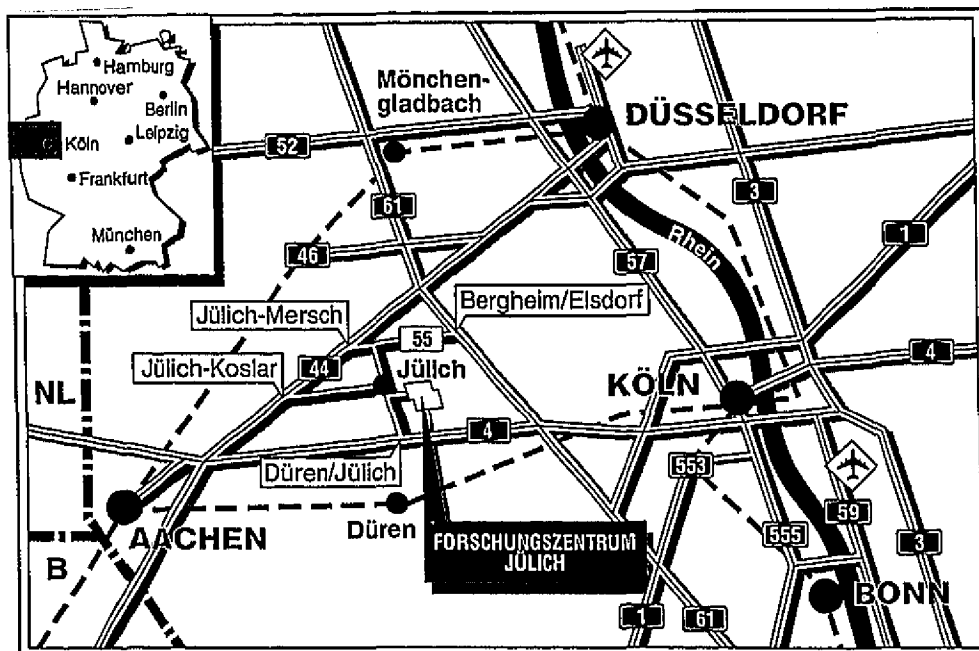


*Institut für Sicherheitsforschung
und Reaktortechnik*

**Spaltprodukttransport im Hoch-
temperaturreaktor: Theorie, programm-
technische Umsetzung und Überprüfung
an Experimenten**

Lutz Kranz



Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 2463

ISSN 0366-0885

Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik Jüli-2463

D 82 (Diss. T.H. Aachen)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek
Postfach 1913 · D-5170 Jülich · Bundesrepublik Deutschland
Telefon: 02461/61-6102 · Telefax: 02461/61-6103 · Telex: 833 556-70 kfa d

Spaltprodukttransport im Hochtemperaturreaktor: Theorie, programmtechnische Umsetzung und Überprüfung an Experimenten

Lutz Kranz

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit am Institut für Reaktorentwicklung, jetzt Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik, des Forschungszentrums Jülich.

Besonders möchte ich Herrn Prof. Dr. rer. nat. R. Schulten für die Stellung des Themas, seine Betreuung und sein Interesse im Verlauf der Arbeit danken.

Herrn Prof. Dr.-Ing. K. Kugeler danke ich für die Übernahme des Korreferates und die Denkanstöße zu den Untersuchungen der Arbeit.

Den Herren PD. Dr. rer. nat. E. Teuchert und K. A. Haas gilt mein Dank für die ausdauernde Hilfe bei der Durchführung und Überprüfung der thermohydraulischen Rechnungen.

Den Herren Dr. rer. nat. R. Moormann und Dr.-Ing. K. Verfondern möchte ich für die vielen Diskussionen und programmtechnischen Hilfen danken.

Den Herren Prof. Dr. rer. nat. C. B. von der Decken, Dr.-Ing. H. Barthels und Dipl.-Phys. N. Iniotakis danke ich für die Bereitstellung der Meßergebnisse des Deckenreflektorexperimentes.

Ganz besonders möchte ich mich bei meinen Kollegen Herrn Dr. rer. nat. W. Scherer, Herrn Dipl.-Phys. V. Dannert, Herrn Dipl.-Ing. U. Mattke und Herrn Dipl.-Ing. H. Ley für die dauernde Diskussionsbereitschaft und die langjährige sehr fördernde Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Spaltprodukttransports danken.

Insbesondere bedanke ich mich bei der Alfred Krupp von Bohlen und Halbach Stiftung, die diese Arbeit durch ein Stipendium unterstützte.

Bedanken möchte ich mich schließlich bei allen Kollegen und Mitarbeitern für die anregenden Diskussionen und Ratschläge.

Fission Product Transport in the High Temperature
Gascooled Reactor:
Theory, Program Development and Verification
by Recalculation of Experiments

ABSTRACT

The safety of nuclear power stations against the release of fission products is the central task of today's nuclear engineering. The high temperature gascooled reactor (HTGR) reaches a special standard in safety because of its high temperature resistant fuel element. After all the possibility of fission product releases can not be excluded without further investigations for HTGRs.

The mechanisms of fission product releases, which occur in case of such hypothetical events, are the subject of this work. The main focus of the investigation is how the fission products, which have been released, are re-adsorbed and prevented through this mechanism from being released in the environment. A strong effect of re-adsorption is expected, because experiments have shown that graphite, which is 100 % of the core material, has an excellent capability to hold back fission products.

With the program tools developed to calculate the fission product transport mechanisms, the corresponding experiments are recalculated and also fission product release calculations are carried out.

Spaltprodukttransport im Hochtemperaturreaktor:
Theorie, programmtechnische Umsetzung
und Überprüfung an Experimenten

von

Lutz Kranz

KURZFASSUNG

Die Sicherheit von Kernreaktoren gegen massive Freisetzung von Spaltprodukten ist die zentrale Aufgabe der heutigen Reaktortechnik. Der Hochtemperaturreaktor erreicht durch sein in sehr hohem Maße temperaturresistentes Brennelement einen besonderen Sicherheitsstandard. Doch sind auch bei ihm Störfallszenarien, die zu relevanten Spaltproduktfreisetzungen führen, nicht von vornherein auszuschließen.

Die Freisetzungsmechanismen, die sich bei solchen hypothetischen Abläufen einstellen, sind Inhalt dieser Arbeit. Der besondere Schwerpunkt liegt auf der Untersuchung, wie einmal im Reaktor freigesetzte Spaltprodukte durch Wiederanlagerung gebunden und so ihre Freisetzung in die Umgebung verhindert wird. Es ist ein starkes Wiederanlagern der Spaltprodukte zu erwarten, da Experimente gezeigt haben, daß Graphit, das Baumaterial aus dem der Corebereich eines HTR zu fast 100 % besteht, hervorragende Eigenschaften für die Rückhaltung von Spaltprodukten hat.

Mit den zur Beschreibung des Spaltprodukttransports entwickelten Programmwerkzeugen werden sowohl die entsprechenden Versuche nachgerechnet als auch Freisetzungsrechnungen durchgeführt.

1.0	Einleitung	1
2.0	Funktionsweise der Spaltprodukttransportrechnungen	3
2.1	Überblick	3
2.2	Das Modell für den Spaltprodukttransport	5
2.3	Sorptionsisothermen und Diffusionskoeffizienten	9
2.3.1	Sorptionsisothermen	9
2.3.2	Diffusionskoeffizienten	12
2.3.2.1	Feststoffdiffusionskoeffizienten	12
2.3.2.2	Gasdiffusionskoeffizienten	14
2.4	Thermohydraulische Abläufe und Spaltproduktaufbau: Grundlage für den Spaltprodukttransport	15
2.5	Funktion des Programmes SPTRAN	19
2.5.1	Modellierung des Brennelementes	19
2.5.2	Modellierung der Gasphase	21
2.5.3	Modellierung der anderen Komponenten	23
2.5.3.1	Graphitische Einbauten	23
2.5.3.2	Metallische Einbauten	25
2.6	Einbindung von SPTRAN in Vor- und Nachbereitungsprogramme	28
2.6.1	Thermohydraulische Rechnung	30
2.6.2	Datentransfer zwischen Anlagen- und Spaltproduktrechnung	31
2.6.3	Spaltprodukttransportrechnung	32
2.6.4	Datenauswertung	33
3.0	Nachrechnung der Ausheizexperimente	35
3.1	Überblick	35
3.2	Die Ausheizexperimente von Schenk	36
3.3	Das Programm KUGEL	42
3.3.1	Diffusionsbeschreibung	42
3.3.2	Randbedingungen und Iteration	45
3.4	Kontrolle des Programmes	46
3.4.1	Intaktes Coated Particle	46
3.4.2	Defektes Coated Particle	50
3.4.3	Brennelement	51
3.5	Ergebnisse der Versuchsnachrechnung	53
4.0	Nachrechnung des Deckenreflektorexperimentes	57
4.1	Überblick	57
4.2	Beschreibung des Versuchsaufbaus beim Deckenreflektorexperiment	59
4.3	Ergebnisse des Deckenreflektorexperimentes	61
4.4	Beschreibung des Rechenprogramms TOPRE	64
4.4.1	Transportmechanismen in TOPRE	64

4.4.2	Aufbau des Rechenprogramms	67
4.4.3	Anpassung an das Deckenreflektorexperiment	68
4.4.4	Aufbau des verschachtelten Iterationssystems	69
4.5	Erste Ergebnisse und Festlegen der Koeffizienten	71
4.6	Konsequenzen	77
5.0	Thermohydraulische Rechnung für den HTR 400	81
5.1	Überblick	81
5.2	Die zeitliche Temperaturentwicklung	84
5.2.1	Zeitliche Temperaturverteilung in der Brennelementzone	86
5.2.2	Zeitliche Temperaturverteilung im Deckenreflektor	90
5.3	Strömungsverhalten im Reaktor	93
5.3.1	Betrachtung der Strömungsrichtungen	93
5.3.2	Betrachtung der Strömungsgeschwindigkeiten	97
6.0	Spaltproduktfreisetzungsberechnung für den HTR 400	101
6.1	Überblick	101
6.2	Die Coated Particles	101
6.2.1	Verteilung der Defekten Coated Particles	102
6.2.2	Freisetzung aus den Defekten Coated Particles	105
6.2.3	Freisetzung aus den Intakten Coated Particles	109
6.3	Brennelementmatrix und Gasphase	112
6.3.1	Transportvorgänge in der Gasphase	113
6.3.2	Speicherpotential der Brennelementmatrix	117
6.3.3	Bilanz der Freisetzungen in der Kugelschüttung	120
6.4	Rückhaltewirkung des Deckenreflektors	122
6.4.1	Rückhaltewirkung ohne konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten	122
6.4.2	Rückhaltewirkung mit konzentrationsabhängigem Diffusionskoeffizienten	126
6.4.3	Zusätzliche Aspekte zur Rückhaltewirkung des Deckenreflektors	129
7.0	Zusammenfassung	133
8.0	Literaturhinweise	137

Verzeichnis der Abbildungen

Abb. 1.	Darstellung des Transportmodells	7
Abb. 2.	Darstellung der Sorptionsisothermen für Cäsium	9
Abb. 3.	Diffusionskoeffizienten für Cäsium in BE und CP	13
Abb. 4.	Prinzipskizze eines Hochtemperaturreaktors	16
Abb. 5.	Darstellung von Brennelement und Coated Particle	20
Abb. 6.	Sorptionsmechanismen an Metall	27
Abb. 7.	Benötigte Programme und Datenfluß bei einer Spaltproduktrechnung	29
Abb. 8.	Schnittbild des Ofens der Kühlfingerapparatur	37
Abb. 9.	Heliumkreislauf des Ausheizexperimentes	38
Abb. 10.	Cs137 Freisetungsverhalten der Brennelemente	41
Abb. 11.	Anschauungsbeispiel für die Diskretisierung	44
Abb. 12.	Diffusionsprofile in einem Intakten Coated Particle	47
Abb. 13.	Diffusionsprofile in einem Defekten Coated Particle	51
Abb. 14.	Diffusionsprofile in der Brennelementmatrix	52
Abb. 15.	Freisetzung aus dem Brennelement bei 1600°C	53
Abb. 16.	Freisetzung aus Brennelementen bei verschiedenen Temperaturen	56
Abb. 17.	Prinzipskizze des Deckenreflektorversuchsaufbaus	60
Abb. 18.	Ergebnisse des Deckenreflektorexperimentes	63
Abb. 19.	Versuchsnachrechnung mit den Daten des Statusberichtes	72
Abb. 20.	Veränderung des Diffusionskoeffizienten mittels eines konstanten Faktors	74
Abb. 21.	Konzentrationsabhängiger Diffusionskoeffizient: Parameterstudie für Tau	76
Abb. 22.	Temperaturverteilung im Normalbetrieb und nach 100 Stunden Störfallzeit	85
Abb. 23.	Temperaturverteilung in der Brennelementzone nach 100 Stunden	86
Abb. 24.	Volumenbezogene Temperaturverteilung	87
Abb. 25.	Zeitlicher Verlauf der Brennelementtemperaturen, axiale Darstellung	88
Abb. 26.	Zeitlicher Verlauf der Brennelementtemperaturen, radiale Darstellung	89
Abb. 27.	Temperaturverteilung im Deckenreflektor nach 100 Stunden	90
Abb. 28.	Temperaturverlauf im Deckenreflektor, axiale Darstellung	91
Abb. 29.	Temperaturverlauf Unterkante Deckenreflektor, radiale Darstellung	93
Abb. 30.	Strömungsfeld (normiert) nach 12 Stunden	94
Abb. 31.	Strömungsfeld (normiert) nach 2 Tagen	95
Abb. 32.	Strömungsfeld (normiert) nach 30 Tagen	96
Abb. 33.	Strömungsgeschwindigkeit in der Kaltgassammelkammer (außen)	97
Abb. 34.	Strömungsgeschwindigkeit in der Brennelementzone (oben)	99
Abb. 35.	Strömungsgeschwindigkeit im Deckenreflektor	100
Abb. 36.	Verteilung der Defekten Coated Particles nach 30 Tagen	103
Abb. 37.	Volumenanteile, die einen bestimmten Anteil an Defekten Coated Particles aufweisen	104
Abb. 38.	Freisetzung aus den Defekten Coated Particles ins Brennelement	105
Abb. 39.	3D-Darstellung des Freisetungsverhaltens aus den Defekten Coated Particles	106
Abb. 40.	Verlauf der Konzentrationen in einem "heißen" Defekten Coated Particle	107

Abb. 41. Verlauf der Konzentrationen in einem "kalten" Defekten Coated Particle	108
Abb. 42. Änderung des Inventars der Intakten Coated Particles	109
Abb. 43. Verlauf der Konzentrationen in einem "heißen" Intakten Coated Particle	110
Abb. 44. Verlauf der Konzentrationen in einem "kalten" Intakten Coated Particle	111
Abb. 45. 3D-Darstellung der Konzentrationsverteilung in der Gasphase	114
Abb. 46. Eintrittsstrom (Cs 137) in den Deckenreflektor	116
Abb. 47. Änderung des integralen Inventars aller Brennelemente	117
Abb. 48. Verlauf der Konzentrationen in einer "heißen" Brennelementmatrix	118
Abb. 49. Verlauf der Konzentrationen in einer "kalten" Brennelementmatrix	119
Abb. 50. Escapefaktor des Deckenreflektors	123
Abb. 51. Konzentrationsverteilung unten im Deckenreflektor	124
Abb. 52. Konzentrationsverteilung in der Mitte des Deckenreflektors	125
Abb. 53. Konzentrationsverteilung oben im Deckenreflektor	126
Abb. 54. Escapefaktor des Deckenreflektors (konz. Diff.)	127
Abb. 55. Konzentrationsverteilung oben im Deckenreflektor (konz. Diff.)	128
Abb. 56. Escapefaktor des Deckenreflektors	129
Abb. 57. Escapefaktor des Deckenreflektors	130

1.0 Einleitung

Die Kerntechnik befindet sich zur Zeit in einer schweren Akzeptanzkrise, die in Deutschland den Bau von neuen Kernkraftwerken in den nächsten Jahren wahrscheinlich verhindern wird. Trotz dieser Situation wird weiter an neuen Reaktorkonzepten gearbeitet, da besonders in Anbetracht der großen Umweltprobleme aller fossilen Energieumwandlungen noch kein überzeugendes Konzept für die Energieversorgung der Zukunft ganz ohne Kerntechnik gefunden worden ist. Gerade in den letzten Monaten häufen sich Meldungen, die von einer Renaissance der Kerntechnik sprechen.

Besonders die Frage, ob ein sicherer Betrieb von Kernreaktoren möglich ist, steht im Mittelpunkt der Diskussion. Dabei wird natürlich fast immer auf der Basis der bestehenden Anlagen argumentiert, aber es wird nur selten berücksichtigt, daß in der Kerntechnik noch ein großes Entwicklungspotential zu mehr Sicherheit vorhanden ist. Bei zukünftigen Anlagen wird sich dieses Potential in der Form immer sicherer Reaktoren realisieren lassen. Bei der wissenschaftlichen Forschung an neuen Reaktorkonzepten wird gerade die Sorge vor Reaktorunfällen sehr ernst genommen und an Lösungskonzepten gearbeitet.

Der Hochtemperaturreaktor stellt eine Baulinie dar, die besondere Eigenschaften in Richtung Sicherheit bei Störfällen aufweist. Die sehr hohe Temperatur, die im Core des HTR's entstehen kann, bevor Spaltprodukte aus dem Brennelement austreten, ist eine seiner spezifischen Besonderheiten. Erst oberhalb von 1600°C werden Spaltprodukte freigesetzt. Es existieren Konzepte für Hochtemperaturreaktoren, die in hypothetischen Störfällen Coretemperaturen erreichen, die deutlich über dieser Grenztemperatur liegen und somit zu einer Spaltproduktfreisetzung aus den Brennelementen führen. Bei diesen Reaktoren wird durch aktive Sicherheitssysteme versucht, diese Anlagenzustände zu verhindern. Die Vorgehensweise, mit Hilfe aktiver Systeme gefährliche Anlagenzustände zu vermeiden, ist völlig analog zu der bei Leichtwasserreaktoren verwendeten Methode.

Da in der Kerntechnik wegen des sehr hohen Gefährdungspotentials die ansonsten in der Technik allgemein akzeptierten aktiven Sicherheitsmaßnahmen von vielen Fachleuten als nicht ausreichend betrachtet werden, wird verstärkt versucht, bei zukünftigen Anlagen die Sicherheit durch passive Vorgänge zu erreichen. Unter passiven Vorgängen werden solche verstanden, die ohne Steuerung oder Antrieb allein durch physikalische Gesetze funktionieren. So sind beispielsweise die Reaktorabschaltung durch negative Temperaturkoeffizienten (bei allen Reaktoren üblich) oder die Wärmeabfuhr durch Leitung und Strahlung passive Vorgänge. Der Versuch, die Sicherheit eines Reaktors allein durch passive Wirkungsmechanismen zu gewährleisten, hat zur Entwicklung des HTR-MODUL-Reaktors geführt. Als Resultat dieser Bemühungen überschreitet der Reaktor auch bei hypothetischen Störfallereignissen die Temperaturgrenze von 1600°C nicht.

Zu Beginn der vorliegenden Arbeit war der THTR-300 in Hamm-Uentrop noch in Betrieb. Bei ihm handelt es sich um einen Reaktor der zuerst genannten Gruppe. Bei den

Sicherheitsstudien für den THTR-300 wurde dem hypothetischen Störfall, der zu hohen Coretemperaturen und damit zu Spaltproduktfreisetzungen aus den Brennelementen führt, eine große Bedeutung beigemessen. Da Experimente gezeigt haben, daß viele Spaltprodukte ein großes Bestreben haben, sich besonders an Graphite, aber auch an Metalle, anzulagern, erschien die Untersuchung, inwieweit sich diese Vorgänge auf das Freisetzungsverhalten aus dem Reaktor auswirken, sinnvoll. Ziel dieser Arbeit sollte es sein, zu untersuchen, welche Mechanismen bei den Rückhalteeffekten zu berücksichtigen sind und welche Reaktorkomponenten einen bedeutenden Anteil an der Rückhaltung haben.

Nach dem Auslaufen des Betriebs des THTR-300 hat sich das Interesse auf die kleinen HTR's gerichtet. Durch die Verlagerung des Forschungsschwerpunktes auf Reaktoren wie den HTR-MODUL stellt sich die Frage, ob eine solche Untersuchung noch sinnvoll ist. Da aber gerade das Verständnis der Transportvorgänge der Spaltprodukte letztlich von grundlegendem Interesse bei der Untersuchung von Störfällen ist, wurde die Arbeit mit praktisch unveränderter Aufgabenstellung fortgesetzt, wobei nur ein größeres Gewicht auf die Übertragbarkeit der Ergebnisse gelegt wird, als darauf, den speziellen Störfall eines bestimmten Reaktorkonzepts zu behandeln.

Die Überprüfung der verwendeten Modellansätze und Rechenprogramme anhand von Nachrechnungen der bisher zu diesen Vorgängen durchgeführten Experimente soll die Allgemeingültigkeit erhöhen und klären helfen, wie weit die Ergebnisse von einem Anwendungsbeispiel auf andere Reaktoren und Störfälle übertragen werden können. Zusätzlich soll mit diesen Versuchsnachrechnungen die Funktions- und Aussagesicherheit der verwendeten Rechenwerkzeuge sichergestellt werden. Erst im Anschluß wird eine Freisetzungsrechnung für einen Hochtemperaturreaktor durchgeführt. Es wird ein Störfallszenario ausgewählt, welches hohe Freisetzungen aufweist, um damit untersuchen zu können, ob die Freisetzungsrechnungen diese bewältigen können. Hierbei zeigen sich die äußerst komplexen Zusammenhänge von Temperatur- und Strömungsgehehen auf die Freisetzung aus den einzelnen Komponenten.

Mit großer Wahrscheinlichkeit kann ein Teil der Ergebnisse dieser Untersuchung zu relevante Erkenntnissen führen, die für die Konzeption von zukünftigen Hochtemperaturreaktoren verwendet werden können.

2.0 Funktionsweise der Spaltprodukttransportrechnungen

2.1 Überblick

Dieses Kapitel soll die Funktionsweise des Programmes SPTRAN (SPaltproduktTRANsport) anschaulich darstellen. Darüberhinaus wird die Einbindung in alle Programme, die vor und nach einer SPTRAN-Rechnung durchgeführt werden müssen, vorgestellt.

Das Programm SPTRAN ist ein universelles Anlagenprogramm, welches den Spaltprodukttransport im Primärkreislauf von Hochtemperaturreaktoren simuliert. Es kann eingesetzt werden, um sowohl den Normalbetrieb eines Reaktors über eine langjährige Standzeit zu untersuchen, als auch um Spaltproduktfreisetzungen bei den verschiedensten Störfällen zu simulieren.

In der Arbeit von Berger-Rossa¹ werden folgende Transportmechanismen, die im Programm SPTRAN berücksichtigt werden, zusammengefaßt.

- Diffusion im Coated Particle
 - im CP - Kern
 - in den CP - Hüllschichten
- Diffusion im Brennelement
- Bei Partikelversagen Freisetzung des CP-Hüllschichten-Inventars in den BE-Graphit
- Diffusion aus den Coated Particles ins Brennelement und vice versa
- Desorption aus den Brennelementen ins Kühlgas und Adsorption aus dem Kühlgas an die Brennelemente
- Transport im Kühlgas (Diffusion (effektive) und Konvektion)
- Adsorption aus dem Kühlgas an Primärkreisteile und evtl. Desorption von dort ins Kühlgas
 - an nicht-metallische Einbauten (Strukturgraphite)
 - an metallische Einbauten
- Diffusion in nicht-metallischen Einbauten

¹ Berger-Rossa, Rückhaltung und Umverteilung von Spaltprodukten im Core und im Primärkreislauf von Hochtemperaturreaktoren bei hypothetischen Störfällereignissen, 1988, S. 7.

- Penetration in metallische Primärkreis-Oberflächen
- Freisetzung von Spaltprodukten aus einem Primärkreis-Leck an beliebiger Stelle

Bei allen Anwendungen wird die Annahme getroffen, daß keine Rückkopplungen vom Transport der Spaltprodukte im Reaktor auf die thermohydraulischen Abläufe gegeben sind. Diese Annahme ist auch immer berechtigt, mit der einzigen Ausnahme, daß ein Freisetzen von Spaltprodukten aus den Brennelementen gleichbedeutend mit der Veränderung der örtlichen Nachwärmefunktion ist, da die Spaltprodukte die Quelle der Nachzerfallswärme sind. Diese Vorgänge sind nur für Hochtemperaturreaktoren relevant, die bei hypothetischen Störfällen hohe Coretemperaturen erreichen. Aufgrund dieser Überlegungen ist bei älteren Störfallrechnungen eine lokale Reduzierung der Nachwärme, beginnend bei bestimmten Temperaturgrenzen, vorgenommen worden. Für die heutigen qualitativ sehr hochwertigen Brennelemente hat die Auswertung der Ausheizexperimente von Schenk ergeben, daß selbst bei Störfallabläufen bis 2500°C aus den am stärksten belasteten Brennelementen nur 10 - 15% der leicht flüchtigen Spaltprodukte austreten.² Der Anteil der Spaltprodukte, die bei solchen Störfällen freigesetzt werden, an der lokalen Nachwärme beträgt nur 2 - 3%. Daher ist die konservative Annahme sinnvoll, keine Nachwärmereduzierung zu verwenden.

Der Ausschluß aller Rückkopplungen erlaubt es, die thermohydraulischen Rechnungen mit erprobten und etablierten Anlagenprogrammen vorzunehmen. Bei den Anwendungen dieser Programme werden alle für den Spaltprodukttransport relevanten Daten gespeichert und später von der völlig getrennten Spaltprodukttransportrechnung verwendet. Die Einbindung von SPTRAN in Vorbereitungs- und Nachbereitungsprogramme, die bei einer Spaltproduktrechnung durchzuführen sind, wird in diesem Kapitel dargestellt.

Das Programm SPTRAN kann grundsätzlich die Transportvorgänge für alle Spaltprodukte simulieren. Es kann aber bei jeder Rechnung nur eine einzige Spaltproduktspezies behandeln, da schon eine solche Rechnung an die Grenze der Speicherplatz- und Rechenzeitkapazität gelangt. Auch ist die Datenbasis der Wechselwirkung der Spaltprodukte mit den Reaktorkomponenten nur für die radiologisch interessantesten Nuklide einigermaßen bekannt. Im jetzigen Stadium der Theorie- und Programmüberprüfung von SPTRAN wird nur das radiologisch besonders relevante Spaltprodukt Cäsium 137 behandelt. Da Cäsium 137 keine langlebigen Vorläufernuklide³ hat, kann sein Transportverhalten mit einer einzigen SPTRAN-Rechnung bestimmt werden.

² Kranz, Reduzierung der Nachwärme im Rechenprogramm THERMIX, 1990.

³ Die direkt aus einer Kernspaltung entstehenden Kernbruchstücke sind radioaktive Zwischenprodukte, d.h. sie zerfallen in den Zerfallsketten zu nichtradioaktiven Endprodukten. Radiologisch sind meist diejenigen besonders bedeutend, die in einer Zerfallskette ein relativ langlebiges Zwischenstadium (Halbwertszeit einige Jahre) durchlaufen. So entsteht das Cs₁₃₇ in

Falls jedoch ein Nuklid mit einem langlebigen Vorläufer berechnet werden soll, bietet das Programm die Möglichkeit, zuerst eine Transportrechnung für diesen Vorläufer durchzuführen, und aus den festgehaltenen Verteilungen dieses Vorläufers werden dann bei der Berechnung des zu betrachtenden Nuklides an allen Orten des Reaktors zusätzliche Quellterme aus dem Zerfall des Vorläufernuklides berechnet. Da bisher nur Cäsium untersucht wurde (die Vorläufer von Cs137 haben nur kurze Halbwertzeiten), ist der Vorläuferteil des Programmes noch nicht getestet.

In der vorliegenden Version kann das Programm SPTRAN nur reines Helium als Transportmedium im Primärkreis behandeln, da bisher nur Aufheizstörfälle ohne den Einbruch von Fremdmedien untersucht worden sind. Speziell in der Diskussion um die Sicherheit des Modul-Reaktors nehmen die Störfälle mit Luft- oder Wassereinbruch eine zentrale Rolle ein. Bei diesen Störfällen sind chemische Reaktionen des sich neu einstellenden Gasgemisches (dies ist dann nicht mehr chemisch inert) mit dem Graphit und den Spaltprodukten für das Störfallgeschehen bestimmend. Da auch diese chemischen Reaktionen die Temperatur- und Strömungsbedingungen als Grundlage haben, wäre das Programm SPTRAN durchaus geeignet, für die Behandlung solcher Störfallszenarien erweitert zu werden.

2.2 Das Modell für den Spaltprodukttransport

Die Physik des Spaltprodukttransportes im Graphit ist eine sehr aufwendige und auch nach langjährigen Forschungsanstrengungen noch nicht vollständig geklärte Fragestellung. Diese Problematik hat ihren Grund in der komplexen Struktur des Graphits.⁴ Graphit ist ein poröser Werkstoff, der aus Graphitkörnern besteht, die durch Binderanteile zusammengehalten werden. Bedingt durch diesen Aufbau sind die Transportvorgänge von Fremdatomen im Graphit kompliziert. Um bei einfachen Ansätzen die Transportvorgänge sinnvoll modellieren zu können, wird der Graphit hierbei als ein homogener Körper betrachtet und für diesen eine einphasige Fick'sche Diffusion angesetzt. Für diese Diffusion wird dann ein Diffusionskoeffizient benutzt, der in Experi-

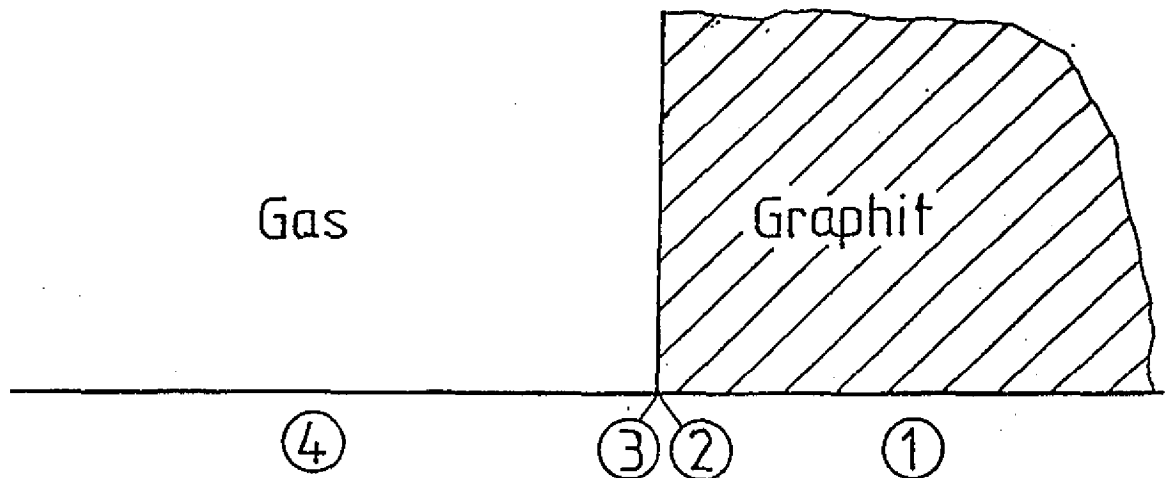
Minuten aus der Kette Te_{137} , I_{137} und Xe_{137} . Es selbst hat eine Halbwertzeit von 30 Jahren, so daß die Gesamtmenge während eines störfallrelevanten Zeitraumes praktisch konstant ist. Liegt dagegen vor einem zu untersuchenden Nuklid ein Vorläufer mit mittlerer Halbwertzeit, dann wird während des gesamten Untersuchungszeitraumes durch Zerfall dieses Vorläufers das Spaltprodukt immer weiter gebildet. Deshalb muß zuerst das Transportverhalten des Vorläufers mittels einer eigenen kompletten SPTRAN-Rechnung bestimmt werden, um dann mit Hilfe der so gewonnenen Ergebnisse bei der eigentlich gewünschten Spaltproduktrechnung die Quellterme richtig bestimmen zu können.

4 Einen guten Einstieg in die Eigenschaften der Reaktorgraphite liefert: Delle, Polykristalline graphitische Materialien für den Einsatz im Hochtemperaturreaktor.

menten bestimmt wird, bei denen integral die Diffusion einer Spaltproduktsorte durch eine Graphitprobe gemessen wird⁵.

Dieser einfache Ansatz wird vom Programm SPTRAN verwendet, und erst wenn sich einer der komplexeren Ansätze als erfolgreich erwiesen und durchgesetzt hat, ist es sinnvoll, ihn dann auch in einem großen, den Reaktor in seiner Gesamtheit simulierenden Programm zu verwenden. Die folgende Abbildung zeigt das im Rechenprogramm verwendete Transportmodell.

⁵ Gaus, Untersuchungen zum Cäsium-Transport in Graphit, 1979.



Transportmechanismen:

1. Im Graphit:

effektive Diffusion (eindimensional) mit Zerfallstermen und Quellen

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_{eff} \frac{\partial C}{\partial x} \right) - \lambda \cdot C + \dot{Q}'''$$

2. Grenzschicht graphitseitig:

Sorptionsisothermen (spontanes Sorptionsgleichgewicht)

$$\alpha_{Sorption} \cdot C_{Graphit,Wand} = C_{Gas,Wand}$$

3. Grenzschicht gasseitig:

Stoffübergang

$$j_{Stoff} = \beta (C_{Gas,Wand} - C_{Gas,\infty})$$

4. Im Gas:

Konvektion und Diffusion (zweidimensional) mit Zerfallstermen und Quellen

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\text{div}(\vec{v} \cdot C) + \text{div}(D_{eff} \cdot \text{grad } C) - \lambda \cdot C + \dot{Q}'''$$

Abb. 1. Darstellung des Transportmodells

Die Skizze im oberen Teil der Abb. 1 zeigt einen Graphitkörper, welcher an der einen Seite vom Gas umspült wird. Die Zahlen unter der Skizze geben die verschiedenen berücksichtigten Transportmechanismen an.

Im Graphit wird, wie gerade gezeigt, der Ansatz der Fick'schen Diffusion verwendet. In der Bilanzgleichung werden zusätzlich noch ein Verlustterm durch den radioaktiven

Zerfall des Spaltproduktes und ein Quellterm berücksichtigt. Über diesen Quellterm werden beim Brennelement die Coated Particles angekoppelt.

Die Kopplung vom Graphit zum Gas der Grenzschicht erfolgt über ein Sorptionsmodell. Die Sorptionsisothermen geben eine Beziehung zwischen der Konzentration der Spaltprodukte auf der Oberfläche des Graphites und ihrer Konzentration im Gas der Grenzschicht an. Hierbei handelt es sich um einen von den Bindungsenergien abhängigen Gleichgewichtszustand, der temperatur- und konzentrationsabhängig ist. Da alle Ad- und Desorptionsannahmen zu dem Ergebnis führen, daß sich bei der Sorption das Gleichgewicht schnell einstellt, wird in diesem Transportmodell ein spontanes Sorptionsgleichgewicht angenommen. Eine Spaltproduktkonzentration an der Oberfläche des Graphites bedingt damit sofort eine entsprechende Konzentration im Gas der Grenzschicht.

Da die Temperatur- und Konzentrationsabhängigkeit eine komplexe Beschreibung der Sorptionsisothermen erfordert, wird im folgenden Abschnitt besonders darauf eingegangen.

Als dritter Transportmechanismus wird der Übergang von der Gas/Graphit-Grenzschicht ins Gas beschrieben. Hier wird eine gewöhnliche Beschreibung des Stoffüberganges mit einem Stoffübergangskoeffizienten β verwendet.

Im Gas wird der Transport durch die Strömung des Gases bewirkt. Es ist hierbei völlig unerheblich, ob es sich im Normalbetrieb um eine durch das Gebläse erzwungene Strömung oder im Störfall um eine Strömung handelt, die sich durch Naturkonvektion einstellt. Das Programm SPTRAN erhält als Eingabe nur noch die Größe der Strömungsgeschwindigkeit, aber keine anderen Informationen. Dieser Eigenbewegung des Gases ist noch die Relativbewegung der Spaltprodukte zum Gas durch Diffusion überlagert. Im Gas wird wieder, wie im Graphit, ein Zerfalls- und ein Quellterm berücksichtigt.

Zusammenfassend läßt sich feststellen, daß es sich beim hier vorgestellten Transportmodell für die Spaltprodukte im Graphit um ein einfaches und auch in dieser Art bei Simulationen oft verwendetes Modell handelt. Die besonderen Schwierigkeiten ergeben sich aus den extremen Konzentrationsgradienten, die sich bei Spaltproduktrechnungen einstellen. Diese werden durch die Sorptionsisothermen bewirkt, die zu Konzentrationsunterschieden im Gas und im Graphit von über 10 Zehnerpotenzen führen können. Aber stärker noch resultieren sie grundsätzlich aus der Tatsache, daß Freisetzungen im Millionstelbereich des Gesamtinventars eines Kernreaktors schon zu merklichen Belastungen für die Anlage und die Umgebung werden und deshalb die eingebauten Barrieren zu **radikalen Konzentrationsgradienten** führen müssen, um ihre Aufgabe zu erfüllen.

2.3 Sorptionsisothermen und Diffusionskoeffizienten

2.3.1 Sorptionsisothermen

Die Sorptionsisothermen sind von besonderer Wichtigkeit für die Spaltprodukttransportrechnungen, da sich in ihnen das besonders gute Anlagerungsverhalten der Spaltprodukte an den Graphit ausdrückt.

Die Sorptionsisothermen geben den Gleichgewichtszustand der Verteilung von Spaltprodukten zwischen einer Gasphase und einem graphitischen Festkörper wieder. Die in Experimenten ermittelten Ergebnisse wurden in eine mathematische Formulierung überführt, die jetzt von den Rechenprogrammen benutzt werden kann. Abb. 2 zeigt die so gewonnenen Sorptionsisothermen für Cäsium.

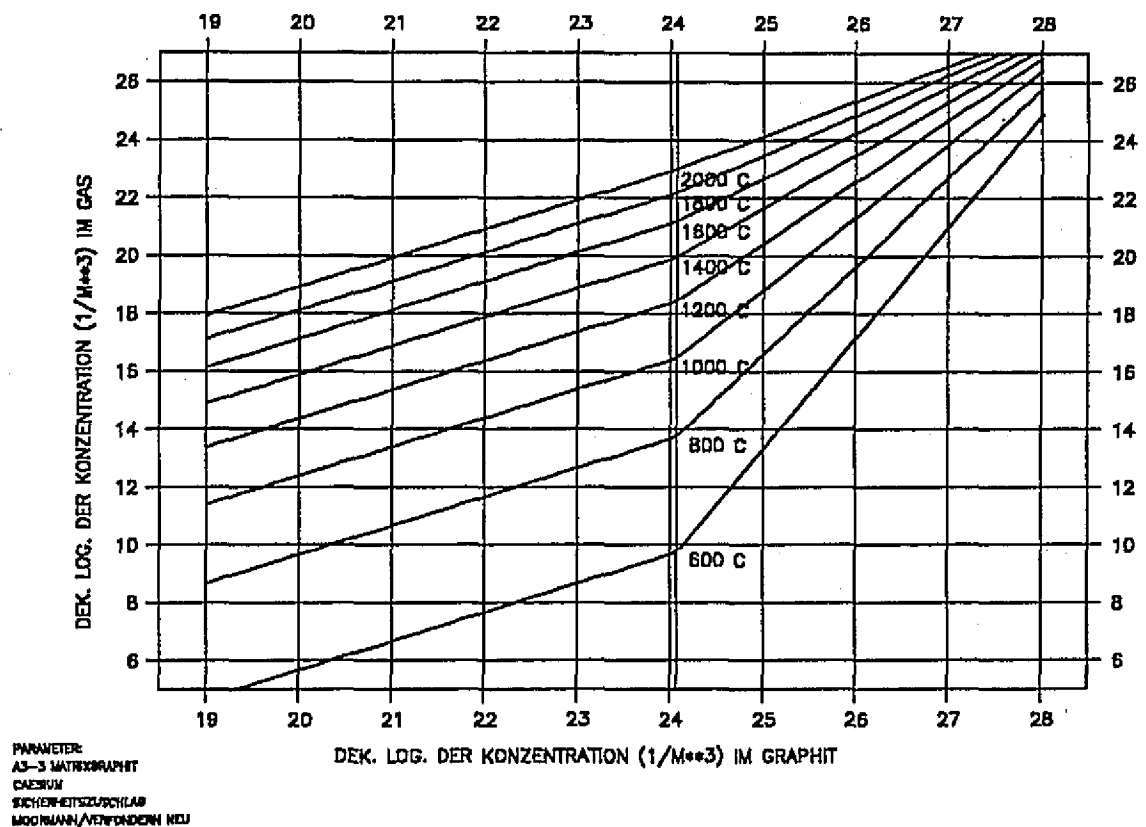


Abb. 2. Darstellung der Sorptionsisothermen für Cäsium

In dieser Abbildung werden auf den Achsen jeweils die Konzentrationen der Spaltprodukte (Atome / m³) in logarithmischer Darstellung angegeben. Die Skalierung der Achsen ist entsprechend der Formulierung der Sorptionsisothermen im Programm gewählt.

Bei der Formulierung der Sorptionsisothermen herrscht zur Zeit noch ein Zustand, bei dem von den verschiedenen Anwendern auch verschiedene Formulierungen benutzt werden. Darüberhinaus hat sich mit der Zeit eine mathematische Formulierung der Sorptionsisothermen eingebürgert, die keine saubere physikalische Größengleichung darstellt, sondern immer mehr als dimensionslose Berechnungsvorschrift verwendet wird. Da in diesen Untersuchungen der Sorptionsansatz als am meisten abgesicherte Grundlage verwendet wird und nach Möglichkeit bei den Versuchsnachrechnungen nicht verändert werden soll, wird nur auf die Aspekte seiner Anwendung eingegangen. Die ihm zugrunde liegenden physikalischen Sachverhalte können nur gestreift werden.

Sehr tiefgehende Beschreibungen des Sorptionsverhaltens und seines physikalischen Inhaltes findet man in den folgenden Quellen: In der KFA wurden die Referenzmessungen von Hilpert⁶ durchgeführt. Der Statusbericht "Band 3: Spaltproduktfreisetzung"⁷ versucht alle Daten, die im Zusammenhang mit Spaltprodukttransportvorgängen vorliegen, zusammenzufassen. Hier ist im Anhang eine Darstellung des Sorptionsmodells und der verwendeten Daten enthalten. In der Arbeit von Dannert⁸ wird ausführlich auf die Sorption eingegangen, besonders auch auf den Schritt von den Meßverfahren und Ergebnissen zur mathematischen Formulierung der Sorption. Darüberhinaus befassen sich zwei technische Informationen von Scherer⁹ und Dannert¹⁰ speziell mit den Formulierungsschwierigkeiten und unterschiedlichen Schreibweisen für die Sorptionsisothermen. Ganz aktuell ist die Arbeit von Kwasny¹¹, der in einer experimentellen Arbeit neue Messungen der Sorptionsisothermen von Cäsium an A3-3 Matrixgraphit durchgeführt hat.

Die Abb. 2 auf Seite 9 zeigt zwei verschiedene Bereiche des Sorptionsverhaltens. Oberhalb einer Grenzkonzentration knicken die Sorptionsisothermen¹² ab. Der Bereich

⁶ Hilpert, Sorption of Cesium and its Vaporization from Graphitic Materials at high Temperatures, 1988, S. 157 - 164.

⁷ Moormann, Methodik umfassender probabilistischer Sicherheitsanalysen für zukünftige HTR Anlagen, Band 3: Spaltprodukte, 1987, S. 105 ff.

⁸ Dannert, Mehrphasendiffusion von Spaltprodukten im Graphit, 1989, S. 21 ff.

⁹ Scherer, Ansatz einer geschlossenen Schreibweise für Sorptionsisothermen und effektive Diffusionskoeffizienten, 1990.

¹⁰ Dannert, Herleitung der Sr-Sorptionsisothermen für Matrix A3-3 ..., 1990.

¹¹ Kwasny, Cäsium-Sorptionsuntersuchungen an graphitischen Reaktorwerkstoffen, 1990.

¹² Dieser Knick stellt eine Unstetigkeit in der ersten Ableitung der Formulierung dar. Er ist auf die Unzulänglichkeit der Formulierung der Sorptionsisothermen zurückzuführen. Es gibt daher Bestrebungen, den Henry- und Freundlich-Bereich in Zukunft in einer geschlossenen Formu-

unterhalb der Grenzkonzentration wird Henry-Bereich und der oberhalb Freundlich-Bereich genannt. In beiden Bereichen wird das Konzentrationsverhältnis durch die Größe α ausgedrückt (Gleichung 2.3-1). Die Größe wird aber nach unterschiedlichen Berechnungsvorschriften bestimmt. Das Verhältnis von Gas- zu Graphitkonzentration ist gleich α .

$$\alpha = \frac{C_{Gas}}{C_{Graphit}} \quad (2.3 - 1)$$

α : Konzentrationsverhältnis
 C_{Gas} : Gaskonzentration in der Grenzschicht
 $C_{Graphit}$: Graphitkonzentration an der Oberfläche

Im Henry-Bereich ($C_{Graphit} < C_{Grenz}$) ist α nur von der Temperatur abhängig und wird nach folgendem Berechnungsverfahren bestimmt.

$$\alpha_H = \frac{T_0}{T} \cdot e^{(A_H + \frac{B_H}{T})} \quad (2.3 - 2)$$

α_H : für den Henry-Bereich
 T_0 : Bezugstemperatur (1 K)
 T : Temperatur
 A_H, B_H : Koeffizienten für den Henry-Bereich

Beim Freundlich-Bereich ($C_{Graphit} > C_{Grenz}$) besteht neben der Temperatur- jetzt auch noch Konzentrationsabhängigkeit. Man kann sich dies so erklären, daß ab einer bestimmten Beladung des Graphites alle Plätze mit besten Bindungseigenschaften (höchste Bindungsenergie) besetzt sind. Beim Übergang zu höheren Energien können nur noch energetisch ungünstigere Bindungen eingegangen werden, hieraus ergibt sich die Konzentrationsabhängigkeit des Freundlich-Bereichs.

$$\alpha_H = \frac{T_0}{T} \cdot e^{(A_F + \frac{B_F}{T})} \cdot \left(\frac{C_{Graphit}}{C_0} \right)^{(D_F + \frac{E_F}{T})} \quad (2.3 - 3)$$

lierung abzudecken. In SPTRAN, wo noch die getrennte Formulierung verwendet wird, müssen die Unstetigkeitsstellen zur Vermeidung von Iterationsproblemen durch eine Ausgleichsrechnung geglättet werden.

α_F	: für den Freundlich-Bereich
T_0	: Bezugstemperatur (1 K)
T	: Temperatur
$C_{Graphit}$	: Graphitkonzentration nahe der Oberfläche
C_0	: Bezugskonzentration ($1 / m^3$)
A_F, B_F, D_F, E_F	: Koeffizienten für den Freundlich-Bereich

Um noch einmal auf die Bedeutung der Sorption hinzuweisen, soll einmal für 1000°C das Verhältnis von Gas- zu Graphitkonzentration angegeben werden. Es beträgt im Henry-Bereich noch fast 10^{-8} . Selbst bei dieser Temperatur ist die Konzentration im Gas noch um fast 8 Zehnerpotenzen kleiner als im Graphit. Schon hier sieht man, welche Bedeutung die Sorptionsisothermen und die in ihnen ausgedrückten physikalischen Zusammenhänge für die Zurückhaltung und Speicherung der Spaltprodukte haben. Für die Rechnungen kann man erahnen, welche numerischen Schwierigkeiten das Sorptionsmodell bei ihnen verursachen kann, besonders wenn noch die Konzentrationsabhängigkeit hinzukommt.

2.3.2 Diffusionskoeffizienten

2.3.2.1 Feststoffdiffusionskoeffizienten

Die Diffusionskoeffizienten bestimmen die Transportgeschwindigkeiten der Spaltprodukte im Festkörper. Mit Hilfe der Diffusion werden in den hier verwendeten Modellen durch die verschiedenen Diffusionskoeffizienten Mechanismen, die auf den ersten Blick verschiedenartig sind, beschrieben.

So wird in der Siliziumkarbid-Schicht der Coated Particles durch einen extrem kleinen Diffusionskoeffizienten die fast vollständige Rückhaltefähigkeit dieser Schicht simuliert. Erst bei Temperaturen höher 1600°C zeigt sich eine merkliche Freisetzung von Spaltprodukten aus den Brennelementen. Dagegen wird in den anderen Bereichen mittels Diffusion der Transport und gekoppelt mit der Sorption die Speicherung der Spaltprodukte beschrieben, wobei unter Speicherung die Spaltprodukte verstanden werden, die in ein bestimmtes Volumen hineindiffundieren. Der Speicherungseffekt ergibt sich allein durch das so erhöhte Inventar. Diese Speicherung ist natürlich reversibel.

Die folgende Abbildung zeigt alle Diffusionskoeffizienten, die für die Beschreibung von Brennelement und Coated Particle benötigt werden.

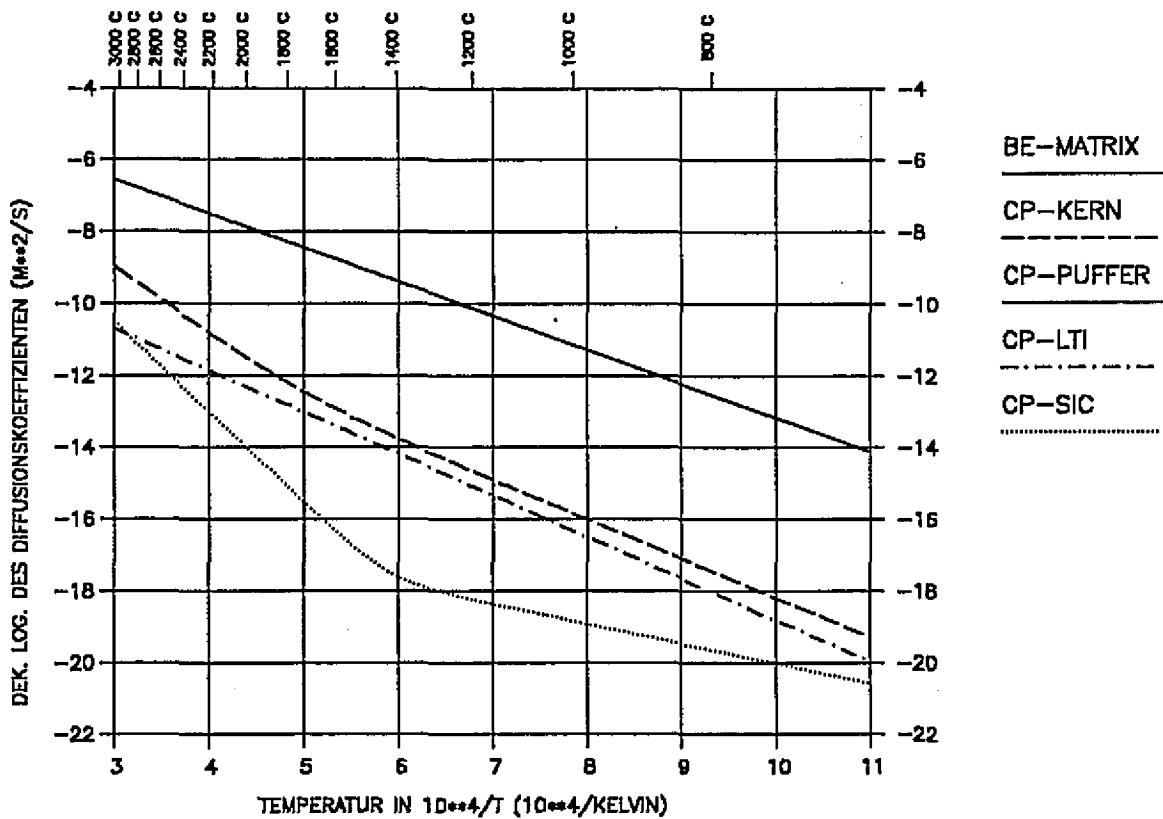


Abb. 3. Diffusionskoeffizienten für Cäsium in BE und CP

Die Veränderung der Diffusionskoeffizienten wird hier über der Temperatur angegeben. Die gewählte Darstellungsform ist eine Arrheniusdarstellung. In dieser Darstellungsart erscheinen alle Bindungsvorgänge, die über eine konstante Aktivierungsenergie verfügen als Gerade. Reine Diffusionsvorgänge weisen dieses Verhalten auf. Für einige Materialien wurden Korrekturen eingeführt. Dies deutet darauf hin, daß hier nicht nur Diffusionsprozesse ablaufen.

Es ist deutlich zu erkennen, wie klein gerade der Diffusionskoeffizient für die Siliziumkarbid-Schicht in den Coated Particles ist. Dagegen ist der Diffusionskoeffizient im Graphit der Brennelement-Matrix um meist 6 Zehnerpotenzen größer. Eine Ausnahme bildet nur der Diffusionskoeffizient für die Pufferschicht im Brennelement. Da diese Schicht praktisch keine Rückhaltefähigkeit aufweist, wurde für sie der temperaturunabhängige Wert von 10^{-4} (m²/sec) gewählt. In der Abbildung liegt er daher auf dem Rand und ist in der schwarz/weißen Abbildung nicht erkennbar.

Da es sich bei der Diffusion um einen Transportvorgang handelt, der von der Aktivierungsenergie abhängig ist, wird für die mathematische Formulierung eine Arrhenius-Beziehung gewählt.

$$D_{eff}(T) = D_0 \cdot e^{-\frac{\Delta Q}{R_m \cdot T}} + D'_0 \cdot e^{-\frac{\Delta Q'}{R_m \cdot T}} \quad (2.3 - 4)$$

D_{eff}	: effektiver Diffusionskoeffizient
ΔQ	: Aktivierungsenergie
D_0	: Normierungsgröße
T	: Temperatur
R_m	: molare Gaskonstante

Die Gleichung (2.3-4) zeigt, daß zur Abdeckung von Abweichungen vom reinen Arrhenius-Verhalten zusätzlich die Möglichkeit besteht, den Diffusionskoeffizienten durch zwei Arrhenius-Beziehungen auszudrücken.

2.3.2.2 Gasdiffusionskoeffizienten

Auch bei der Formulierung der Transportvorgänge im Gas wird die Fick'sche Diffusion angesetzt. Die bestimmende Größe hierfür ist der binäre Gasdiffusionskoeffizient. Berger-Rossa hat im Programm SPTRAN einen komplexen Ansatz¹³ gewählt. Dieser Ansatz wird durch den Ansatz von Batalas¹⁴ ersetzt. Dieser Ansatz ist einfacher und wird auch von anderen Programmen bei den Spaltproduktrechnungen verwendet. Diese einfache Formulierung lautet:

$$D_{Gas} = D_0 \cdot \left(\frac{T}{273K} \right)^{1.69} \cdot \frac{p_0}{p} \quad (2.3 - 5)$$

D_{Gas}	: binärer Gasdiffusionskoeffizient
D_0	: Normierungskonstante, abhängig vom betrachteten Spaltprodukt und betrachteten Gas
T	: Temperatur [K]
p_0	: Bezugsdruck [1 bar]
p	: Druck [bar]

Durch verschiedene Werte für D_0 kann diese Beziehung an verschiedene Gase und Spaltprodukte angepaßt werden. In der Arbeit von Batalas finden sich die entsprechenden Tabellen.

¹³ Berger-Rossa, Rückhaltung und Umverteilung von Spaltprodukten im Core und im Primärkreislauf von Hochtemperaturreaktoren bei hypothetischen Störfallereignissen, 1988, S. 27 f.

¹⁴ Batalas, Theoretische Untersuchung zur Diffusion von binären Gasgemischen im Hinblick auf den HTR.

Im Bereich der Kugelschüttung werden Korrekturen am Diffusionskoeffizienten vorgenommen, um das Diffusionsverhalten hier richtig zu beschreiben¹⁵.

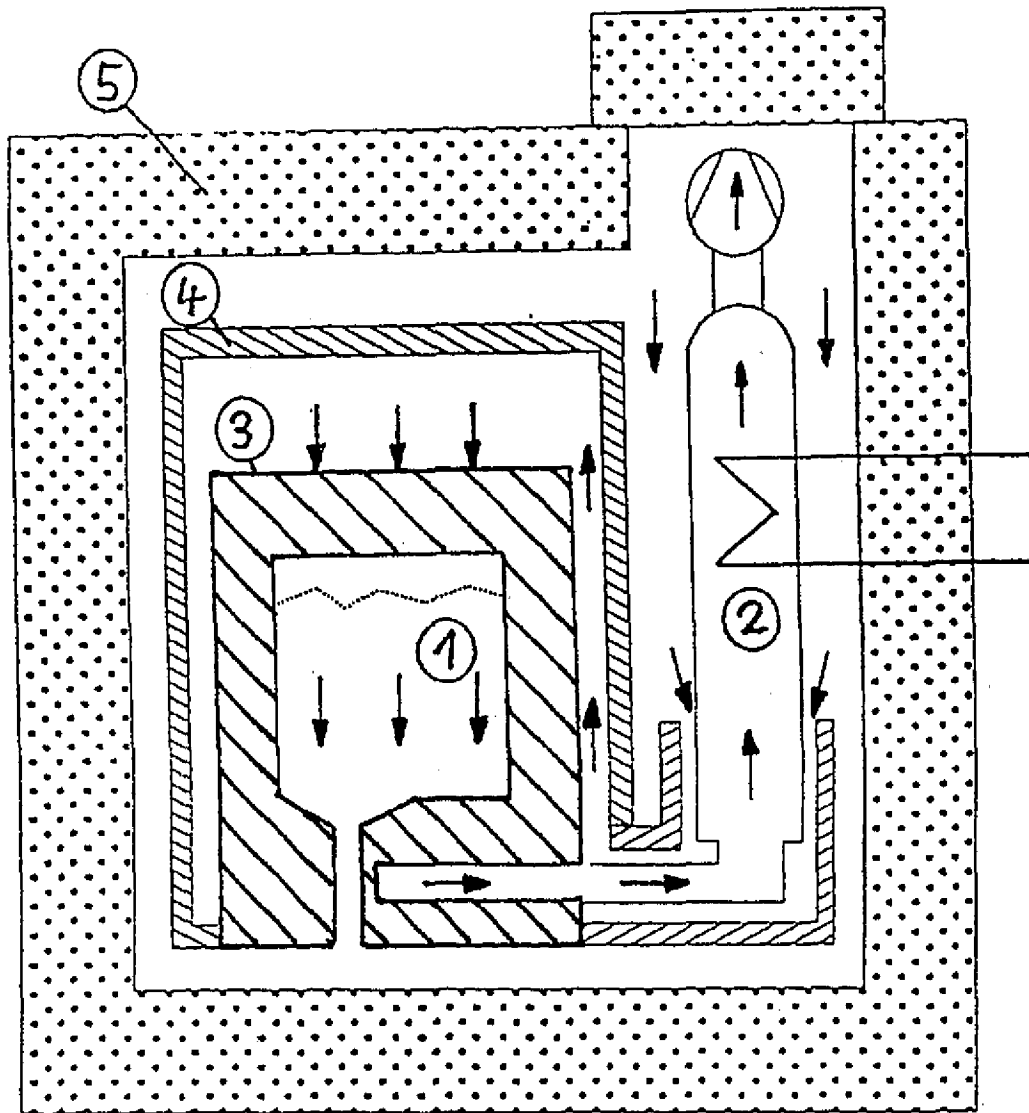
2.4 Thermohydraulische Abläufe und Spaltproduktaufbau: Grundlage für den Spaltprodukttransport

Den Primärkreislauf eines Hochtemperaturreaktors, und nur dieser ist für diese Spaltproduktuntersuchungen relevant, kann man sich vereinfacht als eine Wärmequelle und eine Wärmesenke, die mittels eines Gaskreislaufes verbunden sind, vorstellen. Hierbei ist das Reaktorcore die Wärmequelle. Die Wärmesenke kann je nach Nutzungszweck der Anlage verschieden sein. Es kann sich um einen Dampferzeuger, einen Wärmetauscher oder auch um eine Heliumturbine handeln.

Die Abb. 4 auf Seite 16 zeigt den einfachen Aufbau am Beispiel eines Hochtemperaturreaktors mit Spannbetonbehälter. Die Brennelemente im Core sind vollständig von graphitischen Einbauten umgeben, da nur diese der Temperatur- und der Strahlungsbelastung durch Neutronen standhalten. Erst außerhalb der Graphiteinbauten sind die Stahleinbauten angeordnet, die den Übergang zur Wärmesenke (hier Dampferzeuger) bilden. Das ganze Primärsystem ist in einem Spannbetonbehälter mit innenliegendem Liner angeordnet, der das unter Druck stehende Kühlgas einschließt und gegen Einwirkungen von außen schützt.

Im Bild zeigen die Pfeile den Strömungsverlauf des Kühlgases beim Normalbetrieb an. Das Kühlgas tritt durch den Deckenreflektor von oben in das Core (1) ein, es heizt sich beim Umströmen der Brennelemente auf, verläßt das Core durch den Bodenreflektor und gelangt von dort in den Dampferzeuger (2). Oberhalb des Dampferzeugers ist das Gebläse angeordnet, welches das Gas an der Außenseite des Cores (um diese Corebereiche zu kühlen) wieder zum Deckenreflektor transportiert.

¹⁵ Berger-Rossa, Ebenda. , S. 29 f.



- 1: Kugelschüttung der Brennelemente
- 2: Wärmesenke des Reaktors
- 3: Graphiteinbauten
- 4: Metalleinbauten
- 5: Spannbetonbehälter

Abb. 4. Prinzipskizze eines Hochtemperaturreaktors

Im Core entstehen als unerwünschtes, aber unvermeidbares Nebenprodukt zur Wärmeenergie die Spaltprodukte. Im Normalbetrieb bleiben die Spaltprodukte, wie die langjährigen Betriebserfahrungen mit dem AVR gezeigt haben, fast vollständig in den Coated Particles eingeschlossen. Nur ein geringer Anteil wird aufgrund herstellungsbedingter

Urankontamination des Brennelement-Graphits¹⁶ ($U_{\text{frei}}/U_{\text{gesamt}} < 10^{-6}$) außerhalb der Coated Particles gebildet. Hierzu kommt noch ein Freisetzunganteil aus Coated Particles, die während des Normalbetriebes defekt werden. Dies ist zwar in den bisherigen Experimenten nicht aufgetreten, darf aber aufgrund der riesigen Anzahl der Coated Particles im Core¹⁷ nicht ausgeschlossen werden. Diese beiden Anteile sind verantwortlich für die Spaltprodukte, die während des Normalbetriebes aus den Brennelementen freigesetzt werden. In den Rechnungen dieser Arbeit wird daher konservativ ein Anteil des "Freien Urans" von etwa 10^{-5} des Gesamtinventars gewählt.

Alle übrigen Spaltprodukte müssen die verschiedenen Schichten der Coated Particles überwinden, bevor sie in den Kreislauf gelangen können. Dies ist aber wegen der hervorragenden Rückhalteeigenschaften dieser Schichten erst ab Temperaturen von über 1600°C zu erwarten. Die aufwendigen Experimente, die dies belegen, werden in dieser Arbeit ausführlich geschildert, da sie zur Validierung des Programms verwendet werden.

Die wenigen Spaltprodukte, die im Normalbetrieb freigesetzt werden, gelangen in das Helium, welches zur Steigerung seiner Wärmeübertragungsfähigkeit unter einem Druck von 50-60 bar steht. Sie werden vom Gasstrom aufgenommen und von ihm durch den Primärkreislauf transportiert. Im Primärkreislauf können sie sich sowohl an den Graphiten als auch an den metallischen Komponenten ablagern. Hierbei gilt allgemein, daß die Anlagerung um so wahrscheinlicher ist, je kälter es an der betreffenden Stelle ist.

Die Kreislaukontamination ist bei Hochtemperaturreaktoren, wie die Betriebserfahrungen zeigen, so niedrig, daß sie bei Anlagen mit getrenntem Primär- und Sekundärkreislauf keine allzugroßen Probleme bereitet. Da aber schon lange überlegt wurde, einen gasgekühlten Reaktor direkt mit einer Gasturbine zu betreiben, sind viele Überlegungen zur Einkreisanlage mit Heliumturbine lange diskutiert und erforscht worden. Diese Ideen sind letztlich an der Frage der Kontamination der Heliumturbine gescheitert, denn schon eine geringe Kontamination der Turbine könnte die unvermeidlichen regelmäßigen Wartungen unmöglich machen. Im Hinblick auf eine Einkreisanlage mit Heliumturbine ist die Fragestellung der Spaltproduktfreisetzung im Normalbetrieb sehr aktuell. Deshalb wurde zeitgleich mit der vorliegenden Arbeit eine Untersuchung von Mattke¹⁸ zur Freisetzung aus einem Modul-Hochtemperaturreaktor bei Normalbetrieb im Hinblick auf den Einbau einer Gasturbine durchgeführt.

Auch bei der Störfallbetrachtung wird der gesamte Primärkreislauf von SPTRAN simuliert. Denn die Spaltprodukte müssen, bevor sie durch ein Leck den Primärkreislauf

¹⁶ Ragoß, Die unteren Grenzen der Spaltproduktfreisetzung beim HTR-MODUL, 1990.

¹⁷ über 10 000 Coated Particles pro Brennelement, 360 000 Brennelemente im Modul-Reaktor und 1 150 000 im HTR 500.

¹⁸ Mattke, Berechnung der Spaltproduktverteilung in Core und Primärkreislauf eines Hochtemperaturreaktors im Normalbetrieb.

verlassen, viele Primärkreislaufkomponenten passieren, können sich dabei ablagern und reduzieren so die Freisetzung. Da sich das Programm SPTRAN noch in der Verifikations- und Programmänderungsphase befindet, ist es sinnvoll, als erste Anwendungen solche Störfälle zu behandeln, bei denen sich die größte zu erwartende Spaltproduktfreisetzung einstellt. Denn nur so kann getestet werden, ob das Programm in der Lage ist, große Spaltproduktfreisetzungen und damit große Konzentrationsgradienten korrekt zu verarbeiten. Daher werden Störfälle an großen Hochtemperaturreaktoren, wie dem HTR 500, mit unterstelltem völligen Ausfall der Nachzerfallswärmeabfuhr untersucht. Bei diesen Störfallszenarien ergibt sich der höchste Anstieg der Coretemperaturen und damit auch die größte Spaltproduktfreisetzung aus den Brennelementen. Der Temperaturanstieg bewirkt über den negativen Temperaturkoeffizienten die Abschaltung der nuklearen Kettenreaktion. Diese passive Sicherheitseigenschaft über naturgesetzliche Rückkopplungen¹⁹ ist gesichert. Deshalb wird bei allen Störfalluntersuchungen in dieser Arbeit immer vereinfachend der Reaktor von Störfallbeginn als nuklear abgeschaltet angesehen.

Der völlige Ausfall der Nachzerfallswärmeabfuhr beinhaltet auch, daß die Gebläse stehen. Ein Loop soll geöffnet sein, so daß sich eine Strömung einstellen kann, die die freiwerdenden Spaltprodukte aus dem Core transportieren kann. Aus diesem Störfallszenario sind jetzt Pfade mit unterschiedlichen Druckentlastungen (siehe Studie zum Sicherheitsverhalten des HTR 500)²⁰ möglich. Bei diesen Untersuchungen wird die verzögerte Druckentlastung gewählt (in der Studie mit Fall 2 bezeichnet). Sie geht in die Störfallrechnungen als Druckentlastung von 55 auf 25 bar in den ersten 12 Stunden nach Störfallbeginn und dann von 25 auf 1 bar in den nächsten 23 Stunden ein. Im Kapitel, welches die Störfallrechnung behandelt, wird diese Wahl begründet.

Für alle Störfälle mit Ausfall der Nachzerfallswärmeabfuhr gilt, daß die im Core freiwerdende Nachwärme das Core stark aufheizt. Die erzwungene Strömung kommt mit dem Ausfall der Gebläse zum Erliegen. Aufgrund der Temperaturverteilung stellt sich im Core und im Loop eine Strömung durch Naturkonvektion ein. Die Richtung der sich ausbildenden Strömung ist genau entgegengesetzt zu der, die in Abb. 4 auf Seite 16 durch die Pfeile dargestellt ist. Da das Core die heißeste Stelle im Reaktor ist, ergibt sich an dieser Stelle eine Aufwärtsströmung, die das Strömungsverhalten im gesamten Primärkreislauf bestimmt.

Mit zunehmender Temperatur im Core werden die Spaltprodukte freigesetzt. Das Gas nimmt sie von den Brennelementen auf und transportiert sie durch den Reaktor. Sie können sich wieder an Graphit- oder Metallkomponenten ablagern oder gelangen durch

¹⁹ Schulten, Zur technischen Gestaltung von passiv sicheren Hochtemperaturreaktoren, 1990, S. 7 ff.

²⁰ Vgl. Rehm, II. Corethermodynamik in: Sicherheitstechnische Untersuchung zum Störfallverhalten des HTR-500, 1984, S. 58 ff.

das Leck aus dem Primärkreis. Die SPTRAN-Rechnung soll ermitteln, wie sich die Spaltprodukte beim Störfall verhalten, wieviele aus den Brennelementen freigesetzt werden und wohin sie gelangen.

Die kurze Schilderung der thermohydraulischen Zustände im Reaktor und besonders das Verständnis der Wärmeübertragung und des Wärmetransports sind eine wichtige Voraussetzung zum Verständnis des Spaltprodukttransports, da dieser in vielen Punkten analog zum Wärmetransport simuliert wird.

Für ein Programm wie SPTRAN ist es unerheblich, ob mit ihm der Spaltprodukttransport eines Störfalls oder des Normalbetriebs behandelt wird. Es ist lediglich entscheidend, daß die richtigen thermohydraulischen Daten und die Anfangskonzentrationen der Spaltprodukte vorliegen. Beim Normalbetrieb verwendet SPTRAN immer wieder die thermohydraulischen Daten eines Gleichgewichtszustandes. Beim Störfall liest es zur Bestimmung der thermohydraulischen Transienten nacheinander die Daten der Störfallzeitpunkte ein, die vorher berechnet worden sind.

2.5 Funktion des Programmes SPTRAN

An dieser Stelle soll in kurzer Form ein Überblick gegeben werden, wie SPTRAN arbeitet. Ein tieferer Einblick wird erst bei den Versuchsnachrechnungen gegeben werden, wo die Möglichkeit zum direkten Vergleich von Theorie, programmtechnischer Umsetzung und Ergebnissen besteht.

2.5.1 Modellierung des Brennelementes

Die primäre Spaltproduktquelle sind die Coated Particles in den Brennelementen. Die Abb. 5 auf Seite 20 zeigt das Brennelement, die Verteilung der Coated Particles darin und den Aufbau derselben. Die Spaltprodukte befinden sich fast ausschließlich im UO_2 -Brennstoffkern. Solange sie dort bleiben, gehen von ihnen keine Probleme aus. Ein Durchdringen verschiedener Schichten kennzeichnet ihren Weg bis zur Freisetzung an der Oberfläche der Brennelemente. Das Programm SPTRAN verwendet folgenden Ansatz zur Beschreibung des Systems Coated Particle - Brennelement:

Für jede Coremasche wird ein repräsentatives Brennelement berechnet, für welches die lokale zeitliche Temperatur- und Strömungssituation von den thermohydraulischen Rechnungen geliefert wird. Auch die Menge der zum Störfallbeginn in den Brennelementen vorhandenen Spaltprodukte liefert der nukleare Teil der vorbereitenden Rechnungen.

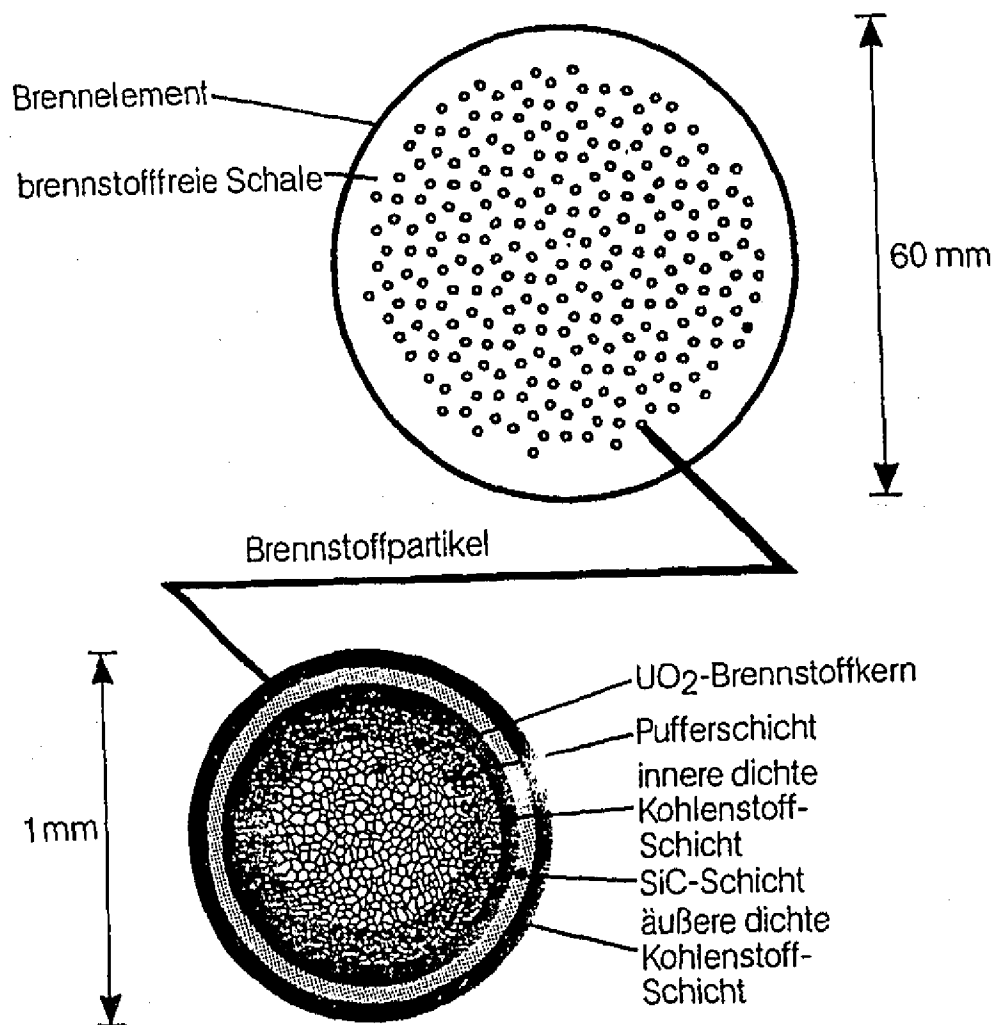


Abb. 5. Darstellung von Brennelement und Coated Particle

Das Coated Particle wird entsprechend seinem realen Aufbau aus verschiedenen Materialien in Zonen unterteilt. Der Stofftransport wird in allen diesen Zonen (Schichten) durch einfache Fick'sche Diffusion beschrieben. Als Randbedingung wird beim Übergang von einer Schicht zur nächsten Stetigkeit in der Spaltproduktkonzentration verlangt. Jeder dieser Schalen wird ein temperaturabhängiger Diffusionskoeffizient für die Spaltprodukt diffusion zugeordnet. Für jede Schicht besteht die Möglichkeit der unabhängigen Mascheneinteilung. Als numerisches Verfahren wird das Verfahren der finiten Differenzen verwendet. Die äußere Randbedingung für die Coated Particles ist durch Gleichsetzen der Konzentration an der Oberfläche des Coated Particle und der im Brennelement gegeben.

Diese Modellierung liefert als Ergebnis einen Quellterm zwischen Coated Particle und Brennelement. Aus der Anzahl der Coated Particles im Brennelement kann der Gesamtquellterm in das Brennelement berechnet werden. Dieser Quellterm wird im folgenden als primäre Freisetzung bezeichnet. Es wird noch zwischen Intakten und Defekten Coated Particles unterschieden. Die Defekten Coated Particles werden wie die Intakten modelliert, nur die äußeren Schichten werden als nicht vorhanden angesehen, da der Defekt den Verlust der Rückhaltewirkung dieser Schichten bewirkt. Durch das Vorprogramm CPBRUCH ist der Anteil der Defekten Coated Particles bekannt. So kann aus den Quelltermen, aus einem Intakten und einem Defekten Coated Particle, der Gesamtanzahl der Coated Particles und dem Verhältnis von Defekten zu Intakten Coated Particles der Gesamtquellterm ins Brennelement berechnet werden.

Das Brennelement wird genau wie ein Coated Particle modelliert, es besteht jedoch nicht aus 5 verschiedenen Zonen, sondern nur aus 2 Zonen. Die innere Zone entspricht dem Bereich, der die Coated Particles enthält, und die äußere Zone der brennstofffreien Graphitschicht. Der Quellterm aus den Coated Particles wird auf die Feinzonen der brennelementhaltigen Schicht entsprechend ihrem Volumenanteil aufgeteilt. Aus den Quelltermen im Innern und dem Quellterm von der Brennelementoberfläche ins Gas ergibt sich dann im Brennelement das Konzentrationsprofil der Spaltprodukte. An der Oberfläche des Brennelements gilt als Randbedingung Stoffübergang und Sorption. Die Sorptionsisothermen liefern die Konzentration im Gas direkt an der Wand. Zwischen dieser wandnahen Konzentration und der eigentlichen Gaskonzentration ergibt sich die Beziehung nach dem Stoffübergangsgesetz in Gasen. Über diese beiden Beziehungen ist das Brennelement an die Gasphase angekoppelt.

Die Coated Particles sind die primäre Spaltproduktquelle. Doch müssen die Spaltprodukte, die sie verlassen haben, noch die Brennelementmatrix überwinden. Hierdurch wird ihre Freisetzung verzögert oder sie werden sogar in der Matrix gespeichert. Es gilt: je höher die Temperatur wird, desto größer werden die Diffusionskoeffizienten (bessere Diffusion) und die Werte der Sorptionsisothermen (schlechtere Sorption), und die Spaltprodukte können die Coated Particles und das Brennelement einfacher verlassen. Zusätzlich nimmt auch der Bruchanteil der Coated Particles mit steigender Temperatur zu und somit versagen immer mehr der wirksamen Rückhaltebarrieren völlig. Eine genauere Beschreibung der Coated Particle - Brennelement Modellierung ist im Kapitel über die Nachrechnung der Freisetzungsexperimente von Schenk zu finden.

2.5.2 Modellierung der Gasphase

Wenn die Spaltprodukte an der Oberfläche des Brennelementes angelangt sind, werden sie an das Gas unter der Bedingung abgegeben, daß im Gas die Spaltproduktkonzentration noch nicht so hoch ist, daß durch die Sorptionbeziehung ein Transport in das Gas verhindert oder sogar Spaltprodukte in das Brennelement aufgenommen werden. Mit dem Gas haben die Spaltprodukte auch das Transportmedium erreicht, das für die Mobilität der Spaltprodukte im Reaktor verantwortlich ist, denn die

Diffusionsgeschwindigkeit im Graphit ist so langsam, daß sie für eine Ortsveränderung der Spaltprodukte im Reaktor keine Rolle spielen. Für die metallischen Reaktorkomponenten wird sogar durch die Annahme, daß sie nur an der Oberfläche Spaltprodukte binden können, bewirkt, daß bei ihnen überhaupt kein Transport möglich ist. Damit ist die Gasphase der einzige Transportmechanismus, während alle anderen Vorgänge nur der Speicherung der Spaltprodukte dienen. Die einzige Ausnahme ist der Spaltprodukttransport durch das Brennelement, aber hier werden auch nur kürzeste Wege überwunden, wobei keine bei diesen Transport konkurrierende Gasphase existiert.

Im Gasraum können die Spaltprodukte auf zwei Arten transportiert werden. Einmal werden sie mit der Eigenbewegung des Gases mitgeführt. Die Strömungsgeschwindigkeiten ergeben sich aus den thermohydraulischen Vorrechnungen. Zusätzlich ist diesem Transport noch die binäre Gasdiffusion der Spaltprodukte relativ zum Gas überlagert. Zur Bestimmung dieser Diffusion wird der binäre Gasdiffusionskoeffizient der Spaltprodukte im Helium bestimmt.

Die Gasdiffusion ist verglichen mit der Diffusion im Graphit recht schnell, aber die bestimmende Größe ist der Transport durch die Eigenbewegung des Gases. Bei fortgeschrittenen Störfallabläufen kann auch die Spaltprodukt diffusion im Gas eine entscheidende Rolle spielen, wie das folgende Beispiel zeigt.

Eines der Ergebnisse, die Berger-Rossa bei der erstmaligen Anwendung des Programmes SPTRAN erhielt, war eine Ablagerung von Spaltprodukten im Bodenreflektor des Reaktors. Da mit SPTRAN erstmals die Möglichkeit gegeben war, den kompletten Primärkreislauf zu betrachten, war die naheliegende Erklärung für die Speicherung der Spaltprodukte im Bodenreflektor, daß sie mit der Strömung durch den Primärkreislauf dorthin gelangt waren. Eine genaue Untersuchung der Ergebnisse von Berger-Rossa durch Resing²¹ hat zu dem überraschenden Ergebnis geführt, daß keine Spaltprodukte bei den Berger-Rossa Rechnungen (evtl. auch nur wegen eines Ansatzfehlers bei der Penetration in die Metalle) durch den Primärkreislauf hindurch gelangen konnten, da sich der Dampferzeuger als 100%ige Spaltproduktfalle erwies. Die Spaltprodukte gelangten, wie eine genaue Betrachtung der Effekte ergab, durch Diffusion gegen die Gasströmung in den Bodenreflektor. Nach 40 Tagen war die Gasströmung so stark zurückgegangen, daß der Diffusionsanteil am Transport bei extremen Konzentrationsgradienten größer wurde als der Strömungsanteil. Die Gasströmung im Bodenreflektor ging zu diesem Zeitpunkt auf unter 5 cm/sec zurück.

Dies Beispiel soll dem Leser verdeutlichen, wie sensitiv die Spaltproduktrechnungen auf das thermohydraulische Strömungsverhalten reagieren. Die Grundlage für eine korrekte Bestimmung des Spaltprodukttransportverhaltens bei Störfällen liegt zum wesentlichen Teil in der korrekten Beschreibung des thermohydraulischen Störfallgeschehens.

²¹ Resing, Transport des Cäsiums in Hochtemperaturreaktoren bei extremen Störfällen, 1988, S. 20 ff.

Der ganze Gasraum des Primärkreislaufs wird auch durch eine zweidimensionale Diffusionsrechnung (in den Loopteilen nur eindimensional) abgebildet. Auch hier wird zur Lösung die Methode der finiten Differenzen verwendet.

Die Brennelemente sind die Quelle aus der die Spaltprodukte in die Gasphase gelangen. Diese Freisetzung ins Gas erfolgt vor allem in den heißesten Corebereichen. Die Gasphase transportiert die Spaltprodukte dann, im Reaktor. Dabei passieren die Spaltprodukte alle anderen Komponenten des Primärkreislaufes. Jede dieser Komponenten kann Spaltprodukte aufnehmen und auch wieder abgeben. Das Programm SPTRAN verfügt über verschiedenartige Bausteine, um diese Komponenten entsprechend den Erfordernissen der Spaltproduktsorption zu modellieren.

2.5.3 Modellierung der anderen Komponenten

Bei der ganzen Modellierung der Komponenten des Primärkreislaufes, außer den Brennelementen und den Coated Particles, die in den thermohydraulischen Rechnungen nicht in der realen Geometrie behandelt werden, wird zur Bestimmung der Geometriegrößen auf die Daten zurückgegriffen, die von den Vorläuferprogrammen verwendet oder errechnet wurden. Das Programm SPTRAN übernimmt die gesamte Geometrie des Corebereiches vom Programm KONVEK und die Geometrie des Netzwerkes vom Programm KISMET. SPTRAN ist damit auch im Hinblick auf die Geometriedaten des Reaktors auf die enge Kopplung mit den Programmen angewiesen, die für die Vorrechnungen eingesetzt werden.

Bei der Modellierung der Komponenten für SPTRAN ist besonders zwischen graphitischen und metallischen Einbauten zu unterscheiden. Die Sorption von Spaltprodukten an Graphiten und Metallen wird mit völlig verschiedenen Ansätzen, die auch unterschiedliche Modellierungen verlangen, beschrieben.

2.5.3.1 Graphitische Einbauten

Die Graphite sind über die Randbedingung der Sorption zwischen Graphit und Gasgrenzschicht und dem Stoffübergang von Gasgrenzschicht zum Gas an die Gasphase angekoppelt. Diese Ankopplung wurde schon beim Brennelement angesprochen und wird bei der Nachrechnung des Deckenreflektorexperimentes noch ausführlich behandelt.

Die Speicherung der Spaltprodukte erfolgt im Graphit durch die Aufnahme mittels Sorptionsbeziehung und dann über das Hineindiffundieren in den Graphit. Da die Transportprozesse im Graphit sehr langsam sind, wird nur der Transport senkrecht zur Oberfläche betrachtet. Ein Transport im Graphit parallel zur Oberfläche ist völlig zu vernachlässigen, wenn als konkurrierender Transportmechanismus eine Gasphase vorhanden ist. Daher muß die Diskretisierung des Graphites an der Oberfläche sehr fein sein, um den Gradienten, der sich bei der Speicherung einstellt, richtig wiedergeben zu

können. Die Graphitmenge und die Eindringtiefe sind verantwortlich für die Gesamtspeicherfähigkeit.

Im Core sind drei verschiedene Graphiteinbauten zur Beschreibung aller Komponenten aus Graphit vorgesehen. Es handelt sich hier um die Vertikale Stromröhre (VSR), die Vertikale Graphitmasche (VGM) und die Horizontale Graphitmasche (HGM).

Die Vertikale Stromröhre steht zur Modellierung von allen Graphitkomponenten zur Verfügung, die Durchlässe für den Kühlgasstrom aufweisen. Aus der Größe und Form der Durchlässe wird der hydraulische Durchmesser für diese bestimmt. Aus der Länge und dem hydraulischen Durchmesser der Gasdurchlässe sowie dem Anteil an festem Graphit, der jedem Durchlaß im Mittel zugeordnet werden kann, wird ein fiktives Graphitrohr ermittelt. Der innere Durchmesser des fiktiven Graphitrohres simuliert einen der Durchlässe und das umgebende Graphit die Graphitwand dieses Durchlasses, welche die Spaltprodukte aufnehmen wird. Das fiktive Graphitrohr wird den Temperatur-, Strömungs- und Spaltproduktkonzentrationsbedingungen, die am Ort der simulierten Komponente auftreten, ausgesetzt. Als Ergebnis ergibt sich ein Quellterm zwischen dem fiktiven Rohr und der Gasphase. Dieser Quellterm muß mit der realen Anzahl der Durchlässe der betrachteten Masche der Komponente multipliziert werden. Als Ergebnis hieraus resultiert der Gesamtquellterm. In dieser Arbeit werden der Boden- und der Deckenreflektor als Vertikale Stromröhren beschrieben. Im Kapitel der Nachrechnungen der Deckenreflektorexperimente wird auf die Modellierung der Vertikalen Stromröhren noch ausführlich eingegangen.

Bei den Vertikalen und Horizontalen Graphitmaschen handelt es sich um massive Graphiteinbauten, bei denen an einer Seite das Kühlgas vorbeiströmt. Die Graphiteinbauten, die die kugelförmigen Brennelemente aufnehmen, (siehe Abb. 4 auf Seite 16 mit der Nummer 3), werden von außen mit dem zum Core zurückkehrenden Gas gekühlt (Normalbetrieb). Die Außenseite wird als Vertikale Graphitmasche beschrieben. Diese Graphitmaschen können durch die umströmte Oberfläche Spaltprodukte aufnehmen und sie dann über Diffusion in der Tiefe des Graphits binden. Als Randbedingung wird wieder der Sorptions-Stoffübergang verwendet. Die Beschreibung der Geometrie ist einfach, da die geometrische Oberfläche direkt für die Berechnung des Quellterms benutzt werden kann.

Für alle diese Graphite können in der Eingabe von SPTRAN alle Materialdaten zum Spaltprodukttransport für jede Komponente eingegeben werden. Dies sind vor allem die Werte für die Diffusions- und Sorptionskoeffizienten. Auch kann die Einteilung in Feinzonen unabhängig voneinander bestimmt werden.

Da sich die verwendete Theorie und auch alle Materialdaten nicht zwischen den Vertikalen/Horizontalen Graphitmaschen und den Vertikalen Stromröhren unterscheiden, kann man die Ergebnisse aus der experimentellen Überprüfung dieser Modellierungen an Hand der Deckenreflektorexperimente wohl auf alle drei Modellierungen anwenden.

2.5.3.2 Metallische Einbauten

Die Validierung der Spaltproduktfreisetzungs- und -transportmodelle ist bisher nur für die Freisetzung aus den Brennelementen an Hand der Schenk-Experimente und für den Deckenreflektor an Hand der Deckenreflektorexperimente durchgeführt worden. Die Nachrechnung von Versuchsergebnissen hat bisher immer zu Korrekturen an den Daten oder an der Modellierung geführt. Für diese Arbeit hat sich als Konsequenz ergeben, bei der abschließenden SPTRAN-Rechnung nur bis zu den Reflektoren zu rechnen, da gerade die durch Versuchsnachrechnungen erhöhte Ergebnissicherheit nicht wieder an anderer Stelle gefährdet werden sollte.

Deshalb können in dieser Arbeit keine Ablagerungen an Metallen berücksichtigt werden. Da aber im Programm SPTRAN schon alle wesentlichen Voraussetzungen für die Behandlung von metallischen Einbauten vorhanden sind und auch nur unter Einbeziehung der Ablagerungen an Metallen eine Behandlung der Strömung durch den Loop realisierbar ist, wird hier kurz das Ablagerungsmodell für Metalle, welches im Programm implementiert ist, beschrieben. Die Überprüfung dieses Teils des Programms SPTRAN sollte ganz oben auf der Liste der künftigen Arbeiten stehen.

An dieser Stelle wird eine kurze Beschreibung der Ablagerungsmechanismen gegeben. Für diese Zusammenstellung wurden die Beschreibungen von Resing²², Berger-Rossa²³ und Moormann²⁴ verwendet.

Der Transport der Spaltprodukte aus der Gasphase wird wie beim Graphit durch die Formulierung des Stoffübergangs beschrieben.

$$\dot{Q}_{Gas,Wand - Gas,00} = O \cdot h [C_{Gas,Wand} - C_{Gas,00}] \quad (2.5 - 1)$$

$\dot{Q}_{Gas,Wand - Gas,00}$	: Quellterm gasseitig
O	: geometrische Metalloberfläche
h	: Stoffübergangskoeffizient im Gas
$C_{Gas,Wand}$	: Gaskonzentration in der Grenzschicht
$C_{Gas,00}$	: Gaskonzentration in der Masche

²² Resing, Transport des Cäsiums in Hochtemperaturreaktoren bei extremen Störfällen, 1988, S. 16 ff.

²³ Berger-Rossa, Rückhaltung und Umverteilung von Spaltprodukten im Core und im Primärkreislauf von Hochtemperaturreaktoren bei hypothetischen Störfallereignissen, 1988, S. 20 ff.

²⁴ Vgl.: Moormann, Methodik umfassender probabilistischer Sicherheitsanalysen für zukünftige HTR Anlagen, Band 3: Spaltprodukte, 1987, S. 51 ff.

In dieser Grenzschicht wird das Anlagerungsverhalten durch einen kinetischen Ansatz aus der Gastheorie beschrieben. Der Strom zur Metalloberfläche setzt sich aus einem Adsorptionsanteil (reversible Bindung) und einem Penetrationsstrom (irreversible Bindung) zusammen. Der Penetrationsstrom ist ein kleiner konstanter Bruchteil des Adsorptionsstroms. Zusammen ergeben sie den Strom an das Metall, der sich aus der Auftreffgeschwindigkeit und der Haftwahrscheinlichkeit ergibt.

$$\dot{Q}_{Ad} = O \cdot \alpha \cdot v_{\perp} \cdot C_{Gas, Wand} \cdot \beta \quad (2.5 - 2)$$

$$\dot{Q}_{Pe} = O \cdot \alpha \cdot v_{\perp} \cdot C_{Gas, Wand} \cdot (1 - \beta) \quad (2.5 - 3)$$

$\dot{Q}_{Ad}$	: Adsorptionsstrom
$\dot{Q}_{Pe}$	: Penetrationsstrom
O	: geometrische Metalloberfläche
α	: Haftkoeffizienten
$v_{\perp}$	: Auftreffgeschwindigkeit
$C_{Gas, Wand}$	: Gaskonzentration in der Grenzschicht
$\frac{\beta}{1 - \beta}$	: Quotient zwischen Adsorption und Penetration

Für den Anteil der Spaltprodukte, die reversibel gebunden werden, besteht über die Desorption die Möglichkeit, wieder in die Gasphase zu gelangen. Sowohl die reversible als auch die irreversible Speicherung der Spaltprodukte wird als Oberflächenbelegung betrachtet. Da sie aber getrennt bilanziert werden müssen, spricht man bei der reversiblen von den auf den äußeren Oberflächen gebundenen und bei der irreversiblen von den auf den inneren Oberflächen gebundenen Spaltprodukten. Die Desorption ist von der Belegung der äußeren Oberflächen abhängig.

$$\dot{Q}_{Des} = \delta \cdot \Omega_a \quad (2.5 - 4)$$

$\dot{Q}_{Des}$	: Desorptionsstrom
δ	: Desorptionskonstante
Ω_a	: Anzahl der Spaltproduktatome auf der äußeren Stahloberfläche

Die Formulierungen der Gleichungen für die Stoffströme können in Bilanzgleichungen umgeschrieben werden. So gilt für die Grenzfläche "Gasphase-Graphit" die Gleichung (2.5-5), für die äußere Stahloberfläche (2.5-6) und für die innere Stahloberfläche (2.5-7).

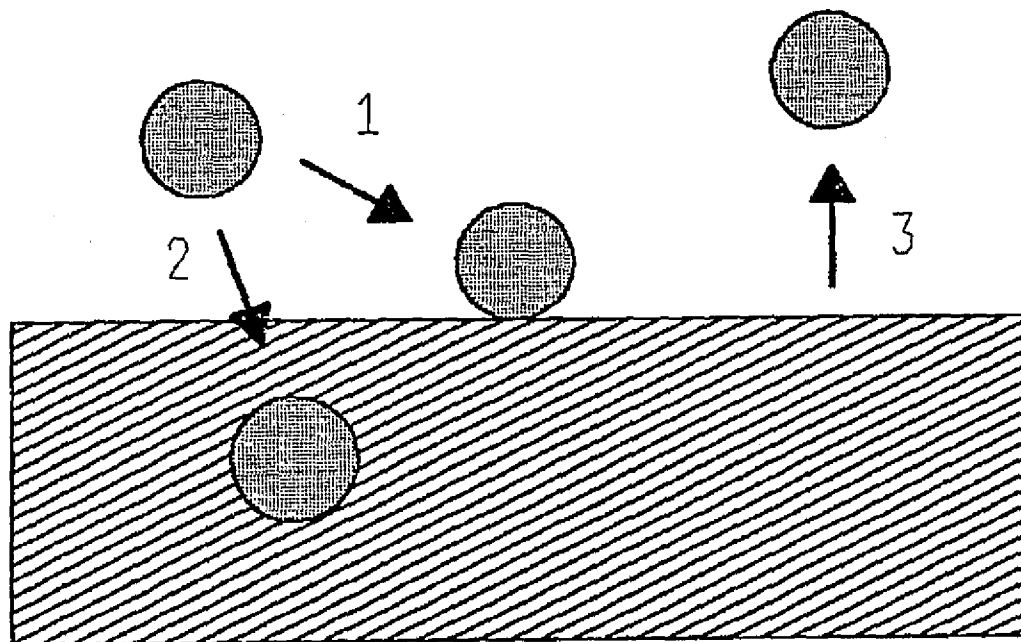
$$\dot{Q}_{Gas, Wand - Gas, oo} = -\dot{Q}_{Ad} - \dot{Q}_{Pen} + \dot{Q}_{Des} \quad (2.5 - 5)$$

$$\frac{d\Omega_a}{dt} = \dot{Q}_{Ad} - \dot{Q}_{Des} - \lambda\Omega_a \quad (2.5 - 6)$$

$$\frac{d\Omega_i}{dt} = \dot{Q}_{Pen} - \lambda\Omega_i \quad (2.5-7)$$

- $\dot{Q}_{Gas,Wend \rightarrow Gas,00}$: Quellterm gaseitig
 Ω_a : Anzahl der Spaltproduktatome auf der äußeren Stahloberfläche
 Ω_i : Anzahl der Spaltproduktatome auf der inneren Stahloberfläche
 λ : Zerfallskonstante

Anschaulich stellt die Abb. 6 die Abläufe bei der Speicherung der Spaltprodukte am Metall dar. Zuerst werden von dem Adsorptions- und Penetrationsstrom die inneren und äußeren Oberflächen beladen. Mit der Zeit erhöht sich aufgrund der ansteigenden Beladung der äußeren Oberfläche der Desorptionsstrom. Bei einer gewissen Beladung stellt sich ein Gleichgewicht zwischen De- und Adsorption ein. Die Beladung der äußeren Oberfläche verändert sich nur noch langsam, während die Beladung der inneren Oberfläche stetig ansteigt, da von den dauernden De- und Adsorptionsströmen immer ein Teil als Penetration in die innere Oberfläche irreversibel gebunden wird.



- 1: Adsorption
 2: Penetration
 3: Desorption

Abb. 6. Sorptionsmechanismen an Metall

Bei den Untersuchungen zur Ablagerung an Metallen wird zu untersuchen sein, ob dieses Modell schon ausreichend ist. Es ist noch offen, ob allein durch die Wahl der Koeffizienten sinnvolle Versuchsnachrechnungen durchgeführt werden können oder ob nicht auch eine komplexere Formulierung gewählt werden muß. Denn es ist noch unklar, ob in diesem einfachen Modell die Oxidbildung an den Oberflächen und Sättigungseffekte behandelt werden können.

Als Begründung, an diesen Fragen weiterzuarbeiten, sei noch einmal darauf hingewiesen, daß die Spaltprodukte frühestens nach einigen Tagen beim Aufheizstörfall das Core verlassen. Sie werden freigesetzt, wenn sich die größten Störfallauswirkungen auf das Strömungsverhalten schon reduziert haben, und treffen dann auf sehr große und zusätzlich relativ kalte Metalloberflächen. Daher sollten diese Ablagerungsmöglichkeiten nicht unberücksichtigt bleiben. Selbst eine sehr konservative Abschätzung könnte schon deutliche Effekte zeigen.

2.6 Einbindung von SPTRAN in Vor- und Nachbereitungsprogramme

In den vorausgehenden Kapiteln wurde die Bedeutung der thermohydraulischen Rechnungen als Vorläuferrechnungen für den Spaltprodukttransport aufgezeigt. Da es sich hierbei um einen komplexen Ablauf von verschiedenen Programmen handelt, soll in kurzer Form für einen künftigen Benutzer des Programms SPTRAN und auch zum besseren Verständnis der Gesamtzusammenhänge ein Überblick über die benötigten Programme und den Datenfluß zwischen ihnen gegeben werden.

Es hat sich gezeigt, daß die erforderlichen Datenmengen bei Störfallrechnungen so groß sind, daß sie nur im Batch-Rechenbetrieb mit Zugriff auf große Datenspeicher zu bewältigen sind. Die Anwendungen erfolgen daher auf den IBM Batch-Rechnern der KFA. Dagegen ermöglichen die geringeren Datenmengen für Normalbetriebsrechnungen, diese interaktiv durchzuführen. Hierbei wird dann auf der normalen Großrechneranlage im interaktiven Betrieb gerechnet.

Die Abb. 7 auf Seite 29 zeigt alle Programme und langfristig anzulegenden Datensätze, die benötigt werden, wenn das Programm für Störfallrechnungen auf einem Batchrechner betrieben wird. In der Abbildung werden die Programme durch eckige Kästchen kenntlich gemacht und in ihnen der Name des jeweiligen Programms und zum Teil zusätzlich ein Funktionshinweis angegeben. Die Datensätze werden durch Kästchen mit abgerundeten Enden dargestellt. Sie enthalten die Nummer und die Bezeichnung des Datensatzes. Durch die gerichteten Verbindungslinien wird die Struktur und die Richtung des Datenflusses angegeben.

Weiter ist die Abbildung in vier Bereiche eingeteilt, die die wesentlichen nacheinander durchzuführenden Simulationsschritte hervorheben.

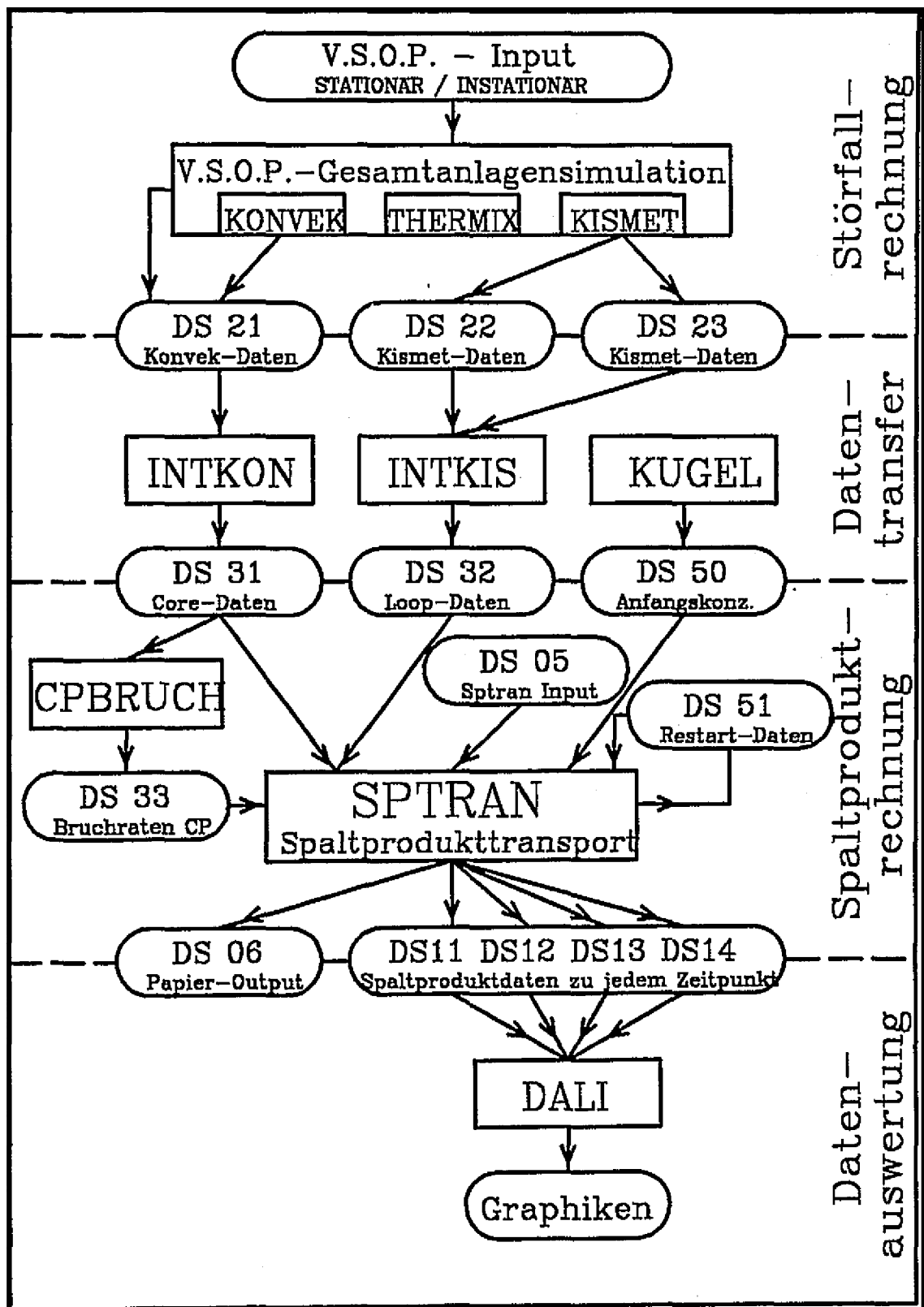


Abb. 7. Benötigte Programme und Datenfluß bei einer Spaltproduktrechnung

2.6.1 Thermohydraulische Rechnung

Als erstes ist der Bereich Störfallrechnung abgebildet. Dies steht stellvertretend für die thermohydraulische Anlagenrechnung, denn es ist auch möglich, für den Normalbetrieb eines Hochtemperaturreaktors eine Spaltprodukttransportrechnung durchzuführen, wobei dann von der thermohydraulischen Rechnung dem Programm SPTRAN mitgeteilt wird, ob es sich um eine Normalbetriebs- oder Störfallrechnung handelt. In dieser Arbeit wird der Schwerpunkt der Untersuchungen auf Störfallrechnungen gelegt und auch nur auf diese eingegangen. Eine detaillierte Beschreibung für eine Normalbetriebsuntersuchung findet sich in der Arbeit von Mattke²⁵.

Für die thermohydraulischen Rechnungen wird das Programm V.S.O.P.²⁶ verwendet. Bei diesem Programm handelt es sich um ein Anlagensimulationsprogramm, welches die gesamte Reaktorphysik (sowohl nukleare Rechnungen als auch Thermohydraulik mit allen Rückkopplungen) und auch den Brennstoffzyklus umfaßt. Das Programm befindet sich seit langen Jahren im ständigen Einsatz im ehemaligen Institut für Reaktorentwicklung, jetzt Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik des Forschungszentrums Jülich.

Der Einsatz des Programms V.S.O.P. ist eine Weiterentwicklung gegenüber dem Stand von Berger-Rossa, der bei seinen Anwendungen eine "Stand-alone-Version" des Programmsystems Thermix-Konvek-Kismet verwendete. Der Wechsel zu V.S.O.P. erfolgte, weil die Aussagesicherheit der thermohydraulischen Rechnung erhöht werden sollte. Das Beibehalten der von Berger-Rossa verwendeten Störfallrechenprogramme hätte bedeutet, daß sie vom Autor selbst ohne große Kontrollmöglichkeiten Dritter hätten benutzt werden müssen. Für V.S.O.P. liegen dagegen für die meisten Hochtemperaturreaktorkonzepte ausgetestete Modellierungen vor, die auch weiter aktualisiert werden. Hierdurch besteht bei V.S.O.P.-Rechnungen die Möglichkeit, Anleitung, Hilfe und Überprüfung der Ergebnisse zu erhalten. Auch war der Umstellungsaufwand gering, da V.S.O.P. auch die Programme Thermix, Konvek und Kismet in leicht modifizierter Form enthält.

Es ist ein weiterer Vorteil, daß aus dem Brennstoffzyklusteil des V.S.O.P. die Verteilung und auch die absolute Menge der Spaltprodukte im Core entnommen werden kann. Somit kann die eigenständige Berechnung des Spaltproduktinventars entfallen. Dies ist von Vorteil, da bisher mit SPTRAN nur für die OTTO-Beschickung das Spaltproduktinventar berechnet werden konnte und dies auch nicht so detailliert, wie jetzt mit V.S.O.P..

²⁵ Mattke, Berechnung der Spaltproduktverteilung in Core und Primärkreislauf eines Hochtemperaturreaktors im Normalbetrieb.

²⁶ Teuchert, V.S.O.P..

Zur Berechnung eines Störfallablaufes muß zuerst eine stationäre Rechnung durchgeführt werden, um den Ausgangszustand für die instationäre Störfallrechnung zu gewinnen. Hierzu sind zwei getrennte V.S.O.P. Rechnungen durchzuführen, wobei das Ergebnis der stationären Rechnung als Grundlage für die Störfallrechnung als Datensatz festgehalten wird.

Alle für SPTRAN relevanten thermohydraulischen Daten und Spaltproduktinventare werden während der instationären Rechnung zu allen Berechnungszeitpunkten auf die Datensätze (DS 21 - DS 23) weggeschrieben.

Im Kapitel 5 werden ausführlich die Ergebnisse der Störfallrechnung mit V.S.O.P., die als Anwendungsbeispiel für die Spaltprodukttransportrechnung durchgeführt wurde, unter dem Gesichtspunkt der Relevanz für die SPTRAN Rechnung dargestellt.

2.6.2 Datentransfer zwischen Anlagen- und Spaltproduktrechnung

Dieser Block wird durch die Programme INTKON und INTKIS bestimmt. Bei diesen handelt es sich um Interfaceprogramme, die die von der thermohydraulischen Rechnung erzeugten Datensätze auf die von SPTRAN gewünschte Form bringen. Hierbei werden die Daten einmal in Info- und Daten-Blöcke unterteilt, wobei in den Info-Blöcken alle Daten enthalten sind, die sich nicht über den Untersuchungszeitraum verändern (wie z.B. Geometriedaten). In den Daten-Blöcken sind die Transienten-Daten (wie z.B. Temperaturen) enthalten. Daher befindet sich in den Daten-Blöcken vor jeder Dateneinheit, die zu einem Rechenzeitpunkt gehört, auch die Angabe dieses Zeitpunktes, um so überhaupt erst die Transienten bestimmen zu können.

Über die Änderung der Struktur hinaus wird von den Programmen auch der Inhalt der Daten verändert. Es werden alle Größen so geändert, daß sie den Einheiten des MKS-Systems entsprechen.²⁷

Gleichzeitig erfolgt auch eine Änderung der Identifizierung für das Maschengitter. Im KONVEK-Gitter werden viele verschiedene Kompositionskennziffern verwendet, so z.B. verschiedene Ziffern für unterschiedliche Reflektorenbereiche. Dies wird für das SPTRAN-Gitter auf wenige Kompositionskennziffern reduziert. Hier gibt die Nummer 1 den Corebereich, die Nummer 2 die Reflektoren, die Nummer 3 die durchströmten Hohlräume und die Nummer 0 alle nicht durchströmten Festkörperbereiche an. Auch der Nullpunkt des Reaktorkoordinatensystems wird verschoben. Er liegt bei SPTRAN unten auf der Mittelachse des Corebereiches. So kann mit einem rein positiven Achsensystem gerechnet werden. Bei diesen Umrechnungen sollte bei neuen Anwendungen geprüft werden, ob sie richtige Ergebnisse produzieren oder ob Änderungen in den Interface-Programmen vorzunehmen sind, da diese Programme auf bestimmte Konventionen in den thermohydraulischen Rechnungen eingestellt sind. Als Hilfe bei diesen

²⁷ In SPTRAN werden ganz konsequent alle Größen in m, kg, sec, K und ihren Kombinationen ohne irgendwelche vorgeschalteten Zehnerpotenzen angegeben.

Überprüfungen wurden die Programme READKON und READKIS entwickelt, die die von INTKON und INTKIS erzeugten Datensätze lesen und ausdrucken können.

In der Abb. 7 auf Seite 29 wird im Bereich Datentransfer auch das Programm KUGEL aufgenommen. Es läßt sich darüber streiten, ob es nicht schon zum Bereich der Spaltproduktrechnung gehört, aber die gewählte Einordnung erfolgte, da das Programm ohne Vorrechnungen nur einen Normierungsdatsatz erzeugt.

Bei KUGEL handelt es sich um ein Programm, welches aus SPTRAN zur Nachrechnung der Ausheizexperimente von Schenk separiert wurde. Eine ausführliche Beschreibung erfolgt im Kapitel 3 "Nachrechnung der Ausheizexperimente". Bei der Gesamtrechnung wird KUGEL eingesetzt, um die Verteilung der Spaltprodukte am Anfang der Störfallrechnung im Brennelement zu bestimmen, denn das Programm V.S.O.P. liefert nur das Gesamtinventar der einzelnen Coremaschen, aber keine Information der lokalen Verteilung in Brennelement und Coated Particles. V.S.O.P. kennt strenggenommen gar keine Brennelemente, sondern nur über die Maschen "verschmierte" Inventare. Erst die Kombination von relativer Verteilung (s.o.: Normierungsdatsatz DS 50) in Brennelement und Coated Particle aus dem Programm KUGEL und absoluten Inventarangaben für die Maschen aus dem Programm V.S.O.P. erlaubt die richtige Berechnung der Anfangsverteilung der Spaltprodukte.

Alle Ergebnisse dieser Programme stehen in den Datensätzen DS 31, DS 32 und DS 50. Alle drei sind direkte Eingabedatsätze für SPTRAN.

2.6.3 Spaltprodukttransportrechnung

Eine Vorrechnung muß noch erfolgen, bevor SPTRAN gestartet werden kann. Das Programm CPBRUCH berechnet den Anteil defekt gewordener Coated Particles in den verschiedenen Maschen des Cores, die Brennelemente enthalten. In alten Rechnungen wurde dies im Programm SPTRAN durch eine rein temperaturabhängige Versagensfunktion berechnet. Da Untersuchungen gezeigt haben, daß eine temperaturabhängige Versagensfunktion ungeeignet ist, das tatsächlich in Experimenten beobachtete Partikelversagen richtig zu beschreiben, wird heute eine temperatur- und zeitabhängige Versagensfunktion verwendet. Da für das Versagen der Coated Particles nur die nukleare Vorgeschichte und dann die thermische Belastung während des Störfalls relevant ist, wird vor der SPTRAN Rechnung vom Programm CPBRUCH die Versagensrate für alle Zeitschritte der V.S.O.P. Rechnung bestimmt und auf den Datensatz DS 33 weggeschrieben.

Das Programm CPBRUCH ist ein wiederholtes Durchführen von PANAMA Rechnungen für alle Brennelement-Maschen. PANAMA²⁸ ist ein Programm, welches speziell für die Berechnung des TRISO-Partikelbruchs entwickelt wurde und den heutigen Wis-

²⁸ Verfondern, PANAMA, 1985.

sensstand beinhaltet. Mit den Nachrechnungen von Experimenten²⁹ wurde das Programm getestet.

Das Programm CPBRUCH erzeugt den Datensatz DS 33. Als letzter Eingabedatensatz kommt noch der eigentliche SPTRAN-Input als Datensatz DS 05 hinzu. Dieser ist leicht erreichbar im Rechner gespeichert und kann schnell geändert werden, um dann vor einer SPTRAN-Rechnung auf den Datensatz DS 05 kopiert zu werden.

Wenn alle gerade beschriebenen Datensätze, von denen nur gelesen, aber auf die keine Daten geschrieben werden, vollständig sind, kann die SPTRAN-Rechnung beginnen.

Da SPTRAN "Restart-fähig" ist, wird zum Ende jeder SPTRAN-Rechnung ein Restart-Datensatz DS 51 weggeschrieben. Beim Programm SPTRAN kann die Rechnung durch den für die Zeitsteuerung vorgegebenen Endzeitpunkt beendet werden oder auch durch eine Annäherung der Rechnung an das Ende der noch verfügbaren Rechenzeit. Das Programm kontrolliert regelmäßig, wieviel Zeit noch zur Verfügung steht, und beendet rechtzeitig vor einem erzwungenen Abbruch durch das Betriebssystem die Rechnung mit einem eigenen Programmende und dem Wegschreiben der Restart-Daten. Somit muß beim ersten Rechenlauf immer das Restart-Flag = 0 sein, so daß das Programm den Anfangszustand der Spaltproduktverteilung aus den Ergebnissen der KUGEL-Rechnung und den Inventardaten von V.S.O.P. ermittelt. Es beginnt die Rechnung dann mit dem Störfallzeitpunkt 0 Sekunden. Bei nachfolgenden Programmstarts kann die Rechnung erneut vom Anfangszustand beginnen oder die Rechnung durch Setzen des Restart-Flags = 1 vom vorher erreichten Zeitpunkt an fortgesetzt werden.

Auf die eigentliche SPTRAN-Rechnung soll hier nicht eingegangen werden. Dies ist Aufgabe der anderen Teile dieser Arbeit. SPTRAN liefert als Ergebnis der Rechnungen den Datensatz DS 06, der einen direkt ausdrückbaren Output enthält, und die Datensätze DS 11 bis DS 14. Der Datensatz DS 06 (Papieroutput) stellt einen kurzen Überblick über die integralen Ergebnisse der Rechnung dar und kann zur ersten Beurteilung und Auswertung herangezogen werden. Dagegen sind in den anderen Output-Datensätzen praktisch alle relevanten Größen abgespeichert, die während der SPTRAN-Rechnung erzeugt wurden. Ihre große Menge machte es erforderlich, sie unformatiert wegzuschreiben, so daß sie nur mit Spezialprogrammen gelesen werden können.

2.6.4 Datenauswertung

Das Lesen der weggeschriebenen Daten und die Aufarbeitung zu aussagekräftigen Abbildungen erledigt das Programm DALI. Hierbei handelt es sich um ein sehr flexibles an SPTRAN angepaßtes Graphikprogramm, welches zwei- und dreidimensionale Zu-

²⁹ Verfondern, Code Development for Fission Product Behavior in HTR Fuel for Safety Assessments, 1989.

ständsbilder oder Zeitgraphiken erzeugen kann. Der Vorteil dieser Art der Datenbehandlung besteht darin, daß man erst nach der zeitaufwendigen Spaltproduktrechnung entscheiden muß, welche Daten man für die Auswertung verwenden möchte.

Als Information sei noch erwähnt, daß die thermohydraulischen Daten von SPTRAN weggeschrieben werden und so auch von DALI dargestellt werden können.

3.0 Nachrechnung der Ausheizexperimente

3.1 Überblick

Obwohl schon lange Zeit auf dem Gebiet der Rückhaltung und dem Transport von Spaltprodukten in Hochtemperaturreaktoren geforscht wird, bestehen noch Unsicherheiten in den verwendeten Theorien. Zusätzliche Unsicherheiten ergeben sich aus der experimentellen Bestimmung der Parameter, die für quantitative Aussagen mittels dieser Theorien verwendet werden. Außerdem sind bei der Erstellung von Rechenprogrammen der Größe und Komplexität von SPTRAN Fehler nicht von vornherein auszuschließen.

Es besteht damit der Zustand, daß von den verschiedensten Seiten Unsicherheitsfaktoren in die Untersuchungen gelangen, die sich kaum quantifizieren lassen. Ein großer Teil dieser Arbeit war es, sich gerade mit den verschiedenen Quellen dieser Faktoren zu beschäftigen und sicherzustellen, daß immer der bestmögliche verfügbare Ansatz oder Datensatz benutzt wird. Dies allein kann nicht ausreichend sein, um die Aussagesicherheit des Simulationssystems zu gewährleisten. Um Vertrauen in die Richtigkeit der gewonnenen Rechenergebnisse zu bekommen, ist die Nachrechnung von Versuchen unerlässlich.

Der beste Weg zur Erhöhung der Aussagesicherheit durch Versuchsnachrechnungen wären die Nachrechnungen von verschiedenen Versuchen oder realen Abläufen, die den später zu untersuchenden Problemstellungen so genau wie möglich entsprechen. Doch dies ist im Fall der Untersuchungen des Spaltprodukttransports bei hypothetischen Störfällen in großen Hochtemperaturreaktoren nicht möglich, da die in Deutschland existierende Anlage, der THTR 300, abgeschaltet ist und Nachfolgeanlagen nur noch mit geringem Interesse verfolgt werden. Aber auch im Falle der Realisierung dieser Hochtemperaturreaktoren würden solche hypothetischen Störfallszenarien nicht freiwillig eingeleitet und würden sich hoffentlich auch nie von selbst ereignen. Aus diesen Gründen wäre der Aufbau eines großen integralen Spaltprodukttransportexperiments wünschenswert, bei dem an einem Primärkreismodell alle relevanten Vorgänge untersucht werden können. Ein solches Experiment wird aber wahrscheinlich auch in Zukunft nicht durchgeführt, da es sehr hohe Kosten erfordern würde und der Forschungsschwerpunkt bei Hochtemperaturreaktoren heute bei Reaktorkonzepten liegt, bei denen die Spaltprodukte unter allen möglichen Anlagenzuständen in den Brennelementen verbleiben sollen. Dies wird durch andere Leistungsdichten und Coregeometrien angestrebt, die immer sicherstellen, daß die maximalen Störfalltemperaturen auf 1500-1600°C begrenzt sind. Daher müssen für die Validierung der Spaltprodukttransportrechenprogramme die integralen Experimente verwendet werden, die zum Verhalten von einzelnen Komponenten durchgeführt worden sind.

Für die Nachrechnung werden die Ausheizexperimente von Schenk und die Deckenreflektorexperimente von Barthels herangezogen. Bei den Ausheizexperimenten wird die Rückhaltefähigkeit für die verschiedenen Spaltprodukte an einzelnen Brennelementen

beim Aufheizen auf Normalbetriebs- oder Störfalltemperaturen untersucht. Zum Einsatz kommen hierbei Brennelemente, die entweder normal im Reaktor im Leistungseinsatz waren oder in Testreaktoren einen bestimmten Abbrand erhielten.

Das Deckenreflektorexperiment setzt einen Graphitkörper, der den Deckenreflektor simuliert, unter Störfallbedingungen einem mit Cäsium beladenen Gasstrom aus, um experimentelle Erkenntnisse zu gewinnen, wieviel Cäsium bei einem Störfall im Deckenreflektor zurückgehalten werden kann.

Bei der Nachrechnung wird für beide Experimente der Weg gewählt, die Nachrechnungen nicht mit dem ganzen Programm SPTRAN durchzuführen, sondern aus SPTRAN jeweils die relevanten Teile zu separieren und zu einem eigenen kleineren und leicht handhabbaren Programm zusammenzufügen.

In diesem Abschnitt werden der Versuchsaufbau und die Versuchsdurchführung der Ausheizexperimente von Schenk, sowie eine Beschreibung des separierten Programms KUGEL und dann der Vergleich zwischen Experiment und Versuchsnachrechnung behandelt. Im darauffolgenden Kapitel wird nach demselben Konzept die Nachrechnung der Deckenreflektorexperimente beschrieben.

3.2 Die Ausheizexperimente von Schenk

Bei allen Kernreaktoren ist die wesentliche Rückhaltebarriere für die Spaltprodukte das Brennelement. Die Brennelemente haben bei allen ausgereiften Reaktorkonzepten einen Stand erreicht, der einen problemlosen Normalbetrieb sicherstellt. Bei Störfallbetrachtungen ergeben sich wesentliche Unterschiede zwischen den Reaktorkonzepten. So gilt für alle durch Flüssigkeiten gekühlten Reaktoren, daß schon geringe Temperaturerhöhungen durch unzureichende Kühlung zum Versagen der Brennelementhüllen führen. Dagegen behalten die Brennelemente des Hochtemperaturreaktors, die im Normalbetrieb 800 bis 900°C heiß werden, ihre vollständige Rückhaltefähigkeit bis zu Temperaturen von 1500°C. Erst bei Temperaturen von 1600°C beginnt eine merkliche Freisetzung.

Von Schenk³⁰ werden seit 1977 Experimente durchgeführt, die das Rückhaltevermögen der kugelförmigen Brennelemente der Hochtemperaturreaktoren untersuchen. Es wurden sowohl die älteren BISO-Brennelemente (enthalten noch keine Siliziumkarbid-Schicht) untersucht als auch die modernen TRISO-Brennelemente. Die Abb. 5 auf Seite 20 zeigt den Aufbau eines solchen modernen TRISO-Brennelementes. Da diese Untersuchung als Anwendungsbeispiel das Spaltprodukt Cäsium behandelt, werden auch von den Schenk-Experimenten die Ergebnisse zur Nachrechnung herangezogen, die das Freisetzungsverhalten des Cäsiums aus TRISO-Brennelementen darstellen.

³⁰ Schenk, Spaltproduktfreisetzungverlauf von Kugelbrennelementen bei Störfalltemperaturen, 1986.

Diese Experimente wurden in den Heißen Zellen der KFA Jülich mit dem Versuchsaufbau "Kühlfingerapparatur" durchgeführt. Ein Schnittbild des Ofens der Kühlfingerapparatur zeigt die Abb. 8 auf Seite 37.

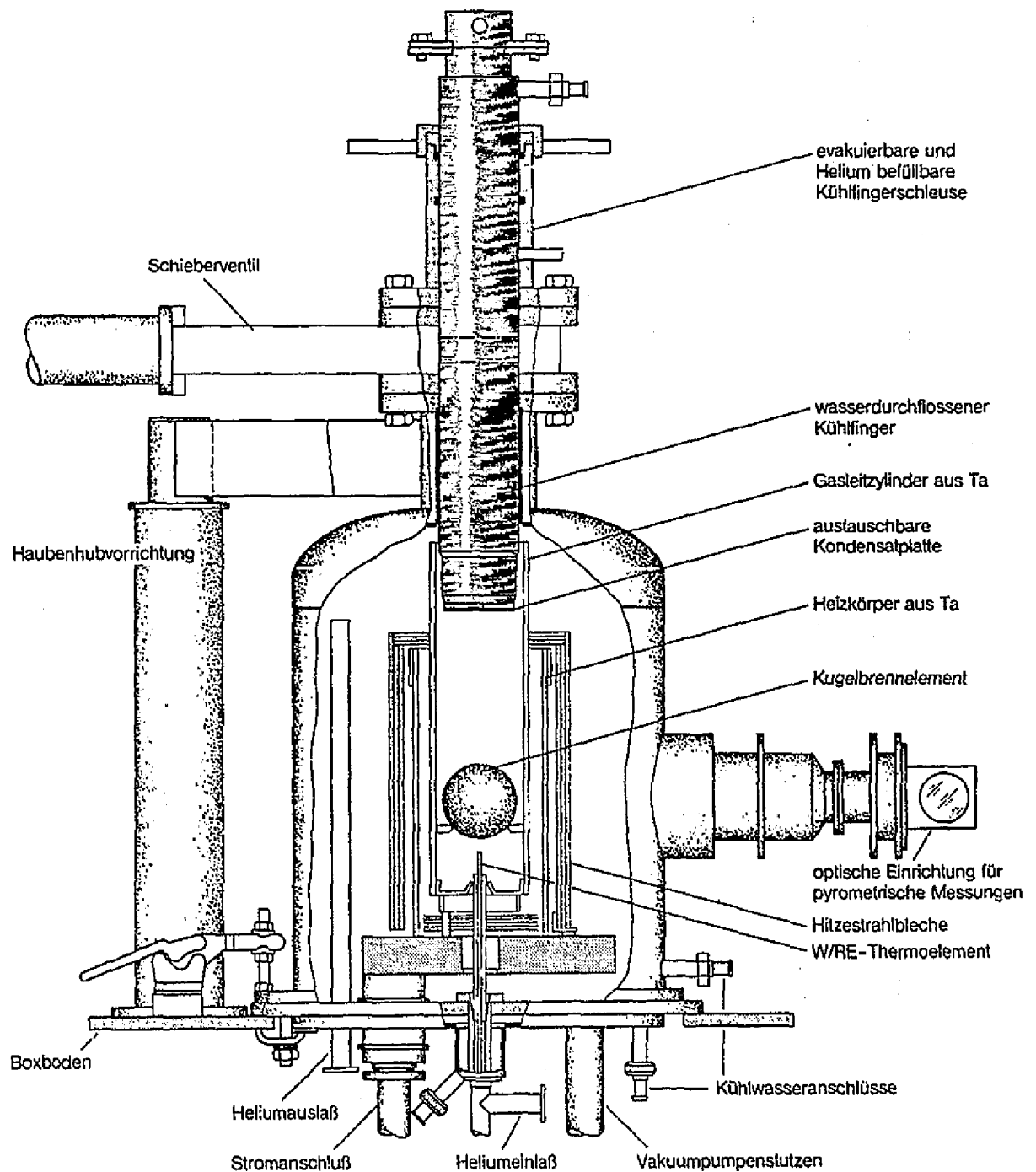


Abb. 8. Schnittbild des Ofens der Kühlfingerapparatur

Dieser Ofen ist die wesentliche Komponente der Kühlfingerapparatur. In der Mitte befindet sich das Brennelement, dessen Rückhaltefähigkeit für Spaltprodukte untersucht werden soll. Es kann von den umgebenden Heizungen auf Temperaturen bis zu 1800°C aufgeheizt werden. Bei der Versuchsdurchführung wird die Kugel von Helium (etwa 30 l/h) von unten nach oben umströmt. Das Gas nimmt die freigesetzten Spaltprodukte auf. Da es sich hierbei um gasförmige und feste Spaltprodukte handelt, müssen auch verschiedene Verfahren benutzt werden, um diese zu messen. Die festen Spaltprodukte lagern sich sehr leicht wieder an Oberflächen an, deshalb ist die Meßeinrichtung für sie direkt oberhalb des Brennelementes angebracht. Es handelt sich hierbei um den "Kühlfinger", der der ganzen Anlage seinen Namen gibt. Der Kühlfinger ist ein wassergekühlter Metallstab, an dessen Unterseite sich eine austauschbare Kondensatplatte befindet. Der Gasstrom wird durch den Gasleitzyylinder so geführt, daß er auf die Kondensatplatte treffen muß. An der Kondensatplatte werden aufgrund der Kühlung die festen Spaltprodukte besonders gut adsorbiert. Der Aufbau des Ofens erlaubt nun, während des Ausheizexperimentes den Kühlfinger aus dem Ofen zu ziehen und die Kondensatplatte zu wechseln. Dabei bleibt der Heliumkreislauf durch eine Schleuse geschlossen. Die herausgenommenen Kondensatplatten werden aus der Heißen Zelle ausgeschleust und dann die Spaltproduktbelegung mittels Gamma- und Betaspektrometrie gemessen.

Die folgende Abbildung zeigt den gesamten Heliumkreislauf inner- und außerhalb der Heißen Zelle.

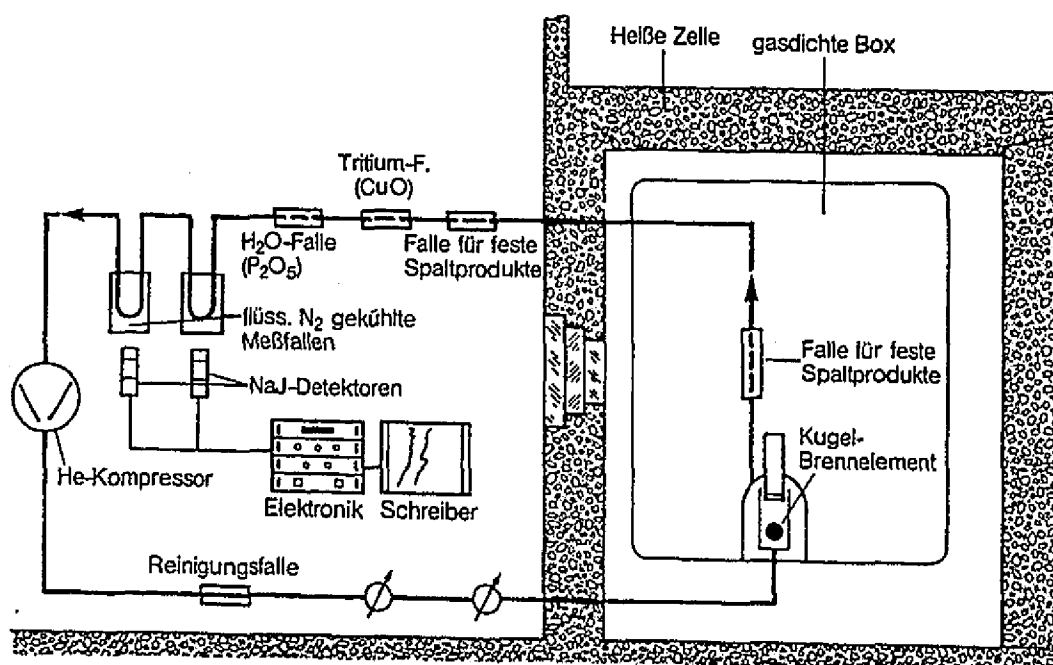


Abb. 9. Heliumkreislauf des Ausheizexperimentes

Innerhalb der Heißen Zelle ist der Ofen der Kühlfingerapparatur zu erkennen. Hinter dem Ofen befinden sich mehrere Fallen für die festen Spaltprodukte. Sie sollen verhindern, daß der Anteil der festen Spaltprodukte, der am Kühlfinger nicht abgeschieden werden konnte, zu den Meßfallen für gasförmige Spaltprodukte gelangt. Dort werden die Kr_{85} und die Xe_{133} Aktivität durch NaJ-Detektoren gemessen. Danach wird das Helium durch den Kompressor und durch eine Reinigungsfalle wieder in den Ofen der Kühlfingerapparatur geführt.

Für die Nachrechnungen wurden die Ergebnisse verwendet, die von Schenk³¹ zuletzt veröffentlicht wurden. Von Schenk sind Meßreihen für die Störfälle der Reaktoren des HTR-500-Typs mit Spitzentemperaturen von 2500°C durchgeführt worden und Meßreihen mit Spitzentemperaturen von 1600 - 1800°C für HTR-MODUL spezifische Störfälle. Die Ergebnisse für das Spaltprodukt Cäsium ergaben, daß bei den Versuchen mit Coretemperaturen bis zu 2500°C eine völlige Freisetzung des Cäsiums erfolgte. Dagegen ergeben die Versuchsreihen im Temperaturbereich von 1600 - 1800°C, daß im unteren Bereich dieses Temperaturbandes nur geringe Freisetzungen erfolgen, daß aber beim Ausheizen auf 1800°C schon nach 100 Stunden hohe Freisetzungen gemessen werden. Die Abb. 10 auf Seite 41 zeigt die Freisetzungsverläufe für diesen Temperaturbereich. Da mit den Versuchsnachrechnungen eine Validierung des Rechenprogrammes erfolgen soll, sind insbesondere diese Versuchsergebnisse für eine Nachrechnung geeignet, denn hier kann untersucht werden, ob das Programm den Übergang von geringer zu hoher Cäsium-Freisetzung richtig simuliert.

Um die Versuche mit richtigen Annahmen nachrechnen zu können, müssen für diese Versuchsreihen noch die Ergebnisse der Gasfreisetzungen betrachtet werden. Denn besonders aus der Freisetzung der Edelgase sind Rückschlüsse auf das Versagen der Coated Particle-Schichten möglich. Für die Edelgase ist besonders die Integrität des Druckeinschlusses durch die hochdichten Pyrokohlenstoff-Schichten relevant, da sie durch die meisten anderen Schichten des Brennelements und der Coated Particles ohne allzugroße Verzögerung diffundieren würden. Die dichten Kohlenstoff-Schichten können sie dagegen in großen Mengen nur überwinden, wenn diese defekt sind.

Stellvertretend für die Edelgase kann man das Freisetzungsverhalten des Kr_{85} betrachten. Die Ergebnisse der Kr-Messungen in diesem Temperaturbereich ergeben, daß nur vereinzelt und meist bei stark abgebrannten Brennelementen überhaupt ein Partikelversagen unterhalb von 1800°C auftritt.³²

Aufgrund dieser Überlegungen wird für das in SPTRAN verwendete Modell die Annahme getroffen, daß die Cäsiumfreisetzung in diesem Temperaturbereich nicht durch

³¹ Schenk, Kugelbrennelemente mit TRISO-Partikeln bei Störfalltemperaturen, 1989.

³² Schenk, Spaltprodukttransport in modernen Kugelbrennelementen bei Kernaufheizstörfällen in HTR-MODUL und HTR 500, 1989.

Defekte Coated Particles (hierunter werden nur solche mit aufgerissenen Coating-Schichten verstanden) verursacht werden. Die Freisetzung des Cäsiums erfolgt nach diesen Modellannahmen durch Diffusion durch die SiC-Schicht, die bei diesen Temperaturen durch Korrosion und temperaturbedingte Verbesserung der Diffusion einen Teil ihrer Rückhaltefähigkeit verliert. Daher wurden diese Versuchsnachrechnungen ohne die Benutzung einer Bruchfunktion durchgeführt. Es wurde nur ein kleiner herstellungsbedingter Anteil von Defekten Coated Particles vorgegeben.

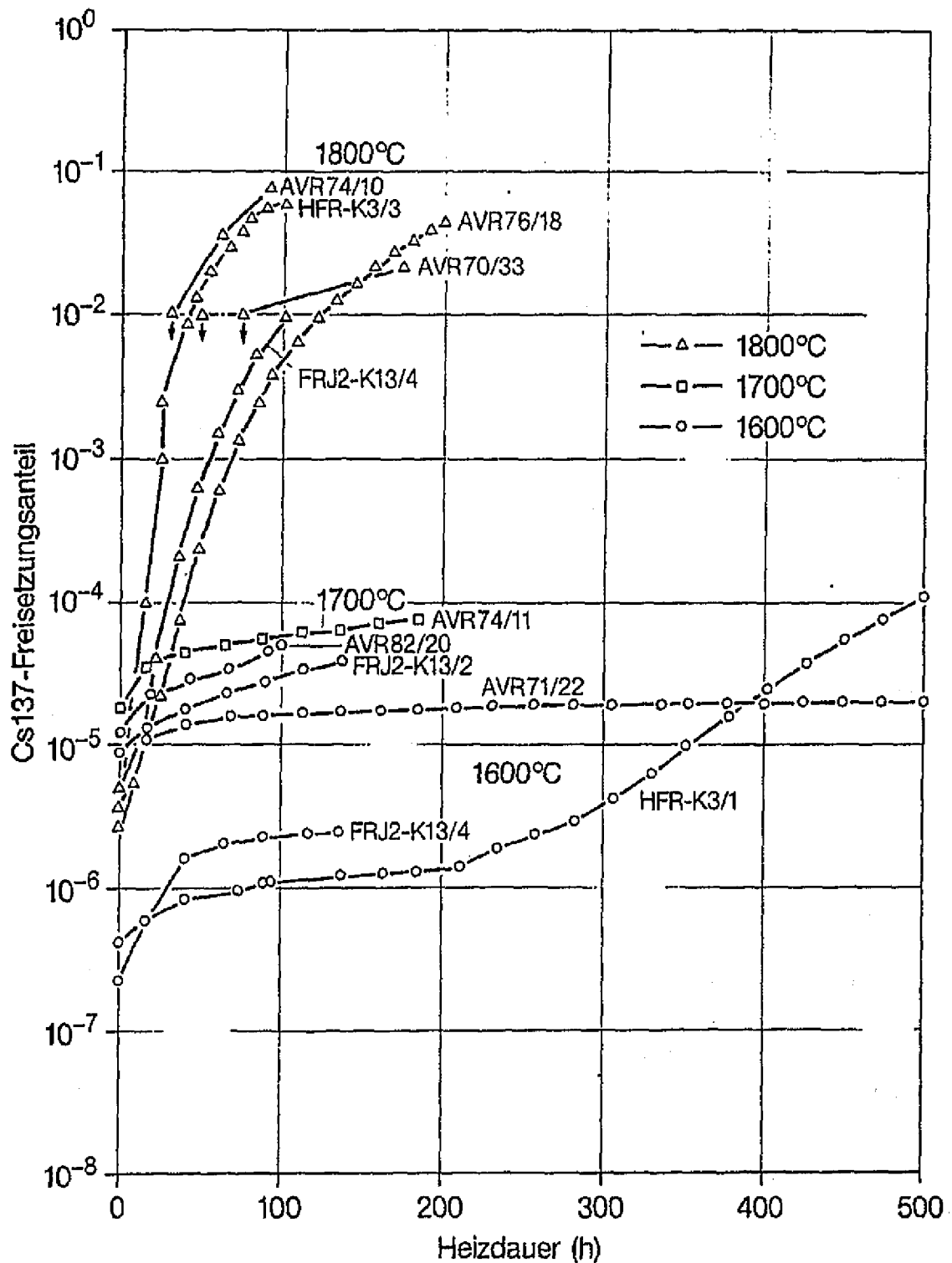


Abb. 10. Cs137 Freisetzungsverhalten der Brennelemente

Die Abb. 10 stellt einige Versuchsergebnisse in dem Temperaturbereich von 1600 - 1800°C zusammen. Jede Kurve steht für die Messung an einem Brennelement. Die Be-

zeichnung an jeder Kurve identifiziert die Einzelexperimente. Der Grund, daß die Ergebnisse in einem gewissen Rahmen streuen, liegt in der Tatsache, daß es sich um Brennelemente mit verschiedenen Lebensgeschichten handelt. Sie können aus verschiedenen Fertigungsserien stammen und sind entweder im AVR im Leistungsbetrieb eingesetzt worden oder in Testreaktoren auf einen bestimmten Abbrand gebracht worden. Da alle diese Größen Einfluß auf die Rückhaltung haben, ergibt sich hieraus die Streuung der Ergebnisse.

3.3 Das Programm KUGEL

Bevor mit den Versuchsnachrechnungen begonnen werden konnte, mußte entschieden werden, wie sie durchgeführt werden sollten. Die eine Möglichkeit war, das Programm SPTRAN in der Gesamtheit zu benutzen und so gut wie möglich an die Versuche anzupassen. Die andere war, aus dem Programm die notwendigen Unterprogramme zu separieren und diese dann in eine neue Umgebung einzubauen, die genau den Versuchsaufbau simuliert. Obwohl bei den Ausheizversuchen der erste Weg den geringeren Aufwand bedeutet hätte, wurde der zweite gewählt. Ausschlaggebend war die Überlegung, daß bei dem Aufbau einer neuen Programmeinheit ein besseres Durchdringen und Verstehen des Programmaufbaus erforderlich ist und damit die beste Kontrolle des Rechenablaufs gegeben ist. Große Vorteile bieten kleinere, eigenständige Programme auch deshalb, weil sie wie jetzt KUGEL interaktiv, statt im Batch-Modus, betrieben werden können und viel bessere Möglichkeiten für eine problemorientierte Ausgabe bieten.

Das Programm KUGEL kann den Spaltprodukttransport in einem Brennelement berechnen. Für diese Rechnung können beliebige Anfangszustände in der Konzentrationsverteilung vorgegeben werden. Als Randbedingung ist die Ankopplung über Stofftransport und Sorption an einen Gasstrom über die Oberfläche des Brennelementes gegeben. Hierbei kann die Strömungsgeschwindigkeit und die Gaskontamination vom Benutzer gewählt werden. Um die Versuchsbedingungen von Schenk ohne Einschränkungen nachfahren zu können, kann jede zeitliche Temperaturfunktion für das Brennelement vorgegeben werden.

3.3.1 Diffusionsbeschreibung

Der wichtigste Transportmechanismus im Programm Kugel ist die einphasige Fick'sche Diffusion. Wie schon in Kapitel 2 gezeigt, wird sie benutzt, um alle Vorgänge innerhalb des Brennelements und der Coated Particles zu beschreiben. Mit demselben Modell wird sowohl die Rückhaltefunktion der SiC-Schicht als auch der Transport der Spaltprodukte durch die Brennelementmatrix beschrieben.

In diesem Kapitel sollen die Grundgleichung und die für das Verständnis wichtigen Umformschritte der Fick'schen Diffusion kurz beschrieben werden.

Die Grundgleichung für die einphasige Fick'sche Diffusion mit Zerfallstermen und Quellen in Form einer partiellen Differentialgleichung, wie sie auch in der Arbeit von Berger-Rossa³³ verwendet wird, lautet:

$$\frac{\partial C(x,t)}{\partial t} = \frac{1}{x^n} \cdot \frac{\partial}{\partial x} \left(D_{eff}(T(x,t)) \cdot x^n \cdot \frac{\partial C(x,t)}{\partial x} \right) - \lambda \cdot C(x,t) + \dot{Q}'''(x,t) \quad (3.3 - 1)$$

$C(x,t)$	: zeitlich und örtlich abhängige Konzentration
$D_{eff}(x,t)$	: temperaturabhängiger Diffusionskoeffizient
$\dot{Q}'''(x,m)$	: zeitlich und örtlich abhängige Quelle
λ	: Zerfallskonstante für betrachtetes Nuklid
x	: Radius bei Kugel und Zylinder, Länge bei Stab
n	: Geometriekonstante für: Stab = 0, Zylinder = 1 : und Kugel = 2
t	: Zeit

Auf der linken Seite der Gleichung steht die zeitliche Änderung der Konzentration. Der erste Summand auf der rechten Seite beschreibt den Diffusionsansatz. Bei der Diffusion werden Konzentrationsunterschiede als die treibenden Kräfte für den Transport angesehen. Der Diffusionskoeffizient ist ein Maß für die Geschwindigkeit dieses Transportvorganges. Hinzu kommt als Verlustterm der Zerfall der Spaltprodukte nach den Zerfallsgesetzen und ein Quellterm. Dieser Quellterm wird in SPTRAN benutzt, um die Freisetzung aus den Coated Particles ins Brennelement, den Gewinn an Spaltprodukten durch den Zerfall von Vorläufern und auch die Ankopplung an die Gasphase zu beschreiben. Falls mit den Programmen auch der Aufbau der Spaltprodukte berechnet wird, geht die Spaltprodukterzeugung unter Berücksichtigung des Recoils auch in den Quellterm ein.

Die Gleichung kann unter der Annahme gelöst werden, daß sie auf diskrete Volumina angewandt wird. Bei der Methode der Finiten Differenzen, mit der hier die Lösung vorgenommen wird, wird in den diskreten Volumina konstante Konzentration angenommen. Über diese diskreten Volumina und über die Zeit wird die Gleichung integriert.

Zwischen den erzeugten Maschen werden die Austauschprozesse über die Diffusion wirksam. Beim Diffusionsmodell wird nur die Wechselwirkung zwischen benachbarten Maschen berücksichtigt. Es ergibt sich dann der Spaltproduktaustausch zwischen den Maschen durch die Konzentrationsunterschiede zwischen den Maschenkonzentrationen und die Diffusionsbeziehung. Ein solches System kann numerisch gelöst werden.

³³ Berger-Rossa, Rückhaltung und Umverteilung von Spaltprodukten im Core und im Primärkreislauf von Hochtemperaturreaktoren bei hypothetischen Störfallereignissen, 1988, S. 18.

Alle diese Rechenschritte sind in der Arbeit von Ley³⁴ ausführlich beschrieben. Daher wird hier nur das Endergebnis der Umformung angegeben. Die folgende Abb. 11 auf Seite 44 zeigt ein eindimensionales Beispiel.

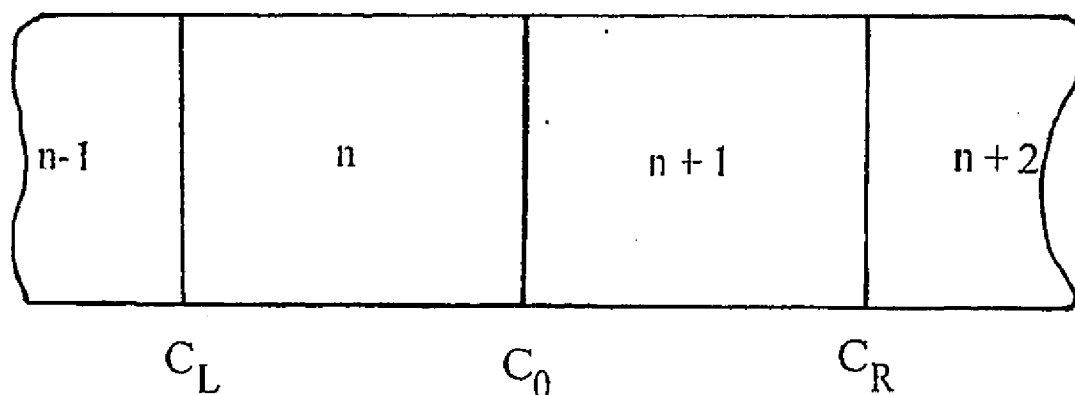


Abb. 11. Anschauungsbeispiel für die Diskretisierung

Die Maschen (n) und (n+1) sind vollständig abgebildet. Da Berger-Rossa für die Randbedingung der Sorption an der Oberfläche der Brennelemente eine Konzentration erhalten wollte, liegt seinen Berechnungen eine Transformation der Rechengitter zugrunde, die letztlich zur Bestimmung von Konzentrationen auf den Maschenrändern führt. Für die Berechnung der Konzentration (C_0) werden die beiden benachbarten Konzentrationen (C_L , C_R) benutzt.

Damit ergibt sich für die Konzentration (C_0) einer Masche nach den Umformungen und der zeitlichen und räumlichen Diskretisierung von Gleichung (3.3-1) folgende Beziehung.

$$C_0 \cdot F_0 - C_R \cdot F_R - C_L \cdot F_L = RS \quad (3.3 - 2)$$

- C_0 : zu berechnende Konzentration
- C_R, C_L : benachbarte Konzentrationen
- F_0, F_R, F_L : Faktoren zur Lösung der Gleichung, sie ergeben sich
: aus der Umformung der Gleichung (3.3-1)
- RS : Rechte Seite

Die Zusammenfassung der Gleichungen für alle Maschen einer Komponente führt auf ein System von gekoppelten linearen Gleichungen, die sich in der folgenden Weise mit einer Tridiagonalmatrix darstellen lassen.

³⁴ Ley, Spaltprodukttransport in Kugelbrennelementen für Hochtemperaturreaktoren im Rechenmodell SPTRAN, 1989, S. 5 ff.

$$\begin{bmatrix}
FO_1 & FR_1 & \dots & 0 & \dots & 0 & 0 \\
FR_2 & FO_2 & \dots & 0 & \dots & 0 & 0 \\
\dots & \dots & \dots & FR_{n-1} & \dots & \dots & \dots \\
0 & 0 & \dots & FO_n & \dots & 0 & 0 \\
\dots & \dots & \dots & FL_{n+1} & \dots & \dots & \dots \\
0 & 0 & \dots & 0 & \dots & FO_{N-1} & FR_{N-1} \\
0 & 0 & \dots & 0 & \dots & FL_N & FO_N
\end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} C_1 \\ C_2 \\ \dots \\ C_n \\ \dots \\ C_{N-1} \\ C_N \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} RS_1 \\ RS_2 \\ \dots \\ RS_n \\ \dots \\ RS_{N-1} \\ RS_N \end{bmatrix} \quad (3.3-3)$$

Die so aufbereitete Tridiagonal-Matrix kann einfach und sicher mit Standardprogrammen gelöst werden.

3.3.2 Randbedingungen und Iteration

Als Randbedingungen sind die Übergänge zwischen den verschiedenen Coated Particle-Schichten, den Übergängen von den Intakten und den Defekten Coated Particles ins Brennelement und schließlich die Freisetzung vom Brennelement ins Gas zu betrachten.

Im Coated Particle wird, um den Übergang zwischen den verschiedenen Schichten zu realisieren, einfach die Annahme der Stetigkeit der Konzentrationen angesetzt. Dieser Ansatz erlaubt es dann, mit einer einzigen Diffusionsrechnung ein komplettes Coated Particle zu behandeln. Unterschieden werden die Intakten und Defekten Coated Particles dadurch, daß bei einem Defekten Coated Partikel alle Hüllschichten als nicht mehr vorhanden angesehen werden und dann der UO_2 -Kern direkt an die Brennelementmatrix angekoppelt ist.

Beim Übergang der Spaltprodukte von den Coated Particles ins Brennelement wird auch die Stetigkeit der Konzentrationen beibehalten. Da sich hier der Übergang nicht innerhalb einer Rechnung befindet, (denn es werden in getrennten Diffusionsrechnungen die Konzentrationsverteilungen in den Coated Particles und dem Brennelement gelöst), muß zwischen den jeweiligen Unterprogrammen ein Datenaustausch stattfinden, der die Kopplung über die Konzentrationsgleichheit sicherstellt. Hierzu wird zuerst eine Berechnung der Konzentrationsverteilung im Brennelement durchgeführt, bei der als Werte der Quellterme aus den Coated Particles die Werte vom letzten Zeitschritt verwendet werden. Die neu berechnete Brennelementkonzentration wird als Außenkonzentration für die Defekten und Intakten Coated Particles benutzt. Es wird die gemittelte Konzentration verwendet, weil pro Brennelement nur stellvertretend ein Intaktes und ein Defektes Coated Particle berechnet wird. Mit der festen Konzentration in der äußeren Schicht werden für die Coated Particles die Verteilung der Spaltprodukte in ihnen und der Quellterm aus ihnen ins Brennelement berechnet. Mit den neuen Quelltermen wird nun die Brennelementberechnung wiederholt. Alle diese Schritte werden so lange wiederholt, bis die richtige Lösung gefunden ist.

Bei diesem Verfahren wird die Iteration zwischen Brennelement und Coated Particle eingesetzt, um bei jedem Zeitschritt die Effekte der Rückkopplung berücksichtigen zu

können. Von Ley³⁵ wurde untersucht, ob die Iteration an dieser Stelle notwendig ist. Es zeigte sich, daß die Vorgänge beim Übergang vom Coated Particle ins Brennelement sich so verhalten, daß sich auch ohne Iteration an dieser Stelle die gleichen Ergebnisse erzielen lassen. Hier ist im Programm zwar der numerisch korrektere Ansatz enthalten, er kann aber durch eine rechenzeitsparende Veränderung ersetzt werden, ohne daß dies die Rechenergebnisse signifikant verändert.

Bei der Berechnung der Spaltproduktverteilung im Brennelement wird auch gleich der Quellterm ins Gas mit berücksichtigt. Die Ankopplung erfolgt über den Ansatz von Stofftransport und Sorption. Als bestimmende Größen wirken die Spaltproduktkonzentrationen auf der Graphitoberfläche und die im umgebenden Gas. Auch über diesen Quellterm erfolgt im Programm SPTRAN eine Iteration. Diese wird in KUGEL nicht übernommen, da in den Schenk-Experimenten durch die fortwährende Spülung mit Helium kein Konzentrationsaufbau in der Gasphase entstehen kann. Daher wird in KUGEL eine konstante Konzentration im Gas verwendet. Das bedeutet, daß die Schenk-Experimente keine Überprüfung der Modellierung des Transports von Spaltprodukten aus den äußeren Graphitschichten ins Gas ermöglichen. Dies ist erst bei der Nachrechnung der Deckenreflektorexperimente möglich. Daher wird dort genau auf die Realisierung dieses Quellterms und der dazu notwendigen Iterationen eingegangen.

3.4 Kontrolle des Programmes

Eine einfache und schnelle Möglichkeit, ein Programm zu kontrollieren, sind Testrechnungen. Dazu werden, ausgehend von einem einfachen Ausgangszustand, Rechnungen durchgeführt und dann die Ergebnisse anschaulich dargestellt. Anhand dieser Darstellungen kann nun kontrolliert werden, ob die modellierten Prozesse in der Größenordnung richtig ablaufen. Die folgenden Kapitel zeigen dieses Vorgehen für das System des Brennelements.

3.4.1 Intaktes Coated Particle

Die Modellierung des Intakten Coated Particle ist besonders aufwendig, da es aus dem UO_2 -Kern und vier umgebenden Schichten besteht (siehe Abb. 5 auf Seite 20). Da alle Transportvorgänge mittels Diffusion simuliert werden und an den Übergängen zwischen den Schichten immer Konzentrationsgleichgewicht als Randbedingung angenommen wird, kann das Coated Particle mit einer einzigen Diffusionsrechnung behandelt werden. Doch muß, bedingt durch die unterschiedlichen Dicken und Diffusionskoeffizienten der Schichten, für jede eine geeignete Einteilung in Feinzonen erfolgen.

³⁵ Ley, Simulation des Spaltprodukttransportes in Kugelbrennelementen durch Modifikation des SPTRAN-Rechenprogrammes und Verifikation durch Vergleich mit den Ausheizexperimenten nach Schenk, 1989, S. 65 ff.

Sehr deutlich kann man an der folgenden Abbildung den Einfluß der verschiedenen Schichten auf die Konzentrationsverteilung sehen.

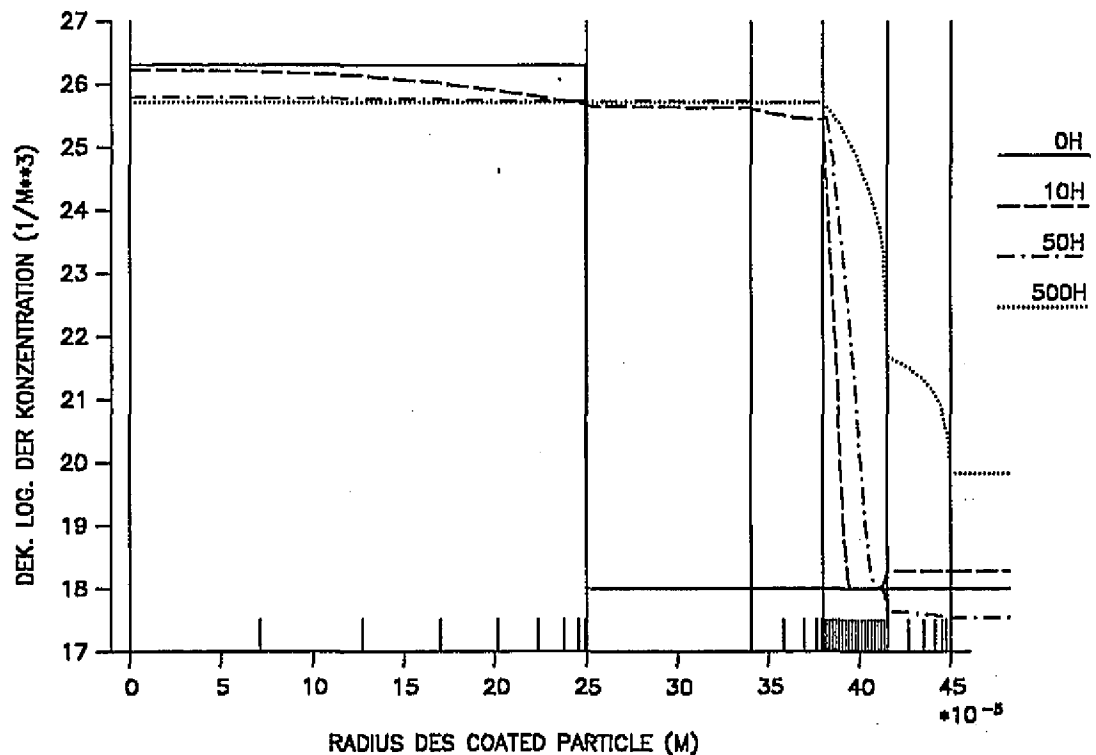


Abb. 12. Diffusionsprofile in einem Intakten Coated Particle

In der Darstellung sind über dem Radius des Coated Particles die Konzentrationsverläufe zu verschiedenen Zeitpunkten aufgetragen. Die senkrechten langen Striche zeigen die Grenzen zwischen den verschiedenen Schichten des Coated Particles. Innen befindet sich mit einem Radius von 0.25 mm der UO_2 -Kern. Dann folgt eine poröse Schicht aus pyrolytischem Kohlenstoff (PyC-Schicht), die zur Aufnahme der Spaltgase und der Volumensvergrößerung des Kerns durch die Spaltungen dient. Danach kommen die drei eigentlichen Rückhalteschichten. Erst eine dichte PyC-Schicht, dann die SiC-Schicht und ganz außen wieder eine dichte PyC-Schicht. Man könnte fast von einem Verbundwerkstoff sprechen, bei dem die PyC-Schichten vor allem die Stabilität und die SiC-Schicht ganz besonders die Rückhaltefunktion von Spaltprodukten übernimmt. Die kurzen senkrechten Striche direkt oberhalb der x-Achse zeigen die Aufteilung der einzelnen Schichten in diskrete Volumina.

Die Abbildung zeigt die Veränderung einer einfachen vorgegebenen Anfangskonzentrationsverteilung beim Ausheizen bei einer Temperatur von 1600°C für Cäsium. Der Anfangszustand wird durch den Verlauf der Kurve zum Zeitpunkt 0 Stunden dargestellt. Es wurde aufgrund der guten Anschaulichkeit eine Anfangskonzentration von $2 \cdot 10^{26}$

(Atome/m³) im UO₂-Kern und sonst überall (auch im Brennelement) von $1 \cdot 10^{18}$ (Atome/m³) gewählt. Dies entspricht den realen Mengen des Spaltproduktes Cs₁₃₇ im Kern des Coated Particles, den Coating-Schichten und dem Brennelement bei Leistungsbetrieb.

Mit dem Beginn des Ausheizens stellt sich schnell ein Konzentrationsausgleich bis zur SiC-Schicht (zweite von außen) ein. Bei der 10-Stunden-Kurve sieht man noch Konzentrationsgradienten, danach haben sich bis zur SiC-Schicht die Konzentrationen ausgeglichen. Dagegen bildet die SiC-Schicht die Barriere, an der sich der Konzentrationsgradient einstellt. Bei 10 Stunden hat die aus dem Coated Particle herausdrängende Cäsium-Front noch nicht einmal die Hälfte der SiC-Schichtdicke überwunden. Es baut sich sogar von außen eine höhere Konzentration auf. Diese resultiert daraus, daß durch die Freisetzung aus den Defekten Coated Particles eine Erhöhung in der Brennelementmatrix und damit auch in der Außenschicht der Intakten Coated Particles eintritt. Es wurde ein kleiner herstellungsbedingter Anteil ($5 \cdot 10^{-6}$) von ihnen angenommen. Nach 50 Stunden ist das Cäsium weiter vorgedrungen, hat aber die SiC-Schicht noch nicht ganz überwunden. Nach 500 Stunden hat sich dann ein Profil in der SiC- und der äußeren PyC-Schicht eingestellt, das dem entstandenen, kleinen Quellterm aus dem Intakten Coated Particle ins Brennelement entspricht. Es ist deutlich zu erkennen, wie auch die Konzentration im Brennelement (Fortsetzung des Konzentrationsverlaufes außerhalb der äußersten Coated Particle Schicht) ansteigt.

Beim Coated Particle wurden einige Änderungen in der Modellierung durchgeführt. Die bei früheren Arbeiten angewendeten Diskretisierungen der Feinzonen erwiesen sich als ungünstig. Von Ley³⁶ wurden verschiedene Diskretisierungen getestet. Durch eine Rechnung mit einer extrem feinen Aufteilung in Feinzonen wurde eine Vergleichsrechnung geschaffen, mit der die folgenden Rechnungen verglichen werden konnten. Bei diesen Rechnungen wurde die Zahl der Feinzonen so weit reduziert, wie es ohne nennenswerte Einbußen an der Rechengenauigkeit möglich war.

In der Abb. 12 auf Seite 47 ist die dabei als optimal herausgefundene Einteilung in Feinzonen dargestellt. Allgemein gilt, daß immer dort feiner eingeteilt werden muß, wo große Konzentrationsgradienten auftreten. Daher wurde die Einteilung in der SiC-Schicht stark erhöht, sonst aber die Einteilungen verringert. Die Erhöhung der Anzahl an Feinzonen in der SiC-Schicht verbessert dann auch die bei der Rechnung resultierende Rückhaltefähigkeit der Schicht bei sonst gleichen Bedingungen. Dies zeigt deutlich, daß vorher mit einer unzureichenden Aufteilung gearbeitet wurde.

³⁶ Ley, Simulation des Spaltprodukttransportes in Kugelbrennelementen durch Modifikation des SPTRAN-Rechenprogrammes und Verifikation durch Vergleich mit den Ausheizexperimenten nach Schenk, 1989, S. 27 ff.

Bei den Nachrechnungen der Ausheizexperimente von Schenk zeigt sich, daß mit den Werten von Berger-Rossa³⁷, die direkt aus dem Statusbericht "Spaltprodukte"³⁸ übernommen worden sind, immer eine zu große Freisetzung berechnet wird. Es ist die Aufgabe dieser Arbeit, so genau wie möglich die realen Abläufe zu simulieren. Es werden aus diesem Grund nicht alle konservativen Annahmen, die bei den Rechnungen für Sicherheitsanalysen verwendet werden, übernommen. Vielmehr wurde versucht, durch Änderung der Diffusionskoeffizienten eine bessere Anpassung der Rechnung an das Experiment zu erreichen.

Besonders geeignet für die Anpassung ist der Freisetzungsverlauf beim Ausheizexperiment mit 1600°C. Die unteren Kurven in Abb. 10 auf Seite 41 geben diesen wieder. Es stellt sich in den ersten 200 Stunden ein Niveau der Freisetzung von wenig mehr als 10^{-6} ein. Danach setzt eine stetige Erhöhung der Freisetzung ein. Das erst konstante Niveau der Freisetzung wird durch das Ausheizen der Spaltprodukte, die sich aufgrund des "Freien Urans"³⁹ im Brennelement befinden, erklärt. Der Anstieg nach 200 Stunden bei der Kurve HFR-K3 ist auf das Durchdringen der Diffusionsfront durch die SiC-Schicht zurückzuführen. Aus diesen Überlegungen erscheint die Anpassung des Diffusionskoeffizienten für die SiC-Schicht der richtige Weg. Mit den folgenden Werten für den Diffusionskoeffizienten von Cäsium in der SiC-Schicht können die Versuche befriedigend nachgerechnet werden.

$$\begin{aligned} D_0 &= 3.35 \cdot 10^{-15} \text{ (m}^2\text{/sec)} \\ \Delta Q &= 106 \cdot 10^{+3} \text{ (J/Mol)} \\ D'_0 &= 1.2 \cdot 10^{-3} \text{ (m}^2\text{/sec)} \\ \Delta Q' &= 482 \cdot 10^{+3} \text{ (J/Mol)} \end{aligned}$$

Koeffizienten für die Gleichung (2.3-4)

Dazu wurden die Werte D_0 und D'_0 um den Faktor 20 verkleinert (wird schon im Statusbericht vorgeschlagen). Dies ist die einzige Änderung, die an der Datenbasis von Moormann⁴⁰ vorgenommen wurde.

³⁷ Berger-Rossa, Rückhaltung und Umverteilung von Spaltprodukten im Core und im Primärkreislauf von Hochtemperaturreaktoren bei hypothetischen Störfallereignissen, 1988, S. 26.

³⁸ Moormann, Methodik umfassender probabilistischer Sicherheitsanalysen für zukünftige HTR Anlagen, Band 3: Spaltprodukte, 1987, S. 91.

³⁹ Herstellungsbedingt befindet sich immer ein geringer Teil des Urans ausserhalb der Coatad Particles. Es wird "Freies Uran" genannt. Beim Leistungsbetrieb wird es genau wie alles andere Uran auch gespalten und erzeugt somit Spaltprodukte.

⁴⁰ Ebenda.

3.4.2 Defektes Coated Particle

In diesem Kapitel wird für das Defekte Coated Particle in derselben Darstellung wie gerade für das Intakte Coated Particle der Verlauf der Konzentrationen dargestellt.

In der Darstellung sind noch die Einteilungen für alle Schichten vorhanden, doch der Konzentrationsverlauf ist nur für den UO_2 -Kern eingezeichnet. Es wurde schon oben in dieser Arbeit behandelt, wie SPTRAN ein Defektes Coated Particle beschreibt. Von einem Defekten Coated Particle geht man dann aus, wenn seine Schichten zumindest lokal völlig zerstört sind. Dies geschieht über den Versagensprozeß des Druckkesselversagens bei Temperaturen bis 2000°C . Bei höheren Temperaturen kommt noch ein thermisches Zersetzen der SiC-Schicht hinzu. Beim ersten Vorgang wird der Druck im Inneren des Coated Particles, der sich dort aufgrund der gebildeten Spaltgase aufbaut, so groß, daß die Schichten des Coated Particles versagen. In beiden Fällen entsteht ein Transportpfad, der den UO_2 -Kern durch die Bruchspalte der Schichten (man könnte sich hier eine Gasphase vorstellen) direkt mit dem Matrixgraphit des Brennelementes verbindet. Dieser Transportmechanismus wird als dominant angesehen, so daß man den zerstörten Schichtresten keine Rückhaltefähigkeit mehr zurechnet. Dieses Verhalten ist gut belegt durch die sofortige Gasfreisetzung bei den Schenk-Experimenten im Falle von Partikelversagen. Daher wird ein Defektes Coated Particle ohne Außenschichten modelliert.

Beim Aufheizen des Cores während eines Störfalls versagen nach und nach immer mehr Coated Particles. Da SPTRAN nur ein Defektes Coated Particle pro Brennelement berücksichtigt, müssen die zusätzlich defekt gewordenen Coated Particles innerhalb dieser Modellierung eingemittelt werden, um die Massenbilanz zu gewährleisten. Das Spaltproduktinventar der Hüllschichten der neu defekt geworden Coated Particles wird zum Inventar der Brennelementmatrix hinzuaddiert. Das Inventar des einen von SPTRAN betrachteten Defekten Coated Particles wird prozentual um den Anteil der Inventare der UO_2 -Kerne der aktuell zerstörten Coated Particles erhöht. In FRESCO⁴¹ wird an dieser Stelle ein anderes Verfahren benutzt. Da man sich zur Zeit mit den Phänomenen im Brennelement besonders intensiv beschäftigt, sollten diese Arbeiten für die abschließende Bewertung der Modellierung des Coated Particle-Versagens herangezogen werden. Ley arbeitet an mehrdimensionalen Beschreibungen des Brennelements und berücksichtigen auch den Einfluß, den die wahrscheinlich notwendige Einführung eines konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten für den Brennelementgraphit (siehe Kapitel 4) bewirken wird.

⁴¹ Krohn, FRESCO-II, 1983.

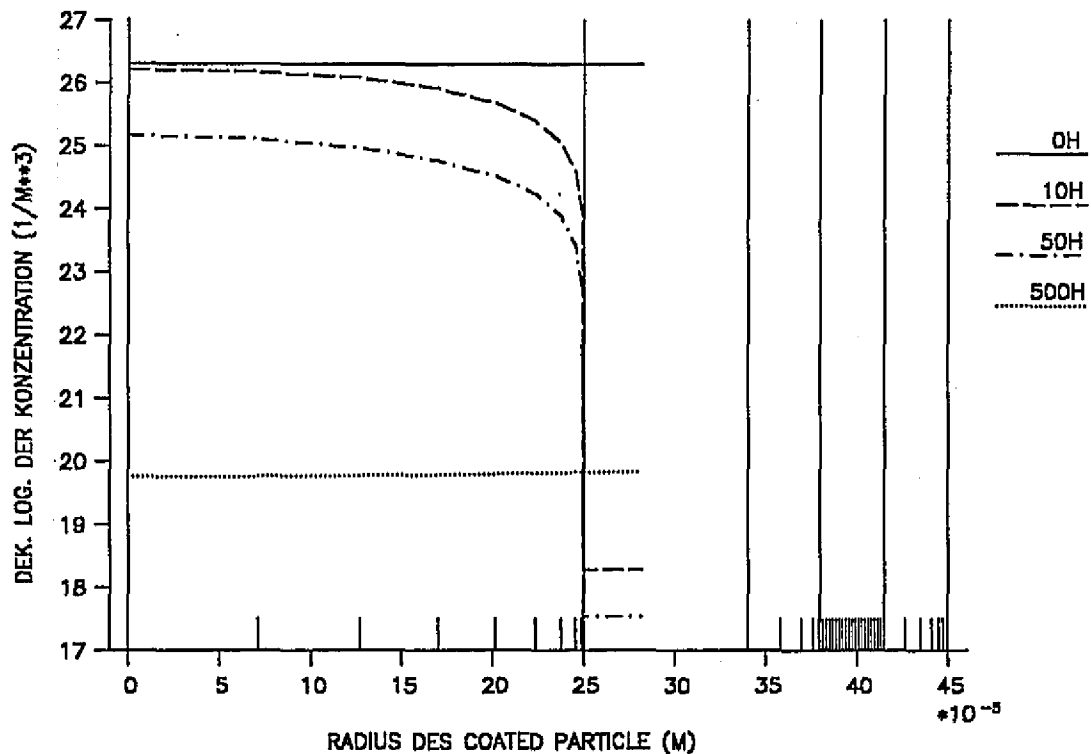


Abb. 13. Diffusionsprofile in einem Defekten Coated Particle

Die Abbildung zeigt die Veränderung der Konzentrationen in einem Defekten Coated Particle. Bei den Kurven für 10 und 50 Stunden sieht man, wie schnell das Defekte Coated Particle leerläuft. Bei 500 Stunden hat sich dann schon ein Konzentrationsgleichgewicht eingestellt. Man kann an den Konzentrationen des Brennelementes (rechts von der Begrenzungslinie des UO_2 -Kerns durch die waagerechte Verlängerung der Konzentrationsverläufe angedeutet) sogar sehen, daß sich die Konzentration in der Brennelementmarix nach 500 Stunden erhöht hat. Da die Be- und Endladungsvorgänge reversibel sind, kann das Defekte Coated Particle langfristig sogar geringfügig wieder beladen werden.

Da hier keine Bruchfunktion während des Ausheizen berücksichtigt wird, kann es keine Konzentrationserhöhung durch neu hinzukommende Defekte Coated Particles geben.

3.4.3 Brennelement

Beim Brennelement ist die Einteilung deutlich einfacher. Es existieren nur zwei Schichten. Die innere enthält die Coated Particles, die äußere ist brennstofffrei.

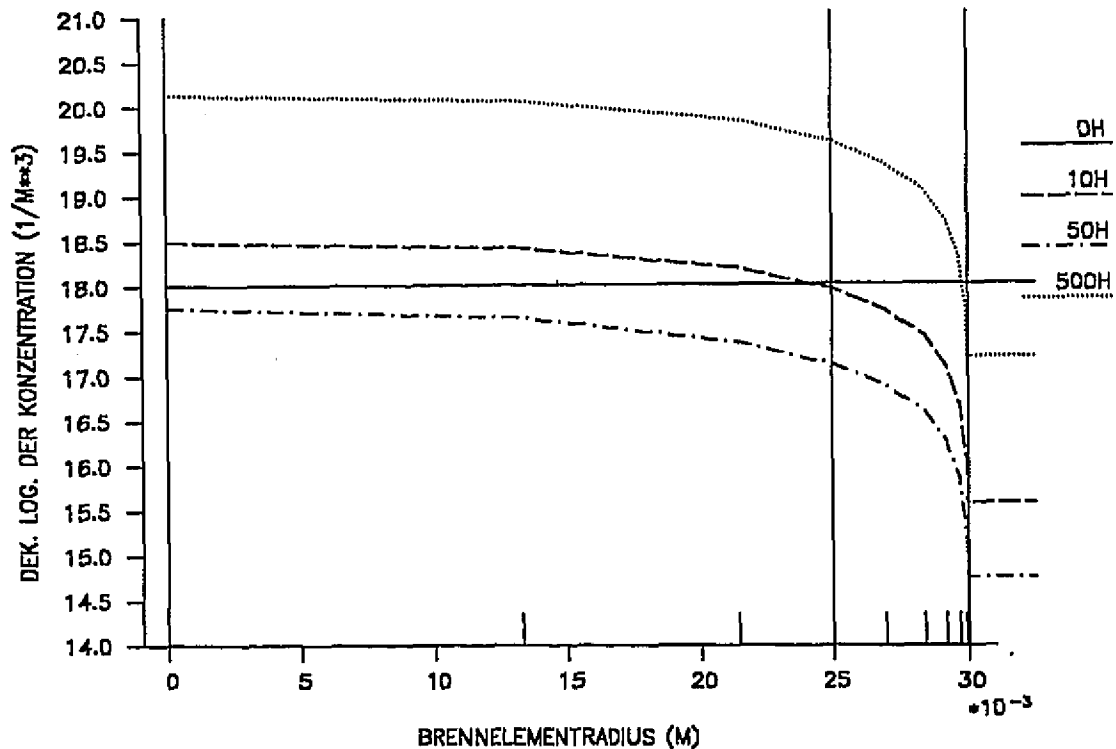


Abb. 14. Diffusionsprofile in der Brennelementmatrix

Beim Ausheizen ergibt sich eine interessante Veränderung in den Konzentrationsverläufen. Beim Beginn der Rechnung ist im Brennelement überall eine Konzentration von $1 \cdot 10^{18}$ (Atome/m³) vorgegeben. Danach bilden sich die Konzentrationsprofile mit einem deutlichen Abfallen zur Gasseite hin aus. Nach 10 Stunden hat sich die Konzentration im Brennelement erhöht. Dies ergibt sich aus der schnellen Freisetzung aus den herstellungsbedingt Defekten Coated Particles. Die Konzentration ist nach 50 Stunden unter den Wert der Ausgangskonzentration abgesunken, da entsprechend viele Spaltprodukte ins Gas abgegeben worden sind. Nach 500 Stunden ist die Konzentration deutlich erhöht. Dies ist durch die verzögert einsetzende Freisetzung aus den Intakten Coated Particles zu erklären. Die Abb. 12 auf Seite 47 hat gezeigt, daß es etwa 200 Stunden dauert, bis aus den Intakten Coated Particles Cäsium freigesetzt wird.

Bei der Beschreibung des Programms KUGEL wird angegeben, daß im Gas eine feste Konzentration angesetzt wird. Rechts am Rand der Abb. 14 wird nicht diese Konzentration dargestellt, sondern die Konzentration an der Graphitoberfläche. Diese ist über Sorption und Stofftransport mit der hier konstanten Gaskonzentration gekoppelt und damit variabel.

Die folgende Abbildung zeigt den Freisetzungsverlauf, der sich bei dieser Testrechnung einstellt.

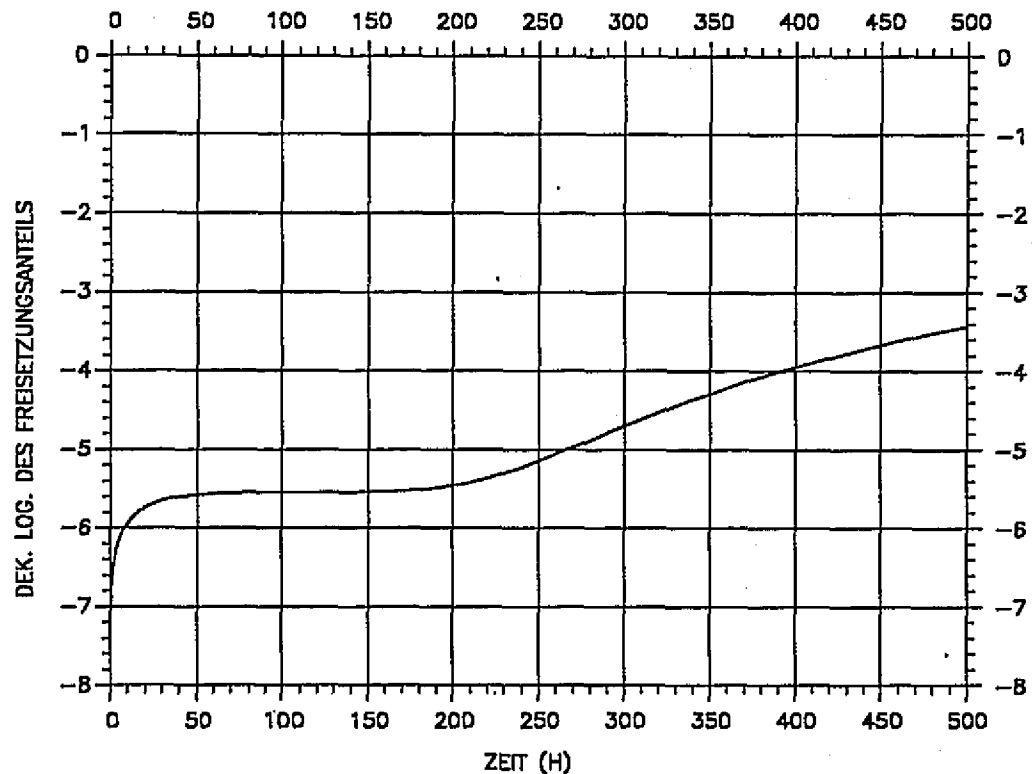


Abb. 15. Freisetzung aus dem Brennelement bei 1600°C

In der Darstellung ist über der Zeit der Freisetzungsanteil bezogen auf das Gesamtinventar dargestellt. Es zeigt sich, daß in den ersten 200 Stunden nur der Anteil, der von dem "Freien Uran" und dem herstellungsbedingten Partikelbruch stammt, freigesetzt wird und daß danach eine steigende Freisetzung aufgrund der Diffusion aus den Intakten Coated Particles einsetzt.

3.5 Ergebnisse der Versuchsnachrechnung

Bei den Rechnungen, die gerade vorgestellt worden sind, wurde nur für die Temperatur von 1600°C die Anpassung von Versuch und Experiment vorgenommen. Im folgenden werden diese Rechnungen nun auch für die anderen Temperaturen des in der Abb. 10 auf Seite 41 dargestellten Temperaturbandes von 1600 - 1800° durchgeführt.

Bei allen Rechnungen in diesem Kapitel wird immer von dem gleichen, stark vereinfachten Anfangszustand der Spaltproduktkonzentrationen ausgegangen. Im Normalbetrieb stellt sich eine Verteilung der Spaltprodukte ein, bei der es schon zu einem leichten Angleichen der Konzentrationen der verschiedenen Schichten kommt. Da jedoch aufgrund der Normalbetriebstemperaturen dieser Ausgleich nicht zu weit fortschreitet, wird bei diesen Nachrechnungen der Versuche immer von der vereinfachten

Konzentrationsverteilung ausgegangen, denn mit der Erhöhung der Temperatur auf 1500°C und höher beschleunigen sich alle Diffusionsprozesse sehr. Bei entsprechenden Testrechnungen ist nur eine geringe Verzögerung bei der Freisetzung zwischen einer Rechnung ausgehend von der vereinfachten Verteilung und einer schon mehr ausgeglichenen beobachtet worden.

In der Spaltprodukttransportrechnung mit SPTRAN wird dagegen mit KUGEL eine Konzentrationsverteilung für das System Brennelement/Coated Particle erzeugt, wie sie sich nach 2-3 Jahren Normalbetrieb einstellt. SPTRAN übernimmt diese dann als Normierungsverteilung für alle Coremaschen mit Brennelementen. Diese Vorgehensweise wird vor allem deshalb verwendet, weil im Störfall nicht alle Brennelemente den sehr hohen maximalen Störfalltemperaturen ausgesetzt sind. Gerade bei denjenigen, die nur "geringen" Temperaturen ausgesetzt sind, soll es zu keiner Verzögerung der Freisetzung wegen der vereinfachten Konzentrationsverteilung kommen. Zusätzlich sollen bei SPTRAN nur möglichst geringe Unterschiede im Programmablauf zwischen der Rechnung für den Normalbetrieb und für einen Störfall bestehen.

In der Abb. 16 auf Seite 56 sind die Freisetzungsverläufe für die Temperaturen von 1500, 1600, 1700 und 1800°C dargestellt. In den Diagrammen für 1600, 1700 und 1800°C sind die Bereiche eingezeichnet, in denen die Ergebnisse der Experimente liegen.

In dem Diagramm, welches das Freisetzungsverhalten bei 1600°C darstellt, ist sehr gut zu erkennen, wie durch die geringfügige Anpassung der Diffusionskoeffizienten der SiC-Schicht der Freisetzungsverlauf sehr gut nachgerechnet werden kann. Bei 1700°C wird die Berechnung des Freisetzungsverlaufes den Ergebnissen nicht gerecht. In den ersten 50 Stunden liegt er sehr niedrig. Dies ist wahrscheinlich der Effekt, daß sich in der Siliziumcarbid-Schicht wegen der einfachen Anfangsverteilung noch kein Gradient aufgebaut hat. Der Anstieg der Freisetzung verzögert sich leicht, doch dann steigt die Freisetzung schnell auf höhere Werte als die der Experimente. Dagegen zeigt die Abbildung auf der Verhältnisse bei den Temperaturen von 1800°C eine sehr gute Übereinstimmung. Hier wird das Freisetzungsverhalten der Experimente wieder gut nachgerechnet.

Damit wird im kritischen Bereich von 1600-1800°C, in dem der Übergang von geringer zu fast vollständiger Freisetzung liegt, das Verhalten von den Rechnungen weitestgehend richtig beschrieben. Die Abweichungen bei 1700°C zeigen, daß es mit dem einfachen Modell für die Behandlung des Systems Brennelement/Coated Particle noch nicht möglich ist, alle Effekte genau richtig wiederzugeben, doch ist die Genauigkeit für erste Freisetzungsrechnungen ausreichend.

Zusammenfassend kann man feststellen: Die Untersuchung der Ergebnisse der Simulation des Brennelements und der Coated Particles zeigt, daß die verwendeten einfachen Modellierungen gut in der Lage sind, den Freisetzungsverlauf der Ausheizexperimente nachzurechnen. Die Tatsache, daß mit diesen Modellen nicht alle

Fragestellungen beantwortet werden können, zeigt sich schon darin, daß von Schenk⁴² bei der Mikrosondenuntersuchung des Coated Particles Spaltproduktverteilungen gefunden worden sind, die von den physikalischen Gesetzmäßigkeiten her nicht mit Diffusion erklärt werden können.

Dagegen sind die Übereinstimmungen von Experiment und Nachrechnung der integralen Freisetzung ausreichend übereinstimmend, daß man dieses Modell für die Beschreibung der primären Spaltproduktfreisetzung aus den Brennelementen einsetzen kann.

Es muß nur noch einmal darauf hingewiesen werden, daß die Modellierung der Sorption bei diesen Nachrechnungen noch nicht überprüft werden konnte. Dies wird im nächsten Kapitel anhand der Deckenreflektorexperimente geschehen.

⁴² Schenk, Kugelbrennelemente mit TRISO-Partikeln bei Störfalltemperaturen, 1989, S. 139 f.

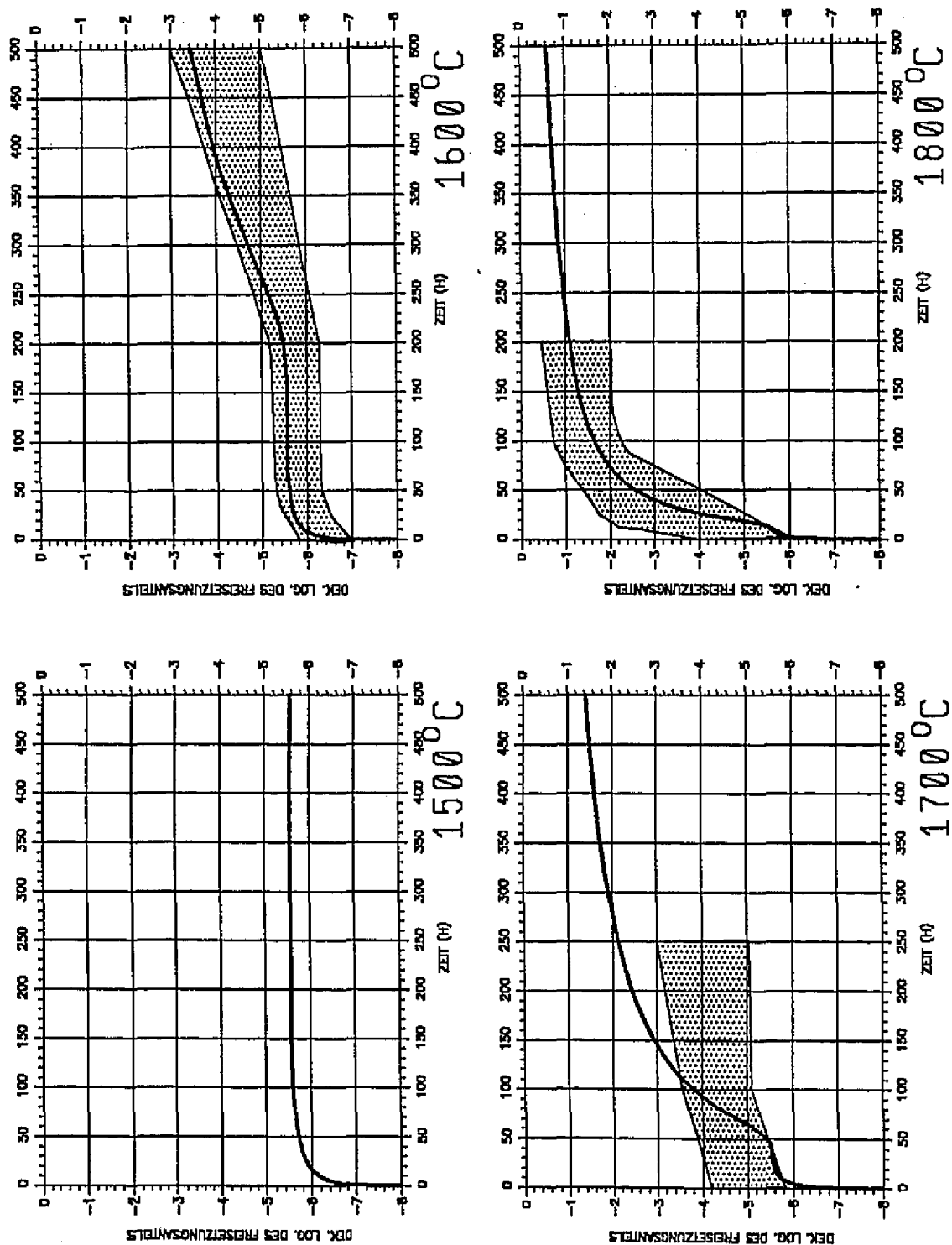


Abb. 16. Freisetzung aus Brennelementen bei verschiedenen Temperaturen: Die in den Diagrammen eingezeichneten Flächen geben den Bereich der Freisetzungverläufe wieder, die aus Ergebnissen der Experimente ermittelt worden sind.

4.0 Nachrechnung des Deckenreflektorexperimentes

4.1 Überblick

Die Nachrechnung der Brennelement-Ausheizversuche von Schenk hat gezeigt, daß bei diesen Untersuchungen die bestimmende Größe für den Freisetzungverlauf der Diffusionskoeffizient der Siliziumkarbidschicht ist. Die Beschreibung des Sorptionsverhaltens des Cäsiums am Graphit kann bei den Ausheizversuchen von Schenk keinen entscheidenden Einfluß auf das Freisetzungsverhalten nehmen, denn das im Versuch verwendete Spülgas ist kontaminationsfrei und kann somit der Freisetzung aus den Brennelementen keinen "Widerstand" entgegensetzen. Die folgende Gleichung (4.1-1) stellt die im Programm SPTRAN verwendete Formulierung des Gas-Graphit Quellterms dar.

$$\dot{Q}_{\text{Graphit,Wand} - \text{Gas},00} = O \cdot \beta [\alpha(T, C_{\text{Graphit,Wand}}) C_{\text{Graphit,Wand}} - C_{\text{Gas},00}] \quad (4.1 - 1)$$

$\dot{Q}_{\text{Graphit,Wand} - \text{Gas},00}$	: Quellterm aus dem Graphit ins Gas
O	: geometrische Graphitoberfläche
β	: Stoffübergangskoeffizient im Gas
$\alpha(T, C_{\text{Graphit,Wand}})$	: Sorptionskoeffizient, Verhältnis von Gas- zu Graphitkonzentration im Gleichgewicht
$C_{\text{Graphit,Wand}}$	: Graphitkonzentration am Rand
$C_{\text{Gas},00}$	: Gaskonzentration in der Masche

Diese Gleichung wird weiter unten in diesem Kapitel ausführlich hergeleitet, da sie wesentlich für das in SPTRAN verwendete Sorptionsmodell ist.

Im Programm KUGEL, mit dem die Schenk-Experimente nachgerechnet werden, wird für die Größe der Gaskonzentration ($C_{\text{Gas},00}$) keine Rückkopplung an den Quellterm betrachtet. Es wird einfach ein fester Wert in der Größenordnung von Null vorgegeben, der konstant bleibt. Es kann sich keine Begrenzung des Quellterms über die Erhöhung der Gaskonzentration aufbauen. Da die Rückhaltewirkung der Siliziumkarbidschicht im Vergleich zu der des Übergangs vom Graphit ins Gas sehr groß ist, werden die Spaltprodukte, die die Oberfläche des Brennelementes erreichen, entsprechend der rechten Seite des Klammersausdrucks ins Gas abgegeben. Dies zeigt sich sehr anschaulich in den Konzentrationsverläufen des Intakten Coated Particles und des Brennelementes (siehe Abb. 12 auf Seite 47 und Abb. 14 auf Seite 52). Damit ist bei den Schenk-Versuchen die Siliziumkarbidschicht die einzig relevante Rückhaltebarriere. Mit der Nachrechnung der Versuche kann damit nur die Beschreibung des Freisetzungsverhaltens aus den Coated Particles und die Diffusion im Brennelement überprüft werden.

Hieraus folgt, daß anhand der Brennelement-Ausheizexperimente nicht die Korrektheit des Sorptionsmodells überprüft werden kann.

Die Versuche⁴³, in denen der Deckenreflektor unter Störfallbedingungen simuliert wird, stellen das erste integrale Experiment dar, welches es erlaubt, das Sorptionsmodell durch experimentelle Ergebnisse zu validieren.

In dem Experiment wird die Be- und Entladung eines Graphitkörpers mit dem Spaltprodukt Cäsium untersucht. Dabei wird besonders auf die Dynamik der Prozesse geachtet. Bei der Nachrechnung wird der Transportmechanismus zwischen Gas und Graphit durch den Quellterm in der Formulierung der Gleichung (4.1-1) beschrieben. Anders als bei der Nachrechnung der Ausheizexperimente, bei denen $C_{\text{Gas},00}$ sehr klein und konstant gewählt wurde, sind bei der Nachrechnung des Deckenreflektorexperimentes nun alle Konzentrationen variabel. Der Spaltproduktaustausch zwischen der Gas- und der Feststoffphase ist der primäre Mechanismus der Spaltproduktspeicherung. Der sekundäre Prozeß für die Spaltproduktspeicherung ist der Transport im Graphit, der mittels der schon eingehend beschriebenen einphasigen Fick'schen Diffusion in die Tiefe des Graphits modelliert wird. Die zwei einfachen Ansätze ergeben zusammen das für die Speicherung von Spaltprodukten im Graphit von SPTRAN verwendete Modell.

Da es sich bei dem Deckenreflektorexperiment um die ersten Versuche handelt, bei denen das dynamische Verhalten der Speicherung untersucht werden kann, stellen sie die Validierungsbasis für das Modell dar. Dies gilt sowohl für die qualitative als auch für die quantitative Überprüfung. Es muß sich zeigen, ob der verwendete einfache Modellansatz ausreichend ist, um die Versuche befriedigend nachzurechnen. Die radikalste vorstellbare Konsequenz könnte sein, daß trotz Variierung der Koeffizienten in einem vertretbaren Rahmen keine ausreichende Übereinstimmung zwischen Modell und Versuch zu erreichen ist. Hierdurch würde eine weitere Anwendung des einfachen Modells sinnlos, und es müßte nach einer besseren Beschreibung gesucht werden.

Sinnvoll bei einem hoffentlich positiven Ergebnis wird es sein, die bei der Deckenreflektornachrechnung gewonnenen Erkenntnisse auf die Brennelementrechnungen zu übertragen. Denn zwischen den Graphitbrennelementen und dem Deckenreflektorgraphit besteht kein Unterschied in der Beschreibung der Transportvorgänge. Es werden nur wegen der unterschiedlichen Graphitsorten andere Datensätze verwendet. Es ist zu erwarten, daß die Brennelemente in kälteren Corebereichen die aus heißen Bereichen freigesetzten Spaltprodukte sorbieren. Damit würde ein Teil der primären Freisetzung schon im Core wieder gebunden. Dieser Effekt ist wahrscheinlich, da das Sorptionsverhalten des A3-3 Matrixgraphites deutlich besser ist als das des H-451 Strukturgraphites⁴⁴.

⁴³ Iniotakis et al., The Retardation of Released Fission Products Deriving from Graphite Structures During a Hypothetical HTR-500 Accident, 1987.

Barthels et al., The Influence of Chemical State of the Products on the Filter Properties of the Graphite Components, 1989.

⁴⁴ Da Graphite ein sehr komplexer Verbundwerkstoff sind, die in ihren Eigenschaften von der

In diesem Kapitel werden der Versuchsaufbau und die Ergebnisse der Deckenreflektorexperimente vorgestellt. Danach wird die Struktur und die Theorie des Programms TOPRE, das zur Nachrechnung der Versuche aus SPTRAN ausgekoppelt wurde, beschrieben. Hierbei wird besonders auf die Herleitung des Transportmechanismus zwischen Graphit und Gas eingegangen. Der Vergleich von Experiment und Nachrechnung bildet dann den Abschluß dieses Kapitels.

4.2 Beschreibung des Versuchsaufbaus beim Deckenreflektorexperiment

Das Deckenreflektorexperiment⁴⁵ wird vom Institut für Energieverfahrenstechnik des Forschungszentrums Jülich durchgeführt und soll Aufschluß über die Menge Cäsium geben, welche bei einem Störfall eines mittelgroßen Hochtemperaturreaktors⁴⁶ nach der Freisetzung aus dem Core im Deckenreflektor zurückgehalten werden kann.

Den Aufbau des Experimentes gibt die Prinzipskizze (Abb. 17 auf Seite 60) wieder.

Zusammensetzung und dem Herstellungsverfahren in starken Maße abhängig sind, ist eine genaue Identifikation der Graphitsorte erforderlich.

⁴⁵ Iniotakis et al., ebenda.
Bartheis et al., ebenda.

⁴⁶ Als Referenzanlagen wurden die Reaktoren THTR 300 und HTR 500 gewählt.

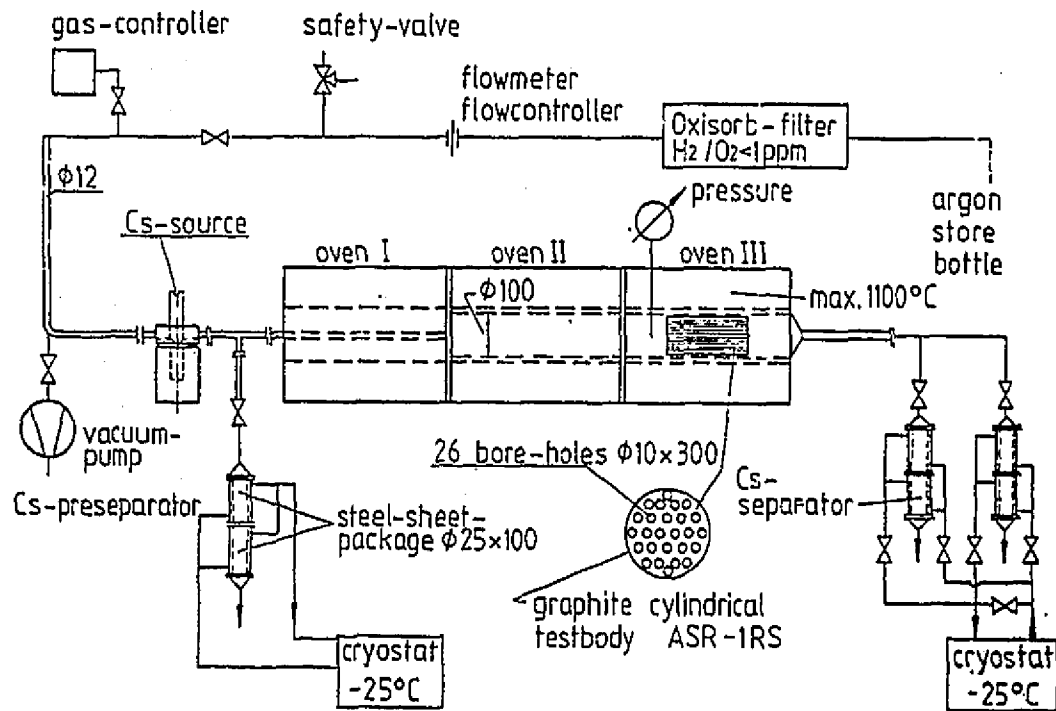


Abb. 17. Prinzipskizze des Deckenreflektorversuchsaufbaus

Im Mittelpunkt der Versuchsanordnung befindet sich ein Graphitkörper, der den Deckenreflektor simuliert. Er ist in seinen geometrischen Abmessungen einem realen Deckenreflektor den Ähnlichkeitsgesetzen entsprechend nachgebildet. Es ist ein Graphitzylinder von 10 cm Durchmesser und 30 cm Länge aus dem ASR - IRS Strukturgraphit⁴⁷. Er ist mit durchgehenden Bohrungen versehen, die den Durchlässen für das Kühlgas des Deckenreflektors entsprechen. 26 Bohrungen mit einem Durchmesser von 8.6 mm (Abweichung von der Angabe in der Prinzipskizze) enthält der Graphitkörper.

Der Graphitkörper befindet sich in dem Teil des offenen Gaskreislaufes, der in den Heizöfen liegt. Hier hat der Kreislauf den gleichen Durchmesser wie der Graphitkörper selbst. Durch die Heizöfen läßt sich die Temperatur des Systems regeln. Die maximal erreichbare Temperatur beträgt 1100°C. Die Länge des Rohres in den Heizöfen ist so bemessen, daß sich das Gas auf die vorgegebene Temperatur aufheizt, bis es den Graphitkörper erreicht.

⁴⁷ ASR - IRS ist die Graphitsorte, die heute bei Hochtemperaturreaktoren für die Graphiteinbauten verwendet wird. H - 451 ist ein anderer Strukturgraphit, an dem die meisten Koeffizienten gemessen wurden. In ihrer Wechselwirkung mit Spaltprodukten ist ein ähnliches Verhalten zu erwarten, so daß es allgemein üblich ist, diese Daten zu übertragen.

Bevor das Gas in den Bereich der Heizöfen eintritt, durchläuft es verschiedene Vorbereitungsprozesse. Am Anfang des offenen Kreislaufs wird aus Vorratsflaschen das Gas Argon eingeleitet. Das reine Gas wird in einem Filter noch zusätzlich von Verunreinigungsresten wie Wasserstoff und Sauerstoff gereinigt. Die Durchsatzmenge des Gases kann geregelt und gemessen werden. Für eine Meßreihe wird ein konstanter Durchsatz eingehalten.

Das vorbehandelte Gas passiert die Cäsiumquelle (es handelt sich um nicht radioaktives Cäsium). Die Quelle kann geöffnet und geschlossen werden. Die von ihr abgegebene Cäsiummenge wird über den Dampfdruck, der von der Temperatur des Cäsiums in dem Vorratsgefäß abhängig ist, reguliert. Mit diesem Verfahren können Cäsium-Partialdrücke von $5 \cdot 10^{-7}$ bis 10^{-4} bar eingestellt werden. Hinter der Quelle befindet sich eine Meßeinrichtung, die durch Entnahme eines Teilstroms des Gases die Cäsiumkonzentration vor Eintritt in die Versuchsanordnung mißt. Danach ist keine Beeinflussung oder Messung über die Rohr-Ofen-Strecke möglich. Es kann nur die Cäsiummenge, die aus der Rohrleitung austritt, gemessen werden. Beide Messungen erfolgen in Separatoren, die auf -20°C gekühlt sind und mit ihren Metallflächen das Cäsium aufnehmen. Diese Separatoren werden in Zeitintervallen ausgetauscht und der Cäsiuminhalt mittels Atomabsorptionsspektrometrie gemessen.

4.3 Ergebnisse des Deckenreflektorexperimentes

Entsprechend dieser Meßmöglichkeiten wird auch die Versuchsauswertung durchgeführt. Das Ergebnis wird als zeitabhängiger Escapefaktor angegeben. Dieser Escapefaktor ist der Quotient aus der bis zu diesem Zeitpunkt ausgetretenen Cäsiummenge zu der bis dahin insgesamt zugeführten Cäsiummenge.

Die Durchführung des Versuchsablaufs ist wie folgt: Das System wird bis zu der gewünschten Temperatur aufgeheizt. Durch das Öffnen der Cäsiumquelle für eine Zeitspanne von 10 Stunden wird der Gasstrom mit Cäsium beladen. Danach wird die Cäsiumquelle geschlossen, und es wird untersucht, in welchen Zeiträumen wieviel des Cäsiums den Graphitkörper passieren kann. Dazu wird in langen Zeiträumen von der Größenordnung 500 Stunden der Graphit entsprechend Abb. 18 auf Seite 63 auf konstanten Temperaturen gehalten.

Erschwerend bei der Auswertung der Versuche ist, daß der Beladevorgang bei demselben Graphitkörper mehrfach durchgeführt wird. Es ist daher nicht möglich, die einzelnen Versuchsphasen getrennt auszuwerten, da sie sich gegenseitig beeinflussen. Ob die bisher angewandte Versuchsdurchführung ausreichend ist, alle offenen Fragen zu beantworten, soll bei der Diskussion der Nachrechnungen angesprochen werden.

Die Abb. 18 auf Seite 63 stellt die Ergebnisse des bisher aussagekräftigsten Versuchsablaufes dar. Dieser Versuchszyklus wird auch in dieser Arbeit als Grundlage für die Nachrechnung verwendet. Durch das Aufeinanderfolgen der Beladungen muß berücksichtigt werden, daß sich die Gesamtmenge des zugeführten Cäsiums immer mehr erhöht

und sich damit alle schon durchgeführten Beladungsphasen bei den folgenden reduzierend auf die Veränderungen des Escapefaktors auswirken.

Bei der Darstellung der Ergebnisse werden alle Größen, die während der Versuchszeit verändert werden, mit in die Abbildung aufgenommen. Oben in der Abbildung kann man den Zeitpunkt und die Menge des bei jeder Beladung zugeführten Cäsiums ablesen. Die Beladezeit beträgt immer 10 Stunden. Anhand der Zeitachse kann abgelesen werden, wie lang dann die anschließenden Temperaturphasen sind. Unten in der Abbildung wird der Temperaturverlauf, der während des Experimentes eingestellt wurde, dargestellt. In der Mitte befindet sich die Ergebnisdarstellung: der zeitliche Verlauf des Escapefaktors. Die Punkte mit den Strichen (die Striche stellen die Meßunsicherheit dar) geben die gemessenen Versuchsergebnisse an. Der durchgezogene Linienzug gibt die Ergebnisse der Nachrechnung des Experimentes durch Iniotakis wieder. Iniotakis⁴⁸ verwendet zu dieser Nachrechnung sein Modell PATRAS-CORE. Hierbei handelt es sich um eine der komplexeren Modellvorstellungen, die zur Zeit untersucht werden, um die Vorgänge genauer nachrechnen zu können. Sie liefert bereits eine eindrucksvolle Nachrechnung der Versuchsergebnisse. Das Modell von Iniotakis wird von Dannert⁴⁹ diskutiert. Unten im ESCAPE-Diagramm stehen noch die Kennzeichnungen der einzelnen Versuchsabschnitte.

Als Parameter, der nicht aus der Abbildung hervorgeht, ist noch der Massenstrom des Argons von $0.3 \cdot 10^{-3} \text{ Norm m}^3/\text{s}$ zu nennen.

Besonders gut kann man anhand des ersten Teilversuches verstehen, welche Ergebnisse die Versuche zeigen. Während der Beladephase bleibt der Escapefaktor niedrig. Er liegt im Bereich zwischen 0 und 0.1. Das Gas strömt im Rohr mit einer Geschwindigkeit von etwa 15 cm/s bei 800 °C. Durch die Querschnittsverengung beträgt die Geschwindigkeit in den Bohrungen des Graphitkörpers etwa 70 cm/s. Es dauert also weniger als eine Sekunde, bis das gesamte Gas im Graphitkörper ausgetauscht ist. Die einzige Erklärung für den geringen Escapefaktor in der Beladungsphase ist, daß das Cäsium im Graphit gebunden wird. Schon während der Beladephase beginnt der Escapefaktor anzusteigen. Er steigt erst schnell und dann immer langsamer an. Da immer nach einem Zeitraum von 300. bis 500 Stunden neu beladen wird, kann nicht entschieden werden, ob der Escapefaktor auf eine Asymptote läuft. Das in SPTRAN verwendete Modell würde wieder zu einem vollständigen Leerlaufen (also keine Asymptote) des Graphites nach extrem langen Zeiten führen.

Zusammenfassend können die Vorgänge so beschrieben werden: Der Graphit besitzt die Fähigkeit, sehr schnell große Mengen an Cäsium aufzunehmen, wenn im Gas ein entsprechendes Angebot vorliegt. Nach dem Abschalten der Beladung gibt er das

⁴⁸ Iniotakis et al., The Retardation Effect of Structural Graphite on the Release of Fission Products in Case of Hypothetical Accidents of HTRs, 1982.

⁴⁹ Dannert, Mehrphasendiffusion von Spaltprodukten im Graphit, 1989, S. 61 ff.

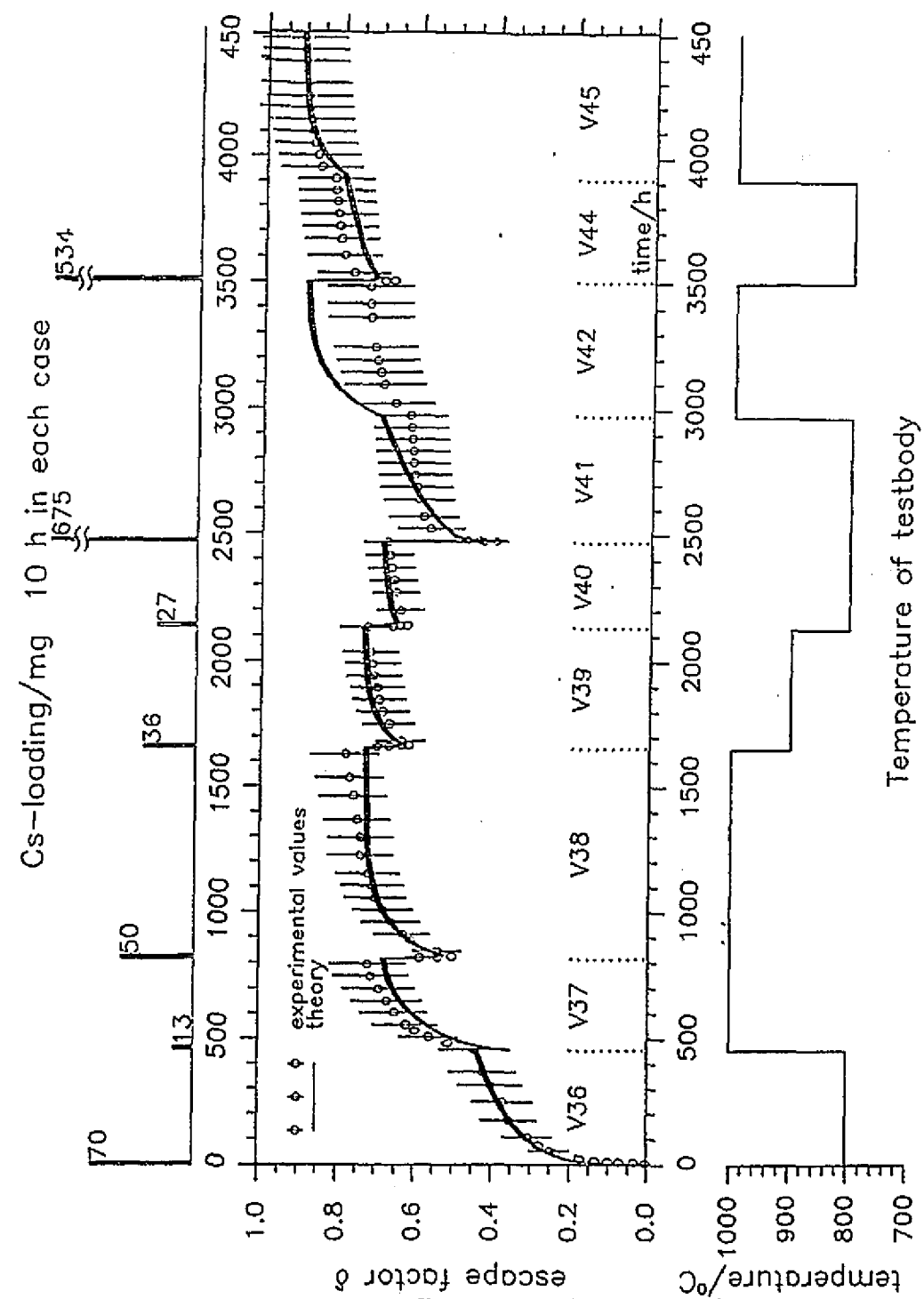


Abb. 18. Ergebnisse des Deckenreflektorexperimentes:

Quelle: Iniotakis et al., Die relevanten Transportmechanismen von Cäsium in Deckenreflektorgraphit bei einer HTR-Coreaufheizung, Jül-Bericht in Vorbereitung.

Spaltprodukt wieder ab. Dieser Vorgang ist aber deutlich langsamer als die Aufnahme und besitzt einen zeitlich stark abnehmenden Quellterm.

Dieses Verhalten wird in den nachfolgenden Versuchsfolgen weiter bestätigt. Nur kann der Escapefaktor nicht mehr auf sehr kleine Werte zurückfallen, da alles bereits ausgetretene Cäsium bei den folgenden Versuchen zur Berechnung des Escapefaktors integral berücksichtigt wird. Aber bei jeder erneuten Beladung zeigt sich, daß der Escapefaktor sprunghaft kleiner wird. Dies ist der Effekt, daß die neu hinzugeführte Cäsiummenge direkt beim Eintrittsintegral mitgerechnet wird. Das Austreten dieses Cäsiums erfolgt dann aber durch die Rückhaltefähigkeit des Graphitkörpers zeitverzögert.

Erwähnt werden muß noch, daß bei den ersten Teilversuchen immer Cäsiummengen in der Größenordnung von 50 mg/10 h zugeführt werden. Bei den beiden letzten dagegen 10 mal mehr. Hier ist die Größenordnung 500 mg/10 h.

4.4 Beschreibung des Rechenprogramms TOPRE

Die Auskopplung der Programmteile von SPTRAN, die die Freisetzung aus dem Brennelement beschreiben, und ihre Zusammenfassung im Programm KUGEL haben sich als großer Fortschritt erwiesen. SPTRAN ist durch seine Fähigkeit, einen gesamten Reaktor zu rechnen, so groß und umfangreich und auch so stark an die thermohydraulische Reaktorrechnung gekoppelt, daß es nach Meinung des Autors zu unhandlich ist, um Versuche nachzurechnen, die nur die Wechselwirkung einer Reaktorkomponente mit den Spaltprodukten simulieren.

Gerade bei diesen Versuchsnachrechnungen ist es nötig, das Rechenmodell möglichst genau an die Versuchsbedingungen anzupassen. Dazu ist ein kleineres spezielles Programm, welches nur die relevanten Programmteile enthält, viel besser in der Lage. Daher wurde zur Nachrechnung der Deckenreflektorexperimente das Programm TOPRE entwickelt.

Bei der Auskopplung wird die Methode beibehalten, die von SPTRAN übernommene Numerik möglichst ohne Veränderungen zu verwenden, um die Erkenntnisse, die bei den Versuchsnachrechnungen gewonnen werden, direkt auf SPTRAN anwenden zu können.

4.4.1 Transportmechanismen in TOPRE

Im Unterschied zum Programm KUGEL muß im Programm TOPRE eine vollständige Gasphasenrechnung aufgebaut werden. Bei KUGEL reicht es, nur ein Brennelement zu betrachten und als Randbedingung eine Gaskonzentration in der Größenordnung von Null anzusetzen, um dann die Konzentrationsverteilungen in den Coated Particles, im Brennelement und schließlich den Quellterm ins Gas zu berechnen. Bei der Deckenreflektornachrechnung muß die Gasphase mit vollständiger Strömungs- und

Gasdiffusionsrechnung mit geeigneten Mascheneinteilungen und Randbedingungen aufgebaut werden.

Um den Aufbau der Simulationsrechnung besser zu verstehen, ist es sinnvoll, sich zuerst einmal die möglichen Transportmechanismen für die Spaltprodukte im Deckenreflektor anzusehen.

Die bisherigen Hochtemperaturreaktorkonzepte sind im Corebereich weitestgehend zylindergeometrisch aufgebaut. Daher wird die Gasrechnung in diesem Bereich auch nur zweidimensional durchgeführt. Im behandelten Kreislauf genügt eine eindimensionale Beschreibung. Bei der Gasrechnung im Corebereich setzt sich die Bewegung des Gases und auch der Spaltprodukte aus einer radialen und einer axialen Komponente zusammen. Hierbei wird die Gasströmung dem Programm SPTRAN durch die thermohydraulische Rechnung vorgegeben. Die Spaltprodukte werden von der Gasströmung mitgeführt und können sich durch Diffusion auch relativ zum Gasstrom bewegen. Im Deckenreflektor kann das Gas nur entlang der Bohrungen strömen. Es wird immer eine laminare Strömung angenommen. Da die Bohrungen einen geringen Durchmesser haben, wird vereinfachend angenommen, daß sich der Gastransport nur entlang der Bohrungen vollzieht. Daher wird in den Deckenreflektorkomponenten die Mascheneinteilung der Gasphase nur axial in den Bohrungen vorgenommen. Dies bedeutet, daß das Rechenprogramm an jeder axialen Stelle einer Bohrung nur eine Cäsiumkonzentration kennt.

Der Graphit-Gas Quellterm erfolgt aus Richtung Graphitwand. (Die Normalrichtung der Spaltproduktströme wurde bei der Brennelement- und Coated Particle-Betrachtung festgelegt und zeigt daher immer in Richtung Freisetzung aus dem Graphit heraus. Dies wird im gesamten Programm beibehalten.) In den Bohrungen wird kein radialer Konzentrationsgradient berücksichtigt. Ein solcher entsteht aber in der Grenzschicht, in der er durch die Formulierung des Quellterms, die analog zu der gewöhnlich beim Wärmetransport⁵⁰ verwendeten Beschreibung erfolgt, berücksichtigt wird. Anstatt des Wärmeübergangskoeffizienten α steht nun der Stoffübergangskoeffizient β . Damit ergibt sich beim Stoffübergang in der Grenzschicht auf der Gasseite die Gleichung (4.4-1).

$$\dot{Q}_{Gas,Wand - Gas,00} = O \cdot \beta [C_{Gas,Wand} - C_{Gas,00}] \quad (4.4 - 1)$$

$\dot{Q}_{Gas,Wand - Gas,00}$	: Quellterm, gasseitig
O	: geometrische Graphitoberfläche
β	: Stoffübergangskoeffizient im Gas
$C_{Gas,Wand}$	: Gaskonzentration, wandnah
$C_{Gas,00}$	: Gaskonzentration in der Masche

⁵⁰ Vgl. Renz, Grundlagen der Wärmeübertragung, 1985, S. 63.

Das Konzentrationsgefälle ergibt sich durch die Einführung der Gaskonzentration wandnah ($C_{Gas,Wand}$). $C_{Gas,oo}$ ist dagegen die aus der Gasrechnung gewonnene Konzentration der Maschen im Kanal.

Der Stoffübergang von der wandnahen Gaskonzentration zum Graphit wird durch einen Ansatz der kinetischen Gastheorie beschrieben.

$$\dot{Q}_{Graphit,Wand - Gas,Wand} = O \cdot \chi \sqrt{\frac{kT}{2\pi m}} [\alpha \cdot C_{Graphit,Wand} - C_{Gas,Wand}] \quad (4.4 - 2)$$

$\dot{Q}_{Graphit,Wand - Gas,Wand}$: Quellterm an der Graphitoberfläche

O : geometrische Graphitoberfläche

χ : Haftkoeffizient

$\sqrt{\frac{kT}{2\pi m}}$: Adsorptionsgeschwindigkeit, abgeleitet aus der kinetischen Gastheorie

$\alpha \cdot C_{Graphit,Wand}$: Gaskonzentration für Desorption, die sich nach der Sorptionsisotherme aus der Graphitkonzentration am Rand einstellt

$\alpha(T, C_{Graphit,Wand})$: funktionale Darstellung der Sorptionsisothermen

$C_{Gas,Wand}$: Gaskonzentration, wandnah

Da diese beiden Stoffübergänge direkt hintereinandergeschaltet sind, muß zwischen ihnen die Stetigkeit der Ströme gelten.

$$\dot{Q}_{Graphit,Wand - Gas,Wand} = \dot{Q}_{Gas,Wand - Gas,oo} \quad (4.4 - 3)$$

Durch die Beziehung der Gleichung (4.4-3) kann aus den beiden Gleichungen davor die Konzentration $C_{Gas,Wand}$ eliminiert werden.

$$\dot{Q}_{Graphit,Wand - Gas,oo} = O \frac{\beta}{1 + \frac{\beta}{\chi \sqrt{\frac{kT}{2\pi m}}}} [\alpha C_{Graphit,Wand} - C_{Gas,oo}] \quad (4.4 - 4)$$

Den in dieser Gleichung neu entstandenen Ausdruck kann man als ein $\hat{\beta}$ auffassen, als Stoffübergangskoeffizienten für den zusammengefaßten Quellterm.

$$\hat{\beta} = \frac{\beta}{1 + \frac{\beta}{\chi \sqrt{\frac{kT}{2\pi m}}}} \quad (4.4 - 5)$$

Die Zahlenwerte der Größen zeigen, daß:

$$\chi \sqrt{\frac{kT}{2\pi m}} \gg \beta \quad (4.4 - 6)$$

Dies bedeutet, daß die Ad-/Desorption vom Graphit zum Gas um Größenordnungen schneller ist als der Stoffübergang im Gas. Das rechtfertigt die Annahme, für den Koeffizienten $\hat{\beta}$ einfach β zu verwenden. Der hierdurch bedingte Fehler ist vernachlässigbar. Daher ergibt sich als Formulierung für den Quellterm die Gleichung (4.1-1), die schon am Anfang des Kapitels vorgestellt wurde.

Im Programm SPTRAN bestand die Möglichkeit, die geometrische Oberfläche, die für die Gas-Graphitkopplung wesentlich ist, mit Hilfe eines im Input zu setzenden Rauigkeitsfaktors zu vergrößern. Eine solche Veränderung ist bei dem gerade beschriebenen Ansatz falsch, denn es wurde gezeigt, daß als letztlich bestimmender Vorgang der Transport der Spaltprodukte in der Grenzschicht relevant ist. Und hierbei ist nur die zu überbrückende geometrische Oberfläche anzusetzen. Auch bei der Anlagerung an den Graphit gilt diese Aussage. Der Einfluß der Rauigkeit des Graphites auf die Sorptionsfähigkeit ist in den gemessenen Sorptionsisothermen enthalten, die Mengenbeladung bilanzieren, aber keine Flächenbelegung.

Die Einführung einer Rauigkeit der Oberfläche ist nur dann sinnvoll, wenn man Beladungen über die Belegung der Oberfläche angeben will. Dann kann die mögliche Beladungsmenge mit Hilfe des Rauigkeitsfaktors eingestellt werden⁵¹. Bei der Betrachtung von Strömen ist jedoch nur die geometrische Oberfläche relevant.

Die Gleichung (4.1-1) wird in SPTRAN zur Beschreibung des Graphit-Gas Quellterms verwendet. Sie ist für die Kopplung von Gas- und Graphitphase verantwortlich. Die Kopplung wird im Kapitel 4.4.4 "Aufbau des verschachtelten Iterationssystems" noch eine wichtige Rolle spielen, weil das Rückhaltevermögen des Graphites zum Teil so groß ist, daß im Einzelfall bei den Nachrechnungen der Deckenreflektorexperimente dieser Quellterm aus der Gasphase so große Prozentsätze des Cäsiuminventars in den Graphit aufnimmt, daß die zur Zeit in SPTRAN verwendeten Rechenmodelle damit überfordert werden und die Ausführung abbrechen können.

Im Graphit selber verwendet das Rechenprogramm SPTRAN den Ansatz der einphasigen Fick'schen Diffusion. Dieser Transportmechanismus ist im Kapitel 3, das die Ausheizversuche von Schenk behandelt, eingehend beschrieben worden.

4.4.2 Aufbau des Rechenprogramms

Vom Graphitkörper werden dem Programm der Durchmesser und die Länge (diese schon mit axialer Maschenteilung) als Eingabe übergeben. Die Bohrungen werden durch

⁵¹ Bei einer Oberfläche, die nur eine Monolage einer Molekülsorte speichern kann (dies entspricht einer festen Anzahl Moleküle pro m³) erhöht sich die Speicherfähigkeit der Oberfläche um den Betrag des eingeführten Rauigkeitsfaktors. Die wahre Oberfläche ist dann relevant für die Speicherfähigkeit, nicht aber die geometrische Oberfläche.

ihren Durchmesser und den Leervolumenanteil des Graphitkörpers beschrieben. Aus diesen Angaben berechnet das Programm ein fiktives Graphitrohr, das stellvertretend für alle Bohrungen bei den Rechnungen verwendet wird. Das fiktive Graphitrohr hat den Durchmesser der Bohrungen als Innendurchmesser und einen so gewählten Außendurchmesser, daß das Verhältnis von Innenvolumen zu Gesamtvolumen genau dem vorgegebenen Leervolumenanteil des Graphitkörpers entspricht. Damit ist dem Programm bekannt, wieviel Graphit jeder Bohrung zur Aufnahme des Cäsiums zur Verfügung steht.

An dem Graphitrohr wird im Programm die eigentliche Cäsiumaufnahme simuliert. Mit der Anzahl der fiktiven Rohre (sie entspricht den realen Bohrungen) werden alle Quellterme zwischen dem einen im Programm betrachteten fiktiven Rohr und der in realer Größe betrachteten Gasphase multipliziert. So wird an dieser Stelle die reduzierende Betrachtung nur eines fiktiven Graphitrohres ausgeglichen.

4.4.3 Anpassung an das Deckenreflektorexperiment

Eine wichtige Anpassung an den Versuch stellt die Auskopplung der Programmteile zum Programm TOPRE dar. Von besonderem Interesse ist noch die Formulierung der Randbedingungen.

Im Versuch wird statt Helium (wie im Hochtemperaturreaktor) Argon verwendet. Hierdurch wird die Wechselwirkung zwischen dem Graphit und dem Cäsium nicht berührt. Die Mobilität des Cäsiums ist aber relativ zum Argon verschieden zu der Mobilität der Paarung Cäsium-Helium. Die bestimmende Größe hierfür ist der binäre Gasdiffusionskoeffizient.

Berger-Rossa hat im Programm SPTRAN einen komplexen Ansatz⁵² gewählt. Dieser wird durch den Ansatz von Batalas⁵³ ersetzt. Dieser Ansatz ist einfacher und wird auch von anderen Programmen bei den Spaltproduktrechnungen verwendet. Die einfache Formulierung für den binären Gasdiffusionskoeffizienten lautet:

⁵² Berger-Rossa, Rückhaltung und Umverteilung von Spaltprodukten im Core und im Primärkreislauf von Hochtemperaturreaktoren bei hypothetischen Störfallereignissen, 1988, S. 27 f.

⁵³ Batalas, Theoretische Untersuchung zur Diffusion von binären Gasgemischen im Hinblick auf den HTR.

$$Diff_{Gas} = D_0 \cdot \left(\frac{T}{273} \right)^{1.69} \cdot \frac{p_0}{p} \quad (4.4 - 7)$$

D_0 für Helium	: 0.4305 [cm ² /s]
D_0 für Argon	: 0.0939 [cm ² /s]
T	: Temperatur [K]
p_0	: Bezugsdruck [1 bar]
p	: Druck [bar]

Nur durch die Anpassung von D_0 kann die ganze Rechnung an das andere Trägergas angepaßt werden.

Bei der Deckenreflektornachrechnung hat man keinen geschlossenen Gaskreislauf mehr. Der offene Kreislauf muß mit den entsprechenden Randbedingungen versehen werden. Das Programm TOPRE hat zwei spezielle Eingabedatensätze, um diese Anpassung vorzunehmen. Da ist zunächst der Datensatz, der alle durch die neue Schnittstelle entstandenen, sich aber über den Versuchsablauf nicht ändernden Größen enthält. In ihm befinden sich die geometrischen Werte des Graphitkörpers und auch der konstante Argonmassenstrom für die jeweilige Versuchsdurchführung.

Der zweite Datensatz enthält alle über die Versuchsdurchführung variablen Daten. Er ist so aufgebaut, daß erst die Zeitsteuerung durch die Angabe aller zu berechnenden Zeitpunkte erfolgt. Dazu können bei jedem Zeitschritt Angaben über die Temperatur des Systems und auch eine feste Cäsiumkonzentration am Gaseintritt des Graphitkörpers vorgegeben werden.

Aus dem zeitlichen Verlauf dieser Cäsiumkonzentration, multipliziert mit dem Volumenstrom des Trägergases, ergibt sich der Eintrittsstrom des Cäsiums. Die extremen Beladbedingungen werden durch eine Stufenfunktion der Cäsiumeintrittskonzentration realisiert. Bei Beginn einer Beladephase wird die Konzentration direkt auf den Wert eingestellt, der zu der Cäsiummenge pro Beladung führt. Bei allen Entladephasen wird die Konzentration zu Null gesetzt. So ergibt sich die Eingangsrandbedingung. Auf der Ausströmseite wird die sich einstellende Ausgangskonzentration festgehalten.

Um den Escapefaktor berechnen zu können und zudem eine zusätzliche Kontrolle zu haben, wird die integral eingetretene und ausgetretene Cäsiummenge errechnet und festgehalten. So kann mit den im System befindlichen Inventaren immer die Gesamtbilanz kontrolliert werden.

4.4.4 Aufbau des verschachtelten Iterationssystems

Eine Beschreibung des Aufbaus des Iterationssystems und der Schwierigkeiten, die dieses System in sich birgt, soll helfen, die besonderen Probleme bei der Berechnung des Spaltproduktransportes besser zu verstehen und auch zu eventuellen Programmverbesserungen führen.

Schon im Kapitel 2 ist auf die herausragende Bedeutung des Sorptionsmodells hingewiesen worden. Die Abb. 18 auf Seite 63 hat gezeigt, wie groß die aktuelle Aufnahme von Spaltprodukten in den Graphit sein kann. Daher soll noch einmal herausgestellt werden, daß sich an der Phasengrenze zwischen dem Graphit und dem Gas die extremen Austauschprozesse beim Spaltprodukttransport einstellen.

An dieser Stelle ist in SPTRAN ein Iterationsverfahren installiert, welches die Berechnung des Quellterms zwischen Gas und Graphit realisiert. Es ist sehr aufwendig und komplex, weil es durch die Konzentrationsabhängigkeit der Sorptionsisothermen einen nichtlinearen Zusammenhang lösen muß. Die Aufgabe des Iterationsverfahrens ist es, die Rückwirkungen der Veränderungen der Gas- und Graphitkonzentration auf den Quellterm und umgekehrt zu berücksichtigen.

Dieses Verfahren funktioniert bei Störfallrechnungen ohne Programmabbrüche. Es ist aber letztlich der Grund für die enormen Rechenzeitanforderungen von SPTRAN. Bei den Nachrechnungen der Deckenreflektorexperimente hat das Verfahren mehrfach seine Grenzen durch Programmabbrüche gezeigt. Hier sind die Gradienten durch die stufenförmige Beladung so extrem, daß diese Schwierigkeiten zu erwarten waren und nur durch extrem kleine Zeitintervalle aufgefangen werden konnten.

Als wichtige Frage für die zukünftige Arbeit am Programm SPTRAN bleibt: Worin sind die Schwierigkeiten begründet und gibt es Verbesserungsmöglichkeiten?

Analog zur Behandlung der Iteration über den Quellterm zwischen Coated Particle und Brennelement besteht die Möglichkeit, zu einer Rechnung überzugehen, die nicht mehr iteriert, sondern die Werte des letzten Rechenschrittes für die Berechnung des Quellterms heranzieht und diesen dann unverändert benutzt. Dies ist nach Meinung des Autors eine nicht zulässige Vereinfachung, da die Kopplung Gas-Graphit die sensitivste Beziehung in den Freisetzungsrechnungen ist. Einer der wichtigsten Gründe hierfür ist das völlig verschiedene dynamische Verhalten der Transportvorgänge im Gas und im Graphit. Die Dynamik der Transportvorgänge im Gas ist um so viele Größenordnungen schneller, daß nicht zu erwarten ist, daß Fehler, die bei der Bestimmung der Quellterme bei einem Zeitschritt eintreten, sich im folgenden durch die Trägheit der Vorgänge von selbst korrigieren. Die Ausgleichsgeschwindigkeiten im Gas sind so groß, daß sich die Selbstkorrektur vermutlich nur bei unrealistisch kleinen Zeitschritten einstellen wird.

Der Grund weshalb die zur Zeit verwendete Iteration so wenig befriedigend arbeitet, liegt in ihrem Aufbau. Erst werden mit festgehaltenen Gaskonzentrationen für den gesamten Reaktor die Quellterme global bestimmt, danach werden mit den festgehaltenen Quelltermen global die neuen Gaskonzentrationen bestimmt. Mit diesen wird dann die Quelltermberechnung wiederholt und diese Wiederholung der Schritte solange fortgesetzt, bis die Lösung iterativ gefunden ist. Dieses Verfahren soll im weiteren "Globale Iteration" genannt werden.

Die Verbesserungsidee, die von Scherer vorgeschlagen wird, ist der Übergang zu einer "Lokalen Iteration" an dieser Stelle. Unter Lokaler Iteration ist zu verstehen, daß nach-

einander für alle Gasmaschen die Konzentrationen berechnet werden. Dabei wird direkt der Austausch der Spaltprodukte mit dem Graphit für die jeweils behandelte Masche gelöst. Dieses Verfahren bedeutet eine geänderte Formulierung des Transportmechanismus in der Gasphase, die jedoch nicht zu einer unzulässigen Verschlechterung der Modellierung führt. Eine solche Formulierung wird von den Programmen THERMIX und TINTE⁵⁴ für den Wärmetransport in der Gasphase benutzt.

Nach Meinung des Autors könnte die Umstellung des Iterationsverfahrens von "Globaler Iteration" auf "Lokale Iteration" und die anschließende Programmüberprüfung im Rahmen einer Promotionsarbeit gelöst werden. Diese grundlegende Verbesserung würde fast alle noch mit SPTRAN bestehenden Probleme lösen. Die Rechenzeit könnte um Faktoren sinken und die Numerik deutlich robuster werden.

4.5 Erste Ergebnisse und Festlegen der Koeffizienten

Für alle Nachrechnungen werden in dieser Arbeit die Werte für die Diffusion und die Sorption des Cäsiums dem Statusbericht "Spaltproduktfreisetzung"⁵⁵ entnommen.

Die Nachrechnung mit diesen Daten kommt zu den in der folgenden Abbildung dargestellten Ergebnissen.

⁵⁴ Bei diesen Programmen handelt es sich um die im Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik eingesetzten Programmsysteme zur Berechnung der thermohydraulischen Vorgänge in Hochtemperaturreaktoren.

⁵⁵ Moormann, Methodik umfassender probabilistischer Sicherheitsanalysen für zukünftige HTR-Anlagen, Band 3: Spaltprodukte, 1987.

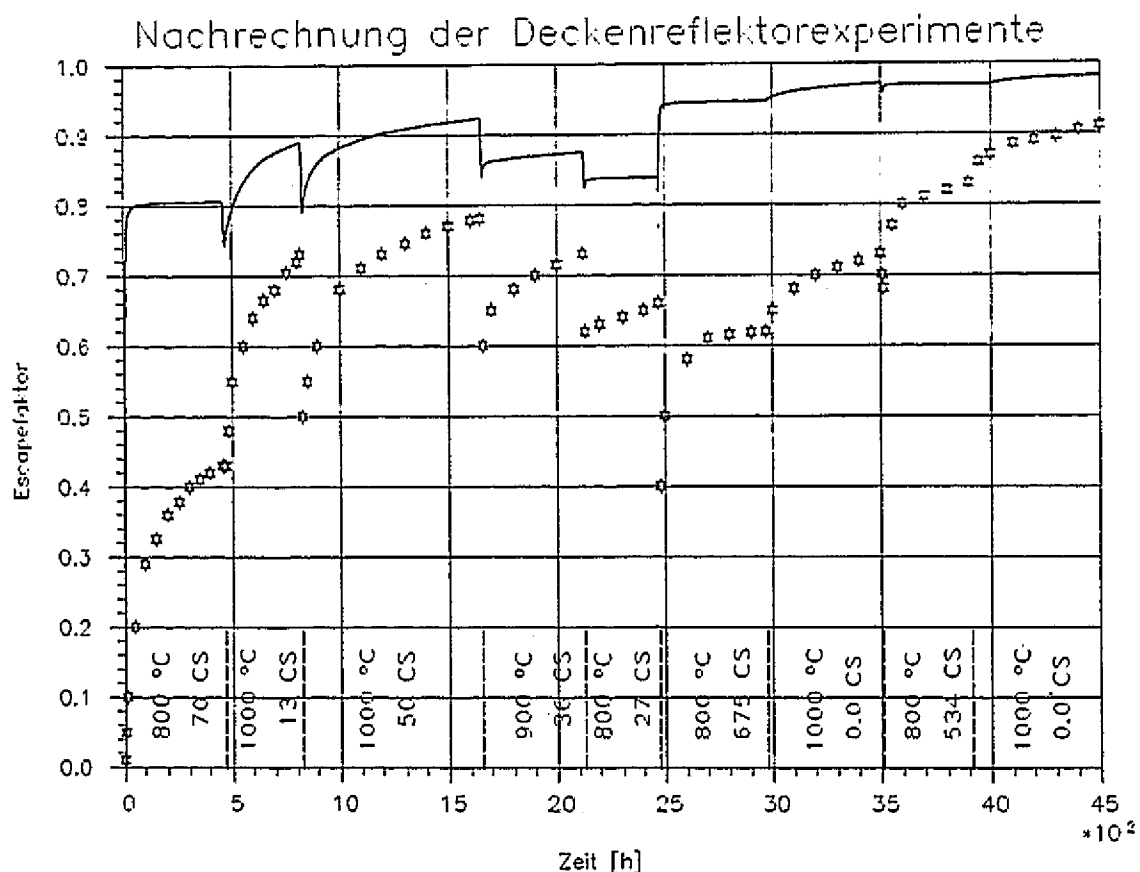


Abb. 19. Versuchsnachrechnung mit den Daten des Statusberichtes

Die Sternchen geben den Verlauf des gemessenen Escapefaktors wieder (es wurden die Meßergebnisse aus Abb. 18 auf Seite 63 übernommen). Die Rechnung ergibt eine viel höhere Freisetzung als das Experiment. Besonders deutlich sieht man dies bei dem ersten Teilversuch. Hier erreicht die Freisetzung im Experiment einen Wert von 45% nach 460 Stunden, wogegen die gerechnete Kurve schon nach wenigen Stunden auf einen Wert von 80% ansteigt und sich dann nur noch geringfügig erhöht. Es stimmen weder der Endwert noch der Verlauf überein. Bei den weiteren Teilversuchen wird die Übereinstimmung nur optisch besser. Da der Escapefaktor nur maximal 1 werden kann, können bei hohen gemessenen Escapewerten keine so großen Abweichungen mehr auftreten.

Man muß daher festhalten, daß mit den empfohlenen Daten keine hinreichende Übereinstimmung mit dem Experiment erreicht werden kann.

Dieses Ergebnis erfordert eine kritische Auseinandersetzung mit den sich einstellenden Transportvorgängen und ihren bestimmenden Koeffizienten. Die Zielsetzung muß sein, herauszufinden, mittels welcher Veränderung der Eingabedaten eine bessere Überein-

stimmung mit den Experimenten zu erreichen ist, und ob solche Parameter-Veränderungen physikalisch begründbar und zulässig sind.

Es ist daher sinnvoll zu untersuchen, welche Effekte für die zu geringe Cäsiumaufnahme verantwortlich sind. Im hier verwendeten Modell können theoretisch nur zwei Transportvorgänge als Hemmschwellen wirken. Einmal kann der Transport des Spaltprodukts aus der Gasphase an die Graphitoberfläche zu schlecht oder der diffusive Transport in den Graphit hinein zu langsam sein. (Unter "Diffusiver Transport in den Graphit hinein" soll der Vorgang verstanden werden, der bisher mit der Formulierung "Speicherung in der Tiefe des Graphits" bezeichnet wurde.) Ein Vergleich des Volumenstroms im Trägergas mit dem Strom in der Grenzschicht zur Graphitoberfläche ermöglicht eine Abschätzung, welcher Cäsiumanteil dem Gas maximal entzogen werden kann. Der Volumenstrom ist das Maß, wie schnell die Spaltprodukte durch den Graphitkörper befördert werden. Der Strom zur Graphitwand in der gesamten Grenzschicht ist das Maß, in welchem Umfang die Spaltprodukte zur Graphitoberfläche befördert werden. Der Quotient aus Strom zur Wand zum Volumenstrom ergibt den Anteil der Spaltprodukte, die maximal in den Graphit gelangen können.

Für den Volumenstrom des Trägergases gilt $\dot{V} \approx 1 \cdot 10^{-3} \frac{m^3}{s}$ und für den Strom zur Wand $O \cdot \beta \approx 8 \cdot 10^{-3} \frac{m^3}{s}$. Die Abschätzung zeigt, daß vom Strom zur Wand keine so große Beschränkung der Spaltproduktaufnahme zu erwarten ist. Vielmehr ließe das Zahlenverhältnis eine fast 100%ige Anlagerung an der Wand erwarten.

Die in den ersten Rechnungen aufgetretene nur geringe Aufnahme der Spaltprodukte in den Graphitkörper kann daher nur an den Werten der Diffusionskoeffizienten im Graphit liegen. Bei den folgenden Rechnungen sind die Werte der Diffusionskoeffizienten mit festen Faktoren vergrößert worden. Das Ergebnis zeigt die Abb. 20 auf Seite 74.

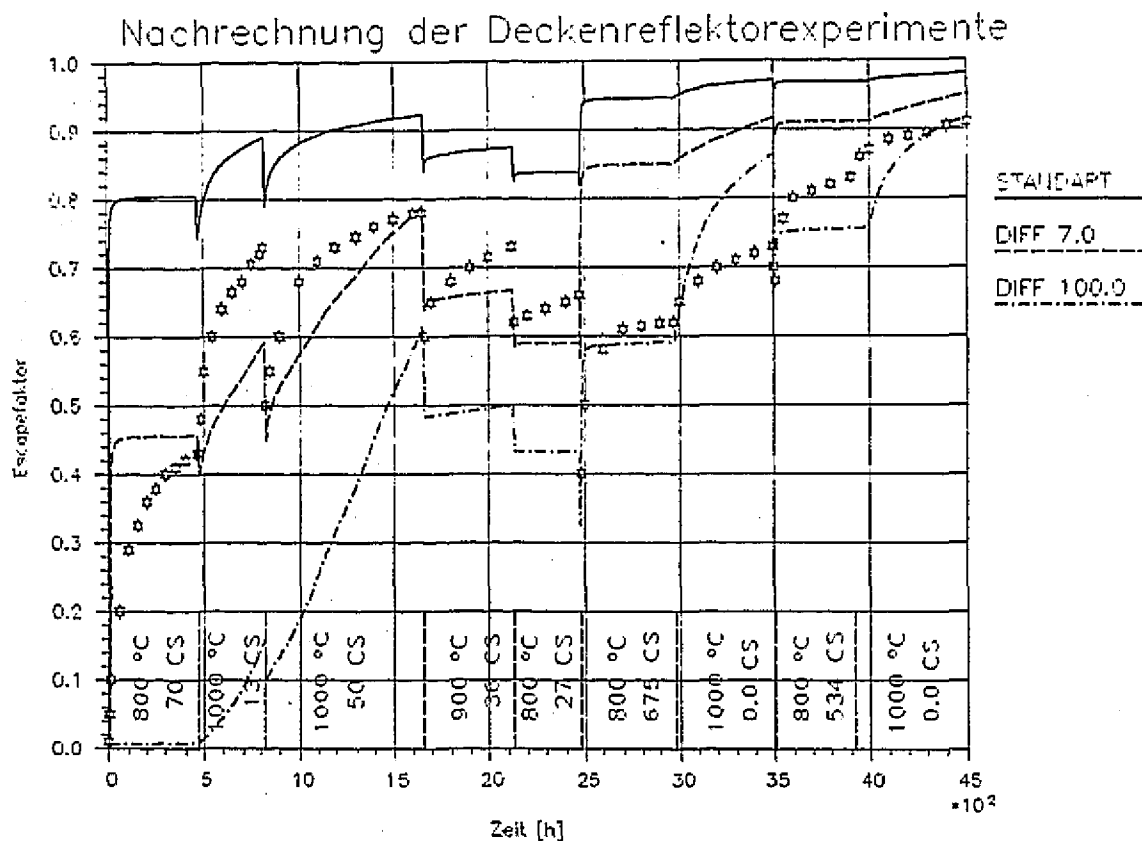


Abb. 20. Veränderung des Diffusionskoeffizienten mittels eines konstanten Faktors

Die untere Kurve zeigt, daß die Aufnahme der Spaltprodukte durch die Verbesserung des Transports im Graphit tatsächlich den Wert von 100% der Abschätzung erreichen kann. Für diese Kurve wurde der Diffusionskoeffizient um den Faktor 100 vergrößert. Es zeigt sich, daß die hierdurch berechnete Anlagerung des Cäsiums in den ersten 5 Teilversuchen viel zu groß ist. Bei diesen Teilversuchen werden dem System immer nur Cäsiummengen zwischen 13 und 70 mg pro Beladung zugeführt. Dagegen werden 675 und 534 mg bei den beiden letzten Beladungen zugeführt. Bei diesen sehr großen Beladungen stellen die Werte der Rechnung eine Annäherung an die Versuchsergebnisse dar.

Bei der mittleren Kurve, bei der der Diffusionskoeffizient um den Faktor 7 vergrößert wird, stellt sich genau der umgekehrte Zusammenhang ein. Im Bereich der geringeren Beladungen ist die Größenordnung gut getroffen, dagegen liegen die gerechneten Werte bei den höheren Beladungen viel zu hoch.

Diese Ergebnisse zeigen anschaulich, daß die Annahme einer Beschleunigung der Diffusionsvorgänge im Graphit bei hoher Beladung der richtige Weg ist, um die zu geringe Aufnahme des Cäsiums auszugleichen. Darüberhinaus zeigt sich auch, daß eine einfache lineare Vergrößerung des Diffusionskoeffizienten nur eine Verbesserung der Ergebnisse für bestimmte Belademengen bewirkt. Zusätzlich würde eine Vergrößerung

des Diffusionskoeffizienten auch die Gefahr beinhalten, daß man die Diffusion für geringe Konzentrationen unrealistisch erhöhen würde. Bei den geringen Konzentrationen sollte man die gemessenen Werte für die Diffusion so lange beibehalten, bis sie durch Experimente genauer bestimmt werden.

Aus den Kurven der obigen Abbildung ergibt sich, daß eine immer schnellere Diffusion notwendig ist, wenn die Beladmenge zunimmt. Dies bedeutet aber nichts anderes, als daß diese Überlegungen die Einführung eines konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten erfordern, wenn man den Ansatz der effektiven Diffusion weiter verwenden will.

Diese Forderung nach Einführung eines konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten wird auch von Dannert⁵⁶ und Scherer aufgestellt. Sie fordern, daß der konzentrationsabhängige Diffusionskoeffizient ein ähnliches Verhalten zeigen soll wie die Sorptionsisothermen. Dies ist eine physikalisch begründete Forderung, da Diffusion und De-Sorption (Loslösen eines Moleküls aus dem gebundenen Zustand in die Gasphase) einander verwandte Prozesse sind. Bei beiden Vorgängen ist der Ausgangszustand eine Bindung der Atome an den Festkörper mit einer festen Bindungsenergie. Um diese Bindung zu lockern oder zu lösen, ist Energie erforderlich. Die Diffusion kann bereits durch das "Lockern" ermöglicht werden. Hierbei muß die Bindung nur so weit aufgehoben werden, daß eine Bewegung im Feststoff⁵⁷ möglich wird. Wenn dagegen die Bindung ganz gelöst wird, findet die Desorption statt. Die physikalische Literatur gibt an, daß im allgemeinen für die Aktivierung der Diffusion zwischen 0.2 bis 0.5 der Energie erforderlich ist, die zur Desorption benötigt wird.

Entsprechend diesen Erkenntnissen wird für den konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten⁵⁸ die folgende Darstellung gewählt.

$$Diff(T, C_{Graphit}) = D_0 \cdot e^{-\frac{Q}{R \cdot T}} \left(1 + \frac{C_{Graphit}}{C_{Grenz}} \frac{\tau \cdot E_F}{T} \right) \quad (4.5 - 1)$$

$Diff(T, C_{Graphit})$: temperatur- und konzentrationsabhängiger Diffusionskoeffizient

$D_0 \cdot e^{-\frac{Q}{R \cdot T}}$: bisher in SPTRAN verwendete Formulierung des Diffusionskoeffizienten

$C_{Graphit}$: Spaltproduktkonzentration im Graphit

⁵⁶ Dannert, Ein Modellvorschlag für den Spaltprodukt-Transport in Graphit, 1988, S. 1 ff.

⁵⁷ Graphit ist ein sehr poröses Material, daher wird als vereinfachte Diffusionsvorstellung gern eine Oberflächendiffusion auf den Korngrenzen angenommen.

⁵⁸ Mit der Einführung des konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten beginnt Uneinigkeit, ob man einen solchen Transportvorgang noch Diffusion nennen darf. Aufgrund der besseren Verständlichkeit wird in dieser Arbeit weiter von Diffusion gesprochen.

C_{Grenz}	: Grenzkonzentration zwischen Henry- und Freundlich-Bereich
τ	: Steuerparameter für die Konzentrationsabhängigkeit
E_F	: Parameter aus der Formulierung der Sorptionsisothermen
T	: Temperatur

Dieser Ansatz enthält im Henry-Bereich die Daten des Statusberichts "Spaltprodukte", da diese aus den Messungen des Diffusionskoeffizienten gewonnen wurden und daher diesen im Henry-Bereich am besten beschreiben. Für den Übergang vom Henry- zum Freundlich-Bereich wird die Grenzkonzentration der Sorptionsisothermen übernommen und auch deren exponentieller Verlauf. Es handelt sich um einen etwas vereinfachten Ansatz, wie er von Scherer⁵⁹ und Dannert vorgeschlagen wird.

Die folgende Abbildung zeigt die Escapefunktionen, die sich für verschiedene τ -Werte ergeben.

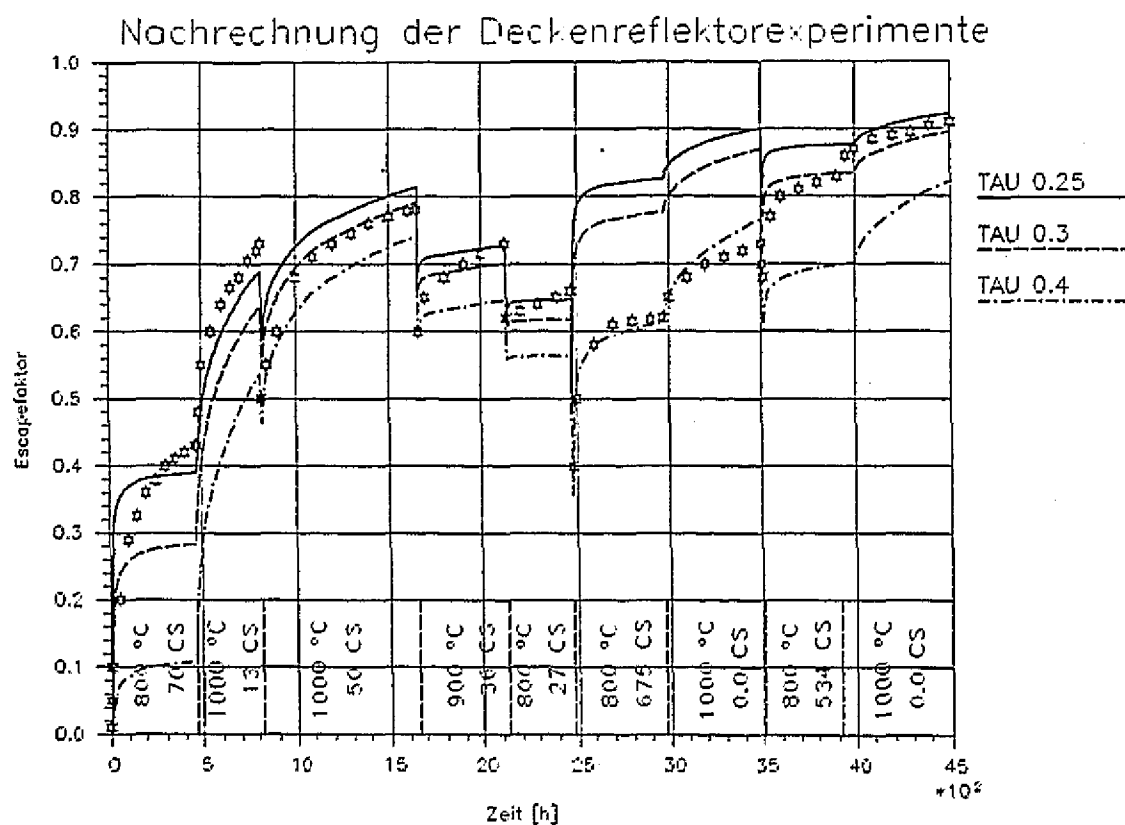


Abb. 21. Konzentrationsabhängiger Diffusionskoeffizient: Parameterstudie für τ

⁵⁹ Scherer, Ansatz einer geschlossenen Schreibweise für Sorptionsisothermen und effektive Diffusionskoeffizienten, 1990, S. 6.

Alle drei Kurven geben den Verlauf der Messungen viel besser wieder, als alle vorher betrachteten Kurven. Sie unterscheiden sich nur dadurch, daß sie unterschiedlich konservativ die Versuchsergebnisse wiedergeben. Da es in den Nachrechnungen von Störfällen immer sichergestellt bleiben sollte, daß die Rechnungen auf der konservativen Seite liegen, wird die Kurve mit $\tau = 0.25$ als Referenzkurve gewählt.

4.6 Konsequenzen

Als wichtigste Frage muß zuerst entschieden werden, ob die durch die Einführung des konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten erreichte Übereinstimmung von Versuch und Rechnung ausreichend ist.

Die Kurve mit dem τ -Wert von 0.25 in Abb. 21 auf Seite 76 gibt den Verlauf der gemessenen Versuchsergebnisse schon sehr gut wieder. Hinzu kommt, daß diese Übereinstimmung mit einer Veränderung erreicht worden ist, die letztlich eine Forderung erfüllt, die schon bei der theoretischen Betrachtung der Transportvorgänge aufgestellt worden ist. Die Konzentrationsabhängigkeit der Sorption legt es nahe, daß nach den physikalischen Zusammenhängen auch für die Diffusion ein solcher Ansatz gewählt wird. Die sich dann mit diesem Ansatz einstellende Verbesserung der Nachrechnung ist ein guter Beweis, daß diese Maßnahme eine sinnvolle Verbesserung darstellt. Dies gilt besonders, da bei einem solchen Ansatz alle anderen gemessenen Größen ohne Änderungen weiter verwendet werden können.

Dagegen zeigen sich beim genauen Vergleich der Rechnung mit den Versuchsergebnissen noch Abweichungen. So weist beim ersten Teilversuch der Verlauf der Escapefunktion keine gute Übereinstimmung auf. Genaue Untersuchungen an dieser Stelle haben zu dem Ergebnis geführt, daß bei einer Temperatur von 800°C die vorliegende Formulierung der Sorptionsisothermen nicht zu dem Verlauf der Versuche führen können. Beim Beladen erreichen die Konzentrationen den Freundlich-Bereich. Es entstehen hohe Konzentrationen im Graphit nahe der Oberfläche. Beim Entladen erniedrigen sich diese Konzentrationen schnell. Überproportional hierzu sinkt der Quellterm ins Gas, da der Wert der Sorptionsisothermen wegen der Konzentrationsabhängigkeit exponentiell fällt. Im Temperaturbereich von 800 °C scheint der Übergang zwischen Henry- und Freundlich-Bereich zu radikal zu sein. In diesem Temperaturbereich wird das reale Verhalten nur mit Einschränkungen richtig wiedergegeben. Die Sorptionsisothermen sind durch die Überführung von Meßergebnissen (Gleichgewichtsverteilung von Cäsium zwischen Gasphase und Graphit) in mathematische Modelle erzielt worden. Dabei mußte in Temperaturbereiche, in denen nicht gemessen werden konnte, extrapoliert werden. Aus diesem Grund wurden aus Sicherheitsgründen auch konservative Zuschläge eingeführt. Da aber die Abweichungen, die sich zwischen der Referenzrechnung und den Versuchsergebnissen ergeben, vertretbar sind, wurde die Entscheidung getroffen, die Werte

der Sorptionsisothermen nicht zu verändern, sondern entsprechend den Werten des Statusbericht "Band 3: Spaltproduktfreisetzung"⁶⁰ beizubehalten.

Die Abweichung bei den höheren Cäsiumbeladungen scheint eher ein Modellfehler zu sein. Alle gerechneten Kurven liefern einen jeweils ähnlich hohen Freisetzungswert für die beiden letzten Teilversuche. Dagegen zeigt das Experiment ein Verhalten, welches man vereinfachend mit "Sättigungserscheinung" kennzeichnen kann. Beim vorletzten Teilversuch wird mit 675 mg/10h Cäsium beladen. Der Escapefaktor geht noch auf 60% zurück. Beim letzten Versuch werden nur 534 mg/10 h zugeführt. Die Freisetzung geht schnell auf 80% hoch. Eine solche "Sättigungserscheinung" zeigen die Nachrechnungen nicht.

Bei diesen Punkten wird deutlich, daß bei weitem noch nicht alle Phänomene des Spaltprodukttransportes verstanden sind und es daher sehr verständlich ist, daß, wie im Anfang der Arbeit geschildert, noch intensiv an besseren Modellen zu ihrer Beschreibung gearbeitet wird.

Für erste Nachrechnungen des globalen Spaltprodukttransportverhaltens im Reaktor ist vor allem bedeutend, daß die verwendeten Modelle in der Lage sind, die zur Zeit verfügbaren Versuche befriedigend nachzurechnen. Damit sollten sie vorerst beibehalten und angewendet werden, solange bis sich von den komplexeren Modellvorschlägen die am besten geeigneten durchgesetzt und etabliert haben.

Die Schwachstellen, die sich bei den Anwendungen von SPTRAN und den aus ihm abgeleiteten Programmen in der numerischen Umsetzung der Transportmodelle gezeigt haben, sollten verbessert werden, so daß in Zukunft eine immer einfachere und auch rechenzeitsparende Benutzung von SPTRAN möglich wird. Diese Forderung hat sich mit der Einführung des konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten noch verstärkt, da durch ihn ein numerisch kompliziertes Problem entstanden ist, welches die Rechenzeiten weiter erhöht. Diese Forderung wird auch durch eine weitere Aussage dieser Arbeit unterstützt. Es hat sich gezeigt, daß eine Kontrolle und Überprüfung der Ergebnisse von SPTRAN nur durch eine kontinuierliche Anwendung möglich ist. Damit ist die Verbesserung der in diesem Kapitel unter der Bezeichnung "Umstellung von Globaler Iteration auf Lokale Iteration" eine wichtige Aufgabe für künftige Arbeiten.

In den folgenden Kapiteln soll das Programm SPTRAN als Beispielrechnung für den Störfall eines mittelgroßen Hochtemperaturreaktors angewendet werden. Bei dieser Anwendung wird erst eine Störfallrechnung ohne den Einsatz des konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten durchgeführt. Danach wird der Einfluß des konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten auf den Deckenreflektor untersucht. Eine Übertragung auf den Bereich der Brennelemente ist wegen programmtechnischer Schwierigkeiten nicht möglich. Eine solche Übertragung wäre interessant gewesen, da

⁶⁰ Moormann, Methodik umfassender probabilistischer Sicherheitsanalysen für zukünftige HTR Anlagen, Band 3: Spaltprodukte, 1987, S. 105 ff.

sie untersuchen sollte, ob es zu einer Verbesserung oder Verschlechterung der Gesamtfreisetzung kommen würde. Denn die Freisetzung aus den heißen Corebereichen mit hohem Partikelversagen würde sicher beschleunigt, dafür aber die Voraussetzungen für die Anlagerung in kälteren Corebereichen deutlich verbessert.

5.0 Thermohydraulische Rechnung für den HTR 400

5.1 Überblick

In diesem und dem nächsten Kapitel wird die Anwendung des Programms SPTRAN auf die Untersuchung des Spaltproduktverhaltens in einem Hochtemperaturreaktor vorgestellt. Da SPTRAN letztlich für diesen Anwendungszweck erstellt wurde, soll anhand dieses Beispiels die Leistungsfähigkeit des Programms gezeigt und gleichzeitig ein wirklich relevanter Störfallablauf vorgestellt werden.

Der Forschungsschwerpunkt des Instituts für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik hat sich auf die Untersuchung von Reaktoren, die auch bei extremen Störfällen keine Coretemperaturen über 1600°C erreichen, verlagert. Bis zu dieser Temperaturgrenze findet, wie in dem Kapitel "Nachrechnung der Ausheizexperimente" gezeigt wird, bei reinen Coreaufheizstörfällen keine nennenswerte Freisetzung statt.

Das Ziel dieser Arbeit ist es, zu untersuchen, ob das Programm SPTRAN ein funktionsfähiges Werkzeug zur Simulation von Spaltproduktfreisetzungen ist. Aus diesem Grund ist es erforderlich, einen Störfall zu untersuchen, bei dem so große Freisetzungen auftreten, daß die sich einstellenden Konzentrationen in einigen Corebereichen im Freundlich-Bereich liegen. Denn erst wenn die Konzentrationen bis in diesen Bereich gelangen, werden bei der Sorption und der Diffusion (siehe letztes Kapitel) die Transportvorgänge konzentrationsabhängig. Durch die Konzentrationsabhängigkeit erhöhen sich die Anforderungen an die eingesetzten Lösungsverfahren um ein Vielfaches. Bei der Untersuchung, ob es das Programm SPTRAN ermöglicht, die Spaltproduktfreisetzung sinnvoll zu simulieren, ist es unerlässlich, festzustellen, ob es auch bei diesen Anforderungen in der Lage ist, ohne gravierende Probleme zu arbeiten.

Als Anwendungsbeispiel war zu Beginn dieser Arbeiten die Betrachtung des Störfallverhaltens des THTR-300 geplant. Da der THTR-300 in dem Zeitraum, in dem diese Arbeit entstanden ist, stillgelegt wurde, wird bei diesen Untersuchungen nun ein Hochtemperaturreaktor nach der Konzeption des HTR-500 betrachtet. Der entscheidende Grund, für die Untersuchung das Reaktorkonzept des HTR-500 zu wählen, liegt darin, daß im THTR-300 noch die BISO-Brennelemente (ohne zusätzliche Siliziumkarbid-Schicht) zum Einsatz kamen, während für alle zukünftigen Anlagen der Einsatz von TRISO-Brennelementen geplant ist. Daher ist es sinnvoll, in zukünftigen Untersuchungen nur noch Reaktoren mit diesen Brennelementen zu betrachten. Alle Experimente, die bei den Nachrechnungen des Ausheizverhaltens der Brennelemente verwendet werden, sind daher auch Experimente an TRISO-Brennelementen. Für die Freisetzungsrechnungen kommen daher nur Reaktorkonzepte in Frage, die dieses Brennelement verwenden.

Daher wurden die ersten thermohydraulischen Rechnungen mit der Modellierung des HTR-500 durchgeführt. Das unerwartete Ergebnis dieser Rechnungen waren Spitzentemperaturen bei Störfällen mit Ausfall der Nachzerfallswärmeabfuhr, die deutlich über

den bis dahin in der Literatur⁶¹ veröffentlichten Werten liegen. Die Ursachen für diese Differenzen resultieren aus folgenden Punkten:

Im Rahmen der kontinuierlichen Programmpflege der thermohydraulischen Rechenprogramme wurden die für das Core angesetzten Wärmeübergangskoeffizienten aufgrund neuer Erkenntnisse konservativer angesetzt, und es wurde bei der Berechnung der Nachwärme zu einem für alle Kernreaktoren genormten und einheitlichen Verfahren⁶² übergegangen. Diese beiden Veränderungen erhöhen die maximalen Coretemperaturen. Ein dritter Grund für die Erhöhung der Coretemperaturen liegt in dem Wegfall einer lokalen Reduzierung der Nachwärmeproduktion. Im Programm THERMIX besteht die Möglichkeit, die Nachwärme lokal zu reduzieren, wenn die Coretemperaturen an diesen Stellen vorgegebene Grenzen überschreiten. Hierdurch sollte die angenommene Freisetzung der Spaltprodukte, die leicht flüchtig sind, wie Edelgase und Halogene, bei der Berechnung der Nachwärme berücksichtigt werden. Durch den heute erreichten Entwicklungsstand der Brennelemente ist eine solche Reduzierung nicht mehr sinnvoll, da auch bei hohen Temperaturen die Brennelemente noch den größten Teil der leichtflüchtigen Spaltprodukte zurückhalten.⁶³

Da alle experimentellen Versuche an Brennelementen in einem Temperaturbereich von maximal 2500°C durchgeführt worden sind, sollen die Nachrechnungen und Programmverifikationen auch nur bis zu dieser Temperaturgrenze erfolgen. Daher wurde bei den thermohydraulischen Rechnungen die Modellierung des HTR-500 beibehalten, die Leistung aber so weit reduziert, daß die Temperaturgrenze von 2500°C nicht deutlich überschritten wird. Diese Bedingung wurde mit einer Leistung von 400 MWel erreicht, sodaß der "HTR-400" die Basis für die Untersuchungen in dieser Arbeit darstellt.

Die wichtige Frage ist nun, welches Störfallszenario für die Untersuchungen gewählt wird. Da der Verlust der Rückhaltefähigkeit für Spaltprodukte in den Brennelementen nur von der Vorgeschichte (Geschehen vor Störfallbeginn) und dem Temperaturverlauf abhängt, kommt bei der für diese Untersuchungen gewünschten starken Spaltproduktfreisetzung nur ein Störfall mit maximalen Coretemperaturen in Frage. Daher wird ein Störfall angenommen, bei dem der Ausfall aller aktiven Nachwärmeabfuhrmaßnahmen eintritt. Nur die Linerkühlung wird als funktionsfähig betrachtet, da dies für die Spaltproduktfreisetzung eine konservative Annahme darstellt. Denn somit bleibt die konvektive Gasströmung aufgrund der sich bei langen Störfallzeiten einstellenden Temperaturdifferenzen zwischen Core und Primärkreis auch noch aktiv, wenn im Coreinnern die Temperaturen bereits sinken und sich ausgleichen. Durch diese eigentlich nur zum

⁶¹ Rehm, II. Corethermodynamik in: Sicherheitstechnische Untersuchungen zum Störfallverhalten des HTR-500, 1984, S. 58 ff.

⁶² Rütten, NAKURE, Programm zur Nachrechnung der Nachzerfallsleistung der Kernbrennstoffe von Hochtemperaturreaktoren mit kugelförmigen Brennelementen, 1990.

⁶³ Kranz, Reduzierung der Nachwärme im Rechenprogramm THERMIX, 1990.

Schutz des Spannbälterbetons vor Überhitzung benötigte Kühlung werden die Maximaltemperaturen im Core nicht verändert.

Als einzig verbleibende Variable ist nun noch die Art der Druckentlastung zu betrachten. Eine sofortige Druckentlastung wird zwar zu den höchsten Coretemperaturen führen, da sie die schlechteste Wärmeabfuhr bewirkt, aber bei ihr steht beim Anstieg der Temperaturen kein aus dem Reaktor entweichendes Gas mehr für den Spaltprodukttransport zur Verfügung. Diese Überlegung hat dazu geführt, daß für den betrachteten Störfall eine verzögerte Druckentlastung gewählt wird. Als realistisches Szenario wurde nach den Untersuchungen von Rehm⁶⁴ der folgende Störfallablauf gewählt:

Im Core steigt der Druck als Folge der ausgefallenen Nachwärmeabfuhr. Hierdurch öffnet ein Sicherheitsventil, und es erfolgt ein Druckabfall auf 25 bar. Dies ist der Druck, bei dem das Sicherheitsventil wieder schließen soll. Beide Vorgänge vollziehen sich innerhalb von 12 Stunden, wobei die Zeit des Druckanstiegs, des Ansprechens des Sicherheitsventils und die Druckentlastungsphase zusammengezogen werden. Nun wird angenommen, daß das Sicherheitsventil nicht wieder schließt und nach insgesamt 35 Stunden der Umgebungsdruck von 1 bar erreicht ist. Im Programm werden diese beiden Druckentlastungen vereinfacht durch lineare Transienten beschrieben.

Die Spaltproduktrechnungen haben gezeigt, daß mit relevanten Freisetzungen erst zu rechnen ist, wenn auch die verzögerte Druckentlastung schon beendet ist. Somit ist die Bedeutung zwischen den Störfallszenarien, "direkter" und hier untersuchter "verzögerter Druckentlastung", aus der Sicht der Freisetzung von Spaltprodukten nicht so relevant wie am Anfang der Untersuchung angenommen wurde.

Allgemein hat sich aber gezeigt, daß es den Störfall, der in seinen möglichen Auswirkungen alle anderen real denkbaren konservativ einschließt, nicht gibt. Allein durch die Berücksichtigung des im Reaktor gebildeten Staubes bei den Transportvorgängen in der Gasphase oder eines Luft- oder Wassereintritts eröffnen sich zusätzliche Spektren von hypothetischen Störfallabläufen. Beim Autor hat sich aus der Betrachtung von Thermohydraulik und Spaltproduktfreisetzung die Erkenntnis gebildet, daß ein Austreten der Spaltprodukte aus dem Brennelement und dem damit verbundenen Überwinden der ersten Barriere immer einen Anlagenzustand zur Folge hat, bei dem das Wissen über die Spaltproduktverteilung nicht absolut sein kann. Aus diesen Unsicherheiten helfen nur probabilistische Untersuchungen aller möglichen Geschehensabläufe, die dann zu mit Eintrittswahrscheinlichkeiten bewerteten Aussagen über den Transport und die Freisetzung von Spaltprodukten führen.

In dieser Untersuchung wird mit dem Störfallszenario mit maximaler Coreaufheizung der Fall betrachtet, der zur größten primären Spaltproduktfreisetzung führt. Es soll dann bei diesem Störfall betrachtet werden, welche Möglichkeiten schon im Reaktor existie-

⁶⁴ Rehm, H. Corethermodynamik in: Sicherheitstechnische Untersuchungen zum Störfallverhalten des HTR-500, 1984, S. 58 ff.

ren, um ein Freisetzen der Spaltprodukte in die Umgebung zu verhindern. Denn es ist bisher meist konservativ angenommen worden, daß alle Spaltprodukte, die aus den Brennelementen freigesetzt werden, auch aus dem Reaktor gelangen. Eine solche Nicht-Berücksichtigung der real vorhandenen Rückhaltekapazitäten erscheint extrem konservativ. Damit ist diese Untersuchung ein Schritt, die Möglichkeiten der Rückhaltung außerhalb des Brennelementes zu quantifizieren.

Da in dieser Untersuchung die Sorption an Metallen noch nicht berücksichtigt wird, beschränken sich die Darstellungen des Temperatur- und Strömungsverhaltens auch weitestgehend auf die Betrachtung der Vorgänge im Brennelementbereich und im Deckenreflektor.

5.2 Die zeitliche Temperaturentwicklung

Aus den Temperaturen des Normalbetriebs entwickelt sich durch die Nachzerfallswärme, die nur noch zu einem geringen Teil abgeführt werden kann, das Temperaturprofil des Störfalls. Bei der verzögerten Druckentlastung werden die maximalen Brennelementtemperaturen nach etwa 100 Stunden erreicht. Die Abb. 22 auf Seite 85 zeigt in zwei dreidimensionalen Darstellungen die verschiedenen Temperaturverteilungen für den Normalbetrieb und für den Zeitpunkt der Maximaltemperaturen im gesamten Reaktor.

In dieser Abbildung zeigt die obere Darstellung den Normalbetrieb. Es werden die Feststofftemperaturen dargestellt. Im Normalbetrieb wird das Reaktorcore von oben nach unten durchströmt. In der Darstellung liegt damit der kalte Bereich des Cores auf der rechten Seite. In der axialen Position zwischen 9.5 und 11.5 m befindet sich der Deckenreflektor. Dieser hat die Gaseintrittstemperatur des ihn durchströmenden Gases von etwa 270 °C. Zwischen dem Deckenreflektor und den Brennelementen befindet sich ein Hohlraum, der dadurch entsteht, daß man einen Reaktor mit Kugelschüttung nicht vollständig mit Brennelementen füllen kann. Über dem Bereich der Brennelemente erhöht sich die Temperatur nun bis zum Bodenreflektor, der auf einer Höhe von 3 m beginnt. Die Erwärmung des Gases ist entsprechend der Leistungsverteilung im oberen Drittel der Brennelementzone am stärksten. Der untere Teil des Reaktors ist entsprechend der Gasaustrittstemperatur etwa 700 °C heiß. Radial sinken die Temperaturen außerhalb der Brennstoffzone schnell auf das Niveau der Gaseintrittstemperatur, da das abgekühlte Gas zur Kühlung des Reflektors auf dem Weg zur Kaltgassammelkammer hier entlang geführt wird.

Nach 100 Stunden Störfallzeit ergibt sich ein völlig anderes Bild. Die Temperaturen in der Brennelementzone sind bis über 2500°C gestiegen. Das Temperaturmaximum liegt in der Coremitte im oberen Drittel der Zone mit den Brennelementen. Es hat sich entsprechend der Leistungsverteilung des Normalbetriebes, die in etwa der Leistungsverteilung der Nachzerfallswärme entspricht, aufgebaut. In den übrigen Bereichen ist die Temperatur auch gestiegen, aber nicht so extrem wie in der Brennelementzone.

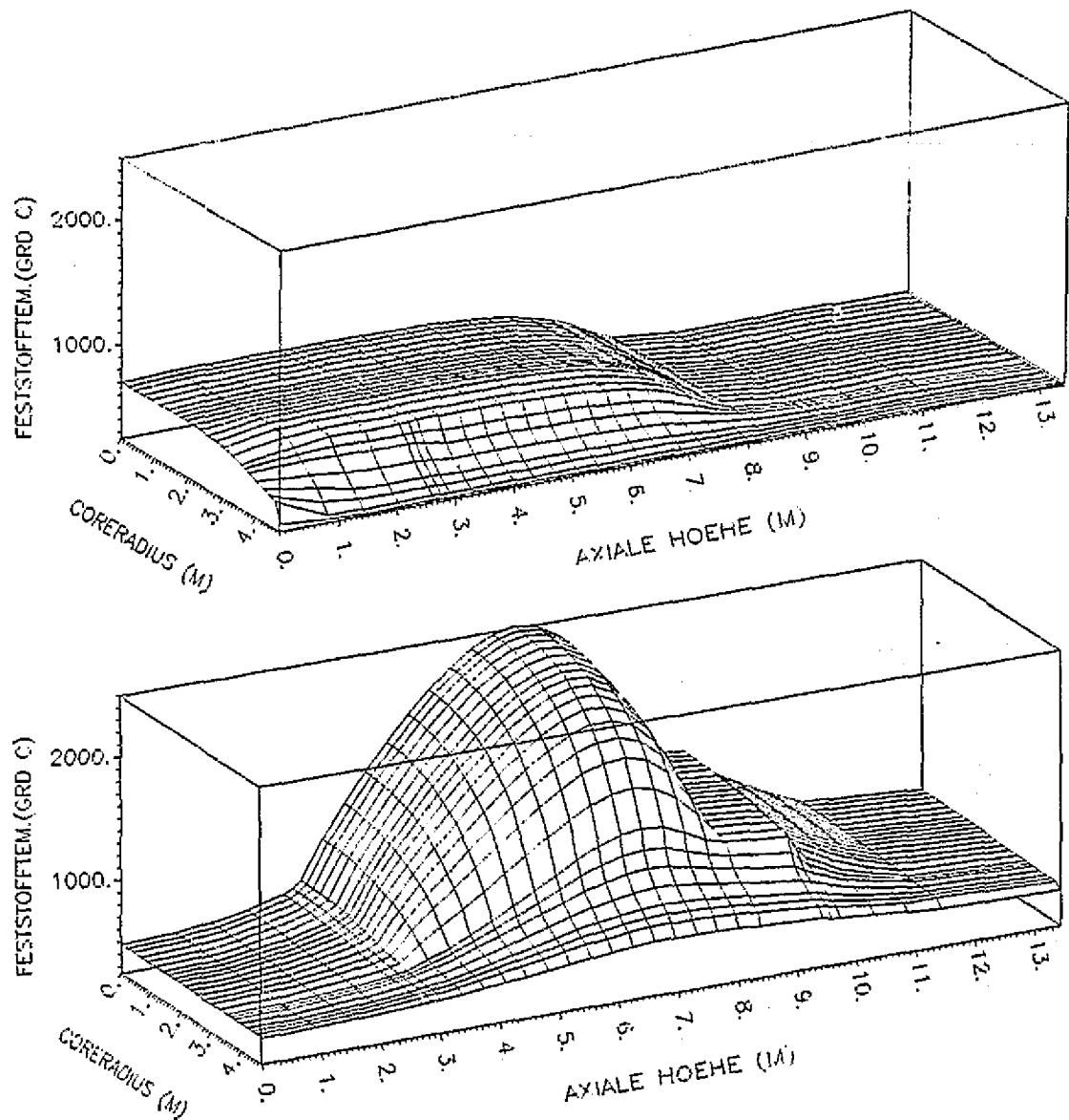


Abb. 22. Temperaturverteilung im Normalbetrieb und nach 100 Stunden Störfallzeit

Nach diesem ersten Überblick über die Gesamtsituation soll jetzt detailliert das Temperaturgeschehen in der Brennstoffzone und im Deckenreflektor diskutiert werden.

5.2.1 Zeitliche Temperaturverteilung in der Brennelementzone

Da die eben gezeigten Darstellungen für eine genaue Betrachtung zu grob sind, wird jetzt der Teil, der die Brennelemente enthält, eingehender behandelt.

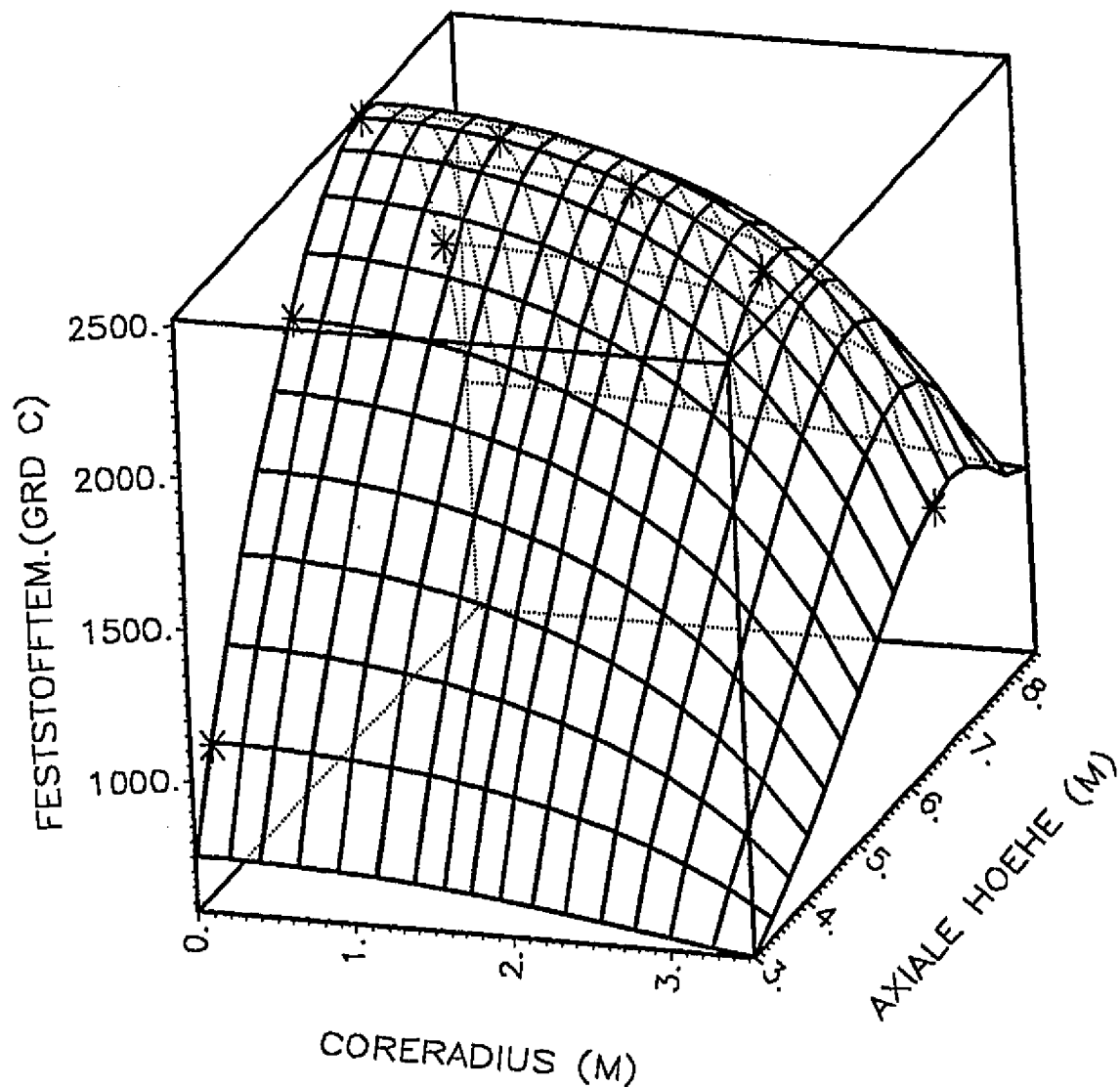


Abb. 23. Temperaturverteilung in der Brennelementzone nach 100 Stunden: Die Sternchen zeigen die Orte, von welchen im Folgenden die Zeitverläufe des Temperaturverhaltens gezeigt werden.

An dieser Abbildung kann man sehr gut erkennen, daß die Spitztemperatur von 2500°C nur in einem sehr kleinen Bereich erreicht wird. Die Gradienten sind in dem gesamten Brennelementbereich sehr groß. Die Spitztemperatur ist besonders wichtig wegen ihrer direkten Beziehung zum Versagen der Coated Particles. Hierbei ist dann nicht nur die absolute Maximaltemperatur entscheidend, sondern die Menge der De-

fekten Coated Particles ist proportional zu dem Volumen, welches auf diese hohen Temperaturen aufgeheizt wird.

Die folgende Abbildung gibt einen Überblick, welche Anteile des Brennelementvolumens welche Temperatur erreicht haben.

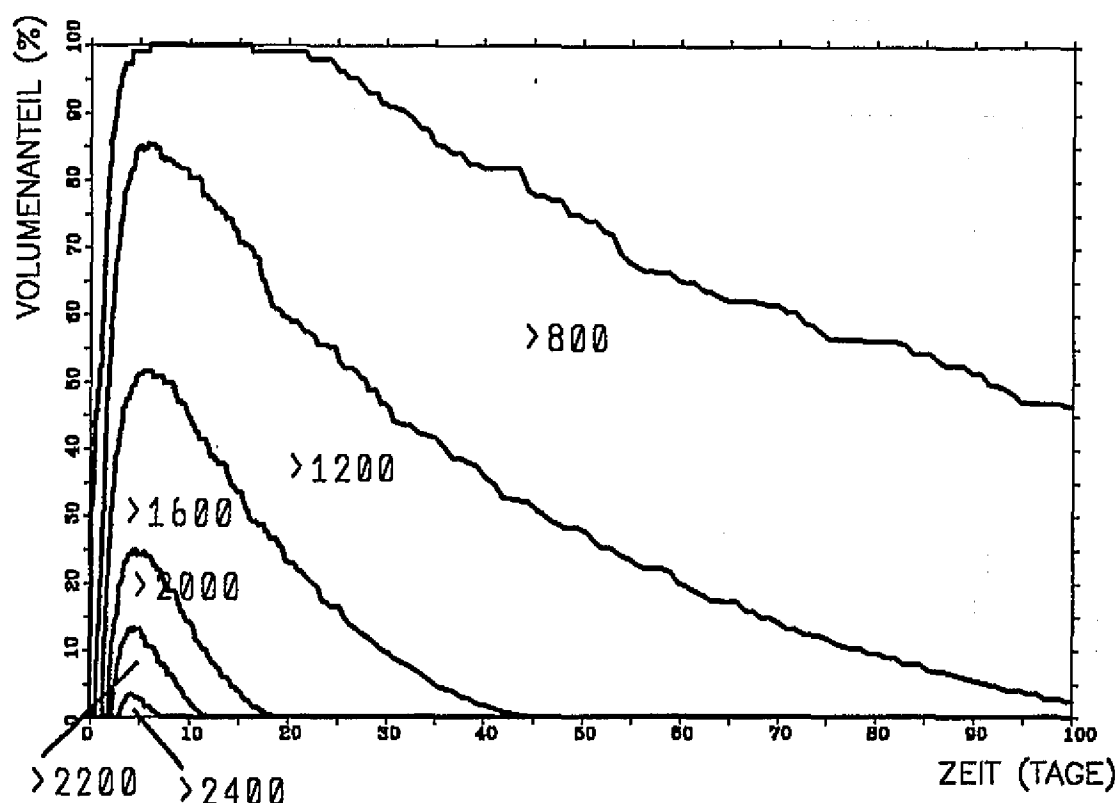


Abb. 24. Volumenbezogene Temperaturverteilung: Die Kurven geben jeweils an, welcher Anteil des Brennelementvolumens während des Untersuchungszeitraumes oberhalb einer bestimmten Temperaturgrenze liegt. Die in der Darstellung angegebenen Temperaturen sind in der Einheit ° C.

Der gezackte Verlauf der Kurven liegt darin begründet, daß diskrete Volumen bei Temperaturveränderungen anderen Bereichen zugerechnet werden.

Durch diese Abbildung wird noch einmal bestätigt, wie stark die Temperaturunterschiede im Corebereich mit den Brennelementen sind. Diese Darstellungsform, bei der das Volumen der einzelnen Coremaschen berücksichtigt wird, zeigt besonders, daß von den Maximaltemperaturen in der Coremitte nur ein kleiner Volumenanteil betroffen ist. So wird nur ein Anteil von 3-4% des Volumens heißer als 2400°C und einer von etwa 13% heißer als 2200°C.

In der dreidimensionalen Darstellung in Abb. 23 auf Seite 86 werden durch die Sternchen, die auf der Fläche eingezeichnet sind, die Orte angezeigt, an denen in den nächsten Abbildungen der zeitliche Temperaturverlauf angegeben wird. So gibt die Abb. 25 auf Seite 88 den Temperaturverlauf von vier Orten auf der Coreachse wieder. Die Abb. 26 auf Seite 89 enthält die Kurven von 5 Positionen auf der Höhenlinie, bei der sich die maximale Coretemperatur ergibt.

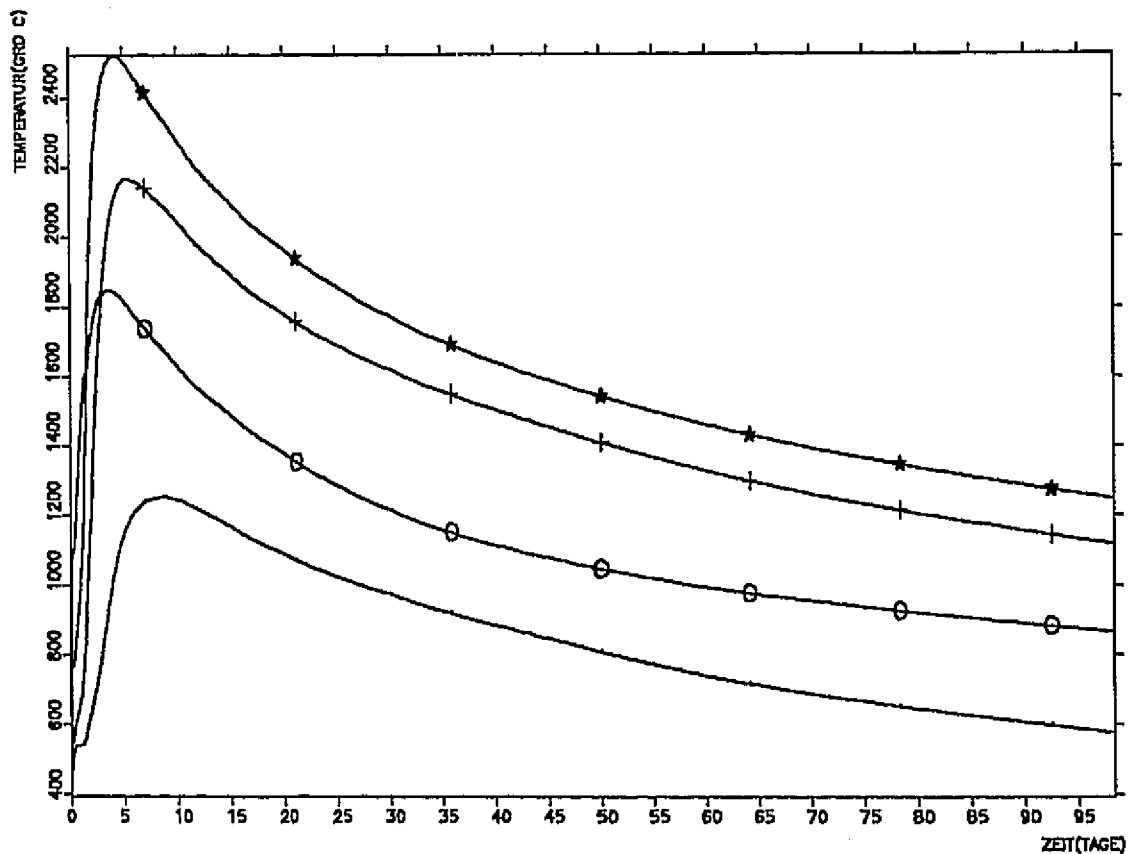


Abb. 25. Zeitlicher Verlauf der Brennelementtemperaturen, axiale Darstellung: Alle Darstellungen aus der Coremitte. Unmarkierte Kurve: unterer Bereich der Brennelemente, + 1/3 der Kugelschüttungshöhe, * der heißeste Bereich und o oberer Bereich.

Der Anstieg auf die Maximaltemperaturen erfolgt in 4 Tagen (das entspricht etwa den oben genannten 100 Stunden). Nur in den unteren Corebereichen werden die lokalen Maximaltemperaturen etwas später erreicht. Sie betragen mit etwa 1250°C nur die Hälfte der absoluten Maximaltemperatur. Der Verlauf der Kurven nach dem Erreichen der Maximaltemperaturen zeigt, daß sich die Temperaturen im ganzen Reaktor schnell wieder verringern. Besonders die absolute Maximaltemperatur bleibt nicht lange bestehen. Dagegen bleibt der Abstand zwischen den Kurven in etwa gleich. Man kann daher annehmen, daß sich das Temperaturprofil nicht verändert, sondern auf ein immer nied-

rigeres Temperaturniveau absinkt. Dieses Verhalten wird plausibel, wenn man berücksichtigt, daß sich die Nachwärmeproduktion nach einem e-funktionalen Zusammenhang verringert. Auch bleibt als zusätzlicher Mechanismus der Wärmeabfuhr, neben Strahlung und Leitung, der konvektive Transport der Wärme nach oben bestehen.

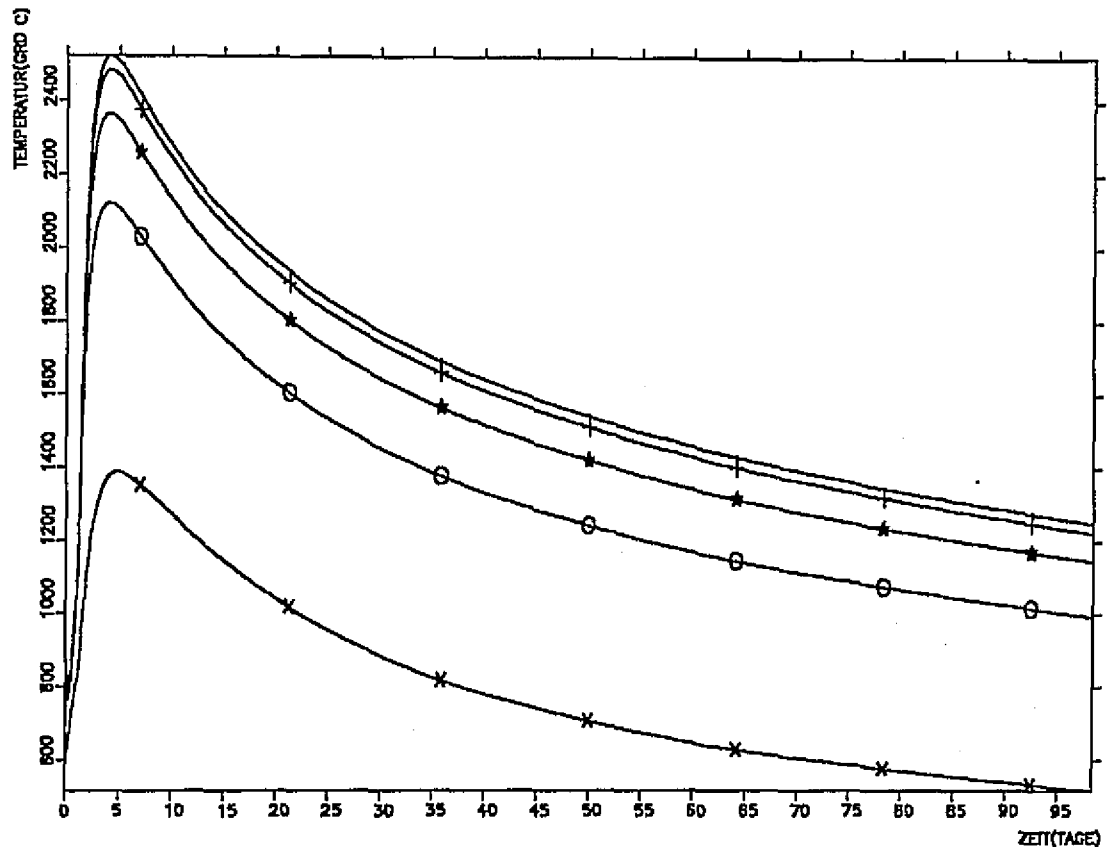


Abb. 26. Zeitlicher Verlauf der Brennelementtemperaturen, radiale Darstellung: Alle Darstellungen aus der Höhe der Maximaltemperatur. Unmarkierte Kurve in der Coremitte, dann in der Reihenfolge +, *, o und x weiter in Richtung Corerand.

Diese Abbildung bestätigt das für die vorherige Abbildung Gesagte. Hinzuzufügen ist noch, daß das entstehende Profil radial besonders stark durch den Gradienten des Wärmeabflusses aus dem Brennelementbereich in die Reflektorzone bestimmt wird.

Zusammenfassend kann man feststellen, daß eine Temperaturverteilung mit einem extremen Profil entsteht, welche nur einen Teil der Brennelemente den maximal entstehenden Temperaturen aussetzt. Die Maximaltemperaturen sind nach 4-5 Tagen erreicht, dann beginnt, langsamer als der Anstieg, aber doch zügig, eine globale Reduzierung der Temperaturen.

5.2.2 Zeitliche Temperaturverteilung im Deckenreflektor

Das Temperaturgeschehen im Deckenreflektor soll in ähnlicher Weise dargestellt werden wie das in der Brennelementzone. Die Abb. 27 zeigt zum Zeitpunkt von 100 Stunden eine dreidimensionale Darstellung der Temperaturverteilung im Deckenreflektor.

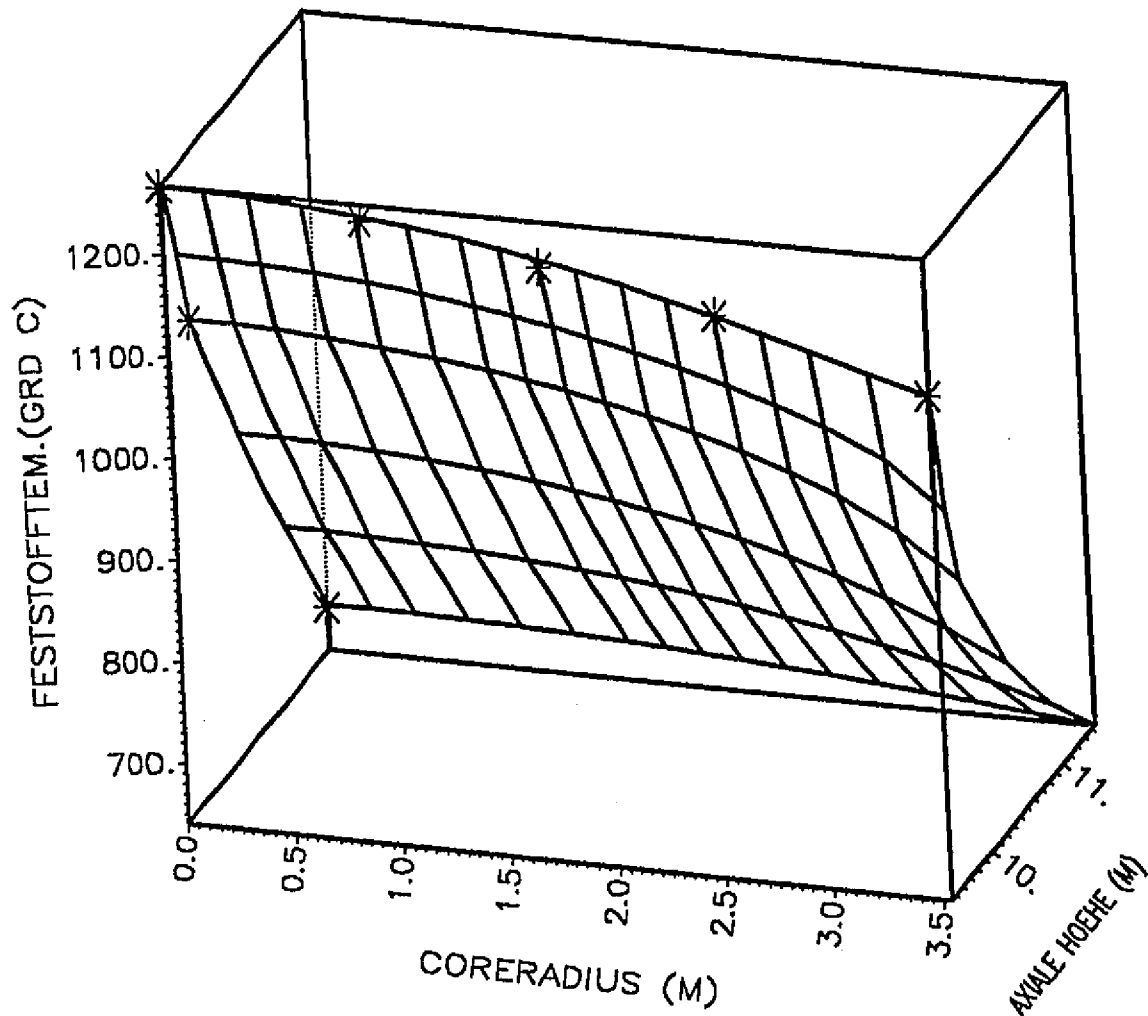


Abb. 27. Temperaturverteilung im Deckenreflektor nach 100 Stunden: Die Sternchen zeigen die Orte, von welchen im Folgenden die Zeitverläufe des Temperaturverhaltens gezeigt werden.

Im Gegensatz zu der Brennelementzone, in der ein lokales Maximum für die Temperaturverteilung bestimmend ist, handelt es sich beim Deckenreflektor um eine Verteilung, bei der ein Temperaturabfall mit zunehmendem Abstand vom Core bestimmend ist.

Aufgrund der Temperaturverteilung stellt sich nach dem Ausfall der Gebläse im Reaktor eine Strömung durch Naturkonvektion ein, wobei sich ein Strömungsverhalten ergibt, welches in der Richtung den Strömungsverhältnissen bei Normalbetrieb entgegengesetzt ist. D.h. im Deckenreflektor stellt sich eine Aufwärtsströmung ein. Diese transportiert einen Teil der Wärme aus dem inneren Corebereich nach außen. Dadurch, daß die Wärmefähigkeit des Graphits im Deckenreflektor ausreichend ist, um einen Großteil der aus dem Core transportierten Wärme aufzunehmen, ergibt sich das stark ausgeprägte Temperaturprofil im Deckenreflektor. Dies zeigt, wie uneffektiv der Wärmetransport durch die Konvektion ist.

Genauere Informationen über das zeitliche Verhalten der Temperaturen geben die folgenden Abbildungen. Die lokalen Positionen der dargestellten Temperaturverläufe sind auch hier durch Sternchen in der Abb. 27 auf Seite 90 markiert.

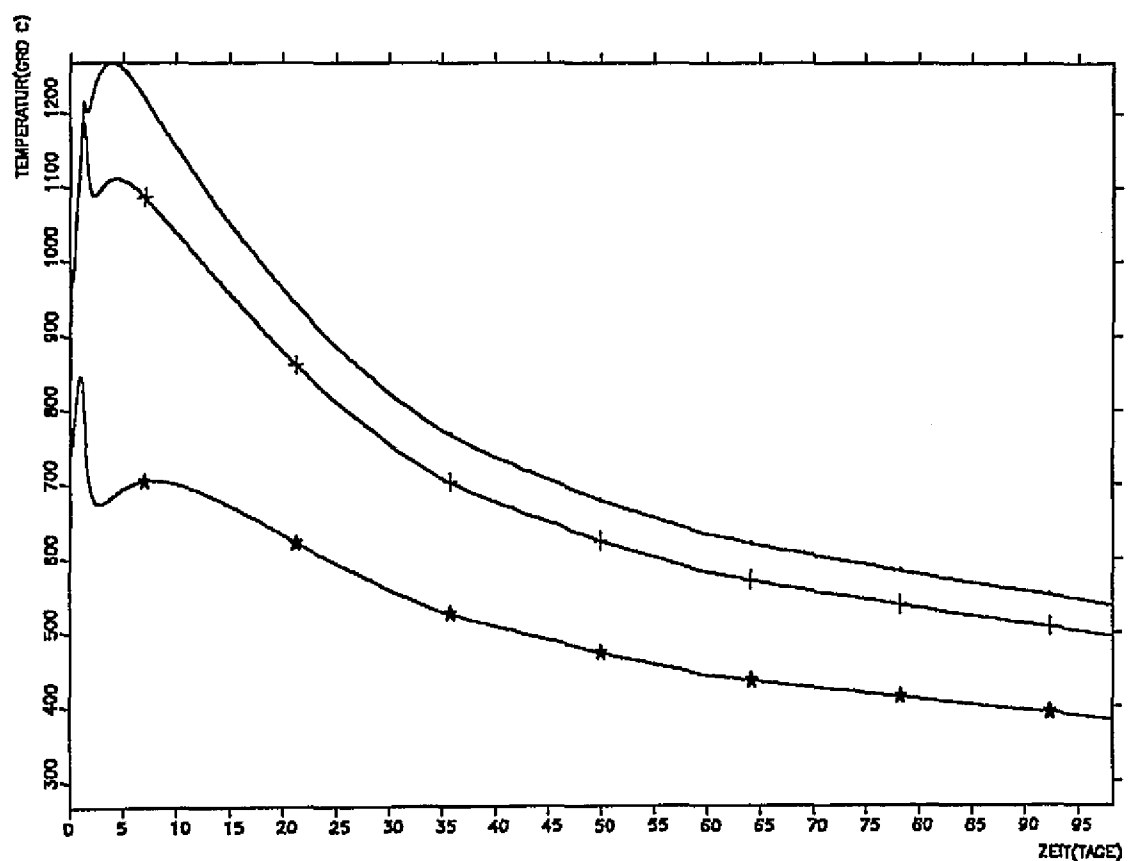


Abb. 28. Temperaturverlauf im Deckenreflektor, axiale Darstellung: Alle Darstellungen aus der Coremitte. Unmarkierte Kurve: Unterkante, + Mitte und * Oberkante des Deckenreflektors.

In dieser Abbildung wird der Einfluß der verzögerten Druckentlastung auf die Temperaturen deutlich. In den ersten zwei Tagen stellt sich eine peakhafte Erhöhung der Temperaturen ein. Dieser Effekt ist besonders in den oberen Deckenreflektorschichten

zu erkennen. Dieses Verhalten ist auf die verstärkte Wärmetransportfähigkeit der Konvektion bei noch nicht abgeschlossener Druckentlastung zurückzuführen.⁶⁵ Mit dem Abschluß der Druckentlastung sinkt die Temperatur (dies zeigt sich besonders in den oberen Deckenreflektorschichten). Danach ist der zeitliche Temperaturverlauf ähnlich dem in der Brennelementzone. Nach 4-5 Tagen ist die Maximaltemperatur im Deckenreflektor erreicht. Danach verringern sich die Temperaturen, wobei es aber bis zu Zeitpunkten von 30 - 40 Tagen zu einer Verringerung der axialen Temperaturunterschiede im Deckenreflektor kommt. Dies ist daran zu ersehen, daß sich in diesem Zeitraum der Abstand zwischen den Kurven verringert.

Die folgende Abbildung stellt den Verlauf der radialen Temperaturverteilung an der Unterkante des Deckenreflektors dar.

⁶⁵ Dieser Effekt wird bei einer realen Druckentlastung noch durch das Entweichen des Gases aus dem Primärkreislauf verstärkt. Doch kann das Programm diesen Effekt nicht berücksichtigen, da die vorgegebene Druckentlastung durch eine einfache Gasvolumenreduzierung in allen Maschen und nicht durch eine Strömung zum Leck hin realisiert wird.

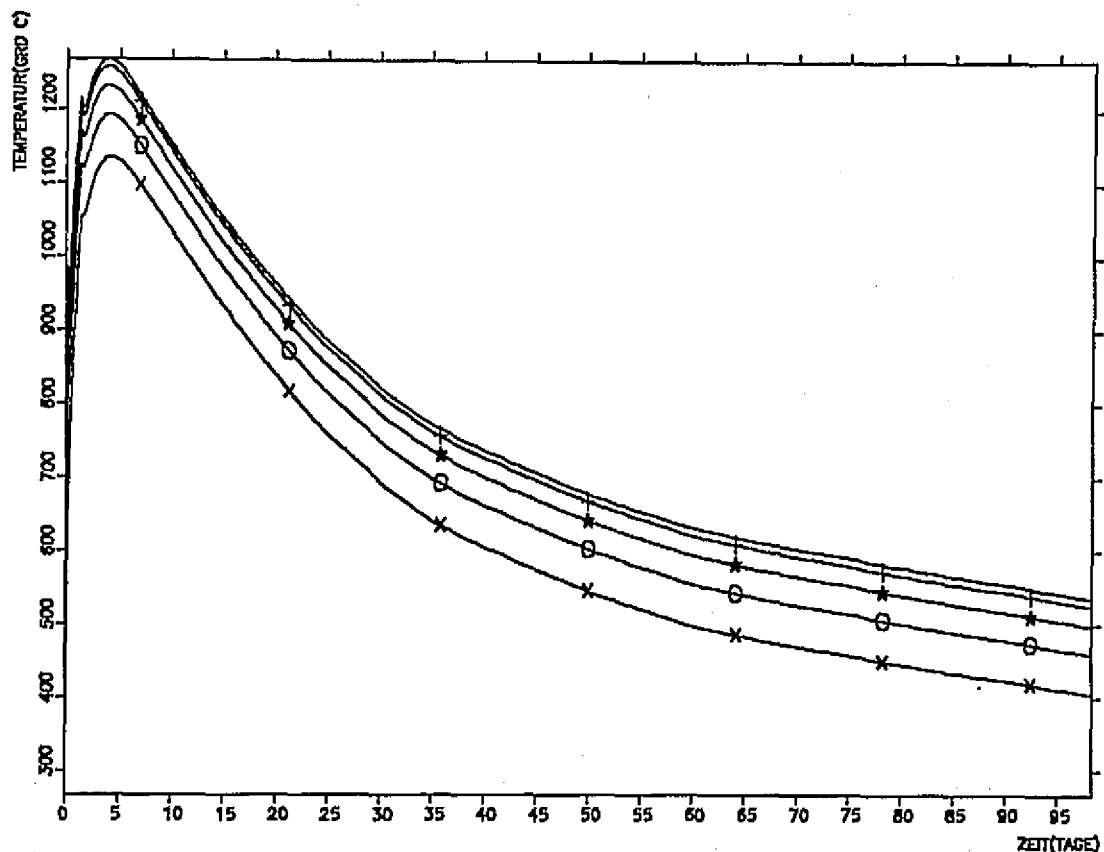


Abb. 29. Temperaturverlauf Unterkante Deckenreflektor, radiale Darstellung: Unmarkierte Kurve in der Coremitte, dann in der Reihenfolge +, *, o und x weiter in Richtung Corerand.

Radial bestehen im Deckenreflektor keine großen Temperaturdifferenzen. Durch die Wärmeübertragung mittels Konvektion hat sich die radiale Temperaturdifferenz, die in der Brennelementzone vorliegt, bis zum Deckenreflektor schon weitgehend ausgeglichen.

5.3 Strömungsverhalten im Reaktor

5.3.1 Betrachtung der Strömungsrichtungen

Beim Deckenreflektor hat sich der Einfluß des Strömungsgeschehens auf die Temperaturverteilung gezeigt. Das Strömungsverhalten spielt beim Transport der Spaltprodukte eine so bestimmende Rolle, daß eine möglichst genaue Information über das Strömungsverhalten im Reaktor benötigt wird.

In den folgenden drei Abbildungen wird das Strömungsfeld im Reaktor dargestellt. Es wird ein zweidimensionaler Schnitt durch den Reaktor gezeigt, bei dem die einzelnen Corebereiche durch Begrenzungslinien sichtbar gemacht werden. Die große Fläche in

der Mitte der drei folgenden Abbildungen ist die Brennelementzone. Darüber befindet sich der Decken- und darunter der Bodenreflektor. Darüberhinaus sind die Kavernen in den Abbildungen eingezeichnet, durch die das Gas im Core geführt wird. Die Fläche ohne Strömungspfeile kennzeichnet den nicht durchströmten Seitenreflektor.

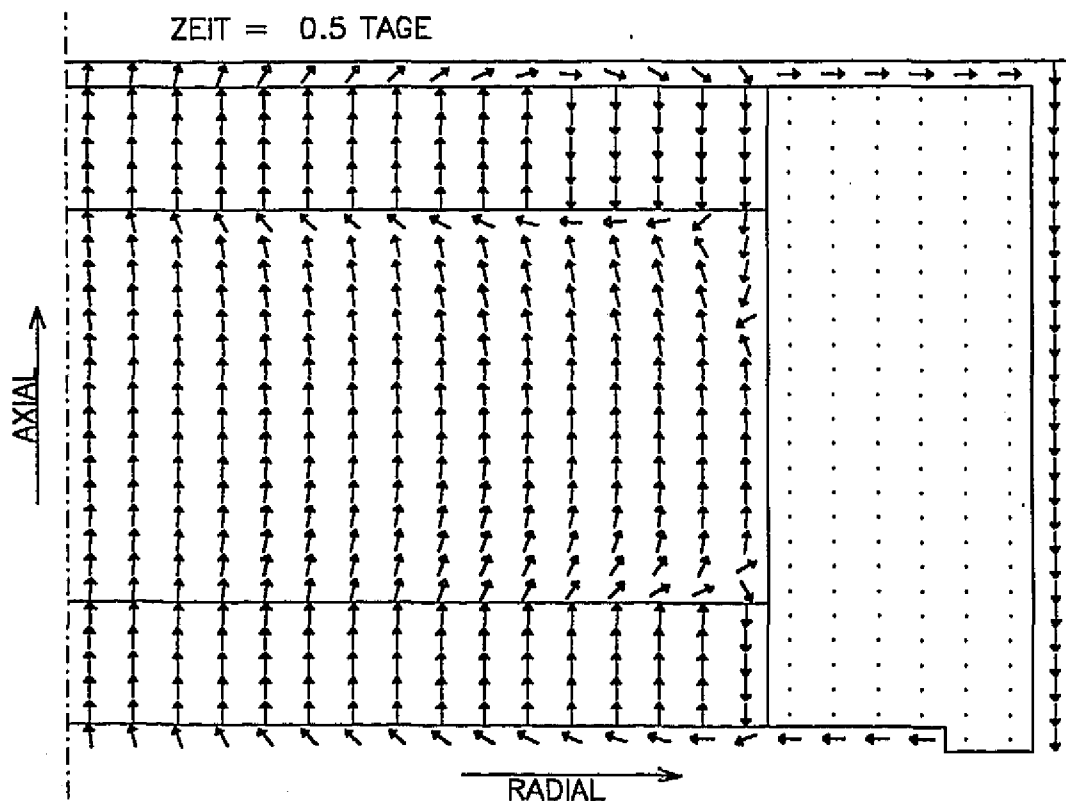


Abb. 30. Strömungsfeld (normiert) nach 12 Stunden

In der Abbildung stellen die Pfeile die Richtung der Strömung an den einzelnen Orten des Cores dar. Die Länge der Pfeile ist normiert, d.h. sie ist nicht mit der Strömungsgeschwindigkeit korreliert, denn diese variiert durch die Temperatur- und die hierdurch verursachten Dichtegradienten sowie durch die Querschnittsveränderungen so stark, daß eine gemeinsame Darstellung von Richtung und Geschwindigkeit nicht möglich ist.

Nach 12 Stunden ist die Druckentlastung noch im Gange. Die Verhältnisse im Reaktor sind zu diesem Zeitpunkt noch durch Strömungswirbel gekennzeichnet. Durch die Konvektion, die durch das heiße Core hervorgerufen wird, hat sich bereits eine Strömung durch den Primärkreislauf hindurch ausgebildet. Dies zeigen die Strömungspfeile, die rechts oben in der Abbildung den Strömungsverlauf aus der Kaltgassammelkammer⁶⁶ zum Primärkreislauf andeuten. Die Strömung wird dann am äußeren Corerand entlang

⁶⁶ In der Kaltgaskammer wird im Normalbetrieb das kalte Gas gesammelt, um dann von hier durch das Core geleitet zu werden.

nach unten geleitet. Unten rechts im Diagramm endet dieser Ast an der Stelle, an der der eindimensional simulierte Primärkreislauf (nicht dargestellt) angeschlossen ist. Das Gas, welches den Primärkreislauf durchströmt, tritt dann unten wieder in die Heißgas-sammelkammer (unterste Zeile der Abbildung) ein.

Zu diesem Zeitpunkt treten im Strömungsverlauf Wirbel auf. Ein großer Wirbel bildet sich um den Deckenreflektor aus. Im äußeren Drittel des Deckenreflektors ist er durch die Abwärtsströmung zu erkennen. Das Gas, welches dort nach unten strömt, wird hauptsächlich in dem Gasraum, der sich zwischen der Oberkante der Brennelemente und dem Deckenreflektor befindet, in Richtung Coremitte geleitet. Nur ein kleiner Teil dringt auch in den äußeren oberen Bereich der Brennelementzone ein. Ein kleiner Wirbel der gleichen Art bildet sich auch am Bodenreflektor.

Die Wirbel sind nicht beständig. Nach 2 Tagen hat sich der folgende Strömungszustand eingestellt.

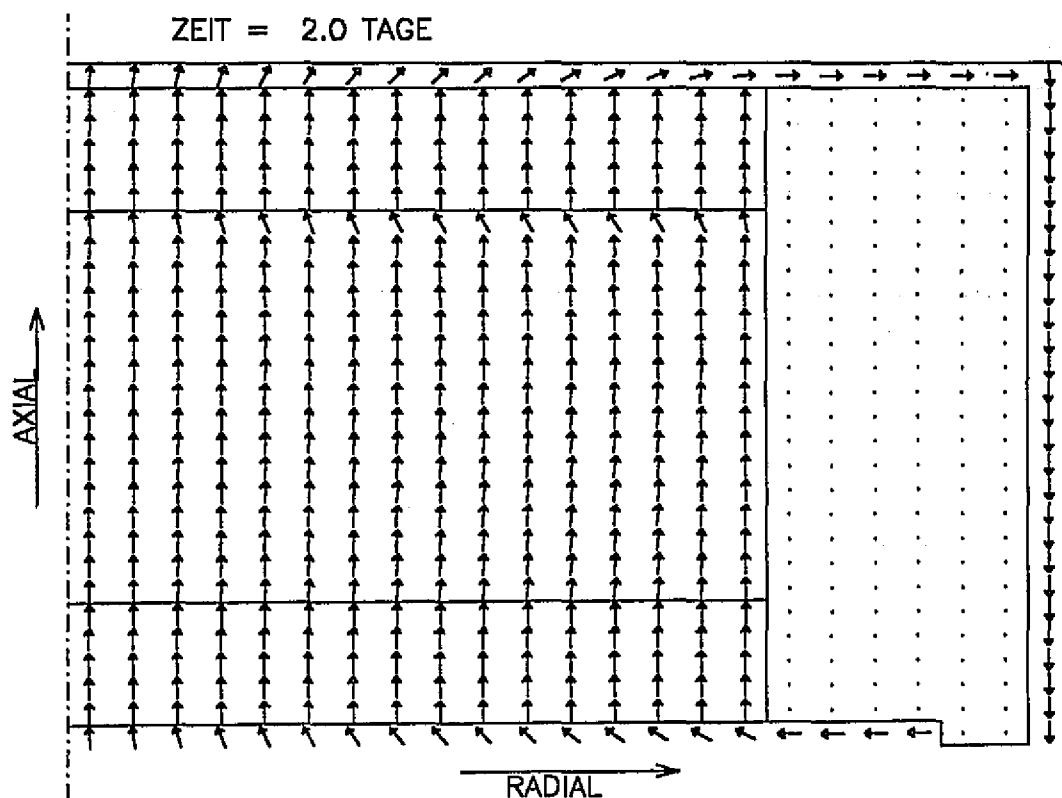


Abb. 31. Strömungsfeld (normiert) nach 2 Tagen

Über das gesamte Core hat sich die Aufwärtsströmung eingestellt. Es treten keine Wirbel mehr auf. Die Spaltprodukte, die einmal die Brennelementzone zum Deckenreflektor hin verlassen haben, können nicht mehr dorthin zurückgelangen, es sei denn, es gelingt ihnen, den gesamten Primärkreislauf zu überwinden und dann von unten erneut ins Core einzutreten. Nach ersten Abschätzungen ist dies kaum möglich, da die großen Metall-

oberflächen die Spaltprodukte wahrscheinlich nahezu vollständig binden. Hier sind besonders die gewaltigen Oberflächen des Dampferzeugers eine ideale Spaltproduktfalle. Daher ist bei den hier untersuchten Störfällen keine Rückkopplung über den Primärkreislauf zu erwarten. Aus diesem Grund wird auch bei den Spaltproduktrechnungen, die in dieser Arbeit die Sorption an Metallen nicht berücksichtigen, der wieder ins Core eintretende Gasstrom durch eine Programmänderung als kontaminationsfreier Strom angesetzt.

Dieses Strömungsverhalten wird oft für die Argumentation herangezogen, daß es besser wäre, statt mit einem großen Programm wie SPTRAN den gesamten Reaktor zu simulieren, mit unabhängigen Programmen einzelne Komponenten zu betrachten. Dies ist für qualitative Abschätzungen auch sehr zu empfehlen, würde es aber unmöglich machen, Zustände, bei denen es doch zu Rückkopplungen kommt, richtig zu beschreiben.

Da die ersten relevanten Freisetzungen von Spaltprodukten erst nach 2 Tagen zu erwarten sind, ist der in Abb. 31 auf Seite 95 gezeigte Strömungszustand für die sich ergebenden Freisetzungen entscheidend. Er bleibt zudem unverändert, bis die Spaltproduktumverteilung und die Freisetzung nahezu abgeschlossen sind. Erst nach 30 Tagen beginnt sich wieder ein kleiner Wirbel um den Deckenreflektor auszubilden.

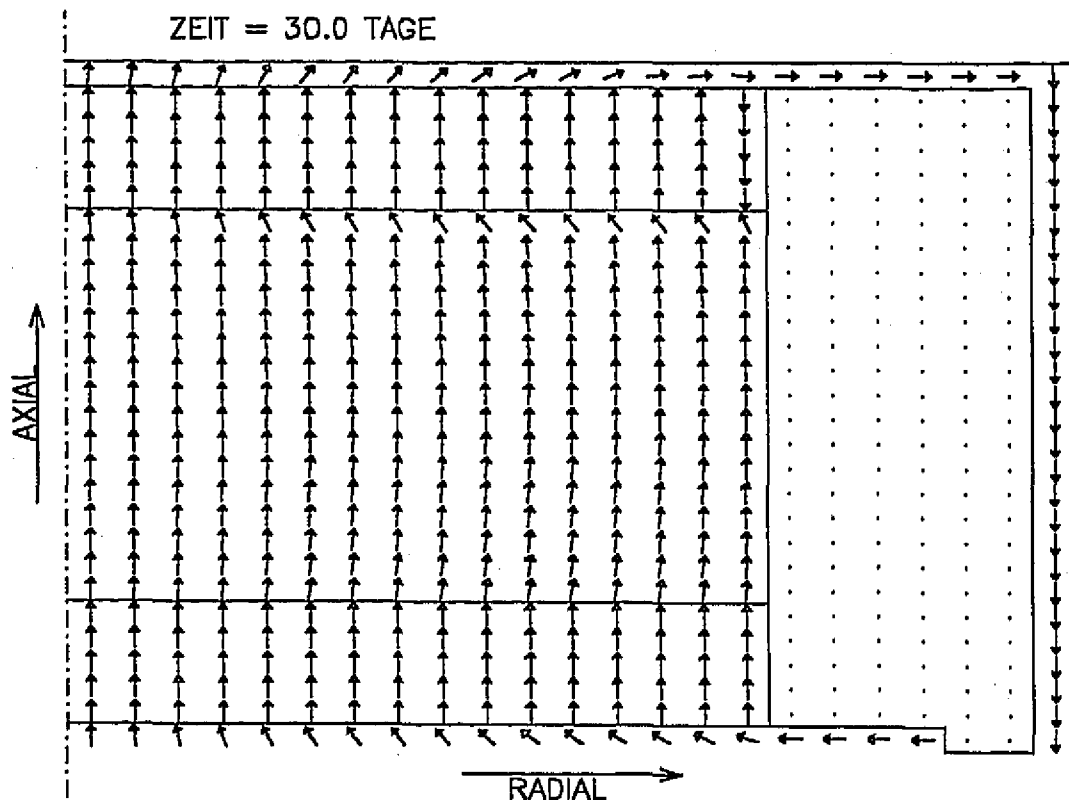


Abb. 32. Strömungsfeld (normiert) nach 30 Tagen

Dieser Strömungszustand bleibt dann unverändert bis zum Ende des Untersuchungszeitraumes nach etwa 100 Tagen bestehen.

5.3.2 Betrachtung der Strömungsgeschwindigkeiten

Die Unterschiede in den Strömungsgeschwindigkeiten im Reaktor sind so groß, daß sie in den Abbildungen nicht mit den Strömungsrichtungen dargestellt werden können. Deshalb werden nun in Geschwindigkeit-Zeit-Diagrammen die Geschwindigkeiten an einigen wichtigen Stellen aufgezeigt.

Zuerst wird der Geschwindigkeitsverlauf an einer Stelle betrachtet, an der er proportional zum Massenstrom durch den Primärkreislauf ist. Hierzu wird die Strömungsgeschwindigkeit im Kaltgassammelraum (oberhalb des Deckenreflektors) dargestellt. Gewählt ist eine Stelle, die so weit außen liegt, daß sie vom gesamten Gasstrom, der durch den Primärkreis strömt, passiert wird.

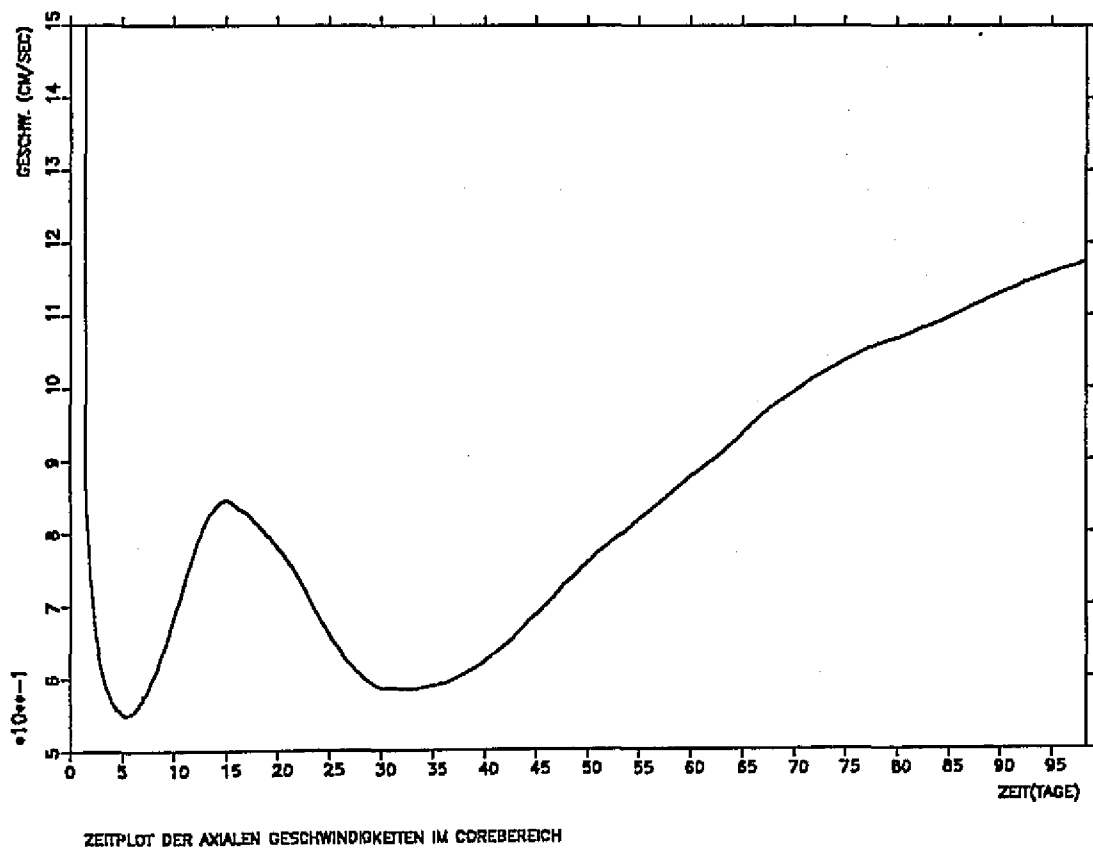


Abb. 33. Strömungsgeschwindigkeit in der Kaltgassammelkammer (außen)

In dieser Abbildung wird die Strömungsgeschwindigkeit und nicht der Massenstrom dargestellt. Der Grund liegt darin, daß für den Spaltprodukttransport der Volumenstrom

bestimmend ist und nicht der Massenstrom des Trägergases, da sich die Partialdrücke der einzelnen Spaltprodukte unabhängig vom Druck des Trägergases aufbauen.

Ein Vergleich mit dem Verlauf des Massendurchsatzes durch den Primärkreis ergibt, daß sie proportional verlaufen. Bei Störfallbeginn ist der Massendurchsatz in der Größenordnung von einigen kg/sec. Er fällt nach 5 Tagen auf einen Durchsatz von 0.013 kg/sec ab, folgt dann den Schwankungen des Verlaufs der Strömungsgeschwindigkeit und erreicht nach 100 Tagen einen Wert von 0.04 kg/sec. Damit ist erwiesen, daß zwischen dem Verlauf der Strömungsgeschwindigkeit und dem Massenstrom im Primärkreislauf keine Unterschiede durch eventuelle Temperatureffekte vorhanden sind.

Am Anfang der Darstellung sind die Geschwindigkeiten oben bei 1,5 cm/sec abgeschnitten. Diese hohen Geschwindigkeiten entstehen, wenn der Reaktor noch unter Druck steht. Mit der Druckentlastung gehen die Geschwindigkeiten zurück. Sie liegen dann in der Größenordnung von 0.5 - 1 cm/sec. Diese geringen Geschwindigkeiten werden durch die sehr geringe Konvektion und zusätzlich noch durch den großen für die Strömung zur Verfügung stehenden Querschnitt in der Kaltgassammelkammer bedingt.

Interessant ist der zeitliche Verlauf der Geschwindigkeiten. Die Erklärung für die Reduzierung bis zum 5. Tag ist das Ausklingen der vergleichsweise starken Strömungen bei der Druckentlastung. Dieser Effekt ist leicht verständlich. Danach kommt es bis zum 30. Tag zunächst zu einem Anstieg (von 0.55 auf 0.85 cm/sec) und dann wieder zu einem Abfall auf nahezu den Ausgangswert. Dieses Strömungsverhalten ist die Folge davon, daß dem Aufheizen des Cores die Erwärmung der anderen Reaktorkomponenten nur verzögert folgen kann. In diesem Zeitabschnitt bestimmt die Temperaturentwicklung im Innern des Cores das Strömungsverhalten. Die Abnahme der Nachwärmeleistung und damit der inneren Coretemperatur bewirkt dann die Geschwindigkeitsabnahme im Zeitraum vom 15. bis zum 30. Tag.

Das erneute Ansteigen der Strömungsgeschwindigkeiten nach 35 Stunden hat zur Ursache, daß das Strömungsverhalten jetzt nicht mehr durch die Temperaturentwicklung in der Kugelschüttung, sondern durch das Abkühlverhalten des Reaktors bestimmt wird. Die Reduzierung der Temperaturen außen im Core und im Primärkreislauf durch die Wärmeabfuhr über den Liner führt zu Temperaturgradienten zwischen Core und Primärkreislauf, die nun für das Ansteigen der Konvektionsströmung verantwortlich sind.

Die folgenden beiden Abbildungen machen deutlich, wie sich die Strömungsgeschwindigkeit in der Brennelementzone und im Deckenreflektor entwickelt. Hierbei wird der Bereich der erhöhten Geschwindigkeiten, die durch die verzögerte Druckentlastung bedingt sind, in den Abbildungen weggelassen. Die Abbildungen beginnen bei der Störfallzeit 2 Tage.

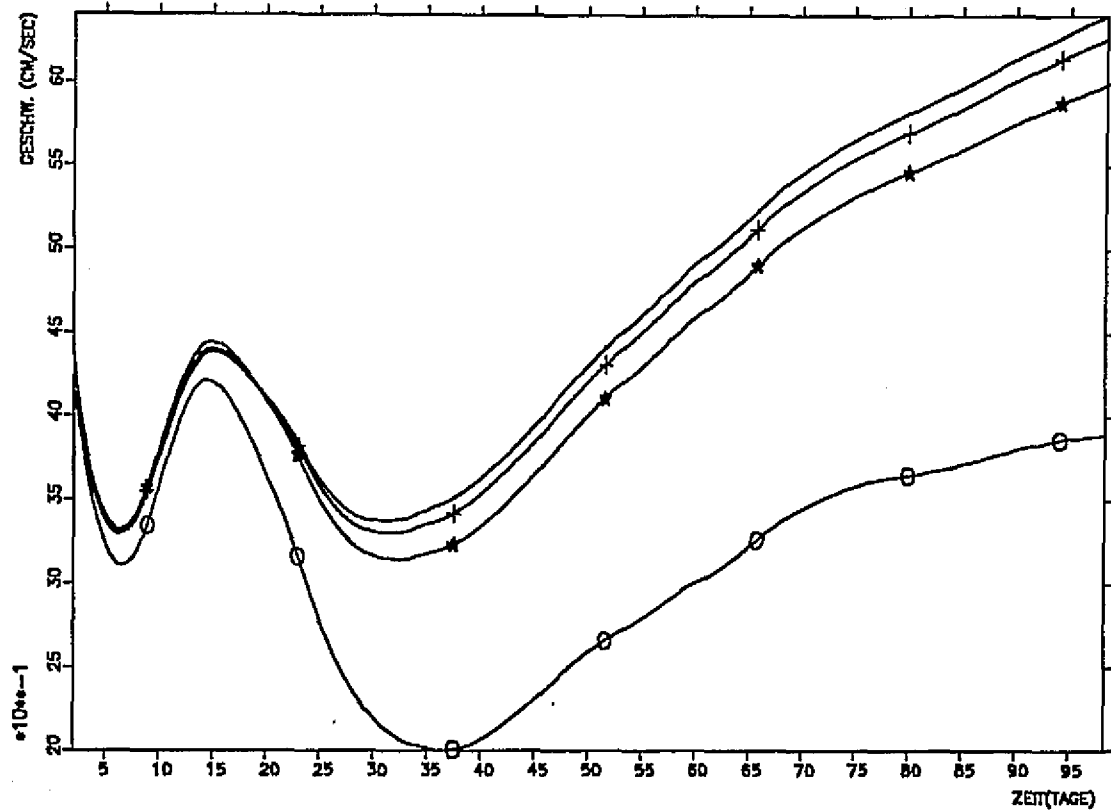


Abb. 34. Strömungsgeschwindigkeit in der Brennelementzone (oben): Alle Darstellungen aus der Höhe der Brennelementoberkante. Unmarkierte Kurve in der Coremitte, dann in der Reihenfolge +, * und o weiter in Richtung Corerand.

Es zeigt sich, daß die Strömungsgeschwindigkeiten im Core einen ähnlichen Verlauf haben wie die im Primärkreislauf. Sie liegen jedoch um etwa den Faktor 5 höher. Am Rand des Kugelhaufens ist die Strömungsgeschwindigkeit deutlich geringer. Dies ist das Resultat der dort sehr viel niedrigeren Temperaturen. Alle Strömungsgeschwindigkeiten sind aufwärtsgerichtet. Es stellen sich keine Wirbel im Corebereich ein.

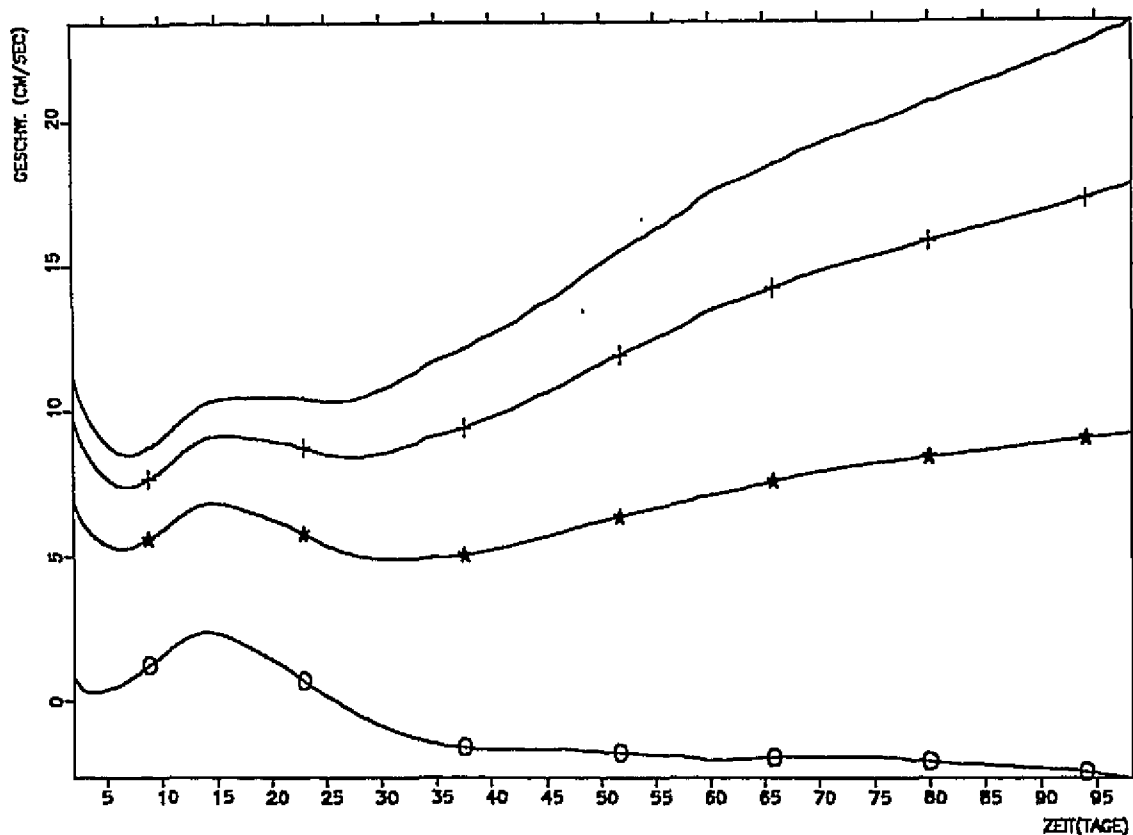


Abb. 35. Strömungsgeschwindigkeit im Deckenreflektor: Alle Darstellungen aus der Höhe der Unterkante des Deckenreflektors. Unmarkierte Kurve in der Coremitte, dann in der Reihenfolge + , * und o weiter in Richtung Corerand.

Im Deckenreflektor zeigt sich eine deutlichere Aufspreizung der Strömungsgeschwindigkeiten. Es sind deutliche Unterschiede zwischen den einzelnen Positionen zu erkennen. Ganz außen wechselt die Strömungsgeschwindigkeit sogar ihr Vorzeichen. Hier beginnt nach 30 Tagen der schon in Abb. 32 auf Seite 96 gezeigte Wirbel, der sich am Deckenreflektor erneut bildet. Die Geschwindigkeiten bewegen sich im Deckenreflektor in der Größenordnung von minus 3 bis plus 20 cm/sec.

6.0 Spaltproduktfreisetzungsberechnung für den HTR 400

6.1 Überblick

In diesem Anwendungsbeispiel wird ein mittelgroßer Hochtemperaturreaktor betrachtet, an dem ein extremer Coreaufheizstörfall untersucht wird. Durch diese Wahl ergibt sich ein Störfall mit großen primären Freisetzungen (Spaltprodukte, die aus den Coated Particles gelangen). Es soll vor allem gezeigt werden, daß die numerischen Lösungsverfahren des Programmsystems den Anforderungen solcher Freisetzungen gewachsen sind. Daneben wird außerdem ein Störfall betrachtet, der wichtige Erkenntnisse für die zukünftige Konzeption von Hochtemperaturreaktoren geben kann.

Die Untersuchungen dieser Arbeit konzentrieren sich auf den Bereich der Brennelemente und des Deckenreflektors. Nur für diese Bereiche konnten bisher die verwendeten Simulationsmodelle an Experimenten getestet werden. Durch die Nachrechnungen von Experimenten ist das Programmwerkzeug "justiert" worden. Die hierdurch erhöhte Aussagesicherheit der Rechnungen wird sich hoffentlich auch bei der Nachrechnung der Freisetzungs- und Transportprozesse eines realen Reaktorkonzeptes zeigen. Bei den Untersuchungen wird beispielhaft das Spaltprodukt Cs 137 behandelt. Immer wenn im folgenden im Zusammenhang mit den Berechnungen von Spaltprodukten gesprochen wird, ist damit vor allem das Verhalten des Cs 137 gemeint.

Bei der Darstellung der Rechenergebnisse wird besonderer Wert darauf gelegt, die bei der Freisetzung wirklich dominierenden Prozesse transparent zu machen. Es soll möglich sein, die Einzelphänomene zu erkennen und sie mit den experimentellen Untersuchungen zu vergleichen.

6.2 Die Coated Particles

Bei Störfallbeginn sind praktisch alle Spaltprodukte in den Coated Particles eingeschlossen. Durch den Temperaturanstieg werden zwei Freisetzungspfade aktiviert: Einmal können sich in den Intakten Coated Particles die diffusiven Transportvorgänge der Spaltprodukte so verstärken, daß die Spaltprodukte durch intakte Rückhaltebarrieren diffundieren. Zum anderen kommt es bei einem Teil der Coated Particles zur Zerstörung der Rückhaltebarrieren. Diese Coated Particles werden dann als defekt eingestuft und so behandelt, als hätten sie ihre Beschichtungen vollständig verloren (siehe Kapitel 3.4.2).

Es ist entscheidend, mit welchen Raten die Coated Particles defekt werden und wo die Defekten Coated Particles im Reaktor lokalisiert sind. Aus diesem Grund wird zuerst der Vorgang des Versagens der Coated Particles dargestellt und dann die Freisetzungen aus Defekten und Intakten Coated Particles beschrieben.

6.2.1 Verteilung der Defekten Coated Particles

Zur Berechnung des Versagens der Coated Particles wird ein Programmlauf des Programms CPBRUCH (siehe Kapitel 2.6) zwischen der thermohydraulischen Rechnung und der eigentlichen Spaltprodukttransportrechnung durchgeführt. Das Versagen der Coated Particles wird nach dem heutigen Kenntnisstand als eine Funktion der Temperatur und der Zeit angesehen. Als Effekte für das Versagen werden die zwei folgenden Mechanismen⁶⁷ angenommen.

Unterhalb von 2000°C wird der Versagensmechanismus des Druckkessel-Modells als dominant angesehen. Ein Partikel wird defekt, wenn sich in seinem Innern ein Gasdruck aufbaut, der die Zugfestigkeit des Coatings überschreitet. Der Druckaufbau wird durch die Bildung von gasförmigen Spaltprodukten verursacht. Die Zugfestigkeit ist durch die Materialeigenschaften des Coatings bestimmt. Sie reduziert sich aber durch die Bestrahlung im Betrieb und durch eine eventuelle Korrosion bei steigenden Störfalltemperaturen.

Als Hochtemperaturversagen kommt oberhalb einer Temperatur von 2000°C noch die thermische Zersetzung der bei der Rückhaltung dominierenden Siliziumkarbidschicht hinzu.

Bei beiden Versagensarten wird konservativ angenommen, daß eine lokale Schädigung der Coating-Schichten immer zum Verlust der gesamten Rückhaltefähigkeit führt. Hierbei wird angenommen, daß sich dann eine schnelle Transportmöglichkeit durch die beschädigte Zone ergibt. Daher ist das Ergebnis der Rechnungen zu jedem Zeitschritt und für jede Masche ein Anteil von Defekten Coated Particles. Der Unterschied in der Modellierung zwischen Intakten und Defekten Coated Particles ist in den Kapiteln 3.4.1 und 3.4.2 beschrieben worden.

In der folgenden Abbildung wird das Endergebnis der Schädigung der Coated Particles bei dem oben beschriebenen Störfall gezeigt. Da nach 30 Tagen die Bildung von Defekten Coated Particles bereits abgeschlossen ist, wird auch die Darstellung zu diesem Zeitpunkt gewählt.

⁶⁷ Verfondern, PANAMA, 1985.

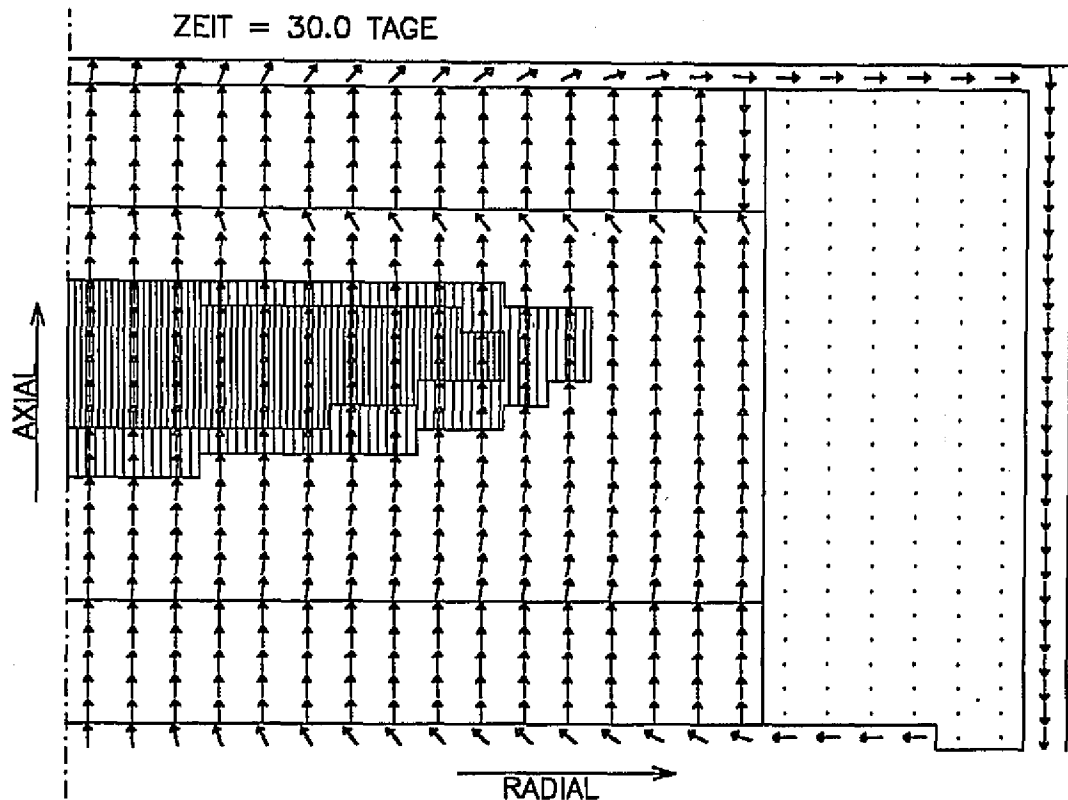


Abb. 36. Verteilung der Defekten Coated Particles nach 30 Tagen: In dem stark schraffierten Feld sind 100 % der Partikel defekt, in dem schwächer schraffierten mehr als 1 %.

Für diese Abbildung wird noch einmal die Darstellungsform benutzt, mit der im letzten Kapitel die Strömungsverteilung beschrieben worden ist. In dieser Abbildung ist es leicht möglich, die Positionen im Reaktor zu erkennen.

In der Abbildung werden zwei Zonen mit Defekten Coated Particles gezeigt. Die intensiv schraffierte Fläche stellt den Bereich dar, in dem 100% der Coated Particles zerstört sind. Um diesen Bereich herum (schwächer schraffierte Fläche) ist der Bereich eingezeichnet, in dem mehr als 1% der Coated Particles versagt haben. Die geringe Ausdehnung des zweiten Gebietes zeigt, daß nur ein scharf begrenztes Gebiet des Cores von starken Zerstörungen der Coated Particles betroffen ist. Es ist sehr gut zu erkennen, daß das Maximum der Defekten Coated Particles, wie auch zu erwarten war, räumlich genau mit dem Temperaturmaximum zusammenfällt.

Zum Vergleich eignet sich die Abb. 23 auf Seite 86.

Interessanter als der Ort des Zerstörungsmaximums ist die Tatsache, daß die massive Zerstörung der Coated Particles lokal begrenzt ist. Außerhalb der eingezeichneten Bereiche sind keine relevanten Anteile von Defekten Coated Particles zu finden.

Die folgende Abbildung zeigt, welcher prozentuale Anteil der Coated Particles zerstört worden ist. Im Unterschied zu der vorhergehenden Abbildung wird das Volumen der einzelnen Maschen bei der Bestimmung der Prozentangaben berücksichtigt.

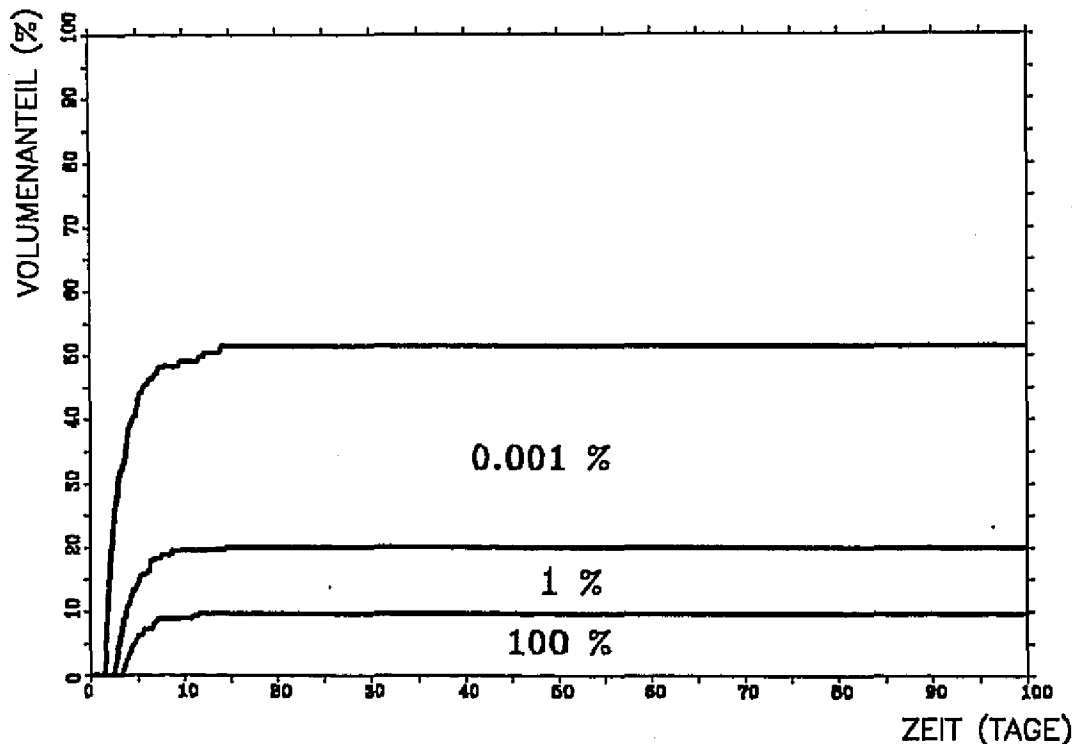


Abb. 37. Volumenanteile, die einen bestimmten Anteil an Defekten Coated Particles aufweisen: Die in den Flächen eingetragenen Werte geben an, welcher Anteil an Coated Particles in diesem Volumenanteil mindestens zerstört ist.

Mit der zusätzlichen Information, Rate der Defekten Coated Particles insgesamt gleich 12.8%, kann man leicht ermitteln, daß die in der Abbildung angegebenen Prozentwerte sehr nah an den Mittelwerten der jeweils zu den Flächen gehörenden Bruchraten liegen.

Zusammenfassend kann man feststellen, daß nur in den Gebieten, die Temperaturen von mehr als 2000-2200 °C erreichen (vergleiche Abb. 24 auf Seite 87), ein massives Versagen der Coated Particles eintritt. Sowohl die Temperaturzone als auch die Zone mit den Defekten Coated Particles ist lokal scharf begrenzt.

6.2.2 Freisetzung aus den Defekten Coated Particles

Die Defekten Coated Particles besitzen als Mechanismus für die Verzögerung der Freisetzung nur noch die Diffusion der Spaltprodukte aus dem Uranoxidkern heraus. Daher ist von den Defekten Coated Particles ein viel höherer Freisetzebeitrag zu erwarten als von den Intakten. Ihre Freisetzung in die Brennelementmatrix wird daher zuerst dargestellt.

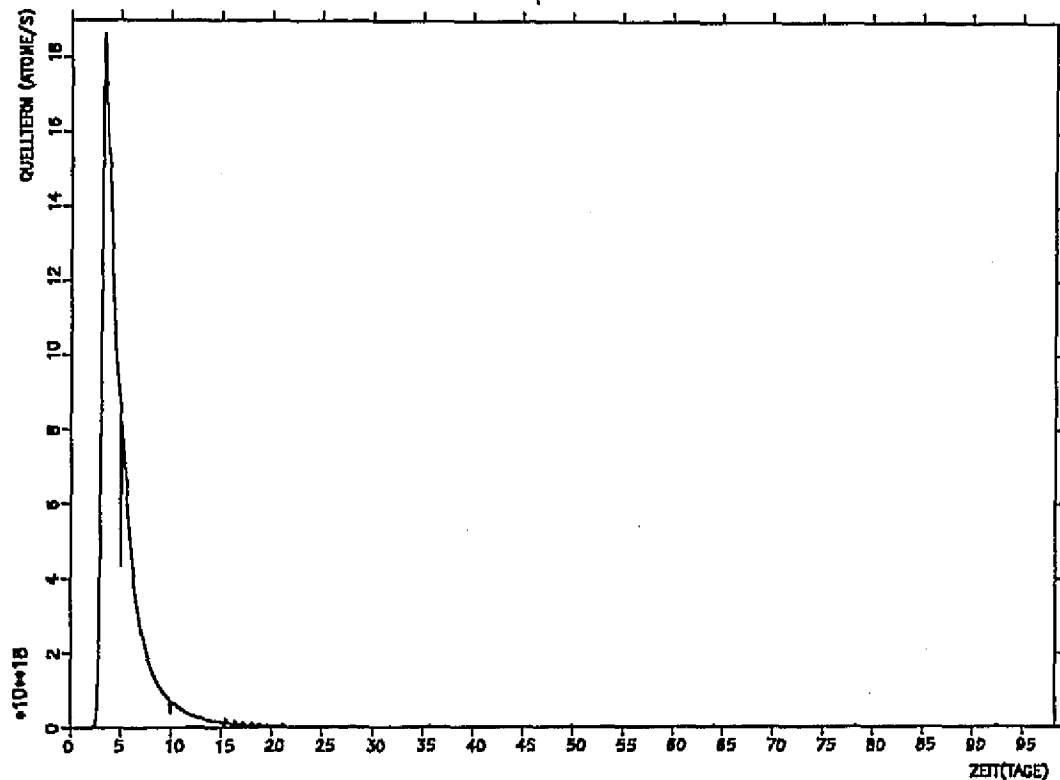


Abb. 38. Freisetzung aus den Defekten Coated Particles ins Brennelement

In der Abbildung zeigt sich eine sehr starke Freisetzungsspitze zu dem Zeitpunkt, bei dem im Core die Maximaltemperaturen auftreten. Bei diesem Freisetzungsmaximum wirken die Effekte zusammen, daß schon fast die spätere Gesamtanzahl an Defekten Coated Particles erreicht ist und daß gleichzeitig durch die hohen Temperaturen die höchste Mobilität bei den Diffusionsvorgängen gegeben ist.

Der Einbruch bei 5 Tagen und die kleinen Zacken in der Kurve resultieren leider daraus, daß sich bei der Berechnung des Quellterms zwischen Gas und Graphit Iterationsschwierigkeiten einstellen. Hierauf wird später noch genauer eingegangen, doch zeigen sich schon hier erste Einflüsse.

Die Abb. 39 auf Seite 106 zeigt die Gründe, warum der Quellterm aus den Defekten Coated Particles so schnell zurückgeht, plastisch auf.

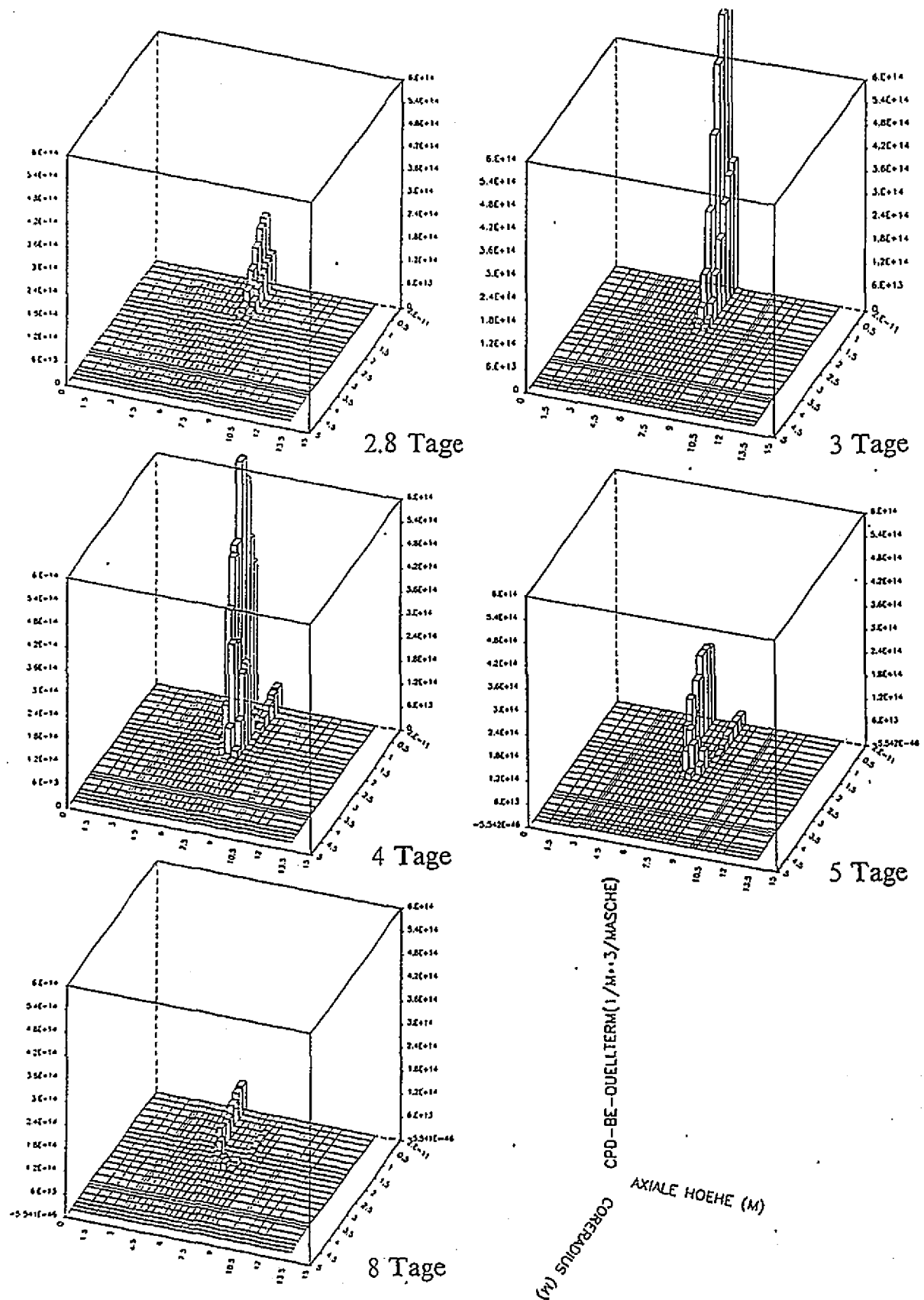


Abb. 39. 3D-Darstellung des Freisetzungsverhaltens aus den Defekten Coated Particles

Die Abbildung zeigt zu verschiedenen Zeitpunkten in dreidimensionaler Darstellung, wie sich der Quellterm lokal entwickelt. Zum Zeitpunkt 2.8 Tage beginnt die Freisetzung an der Stelle im Core, an der auch die Maximaltemperatur vorliegt. Nach 3 Tagen ist der Maximalwert der Freisetzung aus einer Masche erreicht. Bei den Abbildungen zu den Zeitpunkten 4 und 5 Tage zeigt sich der Effekt, daß sich nun ein "Freisetzungsrings" um den Ort gebildet hat, von dem ursprünglich die ersten Freisetzung ausgehen. Nach dieser kurzen Zeit sind die Coated Particles an den heißesten Stellen schon leergelaufen. Sie tragen zur Gesamtfreisetzung nur noch wenig bei. Die Darstellung zum Zeitpunkt 8 Tage bestätigt das noch einmal. Die Freisetzung sind insgesamt stark zurückgegangen, doch zeigt sich immer noch der Effekt des "Freisetzungsrings". Auf seiner Begrenzung sieht man noch die Quellterme aus den Defekten Coated Particles. Doch die Orte in seiner Mitte, von denen die Freisetzung ursprünglich ausging, sind jetzt ohne Freisetzunganteil. Hier sind die Defekten Coated Particles leergelaufen.

Der Effekt des Leerlaufens wird durch die folgenden Abbildungen verdeutlicht.

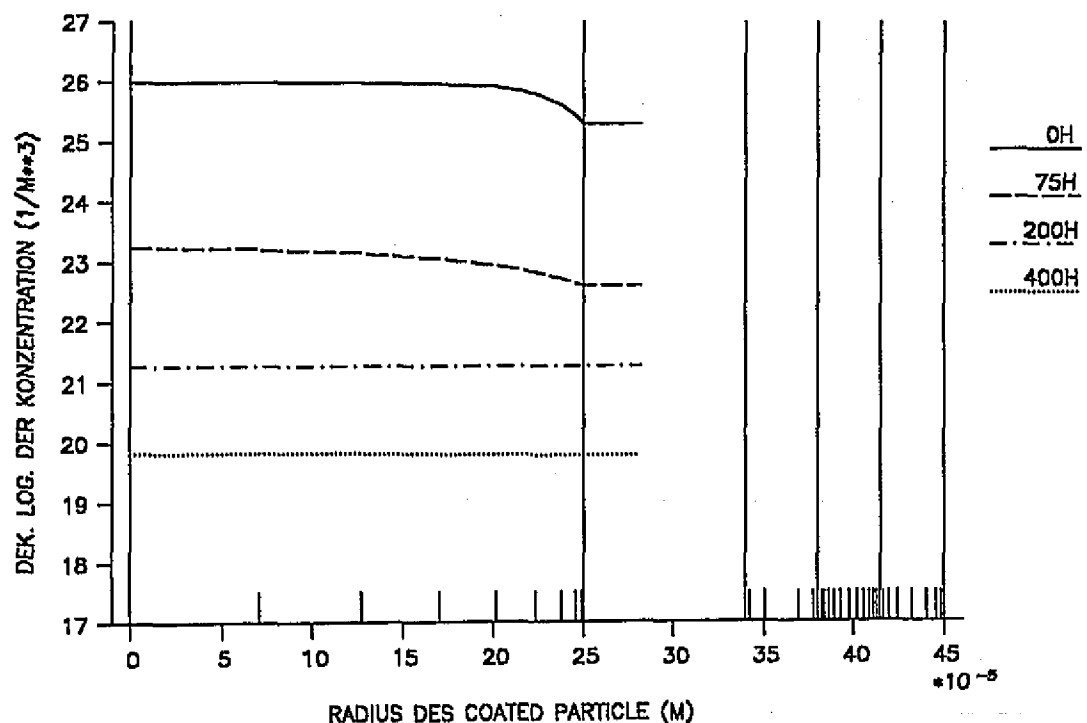


Abb. 40. Verlauf der Konzentrationen in einem "heißen" Defekten Coated Particle

Die Abb. 40 zeigt den Verlauf der Konzentrationen in einem Defekten Coated Particle, welches genau an der heißesten Stelle im Reaktor positioniert ist. Dies ist einer der Bereiche, in denen 100% der Coated Particles defekt werden.

Die Darstellungsform ist bereits aus dem Kapitel 3 bekannt. Es wird zu verschiedenen Zeitpunkten der Konzentrationsverlauf in einem Defekten Coated Particle gezeigt. Auf der rechten Seite sind noch die Bereiche der jetzt defekten Coating-Schichten angedeutet. Hier sind aber keine Konzentrationen mehr eingezeichnet. Der Uranoxidkern ist direkt über die Randbedingung der Konzentrationsgleichheit an die Brennelementmatrix angekopelt. Die Konzentration der Brennelementmatrix wird mittels der kurzen waagerechten Verlängerungen eingezeichnet.

Es ist sehr gut zu erkennen, wie schnell das Coated Particle leerläuft. Nach 75 Stunden beträgt sein Inventar nicht mehr 1/1000 des Anfangswertes. Es ist noch ein schwacher Gradient zu erkennen, der aber bei den nächsten dargestellten Zeitpunkten völlig verschwindet. Die Konzentrationen gleichen sich auf das Niveau der Matrix an.

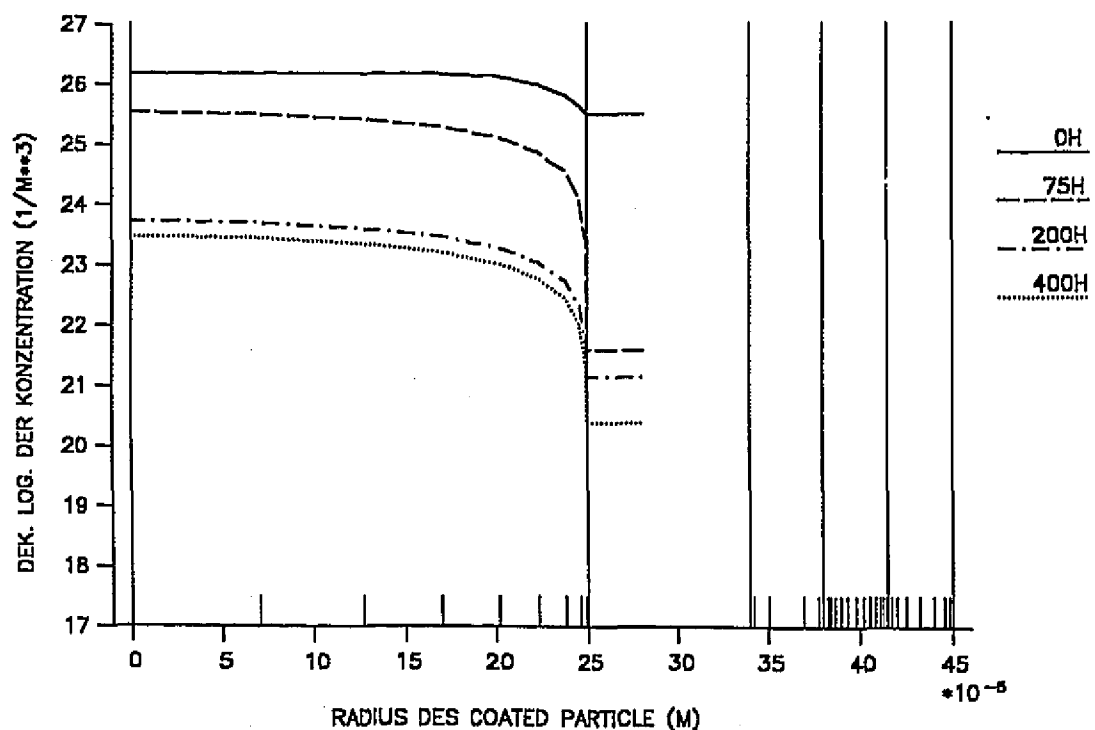


Abb. 41. Verlauf der Konzentrationen in einem "kalten" Defekten Coated Particle

Diese Abb. 41 zeigt in der gleichen Darstellungsform wie die vorherige ein Defektes Coated Particle, welches sich an einer "kälteren" Stelle im Reaktor befindet. Sein genauer Aufenthaltsort ist auf der Coreachse, auf halber Höhe der Kugelschüttung. Die Bruchrate beträgt hier noch über 90% und die erreichte Maximaltemperatur dürfte bei etwa 2200°C liegen. Es zeigt sich deutlich, daß die Freisetzung aus diesem Partikel nicht so schnell erfolgt und daß sich die Gradienten nicht völlig ausgleichen. Der Effekt des Leerlaufens ist nicht so absolut wie bei dem vorher gezeigten Defekten Coated Particle,

doch ist bei 400 Stunden nur noch 1/1000 des Inventars im Partikel. Die geringe Veränderung zwischen den Kurven von 200 und 400 Stunden zeigt, daß sich zu diesen Zeiten die Ausgleichsvorgänge bedingt durch die sinkenden Coretemperaturen deutlich verlangsamen.

6.2.3 Freisetzung aus den Intakten Coated Particles

Bei den Intakten Coated Particles ist die Bestimmung der Freisetzung nicht so einfach, da sich das Inventar auch dadurch verringert, daß Coated Particles zerstört und deren Inventare dann von dem der Intakten Coated Particles abgezogen werden.

Aus diesem Grund wird in der folgenden Abbildung neben der Inventarkurve auch noch das Inventar dargestellt, welches dem Anfangsinventar aller Coated Particles, die bis zum Ende des Untersuchungszeitraums intakt bleiben, entspricht. Dieser Wert wird benutzt, um Aussagen darüber machen zu können, wie sich das Inventar der Coated Particles, die über den gesamten Untersuchungszeitraum intakt gebliebenen sind, verändert hat.

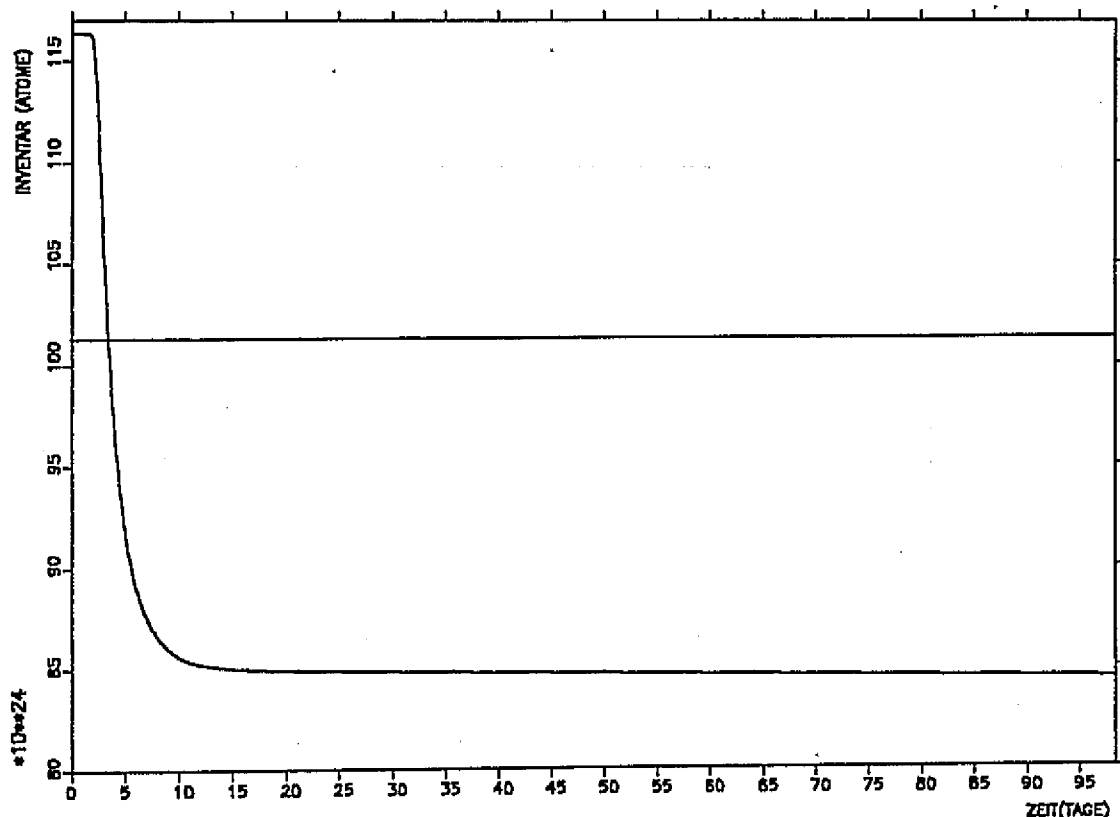


Abb. 42. Änderung des Inventars der Intakten Coated Particles: Die gerade waagerechte Linie gibt an, wie weit das Anfangsinventar sinkt, wenn es um den Bruchanteil von 12,8 % reduziert wird.

Die Kurve, die den Inventarverlauf zeigt, beginnt bei einem Wert von $1.16 \cdot 10^{26}$ Atomen. Dieser Wert entspricht fast genau dem Gesamtinventar des Reaktors an Cs 137. Entsprechend den Rechnungen über die Verteilung der Spaltprodukte im Normalbetrieb (Zusammenarbeit mit Mattke) befindet sich etwa ein Anteil von etwa $2-3 \cdot 10^{-5}$ herstellungsbedingt außerhalb der Coated Particles.

In einem Zeitraum von 3 bis 8 Tagen reduziert sich das Inventar um etwa 25%. Diese Reduzierung ist die Folge des Umstandes, daß ein Teil der Coated Particles defekt wird und daher deren Inventar vollständig vom Inventar der Intakten Coated Particles abgezogen werden muß. Daneben beginnt in den heißen Corebereichen der Vorgang des Hinausdiffundierens aus den Intakten Coated Particles. Beide Vorgänge sind sehr stark von den hohen Spitzentemperaturen abhängig, wie aus der steilen Abnahme des Inventars zwischen dem 3. und 8. Tag hervorgeht. Ab dem 10. Tag ist nur noch eine geringe Freisetzung aus den Intakten Coated Particles zu beobachten und es entstehen auch kaum noch Defekte Coated Particles.

Da der Anteil der Defekten Coated Particles 12.8 % beträgt, kann man leicht ausrechnen, daß etwa die gleiche Menge an Spaltprodukten durch Diffusion aus Intakten Coated Particles freigesetzt werden. Die folgenden Abbildungen zeigen nun, wie unterschiedlich sich der Konzentrationsverlauf von zwei Intakten Coated Particles an verschieden heißen Stellen des Reaktors entwickelt.

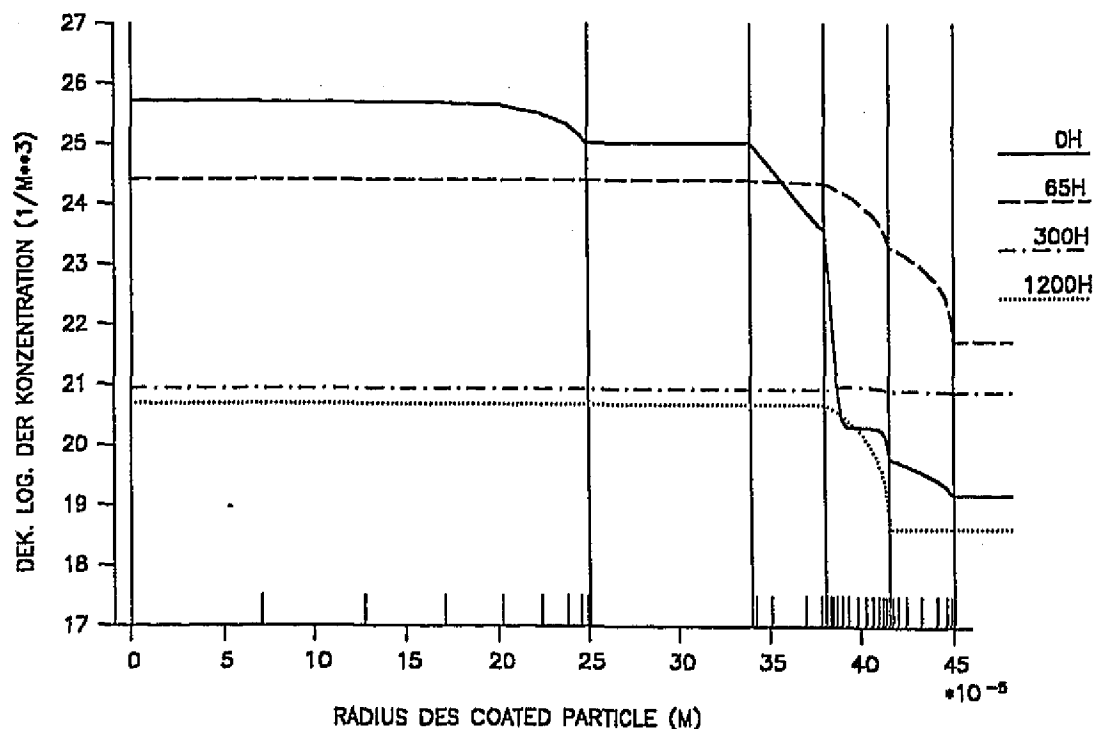


Abb. 43. Verlauf der Konzentrationen in einem "heißen" Intakten Coated Particle

Die Abb. 43 auf Seite 110 zeigt den Konzentrationsverlauf in einem Intakten Coated Particle, welches räumlich direkt oberhalb des Bereiches liegt, in dem die Coated Particles zu 100% zerstört sind. An diesem Ort dürfte es die höchsten Temperaturen erfahren, die ein Intaktes Coated Particle im Reaktor erreichen kann, ohne zerstört zu werden.

Man sieht deutlich, daß sich die Konzentrationen im Innern des Partikels aufgrund der hohen Temperatur schon nach 65 Stunden vollständig ausgleichen. Nur in den beiden äußeren Schichten stellt sich noch ein Konzentrationsgradient ein. Doch auch dieser kann nicht verhindern, daß nach 300 Stunden das "heiße" Intakte Coated Particle sein Inventar schon fast vollständig verloren hat. Hier ist gerade ein momentanes Gleichgewicht mit der Gaskonzentration gegeben. Die Kurve bei 1200 Stunden zeigt, daß wenn mit der Zeit die Temperatur und die Gaskonzentration fallen, sich auch wieder ein größerer Gradient in der Siliziumkarbid-Schicht bilden kann.

Ganz anders dagegen sehen die Verhältnisse in einem "kalten" Intakten Coated Particle aus.

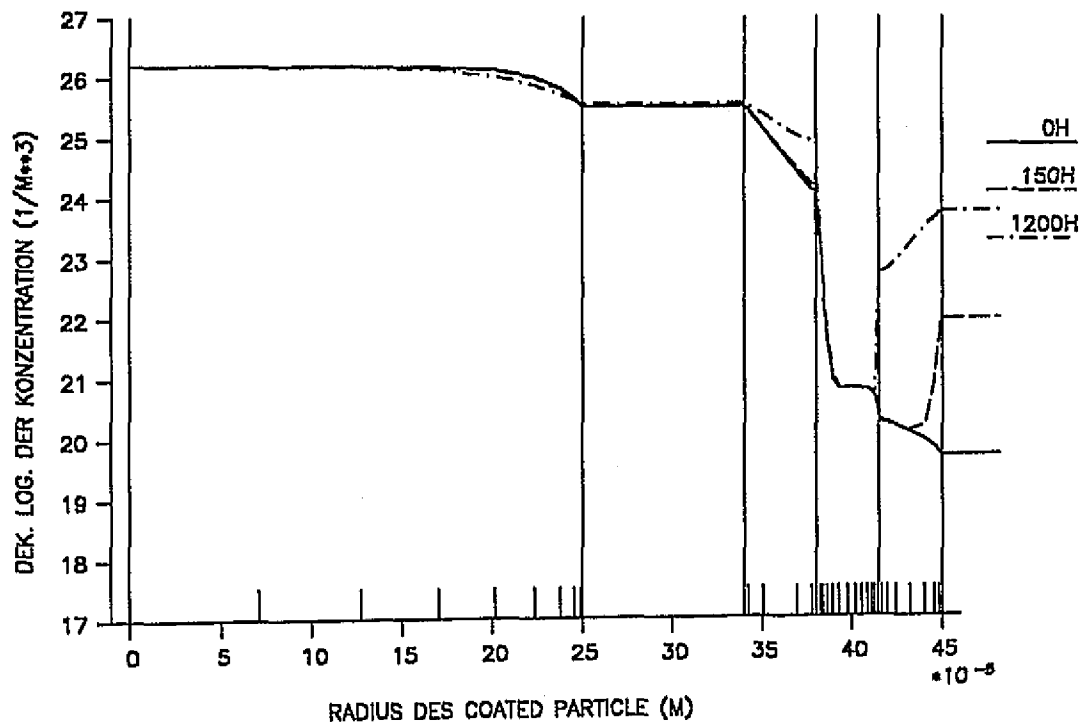


Abb. 44. Verlauf der Konzentrationen in einem "kalten" Intakten Coated Particle

Dieses Coated Particle befindet sich auf der Coreachse ganz unten in der Kugelschüttung. Hier entstehen nur Temperaturen von max. 1200°C. Aufgrund dieser niedrigen Temperaturen kommt es zu fast keinem Konzentrationsausgleich im Innern des Coated Particles. Es ist somit auch keinerlei Freisetzung aus dem Innern des Partikels möglich. Dagegen steigt die Außenkonzentration in der Brennelementmatrix an. Von hier aus diffundieren Spaltprodukte in die äußere Pyro-Kohlenstoff-Schicht. Bei der Bilanzierung erhöht sich daher in diesem Intakten Coated Particle das Inventar.

Der Unterschied zwischen diesen beiden Intakten Coated Particles macht noch einmal deutlich, daß nur aus den sich an heißen Stellen des Cores befindlichen Intakten Coated Particles auch Spaltprodukte austreten.

Die Schenk-Experimente (vgl. Abb. 10 auf Seite 41) zeigen, daß bei 1800°C mit massiven Freisetzungen auch aus Intakten Coated Particles zu rechnen ist. Auch die Nachrechnungen der Versuche (vgl. Abb. 16 auf Seite 56) geben dieses Verhalten wieder. Wenn man dies nun mit dem Ergebnis der Abb. 24 auf Seite 87 vergleicht, sieht man, daß etwa 35% der Brennelemente über 1800°C heiß werden. Daraus kann man schließen, daß bei einer Freisetzung aus den Coated Particles von etwa 25% (defekte und intakte zusammengenommen) durch den Konzentrationsaufbau in der Corekaverne die Freisetzung aus den Intakten Coated Particles behindert wird. Die Konzentrationserhöhung bewirkt eine Reduzierung der aufgrund der Schenk-Experimente erwarteten höheren Freisetzung.

Die folgende Untersuchung von Brennelementmatrix und Gasphase muß zeigen, warum es zu dieser Erhöhung des allgemeinen Konzentrationsniveaus kommt.

6.3 Brennelementmatrix und Gasphase

Im letzten Kapitel, in dem die Freisetzung aus den Intakten Coated Particles beschrieben worden ist, zeigte sich, daß der Konzentrationsaufbau in der Kugelschüttung einen ganz wesentlichen Einfluß auf die Umverteilungsprozesse der Spaltprodukte hat. Der Transport in der Gasphase ist dafür verantwortlich, welcher Anteil der primär freigesetzten Spaltprodukte im Corebereich der Brennelemente zurückgehalten wird. Deshalb werden erst die Transportmechanismen in der Gasphase und danach die Vorgänge in der Brennelementmatrix behandelt.

Beim Übergang vom Brennelement ins Gas wird der Quellterm nach der Gleichung (4.1-1) berechnet. In diese Beziehung gehen als bestimmende Größen die Konzentration an der Oberfläche des Graphits und die Gaskonzentration mit ein. Da jeder Quellterm direkt die Konzentrationen, die ihn bestimmen, verändert, iteriert das Programm SPTRAN bei der Bestimmung dieses Quellterms. Eine Darstellung und Kritik dieses Iterationsprozesses befindet sich im Kapitel 4.4.4 dieser Arbeit.

Bei den extrem hohen Temperaturen und Freisetzungen in den heißen Corebereichen stellt sich ein Zustand ein, bei dem diese Iteration nicht mehr korrekt arbeitet. Es kommt

vor, daß die Freisetzung ins Gas von der Iteration überschätzt wird. Hierdurch werden geringfügig mehr Spaltprodukte ins Gas abgegeben, als die Graphitmatrix zur Verfügung stellen kann. Es kommt zu negativen Konzentrationen in der Brennelementmatrix, die in der Größenordnung von $1/100 - 1/1000$ der letzten positiven Konzentrationen liegen. Die Bilanz der Spaltprodukte bleibt korrekt, und es kommt in den folgenden Rechenschritten zum Ausgleich der negativen Konzentrationen. Dieser Vorgang führt zu einem Schwingungsverhalten der Freisetzung vom Graphit ins Gas. Die Untersuchung dieser Vorgänge hat ergeben, daß sie wahrscheinlich nur mit Änderungen der Numerik vollständig behoben werden können. Eine weitere Verkleinerung der Zeitschritte würde die Rechenzeit so erhöhen, daß hierdurch die Anwendbarkeit des Programms unzulässig eingeschränkt würde.

Für die Aussagesicherheit der hier vorgestellten Ergebnisse spielen die Schwingungseffekte bei der Berechnung des Graphit-Gas-Quellterms keine relevante Rolle, da die Gesamtbilanz der Spaltprodukte erhalten bleibt und der Mittelwert der Freisetzung in den Bereichen, in denen Schwingungseffekte auftreten, einen Quelltermverlauf ergibt, der genau dem erwarteten Verlauf entspricht. Der sich ergebende Freisetzungsverlauf stellt vielmehr eine konservative Abschätzung dar, da das Auftreten von negativen Konzentrationen darauf hinweist, daß die Freisetzung aus der Brennelementmatrix überschätzt wird.

Als Konsequenz aus den Iterationsproblemen folgt, daß man die Ergebnisse der Rechnungen trotz dieser Schwingungseffekte als gute Näherung verwenden kann. Es erscheint aber nicht mehr sinnvoll, für den Graphit der Brennelementmatrix in diesem Bereich nun noch, wie im Kapitel 4.6 vorgeschlagen, die Effekte eines konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten zu untersuchen. Hierzu wäre ein schwingungsfrei funktionierendes Rechenmodell notwendig.

Die ersten Freisetzungsberechnungen werden durchgeführt, ohne daß ein konzentrationsabhängiger Diffusionskoeffizient verwendet wird. Hierdurch werden Referenzdaten bestimmt, mit denen die Ergebnisse der Rechnungen verglichen werden sollen, bei denen konzentrationsabhängige Diffusionskoeffizienten zum Testzweck verwendet werden. Solange bei der Berechnung der Konzentrationen der Brennelementmatrix Schwierigkeiten bestehen, wird der Einfluß des konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten nur am Deckenreflektor untersucht.

6.3.1 Transportvorgänge in der Gasphase

Die Abb. 45 auf Seite 114 zeigt in dreidimensionalen Darstellungen, wie sich die Konzentrationsverläufe in der Gasphase entwickeln. Alle Diagramme der Abbildung stellen die Konzentrationen im gleichen Maßstab dar.

Die ersten beiden Abbildungen zu den Zeitpunkten 3 und 4 Tage zeigen, wie sich die Konzentrationen im Core während der Phase der massiven Aufheizung und Freisetzung erhöhen. Es werden maximale Gaskonzentrationen von $3 \cdot 10^{19}$ Atome/m³ erreicht.

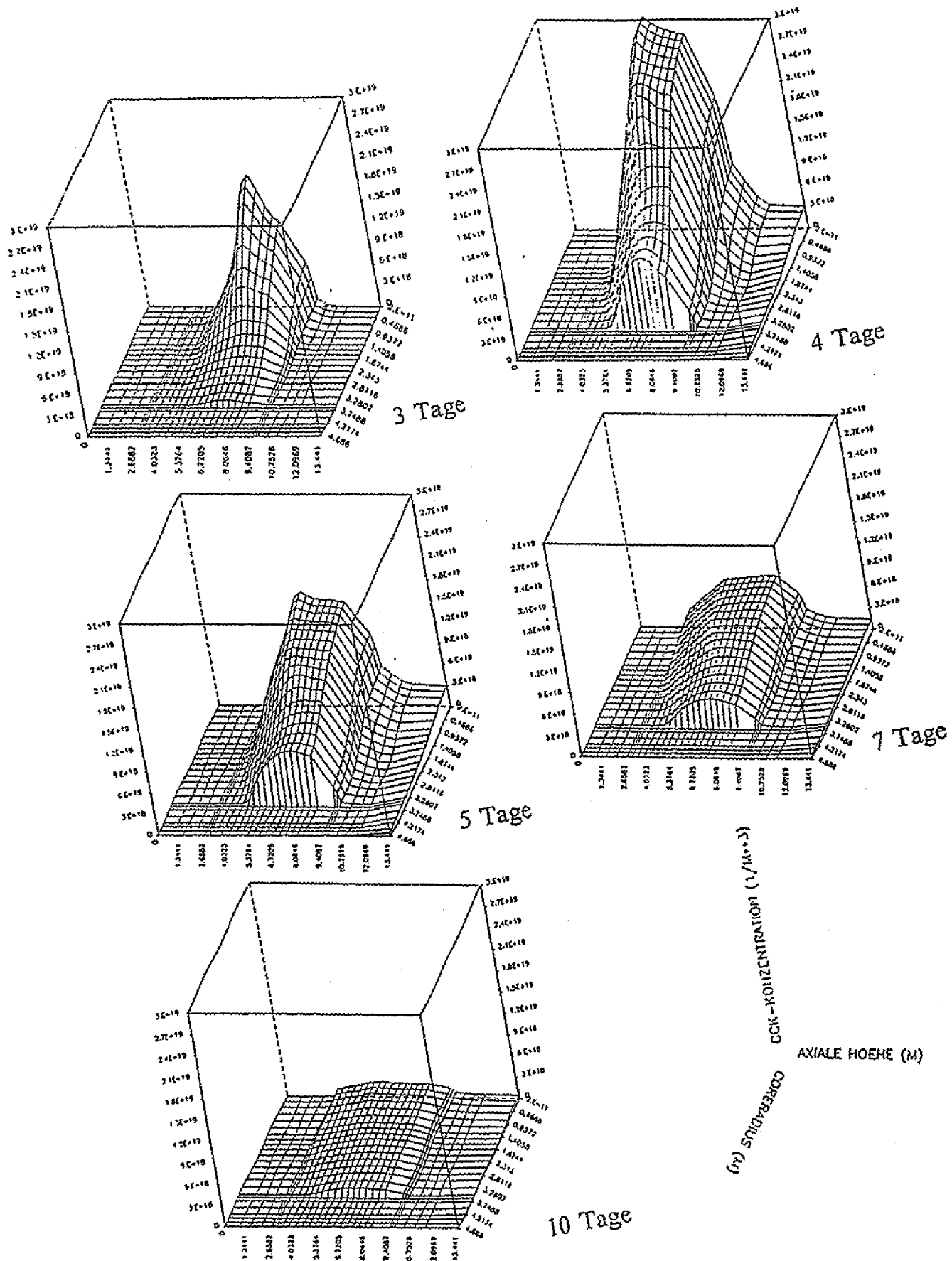


Abb. 45. 3D-Darstellung der Konzentrationsverteilung in der Gasphase

Diese hohen Werte lassen sich nur durch das Zusammenwirken von zwei Effekten erklären. Durch die schnelle Freisetzung aus den Intakten und Defekten Coated Particles der heißen Corebereiche erhöht sich die Konzentration in der Brennelementmatrix sehr stark. Im nächsten Abschnitt werden die genauen Werte gezeigt. Zusätzlich steigt der Wert α der Sorptionsbeziehung, der sowohl temperatur- als auch konzentrationsabhängig ist. An der Gleichung der Quelltermberechnung (4.1-1) erkennt man, daß beide Veränderungen direkt zu einer Erhöhung des Quellterms führen. Der Quellterm wird hierdurch so groß, daß auch das Gas, das auf dem Freisetzungspfad die besten Transporteigenschaften hat, den Spaltproduktberg nur zum Teil wegtransportieren kann.

Darüberhinaus zeigt die Darstellung zum Zeitpunkt von 4 Tagen, daß sich oberhalb der Stelle im Core, an der die maximalen Temperaturen und Freisetzungen auftreten, die Konzentrationen axial fast vollständig ausgleichen. Erst im Hohlraum oberhalb der Schüttung beginnt axial ein steiler Konzentrationsgradient. Dieser Ausgleich ist der geringe Effekt, den die vergleichsweise schnellen Transportvorgänge der Gasströmung bewirken. Erst im Deckenreflektor sind die Effekte der Anlagerung von Spaltprodukten so ausgeprägt, daß es zu einer deutlichen Konzentrationsabnahme kommt.

Die Konzentrationsverteilungen zu den späteren Zeitpunkten (5, 7 und 10 Tage) der Abb. 45 auf Seite 114 zeigen, daß die Konzentrationen im Gas rasch zurückgehen. Die entscheidene Frage hierbei ist, welcher Anteil der Spaltprodukte in der Kugelschüttung bleibt und sich hier wieder anlagert und welcher aus dem System der Brennelemente zum Deckenreflektor hin transportiert wird.

Die folgende Abbildung gibt den Verlauf des Stroms der Spaltprodukte wieder, die vom Gas zum Deckenreflektor transportiert werden.

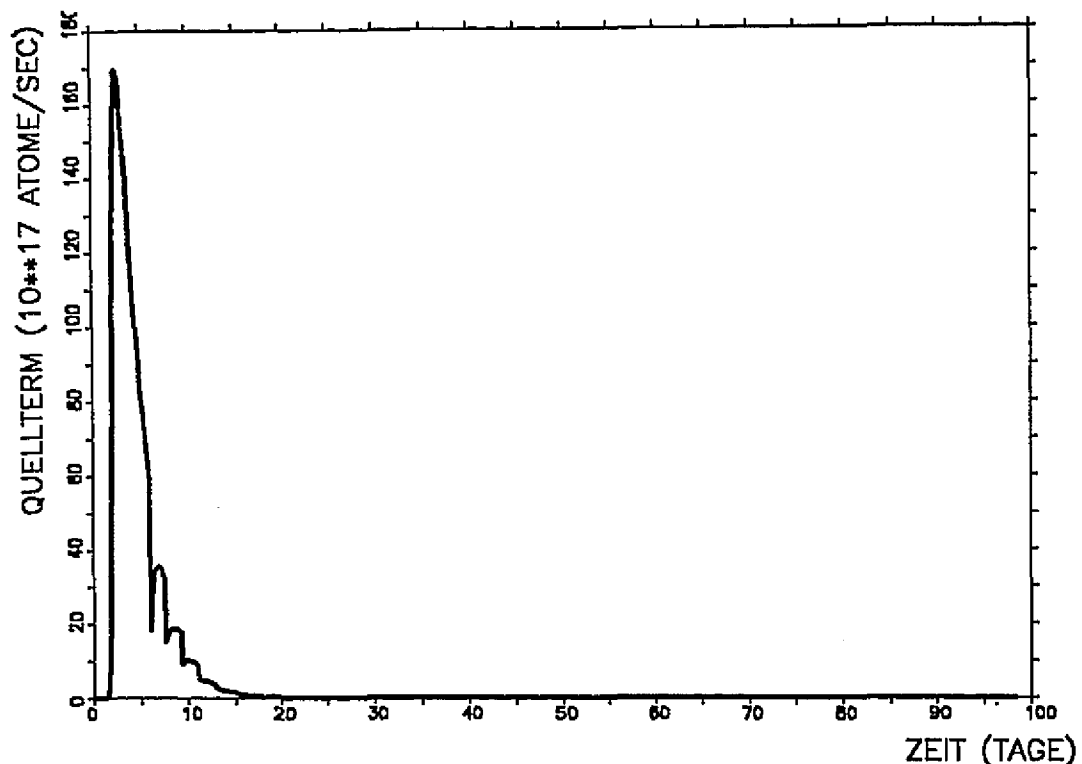


Abb. 46. Eintrittsstrom (Cs 137) in den Deckenreflektor

Die Unstetigkeiten im Kurvenverlauf resultieren aus den beschriebenen numerischen Problemen bei der Berechnung der Quellterme in der Kugelschüttung.

Ansonsten zeigt der Spaltproduktstrom zum Deckenreflektor einen Verlauf, wie er der Konzentrationsentwicklung des Gases in der Kugelschüttung entspricht. Mehr noch als der Verlauf interessiert an dieser Stelle die integrale Menge der Spaltprodukte, die die Kugelschüttung verlassen. Durch die Integration über die Kurve ergeben sich folgende Werte:

Gesamtfreisetzung hin zum Deckenreflektor: $3.8 \cdot 10^{24}$ Atome
 dies entspricht in Prozent: 3.39 % vom Gesamtinventar

Es zeigt sich, daß nur ein kleiner Teil der Spaltprodukte aus dem Bereich der Brennelemente entweichen kann. Hierfür scheint das Verhältnis zwischen der Transportkapazität aus dem Corebereich hinaus und der Geschwindigkeit der erneuten Anlagerung der Spaltprodukte in der Brennelementmatrix verantwortlich. Es gelangen von der primären Freisetzung aus den Coated Particles, die man in einfacher Näherung mit 25% (Freisetzung aus Intakten und Defekten Coated Particles) angeben kann, nur etwas mehr als 16% (von diesen 25%) aus dem Bereich der Kugelschüttung heraus.

6.3.2 Speicherpotential der Brennelementmatrix

Alle Spaltprodukte, die primär aus den Coated Particles freigesetzt werden und nicht aus der Kugelschüttung entweichen, müssen in diesem Bereich gebunden werden. Sie würden sonst vom Gas über die langen Zeiträume wegtransportiert. Da die Menge der Spaltprodukte, die die Gasphase aufnehmen kann, bei langfristigen Betrachtungen zu vernachlässigen ist, bleibt nur die Brennelementmatrix, um die Spaltprodukte aufzunehmen.

Um diesen Sachverhalt zu verdeutlichen, zeigt die folgende Abbildung, wie sich das Inventar an Spaltprodukten integral über alle Brennelemente (Coated Particles nicht eingerechnet) verändert.

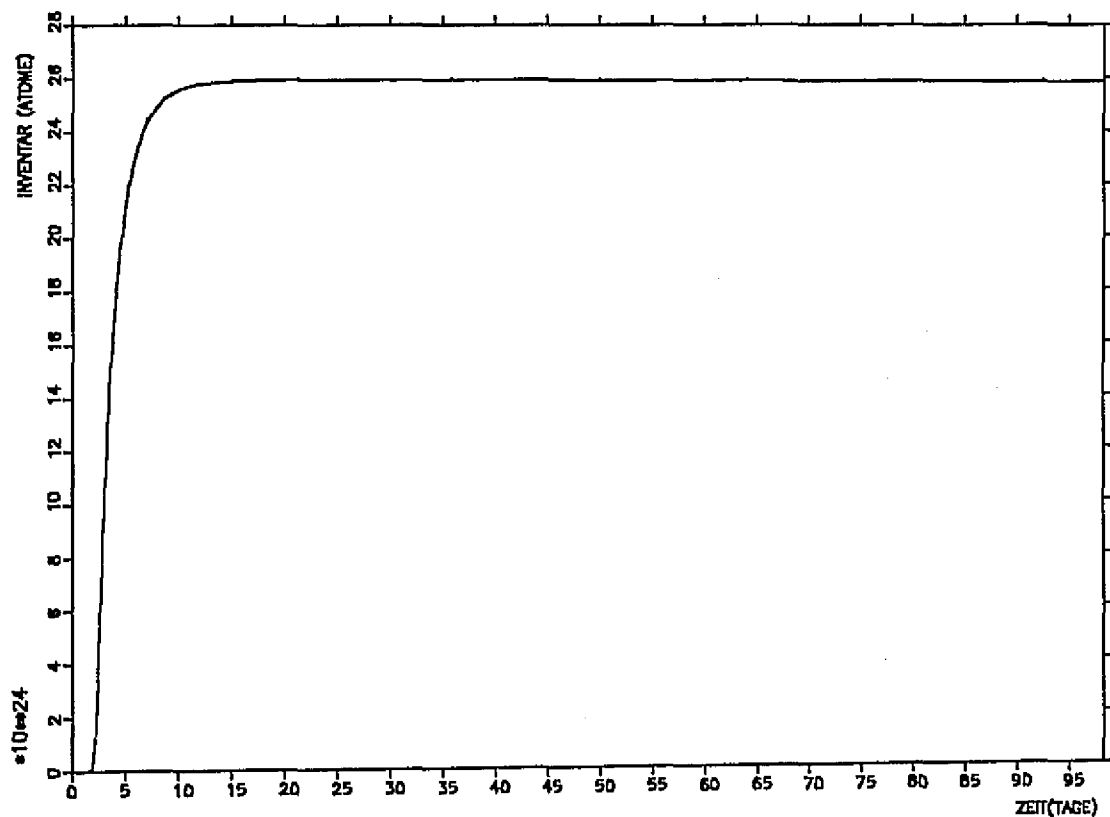


Abb. 47. Änderung des integralen Inventars aller Brennelemente

Bei Störfallbeginn liegt das Ausgangsinventar⁶⁸ bei $3.23 \cdot 10^{21}$ Atomen. Es erhöht sich mit der primären Freisetzung aus den Coated Particles, denn alle Spaltprodukte, die ins

⁶⁸ Der Wert ist aus dem Diagramm nicht ablesbar. Er beträgt etwa $2.3 \cdot 10^{21}$ des Gesamtinventars und entspricht damit den herstellungsbedingten Verunreinigungen.

Gas gelangen, müssen vorher die Matrix ihres Brennelementes passieren. Dieser Zusammenhang bewirkt, daß sich das Inventar durch die primäre Freisetzung erhöht, doch verringert sich diese, wie die Abb. 42 auf Seite 109 zeigt, schon nach 15 bis 20 Tagen sehr stark. Als Konsequenz hieraus müßte sich auch das Inventar der Brennelementmatrix entsprechend verringern, wenn diese nur eine Transportfunktion hätte. Doch zeigt die Abb. 47 auf Seite 117 nach 20 Tagen nur eine vernachlässigbare Inventarminderung. Die Freisetzung aus der Brennelementmatrix ist nach 20 Tagen minimal. Daraus ist zu folgern, daß die Speicherprozesse im Graphit die Transportprozesse bei weitem übertreffen.

Zum besseren Verständnis dieses Zusammenhangs werden in den folgenden beiden Abbildungen die Konzentrationsverläufe in einem "heißen" und in einem "kalten" Brennelement dargestellt.

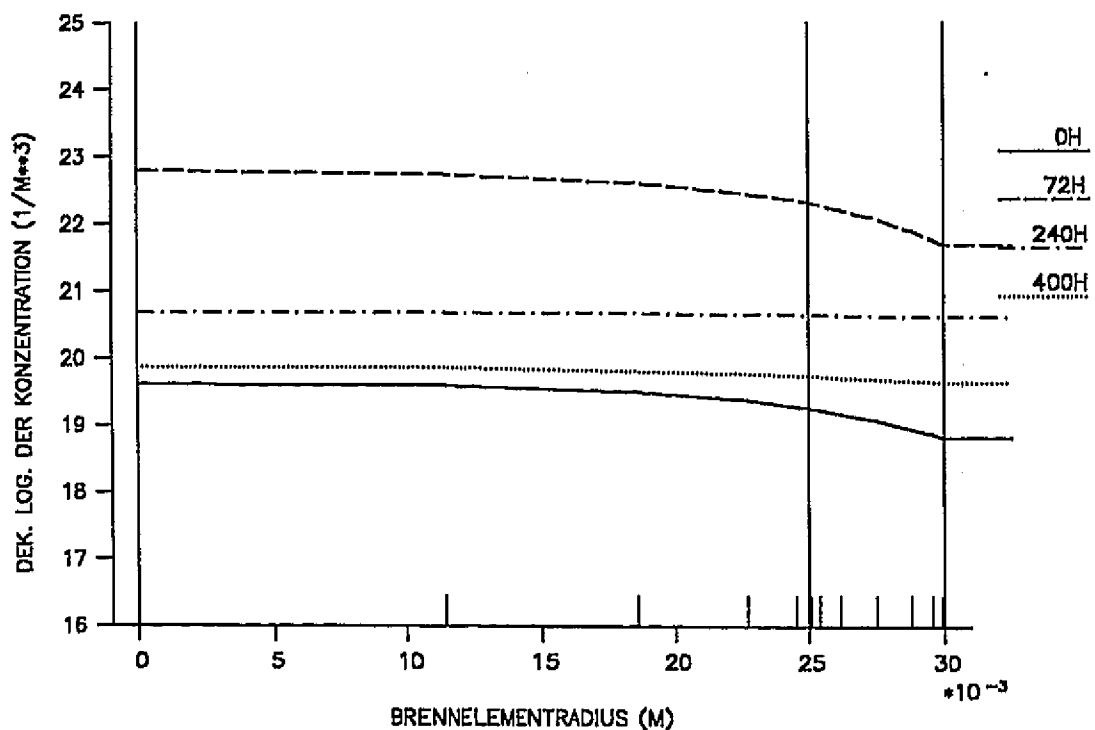


Abb. 48. Verlauf der Konzentrationen in einer "heißen" Brennelementmatrix

In der Abb. 48 wird die Konzentrationsverteilung zu verschiedenen Zeitpunkten über dem Radius aufgetragen. Es handelt sich um die Konzentration im Matrixgraphit. Das als "heiß" gekennzeichnete Brennelement befindet sich auf der Coreachse an der Stelle, an der die Maximaltemperatur auftritt.

Die durchgezogene Linie kennzeichnet die Anfangskonzentration. Sie erhöht sich in den ersten drei Tagen (72 Stunden) um 3 Zehnerpotenzen. Dies wird durch die Freisetzung

aus den in dieser Masche zu 100 % defekt werdenden Coated Particles bewirkt. Die sehr hohen Temperaturen führen zum vollständigen Konzentrationsausgleich. Über die Zeit läuft das Brennelement, wie die Kurven zu den Zeitpunkten von 10 und 16.7 Tagen zeigen, langsam leer.

Dagegen zeigt das "kalte" Brennelement ein völlig anderes Verhalten.

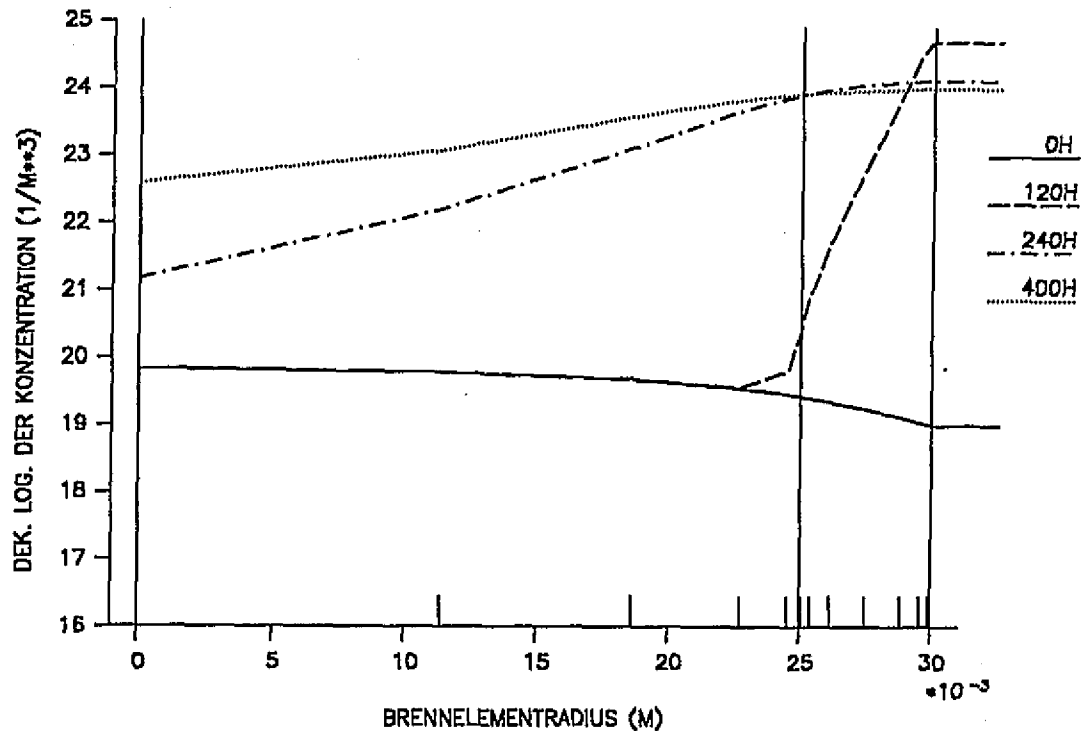


Abb. 49. Verlauf der Konzentrationen in einer "kalten" Brennelementmatrix

Das "kalte" Brennelement befindet sich unten in der Kugelschüttung auch auf der Coreachse. An diesem Ort ist es im Vergleich zu den meisten anderen Brennelementen nur "niedrigen" Temperaturen und Gaskonzentrationen ausgesetzt.

Aus diesem Brennelement treten keine Spaltprodukte aus. Bevor auch nur geringe Mengen an Spaltprodukten freigesetzt werden können, ergibt sich durch die steigende Außenkonzentration bereits eine Diffusion in die Brennelementmatrix hinein. Die Kurven zu den späteren Zeitpunkten zeigen, daß sich das Inventar um einige Größenordnungen erhöht hat, wobei der Verlauf der Konzentrationen beweist, daß es sich bei den hinzugekommenen Spaltprodukten um solche handelt, die nicht aus den Coated Particles des Brennelements selbst freigesetzt werden, sondern von außen in das Brennelement hineindiffundiert sind.

Da im Core, wie die Abb. 24 auf Seite 87 zeigt, ein viel größerer Anteil der Brennelemente als "kalt" denn als "heiß" angesehen werden kann, erklärt dies, warum in der Brennelementmatrix so große Spaltproduktmengen gebunden werden.

6.3.3 Bilanz der Freisetzen in der Kugelschüttung

Um die Effekte der einzelnen beschriebenen Transportmechanismen in den Brennelementen und im Kugelhaufen vergleichen zu können, soll mit Hilfe von zwei einfachen Tabellen dargestellt werden, wie sich die Spaltprodukte im Kugelhaufen am Ende des Untersuchungszeitraums verteilen und wieviele aus ihm ausgetreten sind.

Dabei darf den einzelnen Zahlenwerten keine zu große Bedeutung beigemessen werden, da die Spaltproduktrechnungen zur Zeit immer noch mit großen Unsicherheiten behaftet sind. Doch sind die prozentualen Verteilungen sicherlich gut geeignet, einen Überblick über die Spaltproduktverteilung zu geben.

Anfangszustand	
Gesamtmenge Cs 137 im Reaktor:	$1.16 \cdot 10^{26}$ Atome
davon in der BE - Matrix:	$3.23 \cdot 10^{21}$ "
entspricht einer herstellungsbedingten Urankontamination von:	$2.76 \cdot 10^{-5}$

Tab. 1: Spaltproduktverteilung zu Beginn des Störfalls

Im Normalbetrieb ist die Verteilung der Spaltprodukte einfach. Alle Spaltprodukte befinden sich in den Coated Particles. Es existieren keine Defekten Coated Particles, die während des Betriebs zerstört worden sind. Die geringe Spaltproduktkontamination ist allein auf das Uran zurückzuführen, das bei der Brennelementfertigung bereits außerhalb der Coated Particles vorliegt.⁶⁹ Man spricht daher von "Freiem Uran". Das Freie Uran wird im Reaktorbetrieb verbrannt und ist für die geringe Kontamination des Brennelementgraphits verantwortlich.

⁶⁹ Der Wert in der Tabelle ergibt sich aufgrund der Verteilung der Spaltprodukte zwischen Intakten Coated Particles und den anderen Brennelementbereichen, die mittels einer Vorbereitungsrechnung mit dem Programm KUGEL (siehe Kapitel 2.6) erzeugt wurden. Hierbei wurden konservative Annahmen getroffen.

Nach 100 Tagen Störfallzeit		
Intakte Coated Particles:	$8.46 \cdot 10^{25}$	73.80 %
Defekte Coated Particles:	$1.11 \cdot 10^{18}$	0.00 %
Brennelement - Matrix:	$2.58 \cdot 10^{25}$	22.58 %
Integral über den Quellterm zum Deckenreflektor:	$3.8 \cdot 10^{24}$	3.39 %
Integral über den Quellterm zum Bodenreflektor:	$2.7 \cdot 10^{23}$	0.23 %

Tab. 2: Spaltproduktverteilung nach 100 Tagen Störfallzeit

Dagegen zeigt sich nach 100 Tagen Störfallzeit ein komplexeres Bild. Es wird jetzt zwischen Intakten und Defekten Coated Particles unterschieden, wobei der Anteil der Defekten Coated Particles 12.8 % beträgt. Nahezu um den doppelten Wert hat das Inventar der Intakten Coated Particles abgenommen.

Die Defekten Coated Particles sind fast vollständig leergelaufen. Sie besitzen kein Inventar mehr, das bei weiteren Freisetzungen noch berücksichtigt werden müßte. Die hohen Temperaturen, die zu ihrem Versagen geführt haben, bewirken durch die resultierenden "großen" Diffusionsgeschwindigkeiten die vollständige primäre Freisetzung aus den Defekten Coated Particles.

Dafür hat der Graphit der Brennelemente einen Anteil von 22,5% der Spaltprodukte aufgenommen. Hierbei zeigt sich die gute Sorptionsfähigkeit des Graphites, die aber nur so wirkungsvoll werden kann, wenn durch die Integrität des Cores ein Einschluß mit nur geringen Gasströmungen gegeben ist.

Im unteren Teil der Tabelle sind die zwei Quellterme aus dem Bereich der Brennelemente hinaus aufgetragen. Dabei ist der Quellterm zum Deckenreflektor sehr einfach durch den Gasstrom zum Deckenreflektor zu erklären, wobei jedoch auf diese Vorgänge noch genauer bei der Behandlung des Deckenreflektors eingegangen werden wird.

Auf den ersten Blick erscheint zunächst unverständlich, wie ein Teil der Spaltprodukte in den Bodenreflektor gelangen konnte. Sie können nicht durch den Primärkreislauf in den Bodenreflektor transportiert worden sein, da dieser Transportpfad durch einen Programmeingriff ausgeschaltet ist. Es würden sonst wegen der nicht aktiven Sorption an Metallen unrealistische Quellterme zurück ins Core berechnet werden.

Da während des gesamten Zeitraums der Spaltproduktfreisetzung im Bodenreflektor Aufwärtsströmung herrscht, können die Spaltprodukte nur durch Diffusion gegen die Strömung in den Bodenreflektor gelangt sein. Ein Vergleich der Stärke der Transportmechanismen im Gas hat gezeigt, daß der diffusive Transport durchaus den konvektiven überwinden kann, wenn nur die Konzentrationsgradienten groß genug sind. Bei der Untersuchung der Konzentrationsgradienten ergibt sich, wie die Abb. 45 auf Seite 114 zeigt, daß sie ausreichend steil sind.

6.4 Rückhaltewirkung des Deckenreflektors

Bei sehr vielen Untersuchungen zur Freisetzung von Spaltprodukten ist immer dem Deckenreflektor eine besondere Bedeutung beigemessen worden. Der Deckenreflektor ist die erste Komponente, die die Spaltprodukte auf dem Freisetzungspfad nach außen passieren. Er selbst ist frei von primären Spaltproduktquellen und befindet sich außerdem auf einem im Vergleich zu den Maximaltemperaturen niedrigen Temperaturniveau. Das durch die Naturkonvektion umgewälzte Helium muß durch seine Bohrungen strömen, in denen das Verhältnis von Gasvolumen zu Oberfläche für Anlagerungen günstig ist.

Aufgrund dieser Überlegungen ist auch das Deckenreflektorexperiment, welches in Kapitel 4 beschrieben wurde, durchgeführt worden. Bei den Nachrechnungen des Experimentes hat sich gezeigt, daß zu einer befriedigenden Nachrechnung die Einführung eines konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten für den Deckenreflektorgraphit notwendig wurde.

Bei diesen Freisetzungsrechnungen für das Gesamtmodell wird die erste Rechnung noch ohne den konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten durchgeführt. Durch die Ergebnisse dieser Rechnung soll es möglich werden, die Unterschiede, die sich aus einer Rechnung mit Berücksichtigung des konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten ergeben, zu ermitteln.

Für beide Rechnungen ergibt sich der gleiche Quellterm aus der Kugelschüttung zum Deckenreflektor hin, da keinerlei Änderungen in der Behandlung dieses Bereiches vorgenommen werden. Der entsprechende Quellterm ist in der Abb. 46 auf Seite 116 dargestellt.

6.4.1 Rückhaltewirkung ohne konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten

Bei den Experimenten wird die Rückhaltefähigkeit des Deckenreflektors mit Hilfe eines sog. Escapefaktors beschrieben. Da sich diese Beschreibung besonders gut eignet, um den Verlauf der Rückhaltung bei einem kontinuierlichem Spaltproduktstrom zu untersuchen, wird sie auch hier verwendet.

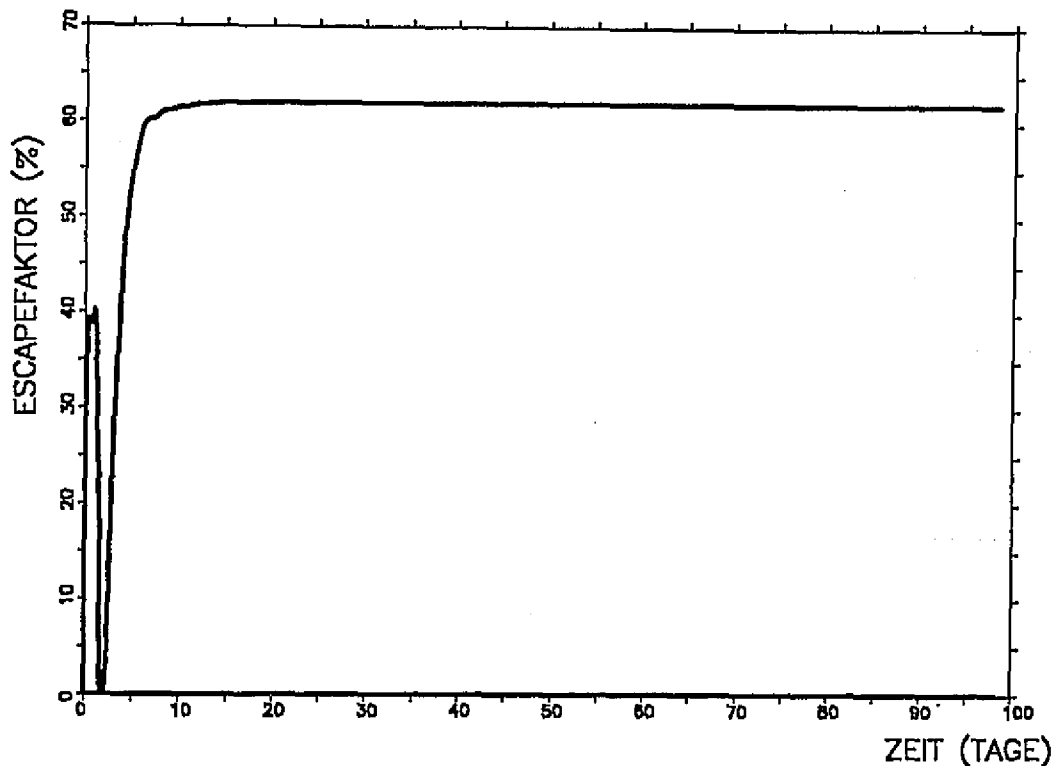


Abb. 50. Escapefaktor des Deckenreflektors: Verhältnis des bisher integral ausgetretenen Cäsiums zu dem bisher eingetretenen.

Der Verlauf des Escapefaktors wird dadurch bestimmt, daß der für die Begrenzung der Speicherung bestimmende Mechanismus wechselt. Zum Zeitpunkt 0 wird dem Escapefaktor als Anfangswert 0 % zugeordnet. Für die ersten Tage erreicht er dann einen Wert von etwa 40 %. Zu diesen Zeiten ist die Gasströmung noch sehr aktiv, da die Druckentlastung noch nicht abgeschlossen ist. Dagegen ist die Cäsiumkonzentration im Gas zu vernachlässigen, da noch keine primäre Freisetzung stattgefunden hat. Die Abb. 46 auf Seite 116 zeigt, daß zu diesem Zeitpunkt noch kein relevanter Spaltproduktstrom zum Deckenreflektor existiert. Trotzdem gelingt es dem Deckenreflektor nur einen Anteil von 60 % der geringen Spaltproduktmenge im Gas zurückzuhalten. Dies erklärt sich daraus, daß aufgrund der hohen Strömungsgeschwindigkeit nur dieser Anteil der Spaltprodukte beim Durchströmen des Deckenreflektors überhaupt an die Wandungen der Bohrungen transportiert werden kann. Der Mechanismus des Stoffaustausches zwischen Gas und Grenzschicht kann bei hohen Gasgeschwindigkeiten nur einen Teil der vom Gas mitgeführten Spaltprodukte zur Wand transportieren.

Mit dem Ende der Druckentlastung nehmen die Geschwindigkeiten im Gas ab (siehe Abb. 33 auf Seite 97). Durch die Abnahme der Geschwindigkeiten erhöht sich die Wahrscheinlichkeit, daß die Spaltprodukte auch die Graphitwand erreichen, auf nahezu

1. Daher fällt dann der Escapefaktor auch auf einen Wert in der Größenordnung von 0 zurück, obwohl jetzt schon der Anstieg der Gaskonzentration beginnt.

Dann nimmt der Escapefaktor einen Verlauf, wie er aus den Einzelversuchen des Deckenreflektorexperimentes bekannt ist, an. Er steigt zunächst, um sich dann asymptotisch dem Wert von 60 % zu nähern. Alle Spaltprodukte haben aufgrund der geringen Strömungsgeschwindigkeiten jetzt die Möglichkeit, zur Graphitwand zu gelangen. Diese kann auch zum Anfang alle aufnehmen, doch ergibt sich mit dem Konzentrationsanstieg im Graphit eine Begrenzung der Spaltproduktmenge, die der Graphit binden kann.

Zum besseren Verständnis dieses Vorgangs werden in den folgenden Abbildungen die Konzentrationsverläufe an verschiedenen Stellen des Deckenreflektors dargestellt.

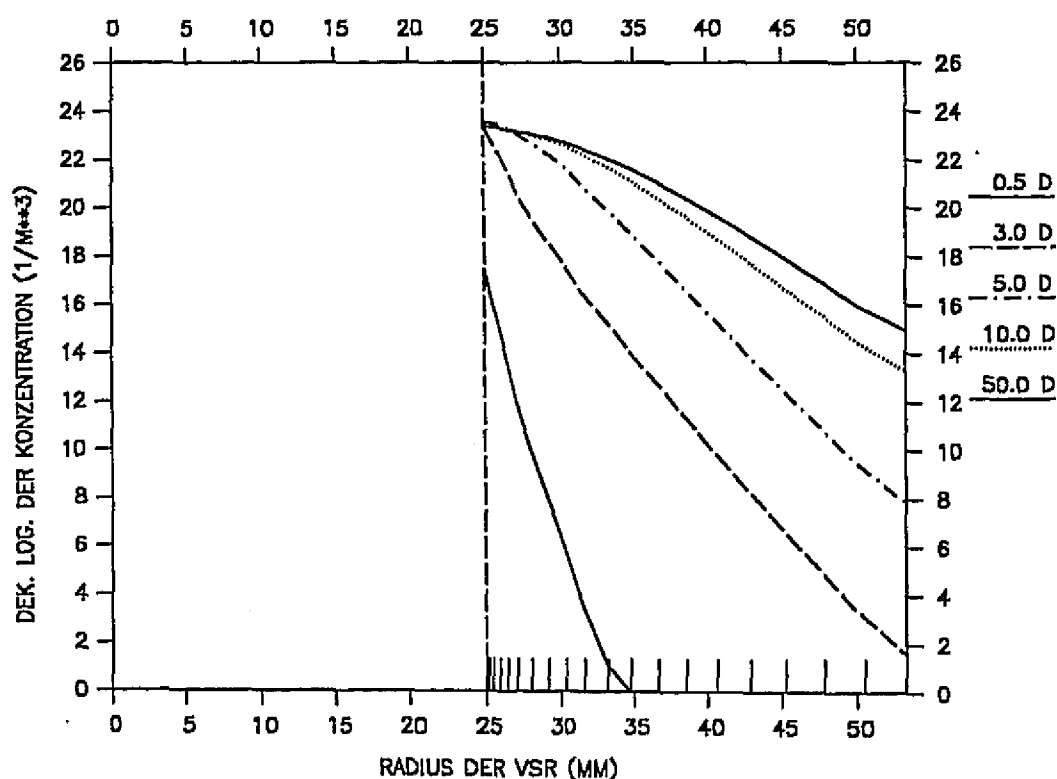


Abb. 51. Konzentrationsverteilung unten im Deckenreflektor

In dieser Abbildung wird die zeitliche Änderung des Konzentrationsverlaufs aufgezeigt. Die X-Achse zeigt den Radius einer Deckenreflektorbohrung und den des ihr zuzurechnenden Graphits. Der Radius aller Bohrungen im Deckenreflektor beträgt 2.5 cm. Mit einem Leervolumenanteil des Deckenreflektors von 22 % ergibt sich hieraus für jede Bohrung eine Schichtdicke des umgebenden Graphites von 2.83 cm.

Die Abb. 51 zeigt die Konzentrationen auf der Coreachse am unteren Teil des Deckenreflektors. Zum Zeitpunkt 0.5 Tage beginnt langsam der Anstieg der Konzentration an der Oberfläche des Graphites und damit das Hineindiffundieren der Spaltprodukte in den Graphit. Bei allen späteren Zeitpunkten hat sich eine fast feste Oberflächenkonzentration eingestellt, und es ändert sich lediglich die Menge der Spaltprodukte, die in den Graphit hineindiffundiert sind.

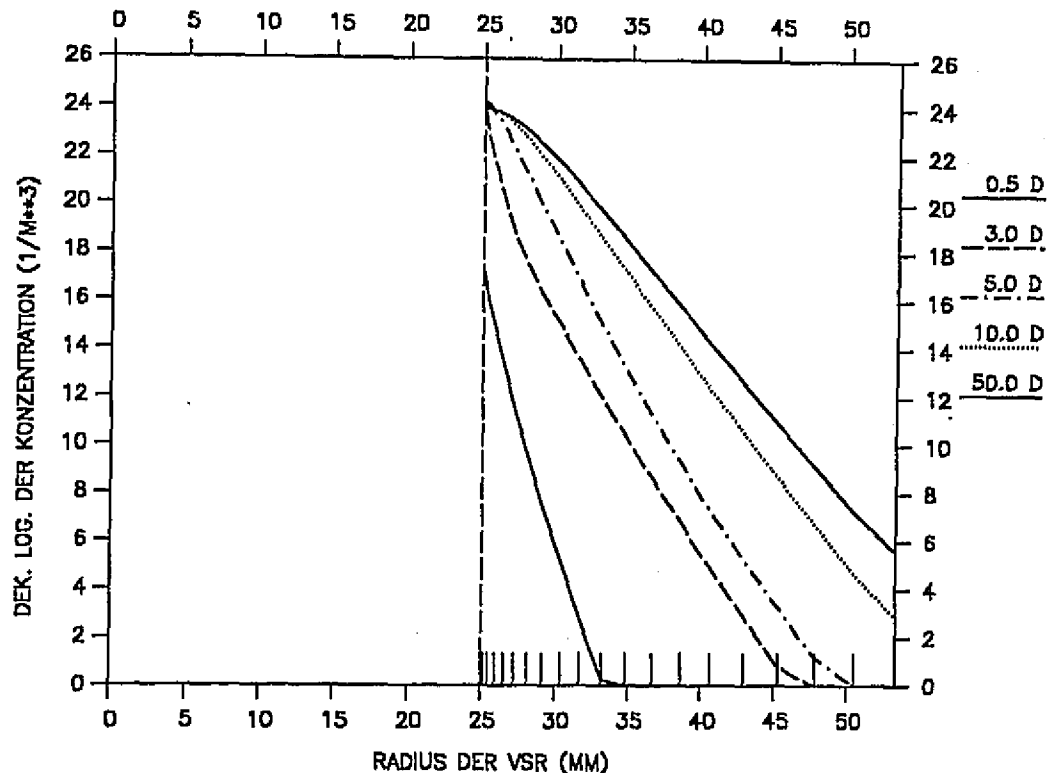


Abb. 52. Konzentrationsverteilung in der Mitte des Deckenreflektors

In dieser Abbildung wird die Konzentrationsverteilung wieder auf der Coreachse in der Mitte des Deckenreflektors gezeigt. Im Unterschied zur vorherigen Darstellung liegt die sich einstellende Oberflächenkonzentration leicht höher und erfolgt das Hineindiffundieren in den Graphit langsamer.

Beide Effekte sind das Ergebnis der verminderten Temperatur im oberen Bereich des Deckenreflektors. Hier herrscht, wie die Abb. 25 auf Seite 88 zeigt, ein von unten nach oben stark abnehmender Temperaturgradient. Im Vergleich zu der vorher betrachteten Stelle weiter unten im Deckenreflektor bedingen die niedrigeren Temperaturen, daß sowohl die Werte für die Größe α der Sorptionsbeziehung als auch die Diffusionskoeffizienten abnehmen. Durch die Abnahme von α wird das Anlagerungsverhalten verbessert. Der abnehmende Diffusionskoeffizient bewirkt die schlechtere Abfuhr der Spaltprodukte in die Tiefe des Graphits. Beides zusammen führt zu einem Anstieg der

Oberflächenkonzentration, obwohl an dieser Stelle des Deckenreflektors die Gaskonzentration schon um die Menge der bereits weiter unten im Deckenreflektor sorbierten Spaltprodukte verringert ist.

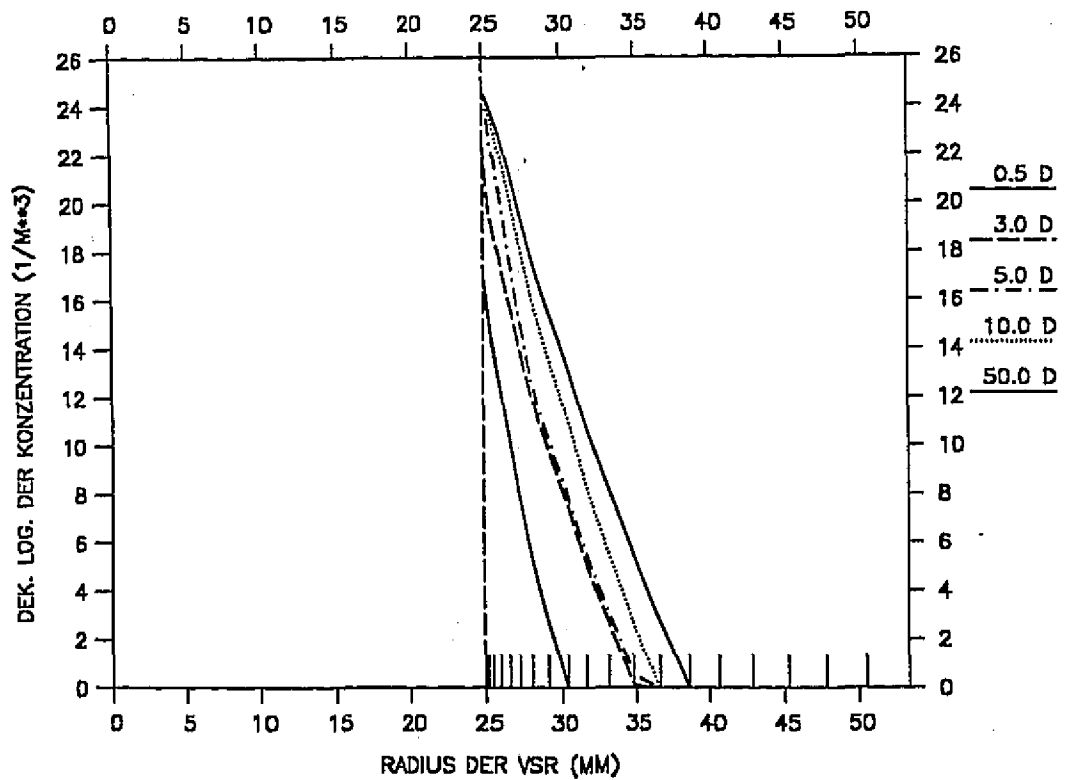


Abb. 53. Konzentrationsverteilung oben im Deckenreflektor

Diese Abbildung zeigt als letzte Position die Konzentrationsverteilung an der Oberkante des Deckenreflektors. An dieser Position haben sich die oben beschriebenen Effekte noch verstärkt. Als Ergebnis der weiter gesunkenen Temperatur steigen die Oberflächenkonzentrationen noch mehr an, und es ergeben sich sehr starke Gradienten im Graphit, die sich auch über lange Zeiträume nur wenig verändern.

6.4.2 Rückhaltewirkung mit konzentrationsabhängigem Diffusionskoeffizienten

Die gleiche Spaltproduktfreisetzungsberechnung wird noch einmal wiederholt, nur daß im Deckenreflektor der konzentrationsabhängige Diffusionskoeffizient jetzt so berücksichtigt wird, wie er in Kapitel 4.5 beschrieben worden ist.

Für den Escapefaktor ergibt sich jetzt der folgende Verlauf.

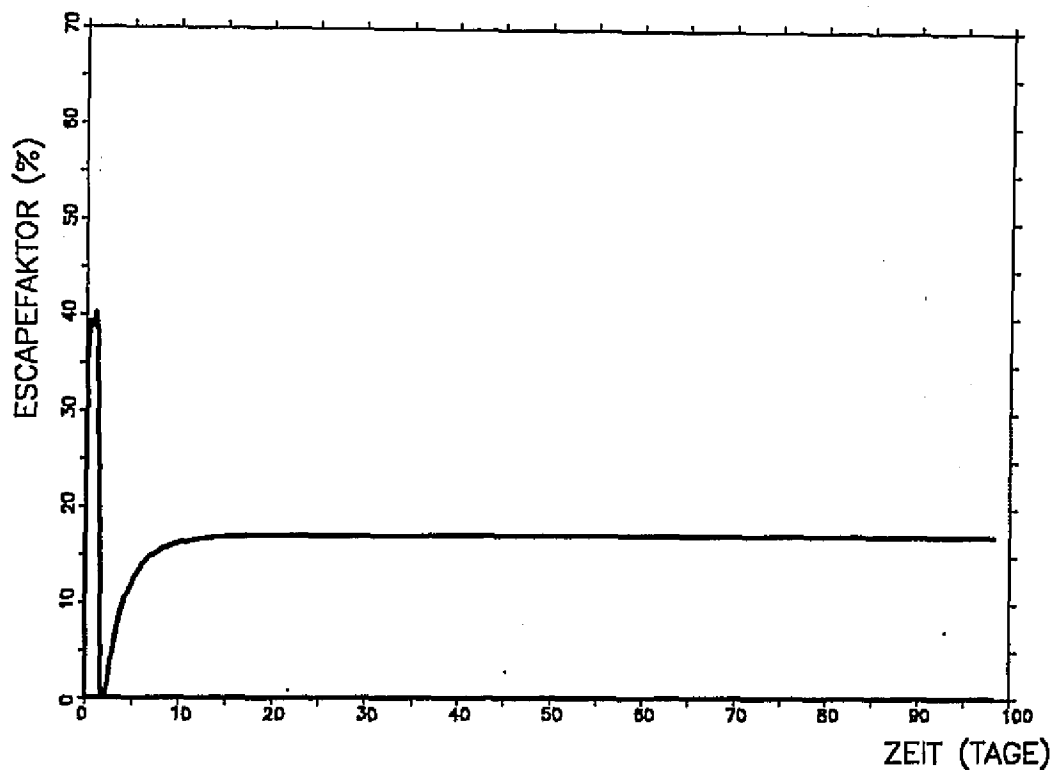


Abb. 54. Escapefaktor des Deckenreflektors (konz. Diff.)

Die Wirkung des konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten ist deutlich zu erkennen. Die Kurve hat lange den gleichen Verlauf wie die in der Abb. 50 auf Seite 123. Erst wenn die Konzentrationen auf das Niveau ansteigen, daß der konzentrationsabhängige Diffusionskoeffizient wirksam werden kann, ergeben sich Veränderungen.

Dann sinkt der Escapefaktor von etwa 60 % im ersten Fall auf nun etwa 17 %. Die Veränderungen durch die deutlich erhöhte Rückhaltung der Spaltprodukte mit Einführung des konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten kann man in den Konzentrationsverläufen erkennen.

Es haben sich in den unteren und den mittleren Bereichen des Deckenreflektors nur so minimale Veränderungen ergeben, daß eine erneute Abbildung dieser Konzentrationsverteilungen nicht sinnvoll ist. Erst im oberen Bereich des Deckenreflektors ist die Veränderung deutlich zu erkennen. Deshalb wird auch nur dieser Teil erneut dargestellt.

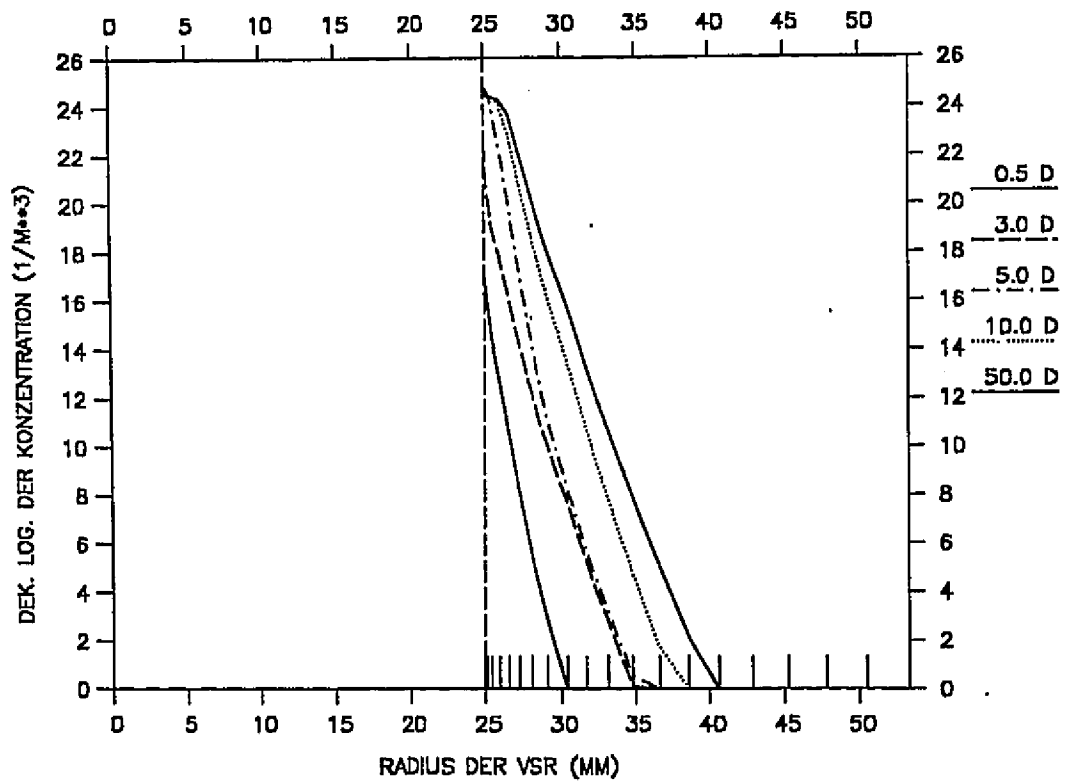


Abb. 55. Konzentrationsverteilung oben im Deckenreflektor (konz. Diff.)

Die Konzentrationen werden nur in der Nähe der Oberfläche so hoch, daß sich der konzentrationsabhängige Diffusionskoeffizient auswirken kann. Hier sieht man, wie durch den vergrößerten Diffusionskoeffizienten eine schnellere Diffusion möglich wird, die sich an den im oberen Bereich der Darstellung abgeflachten Konzentrationsgradienten erkennen läßt.

6.4.3 Zusätzliche Aspekte zur Rückhaltewirkung des Deckenreflektors

Bei Rechnungen, die vor der eben vorgestellten Rechnung für den HTR 400 durchgeführt worden sind, wurde bei den gleichen thermohydraulischen Bedingungen mit einem integralen Quellterm zum Deckenreflektor gerechnet, der etwa halb so groß war, wie der sich bei den Referenzrechnungen einstellende.

Die genauen Werte betrugen:

Gesamtfreisetzung hin zum Deckenreflektor: $1.9 \cdot 10^{24}$ Atome

dies entspricht in Prozent: 1.64 % vom Gesamtinventar

Es ergaben sich dabei deutlich bessere Rückhaltungswerte für den Deckenreflektor.

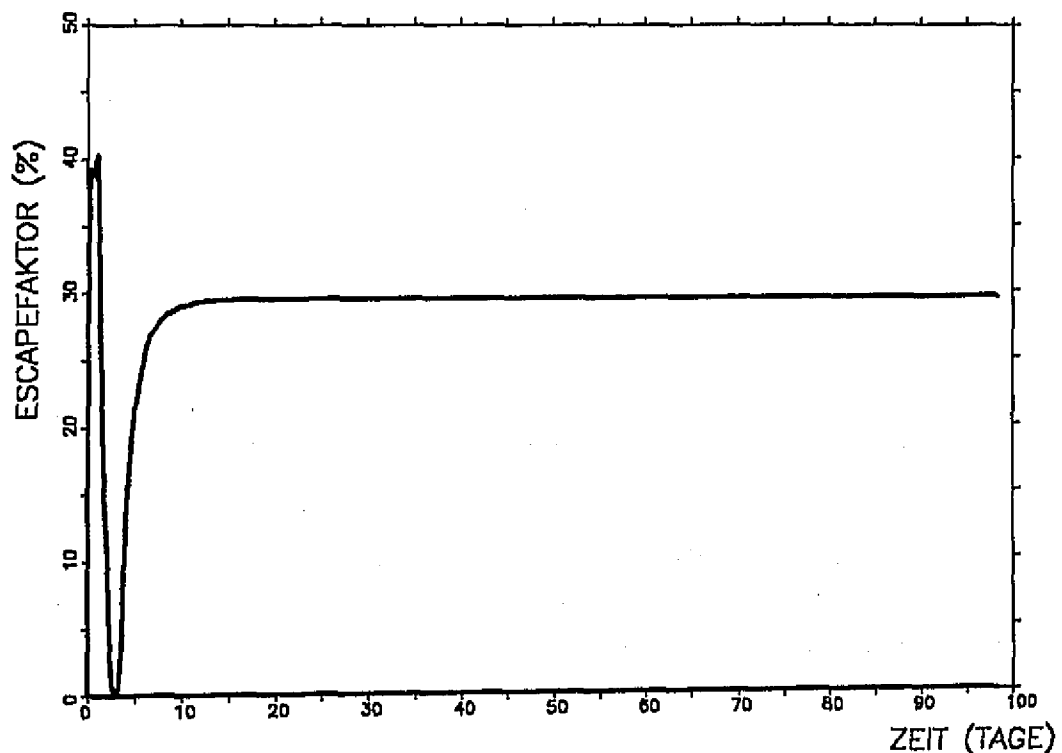


Abb. 56. Escapefaktor des Deckenreflektors: Rechnung ohne konz. Diff. bei nur halb so großem Spaltproduktstrom zum Deckenreflektor wie bei der Referenzrechnung.

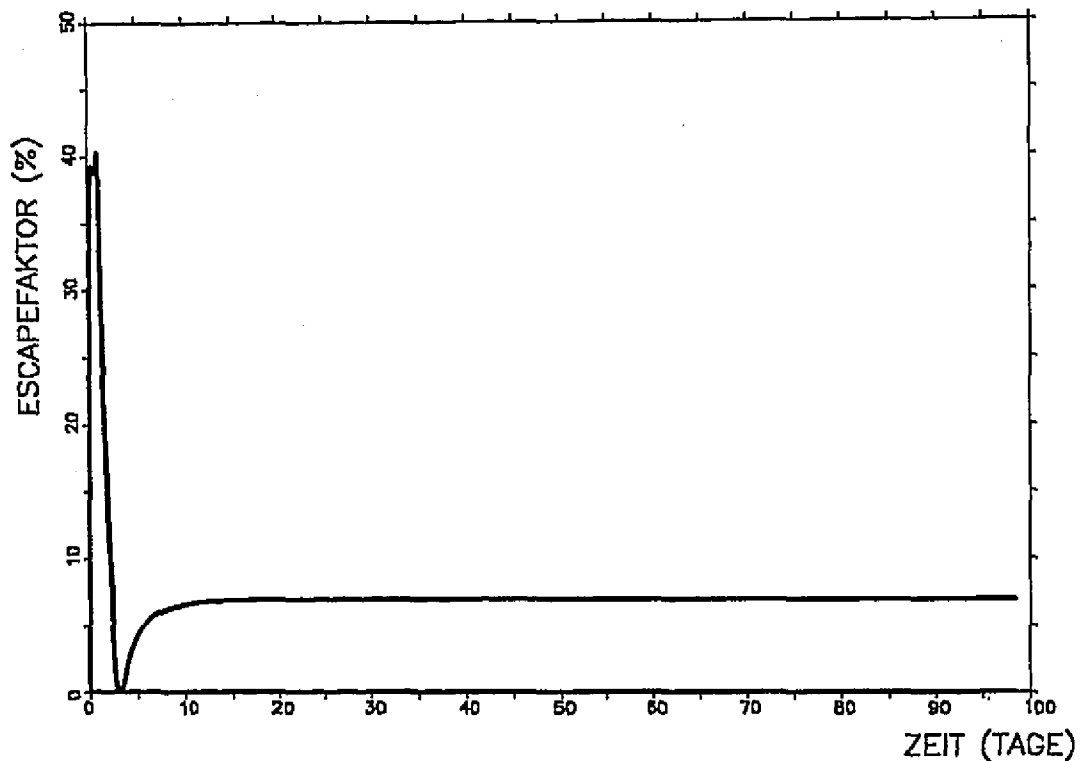


Abb. 57. Escapefaktor des Deckenreflektors: Rechnung mit konz. Diff. bei nur halb so großem Spaltproduktstrom zum Deckenreflektor wie bei der Referenzrechnung.

Es zeigt sich deutlich, wie stark sich die Rückhaltefähigkeit verbessert. Im Fall ohne konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten verringert sich der Escapefaktor von 60% auf 30% auch auf etwa den halben Wert, wenn sich der Cäsiumstrom halbiert. Bei der Rechnung mit dem konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten sinkt der Escapefaktor noch von 17% auf 7%.

Man kann anhand dieses Vergleichs sehen, daß die Rückhaltung des Deckenreflektors stark steigt, wenn er (unter sonst gleichen Bedingungen) mit weniger Spaltprodukten beschickt wird. Hieraus läßt sich ableiten, daß der Deckenreflektor in der Lage sein könnte, fast alle Spaltprodukte zurückzuhalten, wenn die Gesamtfreisetzung im Core aufgrund einer geringfügig reduzierten Spitzentemperatur deutlich sinken würde.

Zusätzlich soll an dieser Stelle noch ein Effekt erwähnt werden, der dem Author erst nach Abschluß der Rechnungen bei ihrer Diskussion bekannt geworden ist.

Der Deckenreflektor bindet zur Zeit den Großteil der Spaltprodukte in seinem heißen Bereich. Der kalte Bereich kann wegen des schlechten diffusiven Transports in den Graphit hinein nur einen geringen Teil der Spaltprodukte aufnehmen (siehe dazu die Abb. 53 auf Seite 126). In den verwendeten Modellen wird immer von einer effektiven Diffusion ausgegangen, doch ist diese Bedingung mit abnehmender Temperatur immer

schlechter erfüllt. Nach Aussagen von Scherer⁷⁰ und Iniotakis⁷¹ müßte hier der verhältnismäßig starke Anteil der Gasdiffusion im Innern des Graphites stärker berücksichtigt werden, als es in dem Ansatz des effektiven Diffusionskoeffizienten geschieht. Hierdurch könnte sich eine nicht unerhebliche Verbesserung der Diffusion in den Graphit hinein ergeben. Es erscheint sinnvoll, diesen wahrscheinlich bedeutsamen Effekt anhand der heute recht genau bekannten Temperaturverteilung im Deckenreflektor weiter zu untersuchen.

⁷⁰ Scherer Winfried, Persönliche Mitteilung vom 15.2.1991.

⁷¹ Iniotakis, The Retardation Effect of Structural Graphit on the Release of Fission Products in Case of Hypothetical Accidents of HTRs, 1982.

7.0 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird das Rechenprogramm SPTRAN vorgestellt. Das Programm ist konzipiert, um für die verschiedenen Hochtemperaturreaktoren die Transport- und Speichervorgänge zu simulieren, die sich bei der Freisetzung von Spaltprodukten einstellen. Die im Programm verwendeten Modelle werden ausführlich beschrieben, denn es bestehen zur Zeit noch Unsicherheiten bei der physikalischen Modellbildung für die sich ergebenden Effekte. Daher ist es notwendig, genau aufzuzeigen, welche Modelle in SPTRAN verwendet werden. Da das in dieser Arbeit vorgestellte Rechenprogramm die Vorgänge, die bei der Spaltproduktfreisetzung auftreten, für den kompletten Primärkreislauf eines Reaktorsystems simulieren soll, ergibt sich hieraus die Beschränkung, daß nur einfache Modelle verwendet werden können, denn sonst wäre diese komplexe Aufgabe nicht lösbar.

Um die Belastbarkeit der Rechenergebnisse sicherzustellen, werden die wichtigen Programmteile anhand von Nachrechnungen entsprechender Experimente überprüft. Die Nachrechnung der Ausheizexperimente von kugelförmigen Brennelementen kann sicherstellen, ob das Programm die primäre Freisetzung richtig simulieren kann. Unter primärer Freisetzung wird die Freisetzung aus den Coated Particles in den umgebenden Graphit der Brennelemente verstanden. Die Experimente zeigen in dem Temperaturbereich von 1600-1800°C den Übergang von geringen (sicherheitstechnisch zu vernachlässigenden) zu massiven Freisetzungen. Das Freisetzungsmodell muß daher in der Lage sein, in diesem kritischen Temperaturbereich die Ergebnisse der Experimente gut wiederzugeben. Eine gute Übereinstimmung von Experiment und Rechnung konnte nachgewiesen werden.

Das Deckenreflektorexperiment untersucht die Fähigkeit von Graphit, einmal freigesetzte Spaltprodukte zurückzuhalten. Dazu wird eine Graphitstruktur, die dem Deckenreflektor eines Hochtemperaturreaktors nachgebildet ist, einem mit Cäsium beladenen Gasstrom ausgesetzt. Temperaturen, Strömungsgeschwindigkeiten und Cäsiumbeladung des Gasstroms entsprechen den Störfallbedingungen. Hiermit wird das komplexe Zusammenspiel vom Transport der Spaltprodukte im Gas, dem Stoffübergang zur Graphitwand, der Aufnahme im Graphit und dem Speichervorgang in der Tiefe des Graphites in einem auswertbaren Versuch realisiert. Darüberhinaus sind alle diese Effekte reversibel. Die erzielten Ergebnisse der Experimente konnten nach einer physikalisch sinnvollen Verbesserung der Modellannahmen mit guten Ergebnissen nachgerechnet werden.

Zusammengefaßt stellen die Versuchsnachrechnungen die Bestätigung dar, daß die verwendeten Modelle mit ausreichender Genauigkeit in der Lage sind, die für die Freisetzung relevanten Effekte richtig zu simulieren. Für die Anwendung der Modelle bei einer komplexen Freisetzungsrechnung ist damit hoffentlich auch ausreichende Sicherheit gegeben.

Bevor die eigentliche Freisetzungsrechnung durchgeführt werden kann, muß mittels einer thermohydraulischen Rechnung der Temperatur- und Strömungsverlauf des zu untersuchenden Störfalles berechnet werden. Da die Freisetzungsrechnung anhand eines Störfalles mit einer massiven primären Freisetzung als Referenz getestet werden soll, wird der Störfall an einem mittelgroßen Hochtemperaturreaktor mit vollständigem Ausfall der Nachwärmeabfuhr untersucht. Bei der Untersuchung des Temperaturgeschehens zeigt sich ein schneller Temperaturanstieg auf die Maximaltemperatur des Cores von etwa 2500°C. Sehr wichtig für die Freisetzungsrechnung ist hierbei, daß die Maximaltemperatur nur in einem sehr kleinen Bereich der Kugelschüttung auftritt. Am Rand der Schüttung liegen die Temperaturen bei Werten von 1200°C. Die Spitzentemperaturen sinken auch schnell überall im Core als Folge der weiter exponentiell abnehmenden Nachwärmefunktion wieder ab.

Durch diese Temperaturentwicklung bildet sich im Core eine konvektive Strömung aus. Zu allen für die Spaltproduktfreisetzung relevanten Zeiten herrscht im Core eine reine Aufwärtsströmung ohne jede Wirbelbildung. Diese Verhältnisse im Core bewirken eine kontinuierliche Strömung durch den Primärkreislauf. Alle auftretenden Strömungsgeschwindigkeiten sind sehr niedrig. Zu den relevanten Zeiten entstehen in der Kugelschüttung Strömungsgeschwindigkeiten von max. 5 cm/sec und im Deckenreflektor von max. 10 cm/sec.

Diese thermohydraulischen Vorgänge sind direkt verantwortlich für die Spaltproduktfreisetzung im Reaktor. Alle Spaltprodukte befinden sich im Normalbetrieb in den Coated Particles. Der bei diesen Rechnungen mit $2-3 \cdot 10^{-5}$ konservativ sehr hoch angesetzte Anteil von Spaltprodukten außerhalb der Coated Particles ist bei Störfällen mit Spaltproduktfreisetzungen völlig unerheblich. In dem scharf begrenzten geometrischen Bereich, in dem die Temperaturen über 2000 - 2200°C steigen, kommt es zu einer auch lokal scharf begrenzten Zerstörung der Coated Particles. Die Gesamtbruchrate der Coated Particles liegt bei 12,8 %. Die Defekten Coated Particles setzen fast ihr gesamtes Cäsium-Inventar frei. Hinzu kommt noch eine Freisetzung aus den Intakten Coated Particles, die den hohen Spitzentemperaturen ausgesetzt sind, in etwa der gleichen Größenordnung. Durch diese Freisetzung erhöht sich die Spaltproduktkonzentration im Graphit der Brennelemente um einige Zehnerpotenzen. Diese Erhöhung bewirkt, daß die Freisetzung aus den Intakten Coated Particles nicht so hoch eintritt, wie man es allein aus dem Temperaturniveau und den Schenk-Experimenten erwarten würde. Dieser Effekt kann mit der erhöhten Außenkonzentration erklärt werden.

Für den Verbleib der primär freigesetzten Spaltprodukte ist die Konkurrenz zwischen den beiden Effekten, Anlagerung der Spaltprodukte im Graphit der Brennelemente und Transport durch das Gas aus der Kugelschüttung hinaus, bestimmend. Aufgrund der nur langsamen Gasströmung zeigt sich die Anlagerung im Brennelementgraphit als der dominierende Effekt. Es werden etwa 22,5% des Inventars langfristig in dem Graphit der Brennelemente gebunden und nur weniger als 3,5% verlassen die Kugelschüttung.

Der Anteil der Spaltprodukte, die die Kugelschüttung verlassen, ist noch nicht identisch mit der Menge, die letztlich aus dem Reaktor in die Umwelt gelangen kann. Die Spaltprodukte müssen noch die verschiedensten Reaktorkomponenten passieren, bevor sie den Reaktor verlassen können. Jede dieser Komponenten wird einen Teil der Spaltprodukte zurückhalten. In dieser Arbeit ist die direkt oberhalb der Kugelschüttung liegende und für die Rückhaltung als besonders wirkungsvoll angesehene Komponente, der Deckenreflektor, untersucht worden. Für die Filterwirkung des Deckenreflektors ergibt sich ein Wert von mehr als 80 %. Dabei wird das aufgrund der Versuchsnachrechnung verbesserte Modell verwendet. Die Arbeit zeigt damit, daß nur ein kleiner Anteil der primären Freisetzung auch wirklich über den Deckenreflektor hinaus gelangt. Wenn man noch die Rückhaltewirkungen der weiteren Komponenten hinzunehmen würde, erhielte man noch deutlich kleinere Werte.

Besonders interessant ist aber der sich in den Rechnungen einstellende Effekt, daß einige aus den Experimenten bekannte Ergebnisse bei den Rechnungen geschwächt auftreten. So entstehen bei den Rechnungen geringere Freisetzungen aus den Intakten Coated Particles, als sie nach den Ergebnissen der Ausheizversuche und den Temperaturen, denen die Intakten Coated Particles ausgesetzt sind, zu erwarten wären. Der Unterschied zwischen Ausheizexperiment und Störfallsimulation liegt in der Umgebungskonzentration. Bei den Ausheizexperimenten wird immer ein einzelnes Brennelement von einem großen nicht kontaminierten Gasstrom umspült. Im Reaktor baut sich dagegen ein hohes Konzentrationsniveau im Gas und auch im Graphit der Brennelemente auf. Hierdurch wird das Freisetzungsverhalten aus den Coated Particles reduziert. Daher wäre die experimentelle Untersuchung wichtig, ob sich diese Effekte auch bei entsprechenden Versuchsbedingungen zeigen.

Eine Bestätigung dieses Effektes könnte vielleicht einmal dazu führen, daß man als Grenztemperatur für die kleinen Hochtemperaturreaktoren nicht mehr die Temperatur wählt, bei der in Versuchen mit einzelnen Brennelementen noch keine Freisetzungen auftreten, sondern eine höhere Temperatur. Diese höhere Temperatur sollte unterhalb der Temperatur liegen, bei der es zum massiven Versagen von Coated Particles und massiver Diffusion aus den Intakten Coated Particles kommt. Bei der höheren Temperaturgrenze sollte sichergestellt sein, daß aus dem Core (Kugelschüttung und Deckenreflektor) in seiner Gesamtheit keine Freisetzung ausgehen. Besonders das Wiederanlagern an "kalten" Brennelementen und am Deckenreflektor kann diesen Effekt bewirken. Diese höhere Temperaturgrenze könnte zu einer Leistungserhöhung bei den kleinen Hochtemperaturreaktoren führen. Für einen solchen Schritt werden aber noch große theoretische und experimentelle Anstrengungen erforderlich sein.

8.0 Literaturhinweise

- Barthels, H., C.-B. von der Decken, N. Iniotakis,**
The Influence of Chemical State of the Products on the Filter Properties
of the Graphite Components, 2nd International Seminar on Small and
Medium-Sized Nuclear Reactors, San Diego / USA, August 21-23, 1989.
- Batalas, Th.-A.,**
Theoretische Untersuchung zur Diffusion von binären Gasgemischen
im Hinblick auf den HTR, Diplomarbeit, KFA Jülich.
- Berger-Rossa, Rudolf,**
Rückhaltung und Umverteilung von Spaltprodukten im Core und im
Primärkreislauf von Hochtemperaturreaktoren bei hypothetischen
Störfallereignissen, Jülich, März 1988, Jül - 2188, KFA Jülich.
- Dannert, Volker,**
Mehrphasendiffusion von Spaltprodukten im Graphit, Jülich,
Mai 1989, Jül - 2277, KFA Jülich.
- Dannert, Volker,**
Herleitung der Sr-Sorptionsisothermen für Matrix A3-3 nach
Moormann und Verfondern und aus der Formulierung von Hilpert et al.
Jülich, Januar 1990.
- Delle, W.,**
Polykristalline graphitische Materialien für den Einsatz im
Hochtemperaturreaktor, Sonderdruck des Instituts für Reaktor-
werkstoffe, Kernforschungsanlage Jülich.
- Gaus, H., W. Hensel, E. Hoinkis, D. Stritzke,**
Untersuchungen zum Cäsium-Transport in Graphit, Berlin,
Nov. 1979, HMI-B 315, Hahn-Meitner-Institut Berlin.
- Hilpert, K., H. Gerads, D. Kath, D. Kobertz,**
Sorption of Cesium and its Vaporization from Graphitic
Materials at high Temperatures,
High Temperatures - High Pressures, Vol. 20, 1988.
- Iniotakis, N., C. -B. von der Decken,**
The Retardation Effect of Structural Graphite on the Release
of Fission Products in Case of Hypothetical Accidents of HTRs,
Gas-Cooled Reactors Today, BNES, S. 67-72, London, 1982.

- Iniotakis, N., H. Barthels, C. -B. von der Decken,**
The Retardation of Released Fission Products Deriving from
Graphite Structures During a Hypothetical HTR-500 Accident,
International Seminar on Small and Medium-Sized Nuclear Reactors,
Lausanne / Switzerland, August 24-26, 1987.
- Iniotakis, N., H. Barthels, C. -B. von der Decken,**
Die relevanten Transportmechanismen von Cäsium in Decken-
reflektorgraphit bei einer HTR-Coreaufheizung,
Jül-Bericht in Vorbereitung.
- Kranz, Lutz,**
Reduzierung der Nachwärme im Rechenprogramm Thermix, Jülich,
Mai 1990, Aktennotiz, KFA - ISR II.
- Krohn, H., R. Finken,**
FRESCO-II: Ein Rechenprogramm zur Berechnung der Spaltproduktfrei-
setzung aus kugelförmigen HTR-Brennelementen in Bestrahlungs-
und Ausheizexperimenten, Jülich, März 1983, Jül-Spez-212,
KFA Jülich.
- Kwasny, Jürgen,**
Cäsium-Sorptionsuntersuchungen an graphitischen Reaktor-
werkstoffen, Diss. T.H. Aachen, Jülich, April 1990,
Jül-2353, KFA Jülich.
- Ley, Hubert,**
Spaltprodukttransport in Kugelbrennelementen für Hochtemperatur-
reaktoren im Rechenmodell SPTRAN, Studienarbeit IRE-T, Jülich,
April 1989.
- Ley, Hubert,**
Simulation des Spaltprodukttransportes in Kugelbrennelementen durch
Modifikation des SPTRAN-Rechenprogramms und Verifikation durch Ver-
gleich mit den Ausheizexperimenten nach Schenk, Diplomarbeit an der
RWTH Aachen, Jülich, August 1989.
- Mattke, Ulrich,**
Berechnung der Spaltproduktverteilung in Core und Primär-
kreislauf eines Hochtemperaturreaktors im Normalbetrieb,
Dissertation in Vorbereitung.
- Moormann, Rainer, Karl Verfondern,**
Methodik umfassender probabilistischer Sicherheitsanalysen für zukünftige
HTR Anlagen - Ein Statusbericht(1986), Band 3: Spaltprodukte, Mai 1987,
Jül-Spez-388/Bd. 3, KFA Jülich.

- Ragoß, H., W. Heit, H. Nabielek, W. Schenk,**
Die unteren Grenzen der Spaltproduktfreisetzung beim HTR-MODUL,
Jahrestagung Kerntechnik 1990, Nürnberg 15.-17. Mai 1990.
- Rehm, W., M. Haben, W. Jahn,**
Corethermodynamik, in: Sicherheitstechnische Untersuchungen zum
Störfallverhalten des HTR-500, Ergänzungsband mit vertiefenden
Einzelbeiträgen zum Bericht Jül-Spez-220, Jül-Spez-240,
Kernforschungsanlage Jülich, Januar 1984.
- Renz, Ulrich,**
Grundlagen der Wärmeübertragung, Aachen, 1985,
Umdruck zur Vorlesung an der RWTH Aachen.
- Resing, Susanne,**
Transport des Cäsiums in Hochtemperaturreaktoren bei extremen
Störfällen, Eine sicherheitstechnische Analyse, Diplomarbeit
an der RWTH Aachen, Aachen, Dezember 1988.
- Rütten, H. J., K. A. Haas,**
NAKURE, Programm zur Nachrechnung der Nachzerfallsleistung der
Kernbrennstoffe von Hochtemperaturreaktoren mit kugelförmigen
Brennelementen, Jülich, Februar 1990, Interner Bericht,
KFA-IRE-IB-2/90, KFA Jülich.
- Schenk, Werner, Dieter Pitzer, Heinz Nabielek,**
Spaltproduktfreisetzungverlauf von Kugelbrennelementen bei Stör-
falltemperaturen, Jül-2091, Forschungszentrum Jülich, Oktober 1986.
- Schenk, Werner, Heinz Nabielek,**
Kugelbrennelemente mit TRISO-Partikeln bei Störfalltemperaturen,
Jül-Spez-487, Forschungszentrum Jülich, Januar 1989.
- Schenk, Werner,**
Spaltprodukttransport in modernen Kugelbrennelementen bei Kern-
aufheizstörfällen in HTR-Modul und HTR 500, Seminarvortrag
im Institut für Sicherheitsforschung (Folien), Forschungs-
zentrum Jülich, Februar 1989.
- Scherer, Winfried, Volker Dannert,**
Ansatz einer geschlossenen Schreibweise für Sorptionsisothermen
und effektive Diffusionskoeffizienten, Jülich, Technische Notiz,
Januar 1990, KFA - IRE/T - 1/90, KFA Jülich.

- Schulten, Rudolf, Kurt Kugler, Peter-W. Philippen,**
Zur technischen Gestaltung von passiv sicheren Hochtemperaturreaktoren,
Jül-2352, Forschungszentrum Jülich, April 1990.
- Teuchert, Eberhard, Klaus-Arne Haas,**
V.S.O.P. Computer Code System for Reactor Physics and Fuel Cycle
Simulation, Jül-Bericht in Vorbereitung, Forschungszentrum Jülich.
- Verfondern, Karl, Heinz Nabielek,**
PANAMA, Ein Rechenprogramm zur Vorhersage des Partikelbruchanteils von
TRISO-Partikeln unter Störfallbedingungen, Jül-Spez-298,
Kernforschungsanlage Jülich, Februar 1985.
- Verfondern, Karl, Dagmar Müller,**
Code Development for Fission Products Behavior in HTR Fuel for
Safety Assessments, Interner Bericht, KFA-ISF-IB-10/89,
Kernforschungsanlage Jülich, Oktober 1989.

Jül-2463

März 1991

ISSN 0366-0885