konstante  
haben. Die Exponenten m.n.u. r liegen in der Nähe von l.

Der vom turbulenten Kernstrom durch die laminare Grenzschicht zur Wand diffundierende Korrosionsproduktstrom müßte daher etwa der folgenden Gesetzmäßigkeit gehorchen

$$M_{A} = \frac{D \cdot \Delta f_{A}}{d} \cdot k \cdot Re^{m} \cdot Sc^{n} \cdot \left(\frac{d}{L}\right)^{r}$$

Wenn man davon ausgeht, die Stoffwerte des Kühlmittels als konstant anzusehen und auch die Konzentrationsdifferenz konstant setzt, bleibt die einfache Beziehung:

$$M_{A} = k_{*} \cdot \frac{\text{Re}^{m} \cdot \left(\frac{d}{L}\right)^{r}}{d}$$

 $k_{\star} = Konstante$ 

Aus dieser Beziehung kann man folgendes entnehmen:

- Bei konstanter Re-Zahl und konstantem Rohrdurchmesser, was für die 3 Abschnitte der Hauptkühlmittelleitung zutrifft, ist der Stoffstrom zur Wand (Kontamination) nur von der Länge der Rohrlängskoordinate  $([^d/_L f])$ abhängig. Hierin ist der Effekt der bereits erwähnten fluiddynamischen und chemischen Grenzschichtausbildung ausgedrückt. Bei turbulenter Rohrströmung beträgt die Einlauflänge etwa 40 d [4]. In unserem Fall bedeutet das, daß die Messungen größtenteils im Bereich der Einlauflängen gemacht wurden.
- Bei konstantem  $\frac{d}{L}$  müßte die Kontamination von  $\frac{Re^{m}}{d}$  abhängig sein.

Um einen Zusammenhang zwischen den betrachteten Transportgesetzen und den gemessenen Kontaminationen im KWO zu finden, wurden die korrigierten Meßwerte jedes Rohrabschnittes (3 Hauptleitungsabschnitte, Reinigungsleitung, Sprühleitung) in den Abb. 11, 12, 13, 14, 15 jeweils über den Längskoordinaten in Strömungsrichtung und dem jeweiligen Verhältnis <sup>L</sup>/<sub>d</sub> aufgetragen. Wegen der großen Streuung der Meßwerte ist es jedoch nicht möglich die Anwendbarkeit der o.g. Transportgesetze durch entsprechende Meßwertkurven analytisch zu beweisen. Sie wurden deshalb durch Geraden angenähert, um wenigsten die richtige Tendenz zu zeigen.

Sie zeigen außerdem, daß sich im Rohrabschnitt Abb.13 der Beginn der Rohrabzweigung zur Reinigungs- und Sprühleitung wie eine Rohrunterbrechung bezüglich der Einlaufeffekte auswirkt. In Abb. 16 wurden alle Werte über <sup>L</sup>/<sub>d</sub> aufgetragen, wobei L jeweils vom Beginn eines Rohrabschnittes bzw. der o.g. Rohrabzweigung gerechnet wurde.

Für die Hauptkühlmittelleitung kann aus diesem Diagramm die Schlußfolgerung gezogen werden, daß auf eine Rohrlänge von etwa 10 Rohrdurchmessern ( $^{L}/_{d}$  = 10) die Kontamination im Mittelwert um den Faktor 3,7 durch Einlaufeffekte abnimmt. Diese Erkenntnis kann als wichtigstes Ergebnis der Messungen betrachtet werden. Auf eine weitere zahlenmäßige Darstellung der  $^{d}/_{L}$ -Abhängigkeit soll verzichtet werden wegen der großen Streubreite der Meßwerte.

Ebenfalls reiniinformativ in Bezug auf die Tendenz ist die Darstellung der korrig. Meßwerte über  $\text{Re/}_d$  in dem Diagramm Abb. 17. Hierfür wurden nur die Messungen der Hauptleitung und der Reinigungsleitung aus den bereits genannten Gründen verwendet. Obwohl für dieses Diagramm nur jeweils 2 Punkte (2 Re-Zahlen) für jede Kurve mit  $L/_d$  = Konst. zur Verfügung stehen, ist die positive Abhängigkeit der Ablagerungen von dem Verhältnis  $\frac{\text{Re}}{d}$ zu erkennen. Eine weitere Interpretation dieses Diagramms ist aus den genannten Gründen nicht angebracht.

# 6. Literatur

- [1] S.K. Beal: Deposition of Particles in turbulent Flow on Channel or Pipe Walls. Nuclear Science and Engineering: 40, 1-11 (1970)
- [2] D. Thomas: Experimentelle Untersuchungen über die Ablagerung von suspendiertem Magnetit. Dissertation 1975, TU München
- [3] H. Brauer: Stoffaustausch einschliesslich chemischer Reaktionen 1971
- L4J E.R.G. Eckert: Warme- und Stoffaustausch 1966, S. 42
- [5] AECL-4429 Proceedings of the Symposium on Corrosion Control 1973

Nr.	Ort	R [cm]	<sup>d</sup> Fe [cm]	<sup>▲</sup> Co-60	<sup>▲</sup> Co-58	<sup>▲</sup> Fe-59	A Mn-54	ACr-51	<sup>▲</sup> Co-60 <sup>▲</sup> Co-58
Gl	$\mathbf{PL}$	211	4,5	220	70		5		3
<b>G</b> 2	RL	103	0,6	70	17				4
G3	RL	103	0,6	55	10		×	0,1	5
G4	RL	103	0,6	60	6	1			10
G5	$\mathbf{PL}$	41	4,5	840	130	10			6
G7	$\mathtt{PL}$	30	4,5	750	140				5

Alle Aktivitäten in  $\mu$ Cicm<sup>-2</sup>

PL = Primär-Loop

RL = Reinigungsleitung

Tabelle 3Ergebnisse der Dosismessungen

Ort	Nr.	Z [ips]	D [mrh <sup>-1</sup> ]	Ort	Nr.	Z [ips]	D [mrh <sup>-1</sup> ]
Primärloop	A4 o u	6000 6000	510 510	Sprühleitung	Al o u	8500 8500	760 760
	A5 o u	5200 6000	230 310		A2 o u	7000 6500	440 370
	A6 s	5000	210		A3 o	7000	440
	A100 u	4500 4500	170 170		u A21s	4500 4500	260 170
	Allo u	5000 8000	6 <i>3</i> 0 210		A220	6000	310 710
	A120 u	4000 3300	140 110		A230 A240	5500	310 260
	A140 u	6000 6500	310 580	Reinigungs- Leitung	<b></b>	9500	1200
	A15u	5500	260		u	7500	530
	A160 u	4000 4500	140 170		A8 o u	6500 6500	580 580
	A170 u	5000 5000	210 210		A9 o u	6000 5500	310 260
	<b>A</b> 180 u	4500 6000	170 510		A130 u	6000 4500	510 170
	Al9s u	4500 4500	170 170		0	oben	
	A19 o u	1000 2000	60 100		u s	unten seitlich	
	A200	4 <b>50</b> 0 7000	170 440				

# Tabelle 4

akt.Nuklid	Nuklid AusgNuklid Halbwertszeit		relative Y-Leistung (MeV/sec)	
Co-60	CO-59	5,3	a	1500
Co-58	Ni-58	71	d	l
Cr-51	Cr-50	28	đ	0,4
Mn-54	Fe-54	303	d	0,06
Fe-59	Fe-58	45	đ	0,07















Abb.6



🖛 Z



















Abb. 16



Der Inhalt dieses Berichtes wurde am 7.2.1974 im PNS-Seminar von beiden Autoren vorgetragen.

Für die wertvolle Unterstützung bei den Messungen und Auswertungen möchten wir hiermit den Herren Geisert und Lubecki, LIT, sowie Bohn, Melcher und Hub. Weber, IRB, danken.