



Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen
Division principale de la Sécurité des Installations Nucléaires
Divisione principale della Sicurezza degli Impianti Nucleari
Swiss Federal Nuclear Safety Inspectorate

HSK-AN-4246
KSA-AN-2174

Jahresbericht 2001 der regulatorischen Sicherheitsforschung

[Zum Inhaltsverzeichnis](#)





Bundesamt für Energie (Schweiz)
Office fédéral de l'énergie (Suisse)
Ufficio federale dell'energia (Svizzera)
Federal Office of Energy (Switzerland)

Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen
Division principale de la Sécurité des Installations Nucléaires
Divisione principale della Sicurezza degli Impianti Nucleari
Swiss Federal Nuclear Safety Inspectorate

5232 Villigen-HSK

Tel. 056 / 310 38 11

Fax : 056 / 310 39 07

Datum

15. März 2002

Aktenzeichen

HSK-AN-4246

KSA-AN-2174

Typ/Charakter

Bericht

Klassifikation

00 FBX.FORG

Bearbeiter

M. Zünd

Visum

Projekt, Thema, Gegenstand (Schlagwörter)

Regulatorische Sicherheitsforschung – Jahresbericht 2001

Seiten 179

Beilagen -

Zeichnungen -

Jahresbericht 2001 der regulatorischen Sicherheitsforschung

Inhaltsverzeichnis

Einleitung.....	3
Projektbegleiterbewertung 2001 STARS-IV	5
STARS Jahresbericht 2001	7
Projektbegleiterbewertung 2001 Human Reliability Analysis (HRA)	16
HRA Jahresbericht 2001	18
Projektbegleiterbewertung 2001 KOKORR	23
KOKORR Jahresbericht 2001	25
Projektbegleiterbewertung 2001 RIKKOR.....	40
RIKORR Jahresbericht 2001	42
Projektbegleiterbewertung 2001 FEVER	77
FEVER Jahresbericht 2001.....	79
Projektbegleiterbewertung 2001 Zusammenarbeit in der Dosimetrie	98
Zusammenarbeit in der Dosimetrie Jahresbericht 2001	99
Projektbegleiterbewertung 2001 Zusammenarbeit in der Radioanalytik	104
Zusammenarbeit in der Radioanalytik Jahresbericht 2001	105
Projektbegleiterbewertung 2001 Rolle von Glutathion-Transferasen bei der Reparatur von strahleninduzierten Zellschäden und Molekularbiologische Untersuchungen zur zellulären Radiosensitivität	109
Rolle von Glutathion-S-Transferasen bei der Reparatur strahleninduzierter Zellschäden Jahresbericht 2001	111
Molekularbiologische Untersuchungen zur zellulären Radiosensitivität Jahresbericht 2001	115
Projektbegleiterbewertung 2001 Methodische Weiterentwicklungen in der Aeroradiometrie	118
Methodische Weiterentwicklungen in der Aeroradiometrie Jahresbericht 2001.....	119
Projektbegleiterbewertung 2001 PALEOSEIS.....	122
PALEOSEIS Jahresbericht 2001	124
Projektbegleiterbewertung 2001 Co-operative Research Activities US-NRC & HSK	128
Cooperative Research Activities US-NRC & HSK Jahresbericht 2001	130
Projektbegleiterbewertung 2001 PHEBUS FP	134
PHEBUS FP Jahresbericht 2001	136
Projektbegleiterbewertung 2001 MSWI – Melt-Structure-Water Interactions during Severe Accidents in LWRs.....	151
MSWI Jahresbericht 2001.....	153
Projektbegleiterbewertung 2001 OECD Halden Reactor Projekt	174
OECD Halden Reactor Project Jahresbericht 2001	176

Verteiler

Ablage

BFE: G. Schriber, C. de Reyff

UAK: H. Achermann

PSI: W. Kröger, K. Foskoslos, R. Andres, R. Jaussi, P. Hosemann, K. Ballmer

KSA: Alle Mitglieder

HSK: erweitertes HSK-Forschungskomitee, SFI

Projektbegleiter: D. Loy, G. Schoen, J. Hammer, N. Jaussi, W. Neumann, F. CartierR. Scheidegger, G. Schwarz, P. Bitterli

EINLEITUNG

Die nukleare Sicherheit ist heute mehr denn je ein zentrales Thema. Einerseits hat sich die öffentliche Diskussion über die Sicherheit der schweizerischen Kernanlagen unter dem Eindruck der Terroranschläge auf New York und Washington vom 11. September 2001 verschärft. Andererseits müssen technische Sicherheitsfragen im Zusammenhang mit der Liberalisierung im Energiesektor gelöst werden: Erhöhungen der Leistung und der Verfügbarkeit, der Langzeitbetrieb bestehender Reaktoren und die damit verbundene komplexe Alterungsproblematik sowie der rentabilitätsorientierte Abbau beim Betriebspersonal können sicherheitsrelevante Konsequenzen nach sich ziehen. Der regulatorischen Sicherheitsforschung kommt in diesem Umfeld eine entscheidende Rolle zu. Sie muss der ständigen Zunahme des technischen Wissens und der Erweiterung der Fachgebiete Rechnung tragen. Sie ist damit ein wesentliches Element für den Ausbau der Kenntnisse und Kompetenz sowie für die Weiterentwicklung der Methoden, Entscheidungsgrundlagen und Arbeitsmittel der Aufsichtsbehörde aber auch der Betreiber.

Die Projekte der regulatorischen Sicherheitsforschung sind Bestandteil der Aufsichtstätigkeit indem sie die wissenschaftliche Basis für die unabhängige Überprüfung der nuklearen Sicherheit und des Strahlenschutzes nach dem aktuellsten Stand von Wissenschaft und Technik bilden. Die Forschungsarbeiten tragen dazu bei, dass die schweizerischen Kernanlagen auch in Zukunft unter Gewährleistung höchster Sicherheitsstandards betrieben werden können. Die Resultate der Forschungsprojekte fliessen deshalb direkt in die Weiterentwicklung der Standards und Vorschriften zugunsten der nuklearen Sicherheit ein.

Die Forschungsaktivitäten des Programms Regulatorische Sicherheitsforschung zeichnen sich durch ihre langjährige thematische Kontinuität und ihre zunehmende internationale Vernetzung aus. Sie konzentrieren sich gemäss dem Energieforschungskonzept des Bundes auf die folgenden Gebiete:

Materialforschung: Die technische Alterung an Maschinen, Komponenten und Material, überholte Anlagenkonzepte und Anlagendokumentationen beeinflussen mit zunehmendem Anlagenalter die Betriebssicherheit.

Stör- und Unfallforschung: Massnahmen für die Prävention sowie die Verminderung der Auswirkungen von Stör- und Unfällen bedingen eine tiefgreifende Kenntnis der auslösenden Faktoren und der Vorgänge im Ereignisfall. Diese äusserst aufwändigen Projekte werden vorwiegend in internationalen Grossprojekten und Kooperationen bearbeitet.

Human Factor Forschung: Informationstechnologien, neue Instrumente, Kontroll- und Kommunikationsmethoden, Simulationen und Modelle tragen zum Verständnis menschlicher (Fehl-)Handlungen bei und können entscheidende Impulse zur Verbesserung der Sicherheit und Zuverlässigkeit im Kernkraftwerkbetrieb liefern.

Strahlenschutz- und Notfallschutz-Forschung: Für die Gewährleistung eines qualitativ hochstehenden Strahlen- und Notfallschutzes müssen die Messmethoden, Instrumente und die Methoden der Datenauswertung laufend weiterentwickelt werden.



Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen
Division principale de la Sécurité des Installations Nucléaires
Divisione principale della Sicurezza degli Impianti Nucleari
Swiss Federal Nuclear Safety Inspectorate

Datum: 25.02.2002
Von: D. Loy
An: S. Chakraborty
cc: W. van Doesburg

PROJEKTBEGLEITERBEWERTUNG 2001 STARS-IV

Einleitung

Mit dem Abschluss des dritten Vertrages über die Sicherheitsforschung bezüglich Transientenanalysen der Reaktoren in der Schweiz (STARS) wurde im Jahr 2001 der vierte STARS-Vertrag (STARS-IV) mit dem Bundesamt für Energie (BFE) vertreten durch die HSK und dem Paul Scherrer Institut (PSI) mit einer Laufzeit von vier Jahren (2001-2004) unterzeichnet.

Der Auftrag des STARS-Vertrages gewährleistet, dass am Paul Scherrer Institut (PSI) eine Gruppe von Experten mit adäquaten Rechenprogrammen abrufbar ist, die deterministische Sicherheitsanalysen zur Überprüfung des Brennstoff- und Anlageverhaltens für alle schweizerischen Kernkraftwerke durchführen kann. Das Projekt enthält die Bereitstellung und die Verifikation & Validierung geeigneter Rechenmodelle, sowie forschungsorientierte Weiterentwicklungen einer dem heutigen Stand der Technik genügenden Methodik zur Analyse von Reaktor- und Anlagen-Transienten (ohne schwere Störfälle).

Wie das vorangegangene STARS-Projekt wird auch dieses Projekt innerhalb des Forschungsbereiches F4 am PSI mit Herrn Martin Zimmermann als Projektleiter abgewickelt. Zwischen dem PSI - Projektteam und der HSK besteht eine gute und intensive Kommunikation, nicht zuletzt durch die sog. 'On-Call' - Arbeiten (Analysen zu aktuellen Themen, im Auftrag der HSK, die über einen separaten Vertrag verrechnet werden). Es finden vierteljährlich Statusgespräche statt, bei denen die gemachten Fortschritte und das weitere Vorgehen besprochen werden.

Bewertung der Projektarbeiten bis Dezember 2001

Für das Jahr 2001 konnten vom STARS-Team ein Grossteil der geplanten Ziele erreicht werden. Externe Abhängigkeiten aufgrund der internationalen Zusammenarbeit führten in Teilbereichen des Projektes zu Verzögerungen.

Im Bereich der Modellierung und Validierung wurde für den postulierten Bruch einer Frischdampfleitung eines Druckwasserreaktors erstmalig mit dem Systemcode RETRAN-3D die integrierte drei-dimensionale Reaktorkinetik eingesetzt, wobei jedes Brennelement thermohydraulisch individuell dargestellt wurde. Die Ergebnisse dieser Unterkühlungstransiente mit Rekritikalität des Kerns nach einer Reaktorschnellabschaltung zeigen den fortschrittlichen Stand der Simulation im STARS- Projekt. Mit der Teilnahme am OECD/NSC Benchmark zum Turbinenschnellschluss auf der Grundlage eines Experiments am Siedewasserreaktor Peach-Bottom 2 wurde die Simulation der 3D-Reaktorkinetik für Siedewasserreaktoren mit guten Ergebnissen für die Phasen 1 und 2 des Benchmarks demonstriert.

Die Erarbeitung des RETRAN-3D Anlagenmodells für das Kernkraftwerk Mühleberg (KKM) konnte mit der Nachrechnung des Anlagentests „Ausfall aller Speisewasserpumpen“ zum erfolgreichen vorläufigen Abschluss gebracht werden.

Im Bereich der Brennstabmodellierung kommt der transienten Simulation grosse Bedeutung zu. Die Festlegung aktueller Grenzwerte für hoch abgebrannten Brennstoff bei Kühlmittelverluststörfällen (LOCA) und reaktivitätsinduzierten Unfällen (RIA) ist national wie international in der Diskussion. Mit den Arbeiten zum hypothetischen Auswurf eines Steuerelementes bei einem DWR mit den Programmen FREY und TRANSURANUS und einer ersten generischen Analyse zu einem Kühlmittelverluststörfall in einem SWR mit dem Programm FREY konnte das STARS-Team seine Kompetenz unterstreichen.

Bei der Anwendung von 'best estimate' Rechnungen zu sicherheitstechnischen Fragestellungen der Kernkraftwerke ist die Quantifizierung der Unsicherheit ein wichtiger Bestandteil der Beurteilung der Ergebnisse. Mit der erfolgreichen Anwendung einer statistischen Methodik, basierend auf dem Programm SUSA der GRS, für die Analyse eines thermohydraulischen Experiments und mit der geplanten Forschungsarbeit zur Objektivierung der Unsicherheiten der Eingabedaten erarbeitet sich das STARS-Team Wissen, welches der HSK bei der Bewertung von Analysen in der Zukunft hilfreich sein kann.

Zum vertieften Verständnis des Stabilitätsverhaltens von Siedewasserreaktoren wurde in einer Forschungsarbeit ein nichtlineares analytisches Stabilitätsmodell entwickelt, welches erstmals die Zwei-Phasen-Strömung mit einem Drift-Flux-Modell berücksichtigt. Im Rahmen der Teilnahme am NACUSP Forschungsvorhaben wurden erste Stabilitätsrechnungen mit RAMONA5 durchgeführt.

Ein zertifiziertes Qualitätsmanagementsystem (QMS) ist zur Durchführung von wissenschaftlichen Dienstleistungen für die HSK unerlässlich. Die Arbeitsprozesse des STARS-Projektes wurden gemäss Anforderungen der neuen ISO-Norm strukturiert, und die entsprechenden Verfahrensvorschriften wurden zum grössten Teil (80%) erstellt. Die HSK begrüsst die geplante Inkraftsetzung des QMS und dessen Pre-Zertifizierung für das Jahr 2002. Ein elektronisches Archivsystem auf der Basis eines kommerziell verfügbaren Dokumenten-Managementsystems wurde im Berichtszeitraum in Auftrag gegeben.

Im Rahmen der 'On-Call' - Aufträge der HSK wurde während 2001 eine Expertise zur Festlegung des Stabilitätsausschlussgebiets für KKM erstellt. Ebenfalls arbeitet das STARS-Team im Auftrag von KKL an den Vorbereitungen zu einem geplanten Versuch zum Stabilitätsverhalten mit. Die Versuchsdurchführung im KKL ist für September 2002 geplant. Die kompetente Mitarbeit wird von der HSK begrüsst.

Bedeutung der Arbeiten für die HSK

Die STARS - Arbeiten sind für die HSK von hoher Bedeutung, da die HSK selbst keine unabhängige quantitative Überprüfung der vom Hersteller oder Betreiber eingereichten Störfallanalysen durchführen kann. Das Forschungsprojekt stellt sicher, dass die notwendige Expertise zur Durchführung von solchen Analysen vorhanden ist und weiter ausgebaut werden kann.

Durch die "On-Call" - Arbeiten wird die Belastbarkeit der Rechenmethoden, sowie auch das Potential des STARS - Teams als Leistungserbringer erfolgreich bestätigt. Ausserdem ist das STARS – Team, mit seinen fachlich kompetenten und engagierten Projektmitarbeitern, nach wie vor ein sehr geschätzter Gesprächspartner im Bereich der Nukleartechnik. Dies wurde vom 'Scientific Advisory Committee' (eine Beratergruppe des STARS - Projektes, bestehend aus internationalen Experten, die einmal pro Jahr tagt) bestätigt.

Würenlingen, 25. Februar 2002

Der Projektbegleiter

W. van Doesburg

STARS

Sicherheitsforschung bezüglich Transientenanalyse der Reaktoren in der Schweiz

Autor und Koautoren	Martin A. Zimmermann
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut
Adresse	5232 Villigen PSI
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 310 27 33, Martin.Zimmermann@psi.ch http://stars.web.psi.ch
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	61500 / 82611
Dauer des Projekts (von – bis)	1. 1. 2001 – 31. 12. 2004

Zusammenfassung

Mit der generischen Simulation eines Bruches der Hauptdampfleitung eines Druckwasserreaktors (DWR) konnte auf dem Weg zur Einführung der dreidimensionalen Reaktorkinetik in die transiente Systemanalyse ein wichtiger Meilenstein erreicht werden: Erstmals wurde in einer detaillierten Systemanalyse mit RETRAN-3D jedes Brennelement auch thermohydraulisch einzeln dargestellt. Mit der Teilnahme am internationalen Peach Bottom Turbine Trip Benchmark wird diese neue Analysetechnik auch für Siedewasserreaktoren (SWR) ausgetestet, und es wurden für die beiden ersten Benchmark Phasen je eine Lösung eingereicht. Insbesondere die dreidimensionale Berechnung der Leistungsexkursion mit CORETRAN ergab eine sehr gute Übereinstimmung mit den Testresultaten. Die aktive internationale Zusammenarbeit wird auch dokumentiert durch die Tatsache, dass der zweite Workshop für den Peach Bottom Turbine-Trip Benchmark das diesjährige TRAC-BF1 User Group Meeting beide am PSI durchgeführt wurden.

Die Anlagemodellierung für das Kernkraftwerk Mühleberg konnte mit der Nachrechnung des Versuches „Verlust aller Speisewasserpumpen“ einen anspruchsvollen Test ziemlich erfolgreich bestehen. Damit ist auch dieses Systemmodell einsatzbereit. Die Brennstabmodellierung wurde im Berichtsjahr vor allem im transienten Bereich erweitert, und es konnten erste generische Analysen für einen Reaktivitätsinduzierten Unfall (RIA) im DWR und eine Kühlmittelverlustunfall im SWR durchgeführt werden.

Entsprechend den übergeordneten Projektzielen bildet die Code-Validierung ein wichtiges Fundament für die Projektarbeit. Mit der Beteiligung am internationalen LOCA-Validierungsprojekt für TRAC-BF1 wird eine bessere Absicherung der SWR LOCA-Analyse angestrebt. Gute Resultate für die Berechnung des Dampfvolomens konnten mit der Nachrechnung von sog. separate effect tests erzielt werden.

Der Einsatz von sog. Best-estimate Methoden erfordert eine Abschätzung der Rechenunsicherheit. Über eine Doktorarbeit wird versucht, die Ermittlung von Unsicherheiten von Code-Modellen auf eine statistisch fundierte Weise von verfügbaren experimentellen Datenbasen möglichst objektiv abzuleiten. Neben der Erarbeitung des detaillierten Forschungsplanes wurden für einzelne der in Betracht gezogenen statistischen Methoden Test-Anwendungen entwickelt.

Damit das Projekt STARS weiterhin eine Expertenorganisation für die HSK bleiben kann, wurde der Aufbau eines zertifizierbaren QMS in Angriff genommen; etwa 80% der dafür notwendigen Dokumente wurde entworfen. Parallel dazu wird ein elektronisches Archivsystem auf der Basis eines kommerziell verfügbaren Dokumenten-Managementsystems aufgebaut. Die Pilot-Entwicklung wurde als erste Projekttranche freigegeben.

1. Projektziele

Mit dem Projekt STARS (*Sicherheitsforschung bezüglich Transientenanalyse der Reaktoren in der Schweiz*) werden die folgenden übergeordneten Ziele verfolgt:

- Bereitstellung einer breiten Expertise in den für die Durchführung von deterministischen Sicherheitsanalysen notwendigen Fachgebieten: Neutronik, Thermo-Hydraulik, Brennstab- und Anlageverhalten.
- Weiterentwicklung einer dem heutigen Stand der Technik genügenden Methodik zur Analyse von Reaktor- und Anlage-Transienten (ohne schwere Unfälle) mittels Forschungsarbeiten.

Entsprechend dieser Zielsetzung ergeben sich drei Arbeitsbereiche:

- Modellierung und Validierung;
- Wissenschaftliche Dienstleistungen;
- Forschung.

Die Arbeiten zur Modellierung und Validierung legen die Basis für die wissenschaftlichen Dienstleistungen zu Gunsten der HSK und der Kernkraftwerkbetreiber. Damit die im Projekt angewandte Analysemethodik auf dem neuesten Stand gehalten werden kann, sind fallweise Forschungsarbeiten notwendig. Damit kann auch die Weiterentwicklung des Know-Hows der Projektmitarbeiter mit interessanten und anforderungsreichen Aufgaben gefördert werden. Für die Forschung werden teilweise auch EPFL-Doktoranden eingesetzt.

Im Berichtsjahr waren die folgenden konkreten Ziele gestellt:

1.1 Modellierung und Validierung

- Fertigstellung des Anlagemodells KKM und entsprechende Validierungsrechnungen
- Fertigstellung der generischen Dampfleitungsbruch-Analyse (3D-Kinetik)
- Durchführung einer Unsicherheitsanalyse für die Dampfleitungsbruch-Analyse KKB
- Komplettierung der anlagespezifischen Modelle für die Brennstabanalyse
- Teilnahme am Peach Bottom Turbine-Trip Benchmark der NEA
- Abschluss der CFD-Arbeiten zur Vermischung
- Vergleichende Untersuchungen zum Stabilitätsverhalten von SWR (im Rahmen des EU-Programmes NACUSP)
- Unterstützung bei der Auslegung des Halden LOCA-Experiments (mit hoch-abgebranntem Brennstoff)
- Implementierung eines QMS
- Implementierung und Inbetriebnahme einer einfachen Anlagedatenbank

1.2 Forschungsorientierte Arbeiten

- Belastbare Unsicherheitsanalyse basierend auf objektiv ermittelten Unsicherheitsparametern für einen thermohydraulischen Versuch
- Teilnahme am von der Penn-State University organisierten internationalen Programm zur Validierung von TRAC-BF1 für LBLOCA in SWR
- Arbeiten zur Verbesserung der Modellierung bei T-Junctions
- Entwicklung eines neuen nicht-linearen analytischen Modells für SWR-Stabilitätsstudien

2. Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

2.1 Modellierung und Validierung

Die Modellierung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM) mit RETRAN-3D konnte mit der Nachrechnung des im Jahre 1993 durchgeführten Anlagetests „Verlust aller Speisewasserpumpen“ zu einem vorläufigen Abschluss gebracht werden. Die verlässliche Vorhersage der wichtigsten Reaktorparameter wie Wasserniveau und Reaktordruck erfordert eine genaue Berücksichtigung der geometrischen Verhältnisse und der Charakteristiken der während der Transiente wirksam werdenden Anlagekomponenten (z. B. das Auslaufverhalten der Rezirkulationspumpen) wie auch die präzise Berechnung der Entwicklung der Wärmeproduktion im Reaktor (Neutronik und Nachwärme). Wenn man die erforderlichen Vereinfachungen der Modellierung in Betracht zieht, konnte insgesamt eine recht gute Übereinstimmung mit den Messwerten erzielt werden (siehe Fig. 1). Der im Vergleich zur Messung zu rasche Druckanstieg wie auch die offensichtliche Unterschätzung des Reaktorniveaus bedarf noch weiterer Abklärungen; die durchgeführten durchgeführten Sensitivitätsstudien können diese Differenzen nur teilweise erklären.

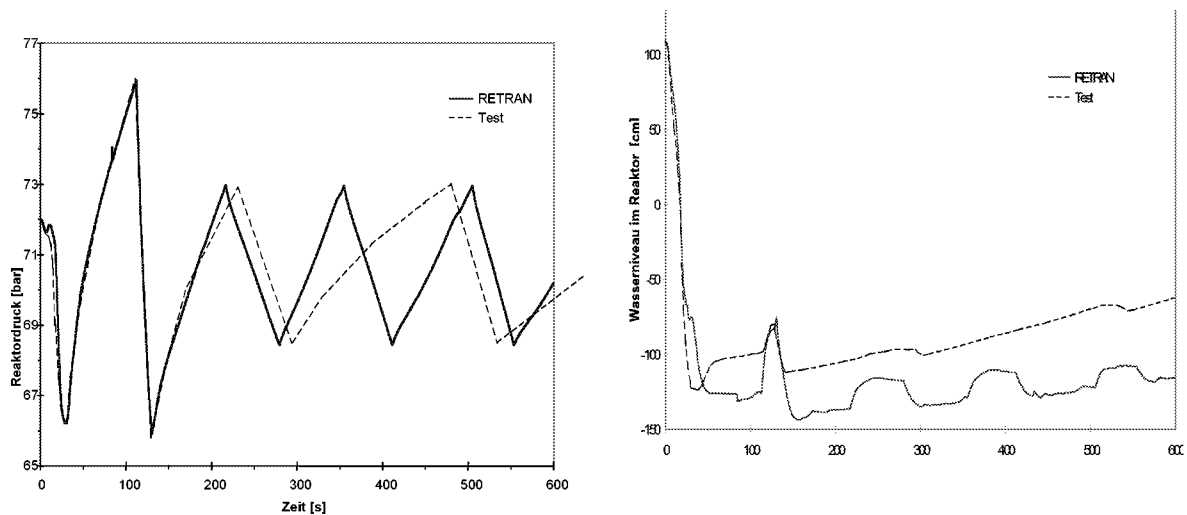


Fig. 1 Das Diagramm zeigt für den Reaktordruck (links) und das Wasserniveau im Reaktor (rechts) den Vergleich der Rechenresultate mit den Messdaten des KKM-Tests „Verlust aller Speisewasserpumpen“.

Nach dem postulierten Bruch einer Hauptdampfleitung eines Druckwasserreaktors wird das Kühlmittel durch die Druckentlastung des betroffenen Dampferzeugers sehr stark abgekühlt. Im Reaktorkern bildet sich eine asymmetrische Temperaturverteilung aus und beeinflusst entsprechend die Leistungsentwicklung nach dem Wiederkritischwerden. Die genaue Repräsentation der asymmetrischen Verhältnisse im Reaktorkern bedingt die Anwendung der drei-dimensionalen Reaktorkinetik. Die Analyse dieses postulierten Unfalles konnte erstmals mit der in den Systemcode RETRAN-3D integrierten drei-dimensionalen Reaktorkinetik erfolgreich durchgeführt werden [10]. Speziell erwähnenswert ist dabei die Tatsache, dass jedes Brennelement des Reaktorkernes in der Simulation auch thermohydraulisch individuell dargestellt wurde. Infolge der einseitigen Abkühlung des Kühlmittels entwickelt sich eine stark asymmetrische Leistungsverteilung (siehe Fig. 2). Dabei wird der Grad der Asymmetrie der Leistungsentwicklung zusätzlich beeinflusst durch die Annahmen zur Vermischung des Kühlmittels im unteren Plenum.

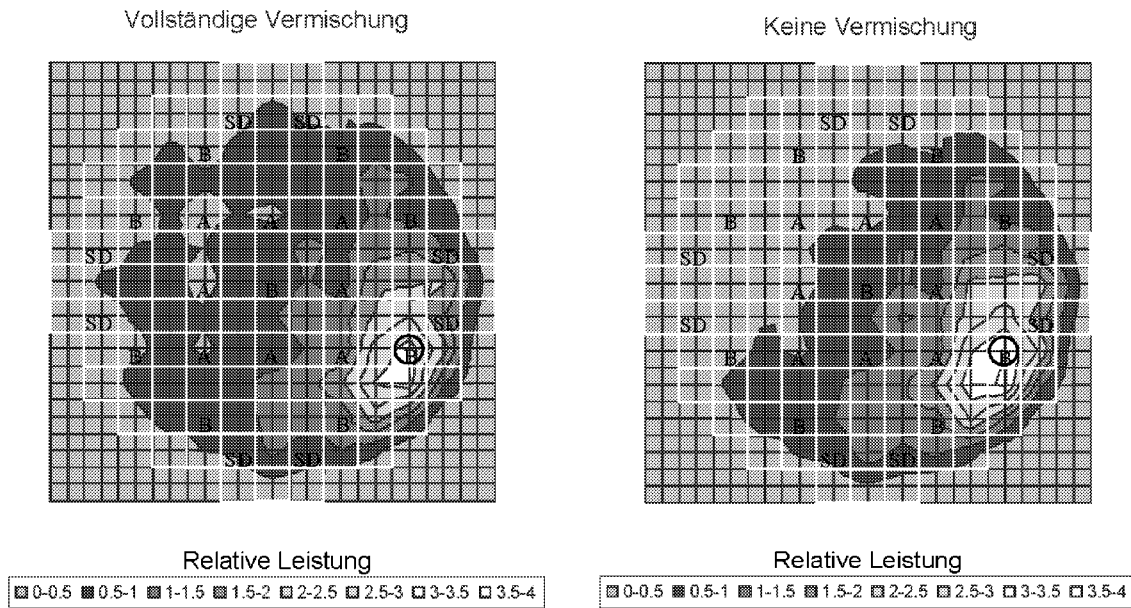


Fig. 1: Leistungsverteilung zum Zeitpunkt der Leistungsmaximums nach Dampfleitungsbruch in einem DWR. Das linke Diagramm zeigt die Leistungsverteilung unter der Annahme einer vollständigen Vermischung im unteren Plenum, das rechte Diagramm zeigt die Leistungsverteilung bei Vernachlässigung der Vermischung im unteren Plenum. Die Leistungsverteilung wird auch stark beeinflusst durch die Annahme des Nichteinfahrens des wirksamsten Kontrollelementes.

Mit der aktiven Teilnahme am dreiphasigen OECD/NSC Benchmark zum Turbinenschnellschluss wurde ein weiterer wichtiger Schritt gemacht zur Implementierung der dreidimensionalen Reaktorkinetik in der transienten Systemanalyse (siehe [1], [4], [7], [11]). Grundlage des Benchmarks bilden Messdaten eines vor Jahren im Siedewasserreaktor Peach-Bottom Unit 2 durchgeführten Experimentes: Durch das Schliessen der Turbineneinlassventile wird eine Druckwelle ausgelöst, die durch die Dampfleitung in den Reaktor läuft; infolge der Kondensation des Dampfes kommt es daraufhin zu einer Leistungsexkursion, die durch die Reaktorschnellabschaltung begrenzt wird. Mit vorgegebener Leistungsproduktion als Randbedingung der ersten Benchmark-Phase wurde die Genauigkeit der rein thermohydraulischen Simulation anhand der Messdaten überprüft; in dieser Phase ist die Fortpflanzung der Druckwelle von der Turbine in den Reaktor das wesentlichste Phänomen. Das PSI reichte eine mit RETRAN-3D erarbeitete gute Lösung ein (siehe Fig. 3). Die zukünftige dritte Phase umfasst dann eine Simulation der gesamten Transiente mit integrierter drei-dimensionalen Kinetik.

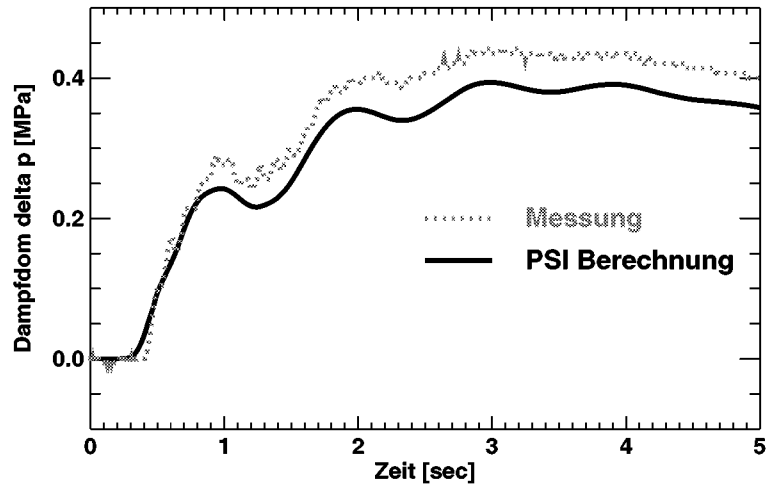


Fig. 2 Vergleich des mit RETRAN-3D berechneten Druckverlaufes mit den Messdaten für die Phase 1 des Internationalen Peach Bottom Turbine-Trip Benchmarks. Die Übereinstimmung mit der Messung ist gut, insbesondere ist die zeitliche Entwicklung gut erfasst.

Mit der zweiten Benchmark-Phase wird die dreidimensionale Berechnung der Leistungsexkursion überprüft. Dafür wurden neben den nuklearen Daten (in zwei Gruppen) zeitabhängige thermohydraulische Randbedingungen im oberen und unteren Plenum spezifiziert. Die zusätzliche Überprüfung von CORETRAN ist von Wichtigkeit, da CORETRAN mit demselben Neutronikmodul arbeitet wie RETRAN-3D. Die mit CORETRAN entwickelte Lösung stimmt sehr gut mit den Messdaten überein (siehe Fig. 4)

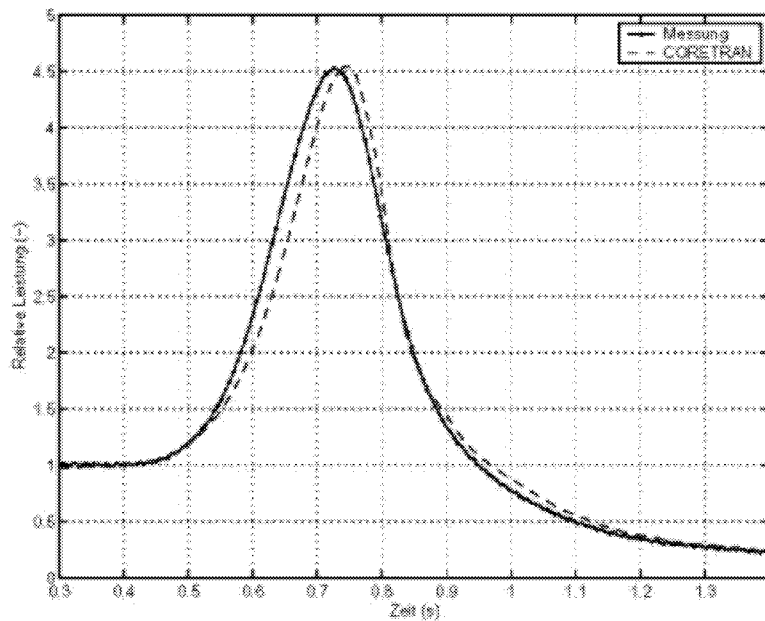


Fig. 3 Vergleich der mit CORETRAN berechneten Leistungsentwicklung mit den Messdaten für die Phase 2 des Internationalen Peach Bottom Turbine-Trip Benchmarks. Die nuklearen Daten wie auch die transienten Randbedingungen für das obere und untere Plenum wurden vorgegeben. Die Übereinstimmung mit den Messdaten ist sehr gut.

Im Rahmen des EU-Projektes **NACUSP** (FIKS-CT2000-00041) sind Stabilitätsanalysen für verschiedene Siedewasserreaktoren vorgesehen. Im Berichtsjahr wurde die Spezifikation der entsprechenden Datensammlung erarbeitet. Dadurch soll sichergestellt werden, dass die Datensammlungen der mitarbeitenden Organisationen vollständig und bedarfsgerecht erstellt werden können. Für den Siedewasserreaktor Leibstadt (KKL) konnte ein Modell mit dem neuen Rechenprogramm RAMONA-5 erarbeitet und bereits mit ersten Nachrechnungen einzelner Stabilitätsexperimente ausgetestet werden. Diese Arbeiten stehen in engem Zusammenhang mit der schon beschriebenen Doktorarbeit und basieren auf den früheren Untersuchungen zum Stabilitätsverhalten von Siedewasserreaktoren [6], [7].

Das Verhalten von hochabgebranntem Brennstoff bei reaktivitätsinduzierten Unfällen (RIA) und Kühlmittelverlustunfällen (LOCA) ist momentan ein wichtiges Thema sowohl der internationalen als auch der nationalen Sicherheitsdiskussion, sowohl für Druck- als auch für Siedewasserreaktoren. Der transienten Simulation des Brennstabverhaltens kommt deshalb ein zunehmend grösseres Gewicht zu. Für einen DWR konnte die generische Simulation des Brennstabverhaltens während des hypothetischen Reaktivitätsunfalles „Auswurf eines Kontrollelementes“ erarbeitet werden. Der Simulation wurde ein Brennstab mit einem Abbrand von 48 GWd/t zu Grunde gelegt. Mit den Rechenprogrammen FREY und TRANSURANUS wurde der Ablauf der wesentlichen Phänomene untersucht. Dabei wurden im Hinblick auf die Simulation von Brennstoff mit hohem Abbrand verschiedene Beschränkungen der Rechenprogramme identifiziert. Es ist deshalb vorgesehen, FREY durch eine neue, für die Simulation von hochabgebranntem Brennstoff erweiterte Version zu ersetzen. Eine erste generische Analyse eines Kühlmittelverlustunfalles in einem SWR mit FREY führte im Berichtsjahr zu zufriedenstellenden Ergebnissen für frischen Brennstoff, die allerdings noch der weiteren Untersuchung bedürfen. Zudem konnte die Analyseketten vom LOCA-Code TRAC-BF1 zum Brennstab-Code FREY inklusive des dafür notwendigen Datentransfers aufgebaut und erfolgreich ausgetestet werden.

Diese Aktivität diente auch als Vorbereitung für die Analyse der im Halden-Reaktor geplanten LOCA-Experimente. Dafür stellen die Schweizer Kernkraftwerke hoch abgebrannten Brennstoff zur Verfügung. Das Projekt STARS verpflichtete sich, die thermohydraulische Auslegung des geplanten Experimentes zu unterstützen. Vom Design-Team konnte gegen Ende des Berichtsjahres eine ziemlich vollständige Informationssammlung erhalten werden. Details zur Ausgestaltung des Testkreislaufes wie auch zur geplanten Durchführung des Experimentes wurden anlässlich einer Arbeitssitzung in Halden weitgehend geklärt.

Ein nicht vernachlässigbarer Aufwand entstand im administrativen Bereich des Projektes durch den Aufbau eines Qualitätsmanagementsystems (QMS); bisher wurden etwa 80% der dafür notwendigen Dokumente erarbeitet. Parallel dazu wurde der Aufbau eines (möglichst auf einer kommerziellen Lösung basierenden) Archiv-Systems vorangetrieben. Als Basis für die Offertstellung wurde eine detaillierte Spezifikation geschrieben. Von vier Firmen wurden Angebote erhalten und evaluiert; die Firma mit der besten Offerte wurde darauf zu einer Produktepräsentation ans PSI eingeladen. Gegenwärtig entwickelt diese Firma in einer ersten Tranche den Prototyp des offerierten Produktes.

2.2 Forschungsorientierte Arbeiten

Im Rahmen der Störfalluntersuchungen werden jeweils sogenannte Best-estimate Rechnungen durchgeführt: Die im Kernkraftwerk ablaufenden Prozesse werden so realistisch wie möglich in den Simulationsprogrammen abgebildet. Zur Beurteilung des Abstandes zu den aufgrund konservativer Rechnungen festgelegten Sicherheitslimiten muss zusätzlich Unsicherheit dieser Rechnung quantifiziert werden. Eine entsprechende statistische Methodik (basierend auf dem Programm SUSA der GRS) wurde im Vorjahr implementiert und auf die Analyse eines thermohydraulischen Experimentes erfolgreich angewandt.

Während die statistische Methodik zur Berechnung der Unsicherheiten der Ausgabegrößen auf Grund der Unsicherheiten der Eingabeparameter relativ gut etabliert ist, muss die Ermittlung der Unsicherheit der Eingabeparameter vielfach auf der Basis von „engineering / expert judgement“ vorgenommen werden. Es ist klar, dass mit diesem Vorgehen nicht der angestrebte Grad der Objektivität erreicht wird. Hier setzte die Forschungsaktivität im Berichtsjahr an: Aus der Auswertung der im Rahmen der Code-Validierung in früheren Jahren aufgebauten experimentellen Datenbasis bezüglich Voidanteil sowie deren Nachrechnungen können Unsicherheitsgrößen des die Void-Berechnung betreffenden, sehr wichtigen Rechenmoduls objektiv abgeleitet werden. Dazu sind spezielle, für die Auswertung von Stichproben kleinen Umfanges entwickelte statistische Methoden notwendig. Die Auswirkungen der objektiv ermittelten Modellunsicherheiten auf die gewünschten Analyseresultate (wie Reaktorleistung, Reaktordruck) konnten mit der bereits implementierten SUSA-Methode statistisch sauber ermittelt werden. Auf Grund einer systematischen Literaturrecherche wurden verschiedene (moderne) statistische Verfahren identifiziert, die sich für die anspruchsvolle (parameterfreie) Auswertung der Experimentaldaten eignen. Entsprechende Auswertungsprogramme wurden entwickelt, sodass die prinzipielle Anwendbarkeit der statistischen Methode mittels synthetisch generierten „Messdaten“ mit stochastisch verteiltem Messfehler überprüft werden konnte. Darauf basierend wurde ein detaillierter Forschungsplan einer Doktorarbeit

ausgearbeitet, der anschliessend durch die Forschungskommission PSI positiv beurteilt wurde. Als nächstes ist nun ein geeigneter Doktorand zu finden.

Mit dem von der Penn-State University organisierten LOCA-Projekt soll die Absicherung des für die LOCA-Analyse in Siedewasserreaktoren eingesetzten Rechenprogramms TRAC-BF1 verbessert werden. Innerhalb einer internationalen Kooperation analysiert das PSI drei LOCA-Experimente der TLTA-Anlage, die als Integraltests sowohl Szenarien des „Grossen Bruches einer Hauptkühlmittelleitung“ wie auch „Kleine Brüche“ simulieren. Zur Überprüfung einzelner physikalischer Modelle analysiert das PSI zudem einige „Separate-Effect Tests“ zur Wiederbenetzung (PSI-NEPTUN sowie FLECHT). Erste Resultate der Nachrechnung einiger „Separate-Effect Tests“ zum unterkühlten und zum Netto-Sieden weisen auf eine gute Übereinstimmung mit der Messwerten hin (siehe Fig. 5).

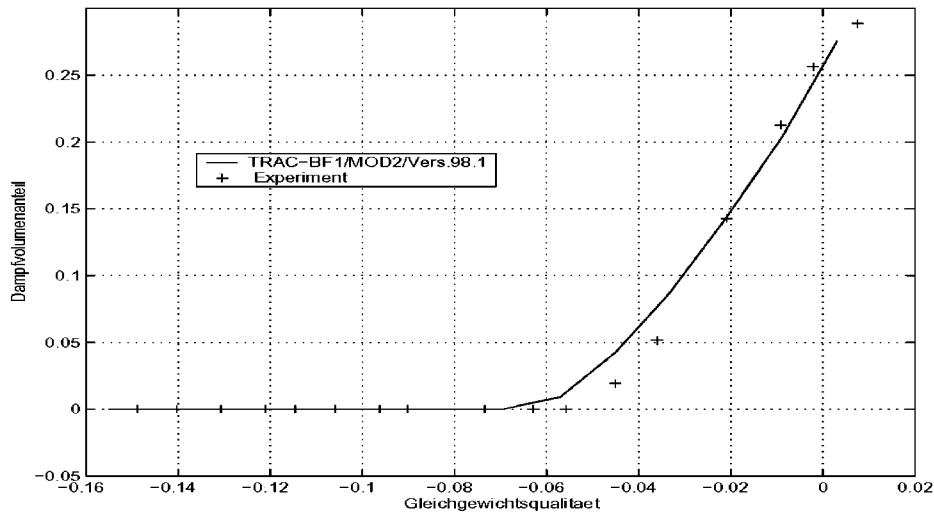


Fig. 4 Beispiel eines guten Vergleichs von mit TRAC-BF1 berechneten Dampfanteilen (Void) mit den entsprechenden Messdaten. Dargestellt ist der Dampfanteil in Funktion der Dampfqualität. Bei negativer Dampfqualität tritt unterkühltes Sieden auf.

Zur theoretischen Vertiefung des Verständnisses der beim Instabilwerden eines Siedewasserreaktors Vorgänge wurden im Berichtsjahr im Rahmen einer Doktorarbeit Studien mittels nicht-linearer analytischen Modelle durchgeführt. Vorerst mussten die Modellgleichungen aufgestellt werden, und es wurden die entsprechenden Modell-Parameter für die Bedingungen des KKL-Reaktors ermittelt. Von Bedeutung ist, dass im Rahmen nichtlinearer analytischer Stabilitätsmodelle zur Beschreibung der Zwei-Phasen Strömung erstmals das sog. Drift-Flux-Modell angewandt wurde, das mittels der beiden Parameter C_0 und v_{gj} eine realistischere Beschreibung des Dampfanteils erlaubt als das einfachere homogene Modell. Für dieses Modell wurden vorerst die Stabilitätsgrenzen und deren Abhängigkeit von den beiden Parameter C_0 und v_{gj} bestimmt. Im Rahmen der eingehenden Bifurkationsanalyse zeigte sich zudem, dass auch das Auftreten von unter- oder überkritischer (Hopf-) Bifurkationen stark von den beiden Modellparametern abhängt.

3. Nationale Zusammenarbeit

Die Zusammenarbeit mit der HSK (BFE) ist intensiv: Die Resultate der "On-Call"-Arbeiten, darunter fiel im Berichtsjahr eine Expertise zur Festlegung des Stabilitätsausschlussgebiets in einem Siedewasserreaktor, aber auch ausgewählte Resultate der übrigen Projektarbeit fliessen direkt in die Genehmigungspraxis der HSK ein. Einzelne Projektmitarbeiter werden häufig als Experten zu informellen Beratungen herangezogen. Auch mit den Kernkraftwerken bestand im Berichtsjahr eine gute und teilweise intensive technische Zusammenarbeit, dies allerdings nach Absprache mit der HSK. So konnten diesbezüglich zwei Studien weitgehend abgeschlossen werden. Ein dritter Auftrag umfasste die Beratung bei der Planung und die anschliessende Analyse von Stabilitäts-Experimenten. Ein Mitarbeiter des Projekts wirkt zudem in einer neuen Expertengruppe zur Brennstoff-Sicherheit mit, die mit Vertretern der Kernkraftwerke, der HSK und des PSI bestellt wurde. Die im Rahmen des Projektes arbeitenden Doktoranden sind alle an der EPFL immatrikuliert. Diese Zusammenarbeit wird begünstigt durch die Tatsache, dass der Laborleiter gleichzeitig den Lehrstuhl für Reaktorphysik und Systemverhalten an der EPFL innehat.

4. Internationale Zusammenarbeit

Im Berichtsjahr war die Zusammenarbeit mit folgenden Institutionen wichtig:

- Electric Power Research Institute (EPRI), Palo Alto, CA, USA zur Weiterentwicklung von RETRAN-3D und CORETRAN (Computer & Simulation Inc., Idaho Falls, ID, USA)
- Studsvik/Scandpower, Schweden / Norwegen / USA, Unterhalt + Modifikation CASMO-4, SIMULATE, RAMONA-5
- Penn State University (PSU), USA, zum Unterhalt von TRAC-BF1 sowie zum TRAC- BF1 LOCA Validation Project
- Universität Illinois, USA, zur nichtlinearen Stabilitätsanalyse im Rahmen eines Forschungsaufenthaltes des Doktoranden
- Universität Valencia, Spanien, zur Stabilitätsanalyse von SWR

Das Arbeitsgebiet Stabilitätsanalyse von Siedewasserreaktoren profitiert stark von der Teilnahme am EU-Projekt **NACUSP** (FIKS-CT2000-00041), wofür ein Mitarbeiter des Projektes die technische Führung des entsprechenden Arbeitspakets übernahm.

Die aktive internationale Zusammenarbeit wird auch durch die Tatsache unterstrichen, dass sowohl das TRAC-BF1 User Group Meeting 2001 wie auch der 2. Workshop zum Internationalen Peach Bottom Turbine-Trip am PSI stattfanden. Mit dem OECD-Projekt **HALDEN** wurde eine technische Unterstützung bei der Auslegung des geplanten LOCA-Experiments mit hochabgebranntem Brennstoff vereinbart und initiiert. Ein Mitarbeiter war zudem als Experte für die IAEA tätig.

5. Bewertung 2001 und Ausblick 2002

Die meisten der für das Jahr 2001 anvisierten Ziele konnten erreicht werden. Insbesondere konnten erstmals erste Ergebnisse eines postulierten Bruches einer Dampfleitung im DWR erzielt werden als Demonstration der erfolgreichen Integration dreidimensionalen Reaktorkinetik in die transiente Systemanalyse. Im Rahmen der Doktorarbeit zur nichtlinearen Stabilitätsanalyse wurden interessante neue Ergebnisse erzielt.

Mit der erfolgreichen Einreichung des Forschungsplans für die Doktorarbeit zur Unsicherheitsanalyse und dessen Unterstützung durch die FoKo PSI konnte ein wichtiges Projekt-Ziel erreicht werden, indem damit die Lancierung dieses neuen Forschungsgebietes nun in die Umsetzungsphase tritt. Die Begutachtung des Projektes STARS im Rahmen des Audits der beiden Energie-Bereiche des PSI ergab ein sehr positives Resultat. Die Auditoren wiesen allerdings auf die knapp bemessenen Ressourcen hin und warnten vor thematisch zu breit angelegten Arbeits- und Forschungsprogrammen.

Die Expertise der Projektmitarbeiter wird zunehmend national und teilweise auch international genutzt, was mitunter die finanzielle Basis des Projektes zu verbreitern hilft. Leider zeigte sich im Berichtsjahr, dass externe Faktoren relativ starken negativen Einfluss auf den Projekt-Fortschritt nehmen:

- Als Folge der Deregulierung in der amerikanischen Betreiberindustrie reduzierte sich die finanzielle Basis bei EPRI entscheidend. Entsprechend fehlen die finanziellen Mittel für die Code-Entwicklung weitgehend, und die Mittel für den Code-Unterhalt schrumpfen wegen der Fusionierung der amerikanischen Betreiber. Dies hat einen negativen Einfluss auf das Projekt STARS, da die Nutzung der beiden wichtigen Rechenprogramme RETRAN-3D und CORETRAN ziemlich stark beeinträchtigt wird.
- Das internationale LOCA-Validierungsprojekt ist mehr als ein Jahr im Verzug; die dafür notwendige eingefrorene Code-Version von TRAC-BF1 wurde erst am Schluss des Berichtsjahrs verfügbar.
- Vertragliche Schwierigkeiten verzögerten die Fortführung der CFD-Arbeiten mit Messdaten der französischen Versuchsanlage BORA-BORA.

Weil mehr Aufwand bei der Erarbeitung des QMS anfiel, mussten personelle Umstellungen vorgenommen werden. Daher konnte die ursprünglich vorgesehene Unsicherheitsanalyse für einen DWR Hauptdampfleitungsbruch nicht in Angriff genommen werden. Wegen Mangel geeigneter Ressourcen konnten zudem die Arbeiten zur T-Junction im wesentlichen nur im Rahmen der Arbeit eines Sommer-Studenten weitergeführt werden.

Die Projektarbeit wird 2002 auf die folgenden Hauptziele ausgerichtet:

- Implementierung des QMS und Pre-Zertifizierung.
- Elektronisches Archiv operationell.
- Komplettierung der anlagespezifischen Modelle für die Brennstabanalyse, Upgrade für Hochabbrand speziell für die transiente Brennstabanalyse; Validierung der transienten Brennstabanalyse anhand ausgewählter Experimente.
- Thermohydraulische Rechnungen für die Auslegung des Halden LOCA-Experiments abgeschlossen.

- Erfolgreicher Abschluss des Peach Bottom Turbine-Trip Benchmarks der NSC.
- Anwendung der Methodik zur Abschätzung der Rechenunsicherheit für ausgewählte Analysen.
- Validierungsrechnungen für TRAC-BF1 anhand von SET grösstenteils abgeschlossen; Input für die Simulation eines Integraltests erarbeitet (Penn-State LOCA Project).
- Doktorarbeit betr. Entwicklung statischer Unsicherheitsmasse der Rechencodes gestartet.
- Pilot-Studie zur Anwendung Neuronaler Netzwerke für die Transientenklassifikation.
- Erste Simulationsergebnisse zum Stabilitätsverhalten von SWR (EU-Programm NACUSP)
- Unterstützung bei der Planung geplanter Stabilitätsexperimente und erste Analyse der Messungen.
- Erweiterte Anwendungen des neu entwickelten analytischen Modells zur SWR-Stabilität.

6. Referenzen

- [1] H. Ferroukhi and P. Coddington, **Analysis of the NEACRP / NEA-NSC 3-D PWR Core Transient Benchmarks using the CORETRAN and RETRAN-3D codes**, Proceedings of the Ninth International Conference on Nuclear Engineering (ICONE 9 conference, held in Nice Acropolis, France, 8-12, April 2001), CD-ROM.
- [2] R. Macian and L. Nechvatal, **Best Estimate Analysis of the Thermal Expansion Scenario during Shutdown in a PWR**, Proceedings of the Ninth International Conference on Nuclear Engineering (ICONE 9 conference, held in Nice Acropolis, France, 8-12, April 2001), CD-ROM.
- [3] W. Barten, P. Coddington, J. Sullivan, **Development of a Model for RETRAN-3D for Pressure Losses at T-Junctions**, Proceedings of the Ninth International Conference on Nuclear Engineering (ICONE 9 conference, held in Nice Acropolis, France, 8-12, April 2001), CD-ROM.
- [4] Y. Aounallah, **CORETRAN/VIPRE Assembly Critical Power assessment against NUPEC BWR experiments**, Proceedings of the Ninth International Conference on Nuclear Engineering (ICONE 9 conference, held in Nice Acropolis, France, 8-12, April 2001), CD-ROM.
- [5] W. Barten, **RETRAN-3D Results and One-dimensional Analytical Model for the Critical Power of a Rod Bundle with Cosine-shape Heating**, Proceedings Jahrestagung Kerntechnik 2001, Annual Meeting on Nuclear Technology 2001 (Dresden, Germany, 15-17. May 2001), p. 333-337, INFORUM Verlag, Bonn, Germany.
- [6] D. Hennig, **BWR Stability: Calculation Models and Prediction Uncertainty**, Proceedings Jahrestagung Kerntechnik 2001, Annual Meeting on Nuclear Technology 2001 (Dresden, Germany, 15-17. May 2001), p. 333-337, INFORUM Verlag, Bonn, Germany.
- [7] B. Askari, K. Behringer, D. Hennig, **Some remarks on time series analysis for BWR stability studies**, M&C2001, 9-13 September 2001, Salt Lake City, CD-ROM.
- [8] H. Ferroukhi and P. Coddington, **The Analysis of PWR and BWR Reactivity Transients with CORETRAN and RETRAN-3D**, Proc. 10th International RETRAN Conference, Jackson Hole, ID, USA, October 14-17, 2001, CD-ROM.
- [9] R. Macian, P. Coddington and P. Stangroom, **Assessment of RETRAN-3D Boiling Models against Experimental Subcooled Boiling Tube Data**, Proc. 10th International RETRAN Conference, Jackson Hole, ID, USA, October 14-17, 2001, CD-ROM.
- [10] O. Zerkak, **An Application of RETRAN-3D using the Three-Dimensional Core Model for a PWR Main Steam Line Break Analysis**, Proc. 10th International RETRAN Conference, Jackson Hole, ID, USA, October 14-17, 2001, CD-ROM.
- [11] Y. Aounallah, P. Coddington, H. Ferroukhi, F. Holzgrewe¹, M. A. Zimmermann, **Highlights from the CORETRAN Applications at PSI**, Proc. 10th International RETRAN Conference, Jackson Hole, ID, USA, October 14-17, 2001, CD-ROM. ¹BKW-FMB Energie AG, Mühleberg, Switzerland.
- [12] G. Th. Analytis and P. Coddington, **Analysis and Sensitivity Studies of Postulated SB-LOCAs in the Mühleberg (KKM) BWR/4 by TRAC-BF1**, Annals of Nuclear Energy, in press.
- [13] P. Coddington and R. Macian, **A Study of the Performance of Void Fraction Correlations used in the Context of Drift-Flux Two-Phase Flow Models**, Nuclear Engineering and Design, in press.
- [14] R. Miro, G. Ginestar, G. Verdu, D. Hennig, **A Nodal Modal Method to Integrate the Neutron Diffusion Equation to BWR Instabilities** (accepted by Annals of Nucl. Energy).



Datum: 15.01.2002
Von: SN
An: CS
cc: VW

PROJEKTBEGLEITERBEWERTUNG 2001 HUMAN RELIABILITY ANALYSIS (HRA)

Einleitung

Im Jahre 1997 wurde das Projekt 'Human Reliability Analysis' (HRA) gestartet. Unterstützt werden die Forschungsarbeiten von den Kernkraftwerksbetreibern und der HSK. Der Forschungsvertrag wurde im vergangenen Jahr erneuert. Das Projekt wird vom Paul Scherrer Institut (PSI) unter der Leitung von Dr. Vinh Dang durchgeführt. Mit ihm arbeitet seit 1997 Herr Dr. Bernhard Reer. Eine Stelle ist weiterhin unbesetzt.

Als wichtiger Bestandteil der Probabilistischen Sicherheitsanalyse (PSA) betrachtet die HRA den Einfluss von menschlichen Handlungen, welche bei einem Störfall zum Tragen kommen. Die HRA analysiert diese Handlungen und ermittelt deren Fehlerwahrscheinlichkeiten.

Die internationale HRA-Forschung konzentriert sich vor allem auf folgende Punkte:

- die systematische Erfassung und die Quantifizierung von Handlungen, welche unter Umständen den Verlauf eines Unfalls negativ beeinflussen (sogenannte Error of Commission EOC)
- die Entwicklung von Methoden, mit denen die Unsicherheiten bei der Bewertung reduziert werden können
- die Betrachtung dynamischer Aspekte des Operateurverhaltens in Verbindung mit Stör- und Unfallabläufen
- Berücksichtigung/Modellierung von Teamverhalten.

Damit leistet die HRA-Forschung einen Beitrag zur Weiterentwicklung der PSA-Technologie insgesamt.

Projektarbeiten 2001

Aufgrund methodischer Probleme werden EOCs in den meisten PSA weitgehend nicht berücksichtigt. Das Hauptproblem ist eine effiziente Identifikation möglicher EOCs. Im Jahre 2000 wurde ein Pilotprojekt gestartet zur Identifizierung und Quantifizierung von EOCs. Als Beispiel verwendete man die PSA eines Kernkraftwerksbetreibers. Diese Untersuchungen wurden vom Betreiber aktiv unterstützt.

Weitergehende Arbeiten im Jahr 2001 konzentrierten sich auf die Ableitung von Schlussfolgerungen aus den identifizierten und quantifizierten Szenarien:

1. Eigenschaften von Situationen, in denen EOCs auftreten können, wurden analysiert. Dies erlaubt eine bessere Strukturierung der Vielzahl von Faktoren, die bei der Suche nach EOCs zu beachten sind. Bezüglich des Einstiegs in ungeeigneten Vorschriften sind beispielweise die Störfallphasen von Bedeutung, in denen die Anlagenparameter im Grenzbereich der Einstiegsriterien liegen.
2. Elemente von Situationen, die zu Schwierigkeiten und Unsicherheiten bei der Quantifizierung beitragen, wurden identifiziert. Eine Erkenntnis dabei war, dass verschiedene Entscheidungsarten der Operateure differenziert werden müssen.

Diese Schlussfolgerungen sind hilfreich für zukünftige Forschungsarbeiten. Sie unterstützen die Entwicklung verfeinerte Methoden für die Identifizierung von EOCs und zeigen, welche Daten aus Betriebserfahrung oder aus Simulatorübungen auszuwerten sind, um Fortschritte bei der Quantifizierung von EOCs zu erreichen.

Die Arbeiten zur Entwicklung eines dynamischen Modells zur Simulation der Interaktion zwischen dem Operateur und der Anlage wurden zu Gunsten der EOC-Methodenentwicklung auch dieses Jahr reduziert.

Das PSI ist Mitglied der HRA-Arbeitsgruppe der OECD-NEA/CSNI. Die neue PSI Methode und die Resultate der konkreten Anwendung wurden bei einem OECD Workshop präsentiert. Ferner beteiligte sich das PSI bei einer Überprüfung einer PSA, bei der die IAEA federführend war.

Das PSI ist Mitglied in der MOSAIC-Gruppe, einem Forum für HRA-Forscher und Anwender.

Bewertung des Projektes

Die Weiterentwicklung einer anwenderfreundlichen Methode zur Identifizierung und Quantifizierung von EOCs ist ein wichtiger Beitrag auf diesem Gebiet. Ausserdem lieferte die Anwendung der PSI Methode konkrete Hinweise, wie einige Vorschriften eines Kernkraftwerkbetreibers verbessert und damit die Sicherheit des Werkes erhöht werden könnte.

Das PSI beteiligt sich bei internationalen Arbeitsgruppen/Projekten und hat auf diese einen wesentlichen Einfluss. Diese Aktivitäten werden vom Projektbegleiter sehr begrüsst, da so sichergestellt wird, dass sich die PSI Aktivitäten am internationalen Stand von Wissenschaft und Technik orientieren und messen.

Auch im vergangenen Jahr standen dem HRA-Forschungsprojekt wegen einer unbesetzten Stelle weniger Ressourcen zur Verfügung, als im Forschungsplan vorgesehen war. Die Konzentration auf die EOC-Problematik auf Kosten der Entwicklung dynamischer Modelle des Operateurverhaltens ist sinnvoll.

Das PSI überprüft für die HSK auch HRA-Studien. (Diese Arbeiten waren im vergangenen Jahr besonders intensiv.) Das Wissen, welches das PSI durch das Forschungsprojekt gewinnt, bringt das PSI auch bei der Reviewtätigkeit für die HSK ein. Dadurch steht der HSK ein ausgezeichnetes HRA-Review-Team zur Verfügung.

Würenlingen, 15. Januar 2002

Der Projektbegleiter

G. Schoen

HRA

Human Reliability Analysis

Applications and Methods Development

Autor und Koautoren	Dr. V.N. Dang
Beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut
Adresse	5232 Villigen PSI
Telfon, E-mail, Internetadresse	056 310 2967, vinh.dang@psi.ch, http://systemsweb.psi.ch/hra/
BFE Projekt- /Vertrags-Nr.	20255 / 59812
Dauer des Projekts	2001– bis 2004

Zusammenfassung

Die Projektarbeit konzentrierte sich auf die Ableitung von Schlussfolgerungen aus der Pilotstudie zur Analyse sog. Errors of Commission (EOCs). Das sind Handlungen, die Störfallsituationen verschlechtern. EOCs stellen hohen Anforderungen an Sicherheitsstudien, weil eine Vielzahl von unerwünschten Handlungen sowie eine Vielzahl von Situationen, die bedeutsame Gelegenheiten für derartige Handlungen darstellen, zu berücksichtigen ist. In der Pilotstudie wurde die vom PSI entwickelte CESA-Methode zur Identifizierung von EOCs angewendet. Etwa 30 plausible Szenarien, in denen EOCs auftreten können, konnten mit dem CESA-Suchschema, das konsequent auf die für das Risiko bedeutsame Systeme und Funktionen konzentriert, identifiziert werden.

Das Ziel dieser Arbeitsphase war die eingehende Betrachtung einer kleinen Anzahl von Szenarien, die zur Quantifizierung ausgewählt wurden und detailliert analysiert wurden, um allgemeine Typen von Situationen, die zu EOCs führen können, zu verstehen. Dieses Verständnis wird genutzt, um die Identifizierungsmethode zu ergänzen. So sollte z.B. dem Einstieg in falsche Störfallvorschriften vornehmlich dann Beachtung geschenkt werden, wenn sich die entsprechenden Anlagenparameter im Grenzbereich der Einstiegskriterien bewegen. Derartige Situationen können aufgrund der Dynamik des Anlagenverhaltens auftreten.

Weiterhin wurden die analysierten Szenarien mit dem Ziel untersucht, die Eigenschaften der Situationen und Handlungselemente zu charakterisieren, die Schwierigkeiten bei der Quantifizierung von Fehlerwahrscheinlichkeiten aufwerfen. Diese Schwierigkeiten zeigen die Notwendigkeit des Erlangens von verfeinerten Daten über Wahrscheinlichkeiten, um diese Eigenschaften besser zu repräsentieren. Die Szenarien beinhalten auch grundsätzlich unterschiedliche Arten von Entscheidungen der Operateure. Somit können Schwerpunkte für die Informationssammlung bei der Auswertung von Ereignissen (aus Betriebserfahrung und Simulatorübungen) definiert werden, um Fortschritte bei der Entwicklung von Methoden zur Analyse menschlicher Zuverlässigkeit zu erzielen.

Die für konkrete Szenarien identifizierten Merkmale sowie die zugehörigen Unsicherheiten bei der Quantifizierung sind somit wertvolle Erkenntnisse für zukünftigen Forschungsarbeiten. Ausserdem bestätigen die Szenarien, bei denen die Dynamik der Anlagenparameter ein EOC-relevanter Faktor ist, die Wichtigkeit der zukünftigen Projektarbeiten bezüglich simulationsbasierte Verfahren zur Szenarioanalyse und dynamische Risikobewertungsmethoden.

SUMMARY

The project work focused on drawing conclusions for the pilot study on the analysis of errors of commission (EOCs). EOCs, which are defined as inappropriate actions that aggravate scenarios, pose a challenge for safety studies because the number of inappropriate actions to consider and of situations that present a significant opportunity for these is very large. PSI's CESA method for the identification of EOCs was applied and evaluated in the pilot study. About 30 plausible scenarios could be identified with CESA's systematic search scheme, which consequently focuses on risk-significant systems and functions.

The objective of this phase of the work was to concentrate on the small number of scenarios selected for quantification and analysed in detail in order to understand general types of situations that may lead to EOCs. This understanding will be used to enhance the process of identifying additional scenarios. For instance, transfers to incorrect procedures (inappropriate transfers) should receive increased attention primarily when the plant parameters referred to in the transfer criteria are close to the threshold values. Such conditions occur temporarily in some scenarios due to the dynamics of the plant behaviour.

Secondly, the analysed scenarios were also examined with the aim to characterise the specific situational features and human performance elements that pose difficulties for the quantification of the error probabilities. Here, the scenarios illustrating these quantification issues highlight the need to obtain more refined probability estimates. Although the lack of data may suggest a high-level, aggregated view of scenarios, distinguishing between different types of operator "decisions" could increase the reliability of the estimates. In this way, these quantification issues designate the kinds of information to be highlighted in the analysis of events (from operating experience and training) and orient the future direction of HRA method development.

The features of the concrete scenarios identified and the associated analysis uncertainties in the quantification of the scenarios are thus valuable insights for future work. Moreover, the scenarios where the dynamics of plant parameters are a contributing factor confirm the project's drive towards simulation-based scenario analysis tools and dynamic risk assessment methodology.

1. Projektziele

The objectives for the work performed during 2001 within the Human Reliability Analysis (HRA) project¹ were:

1. To draw overall conclusions about some features of situations with a potential for errors of commission. The specific EOC scenarios identified and quantified in the pilot study were examined as a whole.
2. To distinguish the scenario features and human performance factors, associated with EOC situations, that are problematic in the quantification of the probabilities. These relate to the likelihood of errors as well as to the factors that contribute to recovery and correction. The identified issues serve to orient information and data collection as well as method development in the project's activities.

2. Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

Errors of Commission: linking quantification development to situational features

The research work focused on the conclusion of the pilot study on the analysis of errors of commission (EOCs). In considering the human role in accidents, current Probabilistic Safety Assessments (PSAs) concentrate on the omissions of the actions required of the operators to prevent accidents and to reduce their consequences. Excluding EOCs, that is, inappropriate or aggravating actions, from PSAs represents a potentially important gap in the safety studies. The pilot study was aimed at testing the CESA method developed at PSI for systematically identifying and analysing the scenario contexts in which the operators might perform such actions. Application of the method identified thirty-three plausible scenarios in which EOCs may occur; the probabilities of four of these EOC scenarios and their contributions to risk were quantified.

In the detailed analyses of each scenario, several situations or "paths" were examined, each path being a sequence of operator assessments and actions that would lead to the EOC. Seven situations corresponding to the four scenarios were

¹ In parallel to the research program, PSI/NES supports HSK since late 1996 through on-call tasks. These tasks are mainly oriented towards reviews of the HRAs submitted to HSK by the Swiss utilities as a part of their PSAs. During this year, the detailed review for one Full-Power PSA (a PSA for one plant) was completed and the detailed review for the PSA of a second plant initiated. The work carried out within on-calls provides impulses for the research and is closely connected to the development work aiming at the enhancements of the current methods. Nevertheless, the on-call tasks have a separate funding, and their specific content and results will not be further addressed in the present report.

retained in the full analyses. About five more situations examined in the detailed analyses were screened out. In this stage, the four scenarios selected for detailed analysis were examined with the following aims:

- identify common features of the situations and the challenges they present to the operators,
- characterize the situational features and human performance elements that pose difficulties for the quantification analyses.

The first aim relates to understanding what types of general situations may potentially lead to EOCs. Table 1 shows selected situational features that were present in the analysed EOC situations, denoted by their designator codes. For instance, transfers to incorrect procedures (inappropriate transfers) should receive increased attention primarily when the plant parameters referred to in the transfer criteria are close to the threshold values. In some transient contexts of the scenarios, this occurs as a result of the dynamics of the plant behaviour. In other cases involving a correct procedure, the contributing factor was a single error in interpreting a plant indication or a decision criterion. Although the number of situations analysed and the limited analysis experience world-wide with which these can be compared does not allow broad conclusions to be drawn about EOCs at this time, the distinctive combinations of features and factors that contribute to EOC situations can be used to enhance the process of identifying additional EOC scenarios.

Table 1. Selected situational features of analysed EOC situations

	Designator codes for specific EOC situations (paths)						
	FN1	FN3	HH1	HH2	IC	RWB 1	RWB 2
misinterpretation of parameter or procedure (S/M = Single / Multiple)	S		M	M		S	
misinterpretation of equipment state							yes
incorrect procedure transfer		yes	yes				
personnel redundancy credited	yes	yes	yes	yes	yes	yes	yes
involves priority condition					yes		
involves parameter dynamics, e.g. timing		yes	yes	yes			
is a direct consequence of procedure, given incorrect transfer			yes	yes			
occurs in an applicable, appropriate procedure	yes	yes			yes	yes	yes
action – equipment stopped	yes	yes	yes	yes			
action – extraneous, usually start of equipment					yes	yes	yes

The second aim focuses on the aspects of the EOC situations for which the data and methods for quantification are lacking. The quantification of the EOCs is performed by quantifying each of the path events. Factors, such as the intervention of a staff member, that “block” the commission of the critical, inappropriate action (e.g. the stopping of equipment), were explored and credited. Separately, the analyses account for successful assessment and implementation of corrective measures, which essentially reverse the critical action. Table 2 shows the probabilities (per demand) associated with the EOC paths quantified in the pilot study.

Table 2. Preliminary probabilities for EOC paths quantified in the pilot study.

	EOC path	Probability inappropriate action performed	Failure probability for correction	Path probability	Overall EOC event probability
Emergency feedwater operation stopped	1	2.3 E-3	5.2 E-3	1.2 E-5	6.2 E-4
	2	1.1 E-2	5.5 E-2	6.1 E-4	
Safety injection stopped	1	4.4 E-4	6.9 E-2	3.0 E-5	6.4 E-5
	2	4.8 E-4	6.9 E-2	3.3 E-5	
Seal LOCA due to pump operation with degraded cooling	1	3.7 E-2	3.0 E-1	1.1 E-2	1.1 E-2
Seal LOCA due to isolated seal cooling flow	1	8 E-4	3.4 E-1	2.6 E-4	1.1 E-3
	2	2.3 E-3	3.4 E-1	7.9 E-4	

The probability that the inappropriate action is actually committed ranges up to a few percent, as shown in the third column of the table; this estimate accounts for the immediate recovery factors (blocking factors). The EOC event probability additionally considers the probability that the EOC is left uncorrected. The failure probability for correction was estimated to be as high as 0.34 (34% failure, or a success rate of 2/3), while the available time for correction was between 20 and 60 minutes.

These estimates need to be interpreted with caution because the assignment of probabilities for the decision aspects of human performance is difficult, generally for the errors of omission usually treated in PSAs but particularly for EOCs. Although the lack of data might suggest a high-level, aggregated view of scenarios, the plausibility of the postulated EOC scenarios depends on the definition of very specific sequences of events. One approach to increase the reliability of the estimates could be to distinguish, for instance, between different types of operator “decisions”, suggesting a direction for the current work on quantification issues.

The sizeable number of plausible EOC scenarios identified in the pilot study, which is comparable with the number of actions (errors of omission) typically treated in a PSA, confirm that these types of actions can be significant to safety. Determining the overall significance of these EOC situations requires that the EOC events are considered within the complete sequences of events leading to core damage. At this quantitative level, one of the seven situations, which corresponds to one of the four comprehensively analysed scenarios, is shown to be individually of concern.

3. Nationale Zusammenarbeit

The application of HRA and PSA methodology to address safety issues at a practical, industrial level is the primary goal of research in these areas. The EOC pilot study has been performed in co-operation with a Swiss utility, which provides inputs concerning the operational practices at its plant that can impact human performance and the plausibility of the EOC scenarios. Separately, the project staff are active in teaching at the Swiss Federal Institute of Technology, including contributions to the postgraduate course “Risiko und Sicherheit”. [1]

4. Internationale Zusammenarbeit

In addition to conferences, the main forum for technical exchange for the project has been the Task on HRA of the OECD NEA / Committee for the Safety of Nuclear Installations (CSNI). The application of PSI’s CESA method and the results from the EOC pilot study was presented at an OECD workshop on EOCs. [2]

The PSI hosted Prof. Ali Mosleh of the University of Maryland and a research co-operation was established in the area of dynamic risk assessment, in which the expertise of the two groups are strongly complimentary. Additional exchanges were made with Electricité de France, focused on progress and future work on the French utility’s MERMOS HRA methodology.

Activities in knowledge transfer/teaching include an invited contribution made at an industry conference [3] and a mission for the International PSA Review Team program of the International Atomic Energy Agency (IAEA).

5. Bewertung 2001 und Ausblick 2002

The analysis of selected EOC situations has provided valuable safety insights concerning specific factors contributing to concrete scenarios where EOCs may occur. For example, the study showed where procedures may be improved to avoid potential difficulties in their use. It should be noted, however, that these positive results were obtained in spite of the difficulties with the quantification, which were anticipated given the state of HRA. For the project, the examination of these situations as a whole and of their quantification analyses points to areas to be emphasised in future data collection and method development. These include for example the degree of recovery afforded by symptom-based procedures applied in parallel to other procedures. The differences among the types of operator "decisions" that are highlighted in these situations also suggest that the reliability of probability estimates might be improved by distinguishing between these types.

The identification of specific, potentially risk-significant scenarios in which the dynamics of plant parameters are a contributing factor provide an impetus for the second focus area of the project, simulation-based scenario analysis tools and risk assessment methodology. In the coming year, the newly established co-operation with the University of Maryland in the area of dynamic risk assessment, the addition of staff in this area and a planned doctoral student will enable progress on this front. PSI's experience with operator simulation is to be combined with Maryland's expertise in dynamic event trees in this area.

Finally, the PSI will continue its engagement within the HRA task of OECD-NEA/CSNI, for which the Munich workshop early in 2002 will set the direction of the next steps towards the resolution of HRA issues.

6. Referenzen

- [1] V.N. Dang, S. Hirschberg, **Human Reliability Analysis - The SLIM Method and Case Study, Analysis Integration and Computer Codes for Level 1 PSA/QRA, Mini-PSA**, in: *Nachdiplomkurs "Risiko und Sicherheit*, Modul V2 (Teil 1): Zuverlässigkeit und Risiko komplexer Systeme, ETH Zürich, Switzerland, 3-5 Dec. 2001.
- [2] V.N. Dang, B. Reer, S. Hirschberg, **Analyzing Errors of Commission: Identification and a First Assessment for a Swiss Plant**, in: *Proceedings of the OECD NEA Workshop, "Building the New HRA: Errors of Commission – from Research to Application"*, Rockville, MD, USA, May 7-9, 2001.
- [3] B. Reer, **Examining the Potential and Limitations of the Models Available for Quantifying Human Error**, IIR Conference on Identifying, Measuring and Reporting Human Error, London, UK, 13-14 June 2001.



Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen
Division principale de la Sécurité des Installations Nucléaires
Divisione principale della Sicurezza degli Impianti Nucleari
Swiss Federal Nuclear Safety Inspectorate

Datum: 20. Februar 2002
Von: J. Hammer
An: ZM, CS, PH
cc: JS, MI, SL

PROJEKTBEGLEITERBEWERTUNG 2001 KOKORR

Allgemeines

Der Vertrag der HSK mit dem PSI für das Projekt Kontaminations- und Korrosionskontrolle im Primärkreislauf von Kernkraftwerken wurde 1998 geschlossen und lief bis Ende 2001. Im Verlauf des Jahres 2001 informierte das PSI die HSK, dass es wegen Mangel an einschlägigem Personal das Projekt nicht über die vereinbarte Vertragsdauer hinaus verlängern wolle.

Einleitung

Am 6. Dezember 2001 fand im Rahmen der regulären LWV-Präsentation eine aktuelle Darlegung des Projektstandes KOKORR statt. Die HSK erhielt durch die durchwegs gut dargestellten Sachbezüge durch Zwischenberichte und den Abschlussbericht vom Dezember 2001 einen umfassenden Überblick über den Stand und den Abschluss der Arbeiten.

Grundsätzliche Ausrichtung

Die experimentellen und theoretischen Arbeiten haben im Berichtsjahr vereinbarungsgemäss die Verhältnisse an der Grenzfläche Werkstoff - Kühlmittel beim Wechsel von der NWC (Normal Wasser Chemie) auf die Wasserstoff-Fahrweise (HWC) behandelt. Die bei in einem schweizerischen Kernkraftwerk angewendete NMCA (Noble Metal Chemical Addition-Technologie) wurden in die Labor-Untersuchungen miteinzubezogen.

Schwerpunkte bei den zu untersuchenden Materialien waren austenitische Werkstoffe (Primärkreislauf), welche teilweise mit dünnen Edelmetallschichten überzogen waren.

Teilvorhaben, die von der HSK besonders unterstützt wurden

Folgende Vorhaben wurde verstärkt bearbeitet: "Wasserstoffchemie" und Edelmetallzugabe.

Zwecks Verhinderung bzw. Verminderung von Spannungsrisskorrosion bei akzeptabler Strahlenfelderhöhung ist die Wasserstoff- und auch eine Edelmetalleinspeisung in den Reaktorkreislauf von KKM seit einem Jahr im Einsatz. Die HSK wünschte deshalb den Umbau des PSI LWR-Kontaminationsloops für Versuche mit Wasserstoff- und Edelmetallchemie und erwartete konkrete Ergebnisse.

Bewertung des Jahresberichtes 2000

Wurde das avisierte Ziel 2000 erreicht?

Das Ziel für 2001 wurde erreicht. Das Projekt ist mit 31.12.2001 abgeschlossen.

Wie schätzen Sie die Bedeutung, die Sie von dieser Forschungstätigkeit erwarten, ein?

Wasserchemie im Primärkreislauf von Kernkraftwerken ist komplex. Alle Erfahrungen der letzten Jahre mit Änderungen der Wasserchemie zeigten den Betreibern der Anlagen wie der HSK, dass dieses Gebiet bei weitem noch nicht genügend verstanden wird (KKB, Block 2, Revisionsabstellung 2001). Die Expertise des PSI war ein kleiner aber notwendiger Beitrag, um unerwartete Korrosionserscheinungen als Folge geänderter Wasserchemie etwas besser beurteilen zu können.

Zur Verringerung von Spannungsrisskorrosion wurden im KKM seit dem Jahr 2000 Umstellungen bei der Wasserchemie (H₂-Einspeisung, Edelmetall-Coating etc.) mit vorläufig guten Resultaten vorgenommen.

Die HSK kann gegenwärtig und auch zukünftig die Auswirkungen von Wasserchemieänderungen auf den Strahlenschutz nur mit Hilfe von externen Experten genügend tief behandeln. Dafür ist die Einlagerung von Kobalt und Zink in die innenliegenden Korrosionsschichten eines Kernreaktor-Primärkreislaufs unter NWC-Bedingungen versus Zinkfahrweise ebenso bedeutend, wie pH-Wert, Lithium-Konzentration und die Kenntnis des elektrochemischen Potentials an NMCA-behandelten Stahlproben unterschiedlicher Herstellung (Homogenität). Die Prozessbedingungen mit variierenden Wasserstoff zu Sauerstoff – Verhältnis spielen dabei eine wesentliche Rolle.

Ausblick

Für die HSK ist es bedauerlich, dass das KOKORR-Projekt nun zu Ende geht. Gravierender ist aber, dass im PSI das Fachwissen zur Wasserchemie in Leichtwasserreaktoren voraussichtlich verloren gehen wird und damit ein Rückgriff der Aufsichtsbehörde auf inländische Institutionen in Zukunft erfolglos bleiben wird. Die HSK muss deshalb Allianzen mit anderen Instituten, die entsprechende Kompetenzen in Wasserchemie von Kernreaktoren haben, bilden. Die Sektion RAS wird in dieser Sache tätig werden.

Der Forschungsbetreuer: J. Hammer

KOKORR

Kontaminations- und Korrosionskontrolle im Primärkreislauf von Kernkraftwerken

Autor und Koautoren	I. Mailand, M. Nicolet, B. Gerodetti
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut, Nukleare Energie und Sicherheit
Adresse	5232 Villigen PSI
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 310 2400, irene.mailand@psi.ch , www.psi.ch
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	75064
Dauer des Projekts (von – bis)	01.01.1999- 31.12.01

Zusammenfassung

Gegenstand des Projektes KOKORR sind Studien zur Rolle der Wasserchemie bei der Aktivitätsaufnahme und dem Alterungsverhalten von Kernkraftwerkskomponenten aus rostfreiem CrNi-Stahl. In diesem Jahr wurden experimentelle Untersuchungen sowohl zur SWR- Normal-Wasserchemie (NWC)- als auch zur Wasserstoff-Fahrweise (HWC) durchgeführt. Die Versuchstechnik wurde an Materialproben eingesetzt, die mit dünnen Edelmetallschichten beispielsweise aus Platin überzogen waren. Die Beschichtungen erfolgten mit unterschiedlichen Verfahren und Techniken. Das Verfahren von General Electric (GE) wird bekanntlich in einigen SWR- Anlagen eingesetzt und erhöht den Schutz gegen eine mögliche Risskorrosions- Anfälligkeit. An den CrNi-Stahloberflächen wurde unter HWC- Bedingungen die Abhängigkeit des elektrochemischen Potentials (ECP) von der Platin-Oberflächenbeschichtung bei variierenden H_2 / O_2 - Verhältnissen in simuliertem Reaktorwasser untersucht. Die ECP-Werte von Proben mit inhomogener Platinbeschichtung wurden gemessen und mit den Werten von Proben mit homogener Platinbeschichtung verglichen. Es zeigte sich, dass die Platinbeladung eine grössere Rolle spielt als eine inhomogene Platinverteilung auf der Probenoberfläche. Es wurden Proben nach dem GE- Verfahren mit Platin beschichtet und die ECP-Werte mit anderen Beschichtungstechniken verglichen. Die Platinmenge, die erforderlich ist, um die ECP-Werte unter -230 mV zu halten, konnte quantitativ ermittelt werden. Schließlich wurden Tracerversuche mit Co-60 durchgeführt um abzuklären, ob die HWC- Fahrweise einen negativen Einfluss auf die Kobaltadsorption der CrNi-Stahloberflächen ausübt.

Eine weitere Projektteilaufgabe befasste sich mit der thermodynamischen Modellierung der Oxidbildung auf rostfreiem CrNi-Stahl unter SWR- Wasserchemie-Bedingungen. Es wurde ein Ansatz gefunden, mit dem die Oxidbildungen für verschiedene Wasserqualitäten vorausberechnet und die löslichen Verbindungen quantitativ angeben werden können.

Zum Problem der radioaktiven Kontamination von Oxiden mit Co-60 wurden detaillierte SIMS- Analysen, elektrochemische Impedanzspektren und photoelektrochemische Untersuchungen ausgeführt. Dabei wurde die Diffusion von Kobaltionen in die Korrosionsschichten und deren Beeinflussung durch Zink auf die Struktur und die Halbleitereigenschaften der CrNi-Stahloxide untersucht. Die Resultate ermöglichten eine Voraussage des Co-Transportes in die Oxide und deren Beeinflussung durch Zink anhand eines Diffusionsmodells. Die photoelektrochemische Analyse zeigte einen komplizierten Übergang des Halbleiterverhaltens der Oxidschicht vom p- zum n-Typ in Anwesenheit von Zn. Die Oxidschicht behält aber den p-Typ bei, wenn dem Wasser nur Co zugefügt wird.

Das Projekt Kontaminations- und Korrosionskontrolle wird mit diesen Untersuchungen am Jahresende 2001 beendet.

1. Projektziele

Das Projekt Kontaminations- und Korrosionskontrolle hatte eine Laufzeit von 1999 bis 2001. Im abschliessenden Jahr des Projektes wurden folgende Teilaufgaben bearbeitet:

- Der thematische Schwerpunkt des Teilprojektes „Nobel Metal Chemical Addition“ (NMCA) lag in diesem Jahr in der Erweiterung der Einrichtung des HWC- Korrosionsexperimentierstandes und Anpassung der Gasdosiereinrichtung zur Erfassung der elektrochemischen Potentiale (ECP) bei Anwendung des NMCA- Verfahrens. In diesem Teilprojekt wurde die Beständigkeit und Wirksamkeit der Potentialabsenkung an den austenitischen Stahlproben untersucht. Um den Einfluss der Edelmetallverteilung auf die Rekombination von Sauerstoff und Wasserstoff zu erfassen und die Veränderung der Korrosionsschichten von CrNi-Stahl zu charakterisieren, wurden sowohl elektropolierte bzw. elektropolierte und voroxidierte austenitische Stahlproben (Werkstoffnummer nach DIN: 1.4571) mit homogen aufgesputtertem Platin verschiedener Flächengewichte als auch Proben mit inhomogen aufgesputtertem Platin untersucht. Beim kommerziellen nasschemischen Verfahren von General Electric (GE) besteht keine Kontrolle über Menge und Verteilung des Platins auf den Strukturflächen, d.h. es ist anzunehmen, dass die Abscheidung von Platin stark vom lokalen Strömungsregime im Reaktor abhängt. Daher ist es prinzipiell von Interesse, die Wirkung unterschiedlicher inhomogener Platinverteilungen auf den Stahlproben zu untersuchen. Anschliessend wurden Proben nach Vorgabe des nasschemischen Verfahrens nach GE vorbehandelt und die Ergebnisse mit denen der oben erwähnten Proben verglichen. Im weiteren wurde der Einfluss des NMCA-Verfahrens zusammen mit der HWC-Fahrweise auf das Kontaminationsverhalten der Korrosionsschicht untersucht. Zu diesem Zweck sind einfache Tracerversuche mit Co-58 oder Co-60 durchgeführt worden.
- Des weiteren sollte im Teilprojekt „Thermodynamische Modellierung“ gezeigt werden, welche Oxide sich aus thermodynamischer Sicht auf austenitischen CrNi-Stahloberflächen unter simulierten SWR-Bedingungen bilden. Diese Arbeit wurde in Zusammenarbeit mit dem Labor für Entlagersicherheit (PSI) und dem Institut für Geochemie und Mineralogie der Ukrainischen Akademie der Wissenschaften durchgeführt. Das Hauptaugenmerk lag auf den Eisen-, Chrom- und Nickel- Mischspinellen, welche die thermodynamischen Eigenschaften der Oxide auf dem Stahl bestimmen. Zur Modellierung wurde die Stoffdatenbank des Computercodes GEM- Selektor mit den thermodynamischen Daten zur Bestimmung der Spinellphasen ergänzt und anschließend die thermodynamische Modellierung der oben erwähnten Mischspinellbildung vorgenommen.
- Die Verringerung des Einbaus von Co-58 und Co-60 in die Oxidschicht der Stahloberflächen ist von entscheidender Bedeutung für die Reduktion des Strahlungspegels in Leichtwasserreaktoren (LWR). Eine Möglichkeit dazu, ist die Dosierung von Zink in das Reaktorkühlmittel. Dies wird in mehreren Kraftwerken mit Siedewasserreaktoren erfolgreich angewandt. Das Ziel des Teilprojektes „Kobaltdiffusion in Gegenwart von Zink“ war es, den Einbau der Kobaltionen in die Korrosionsschichten und deren Beeinflussung durch Zink zu untersuchen. Zu diesem Zweck wurden CrNi-Stahlproben unter SWR-Bedingungen unter Zugabe von Eisen- und Kobalt- bzw. Eisen-, Zink- und Kobaltoxalat hergestellt. Der Einbau des Kobalts wurde mittels SIMS-Messungen untersucht. Anhand der Modellierung des Tiefenprofils konnte der Diffusionskoeffizient bestimmt werden. Zusätzliche Informationen über die Struktur und Porosität sowie die Halbleitereigenschaften der Oxidschicht lieferten die elektrochemische Impedanzspektroskopie und Photoelektrochemie. Die Versuche sollten die Abhängigkeit der Kobalt- resp. Zinkaufnahme auf das Oxidschichtwachstum zeigen und damit eine Voraussage des Kobalt-Transportes in Oxiden mittels eines Modells ermöglichen.

2. Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

2.1 Teilprojekt: Noble Metal Chemical Addition (NMCA)

Edelmetallbeschichtungen von Reaktormaterialien werden angewendet, um die Empfindlichkeit dieser Materialien auf interkristalline Spannungsrisskorrosion herabzusetzen. Dies wird durch Absenkung des elektrochemischen Potentials (ECP) auf Werte kleiner als -230mV/SHE ermöglicht. Wasserstoff wird direkt ins Reaktorwasser eingebracht, so dass dieser mit dem Sauerstoff zu Wasser rekombiniert. Dabei zeigt das Edelmetall seine katalytische Wirkung auf die Rekombination der gelösten Gase und man kann mit geringeren Wasserstoffkonzentrationen als beim klassischen HWC-Verfahren die gewünschte ECP-Absenkung erreichen.

Zunächst wurde der Korrosions-Experimentierstand für die HWC Experimente mit einem zweiten Autoklaven für je acht Proben erweitert und die Gasdosiereinrichtungen dementsprechend modifiziert. In Abbildung 1 ist die technische Zeichnung der Anlage mit den Dosiereinrichtungen und Messsonden zu sehen.

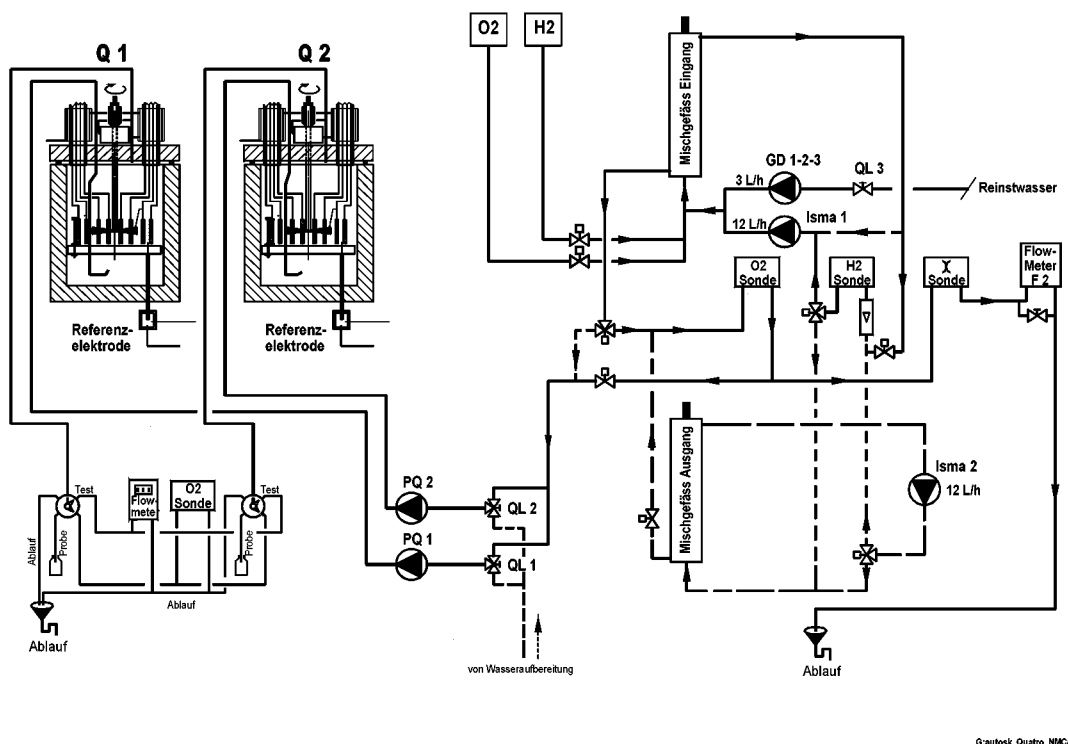


Abbildung 1: Technische Zeichnung der HWC- Versuchsanlage

Die Dosierung des Wasserstoffes erfolgte mittels eines Wasserstoff-Generators in der Einlaufstrecke des Autoklaven. Die Messung der Sauerstoffkonzentration erfolgte mit Hilfe eine O_2 -Messsonde und die der Wasserstoffkonzentration durch eine H_2 -Messsonde, am Autoklaveneingang als auch am -ausgang. Das Verhältnis von Wasserstoff zu Sauerstoff wurde variiert. Die ECP-Werte sind auf das Standard-Wasserstoff-Elektrodenpotential (SHE) bezogen. Die Messungen wurden mit einem verbesserten Datenerfassungssystem (BridgeView/ LabView-6.0/ National Instruments) durchgeführt.

2.1.1 Vorbehandlung der Stahlproben

Die entfetteten CrNi-Stahlproben wurden in einer Elektropolieranlage mit Perchlorsäure und Ethanol elektropoliert. Ein Teil der Proben wurde nach dem Elektropolieren in einem Autoklaven 30 Tage unter SWR- Bedingungen oxidiert.

Die Platinbelegung erfolgte zum einen homogen und zum anderen inhomogen mit einer Sputteranlage im PSI. Die Sputtermethode erlaubt eine bezüglich der Flächenbelegung mit Platin hochpräzise Abscheidung auf der Stahl-, resp. Oxidoberfläche. Diese Proben dienen als Vergleich zu den Proben, welche nach dem General Electric Verfahren vorbehandelt wurden.

2.1.1.1 Homogen beschichtete Proben:

Die gesputterten Platinmengen betragen: 0.003, 0.010, 0.030, 0.060, 0.300, 1.000, 3.000 [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$]
resp. Angabe in Schichtdicken: 0.014, 0.048, 0.143, 0.286, 1.429, 4.762, 14.286 [\AA]

2.1.1.2 Inhomogen beschichtete Proben:

Zur Herstellung inhomogener Platinverteilungen wurden Abdeckfolien mittels Laserablation aus dünnen Folien von rostfreiem Stahl hergestellt. Diese Abdeckfolien mit kreisrunden Löchern unterschiedlicher Durchmesser bewirken, dass auf den Proben nur an diskreten Stellen Platin bei der anschliessenden Behandlung in der Sputteranlage deponiert wurde. In Tabelle 1 sind die Flächengewicht, Bedeckungsgrad und Verteilungen aufgelistet.

Bedeckungs-grad	Serie 1 [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$]	Serie 2 [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$]	Serie 3 [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$]	Serie 4 [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$]	Serie 5 [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$]	Serie 6 [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$]
50%	0.01	0.04	0.08	0.16	0.32	0.64
50%	0.01	0.04	0.08	0.16	0.32	0.64
50%	0.01	0.04	0.08	0.16	0.32	0.64
25%	0.0025	0.01	0.02	0.04	0.08	0.16
25%	0.0025	0.01	0.02	0.04	0.08	0.16
25%	0.0025	0.01	0.02	0.04	0.08	0.16
25%	0.0025	0.01	0.02	0.04	0.08	0.16

Tabelle 1: Bedeckungsgrad und Flächengewicht des inhomogen aufgesputterten Platins

2.1.1.3 Beschichtung nach General Electric (GE) Verfahren:

Die Elektropolierte und zum Teil voroxidierte Proben wurden in einem Autoklaven mit stark verdünnter wässriger $\text{Na}_2\text{Pt}(\text{OH})_6$ - Lösung während 48 Stunden bei 140°C ausgelagert. Dabei lagert sich eine geringfügige Menge an Platin infolge chemischer Reduktion ab. Die Konzentration an Platin in der Lösung betrug 35 und $90 \mu\text{g}/\text{l}$.

2.1.2 Ergebnisse

2.1.2.1 Einfluss der Voroxidation

Im ersten Versuch wurde untersucht, ob eine Voroxidation von elektropoliertem Stahl unterschiedliches ECP-Verhalten zur Folge hat und inwiefern das NMCA- Verfahren bei frischen Strukturkomponenten ein anderes ECP impliziert als bei älteren Komponenten. Die Ergebnisse waren eindeutig und beruhigend zugleich, da kein signifikanter Unterschied der ECP-Werte zwischen voroxidierten und nur elektropolierten Proben festgestellt werden konnte. Abbildung 6 zeigt unter anderem Potentialwerte voroxidierten und nichtvoroxidierten Proben in Abhängigkeit von der Platinbelegung. In der Tendenz ergaben die oxidierten Proben nur um 30mV höhere ECP-Werte. Aus diesem Ergebnis lässt sich Schlussfolgern, dass für alte und neue Strukturkomponenten eines Kernreaktorsystems bei der Applikation von Platin bezüglich des ECP-Wertes kein Unterschied festzustellen ist.

2.1.2.2 Einfluss des Verhältnisses H_2/O_2

Eine zyklische Fahrweise der H_2 - und O_2 - Dosierung ist nur möglich, wenn die Gleichgewichtseinstellung bezüglich des ECP abgewartet wird. Diese Einstellung ist von Diffusion und Gastransport in der Phasengrenzschicht Wasser/Oxidoberfläche abhängig. Werden die typischen Zeiten von 6 bis 48 Stunden nicht eingehalten und Hystereseeffekte nicht berücksichtigt, so ergeben sich falsche ECP-Werte, da Schwankungen im Bereich von -600 bis $+200\text{mV}$ auftreten können. Für ECP-Messungen in einem Kraftwerk bedeutet dies, dass je nach Strömungsregime unterschiedlich schnell die ECP-Gleichgewichtseinstellungen erreicht werden und diese untereinander abweichen können.

Das Verhalten der ECP-Werte der NMCA-Proben hängt stark vom Verhältnis H_2/O_2 im Reaktorwasser ab. Aus Abbildung 2 ist zu erkennen, dass schon ab einem H_2/O_2 Verhältnis von 0,5 die edelmetallbehandelten Proben ein unter dem Grenzwert von $-230\text{mV}/\text{SHE}$ liegendes ECP aufwiesen. Hiermit wurde die katalysierende Wirkung des Platins beobachtet, denn für Proben ohne Platin war ein Verhältnis von 2 und grösser nötig, um diese niedrigen Potentialwerte zu erreichen. Die Wirkung von Platin tritt bei einem H_2/O_2 Verhältnis ab 0.5 und bis 2 auf. Bei einem Verhältnis grösser 2.5 sinken die Potentialwerte, unabhängig davon, ob und wie viel Platin auf den Proben vorhanden ist.

2.1.2.3 Einfluss der Platinmenge

Aus den ECP Werten in Abbildung 3 ist zu erkennen, dass zwischen einer Platinmenge grösser Null und kleiner 0.01 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ der grösste Potentialsprung zu negativen Werten auftritt. Ab einer Platinmenge grösser 0.01 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ sind nur noch geringfügige Verringerungen des ECP-Wertes zu erkennen. Demzufolge ist die Belegung der Strukturoberflächen für Kraftwerkskomponenten mit einer Platinmenge grösser 0.01 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ nicht mehr sinnvoll.

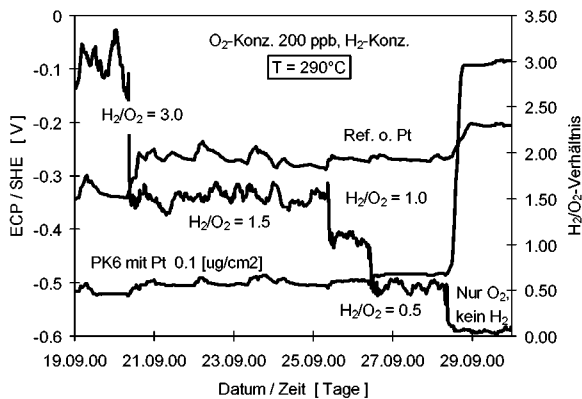


Abbildung 2: ECP- Werte in Abhängigkeit des H_2/O_2 -Verhältnisses einer Probe mit bzw. ohne Pt

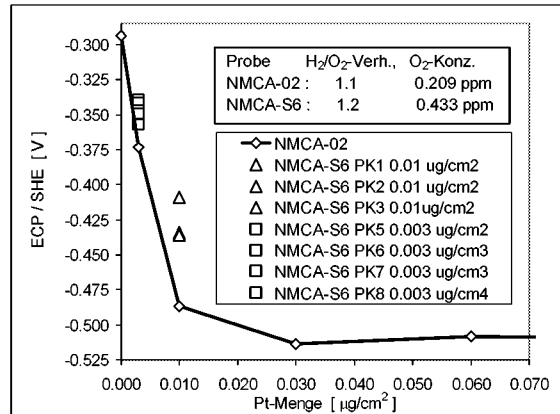


Abbildung 3: ECP-Werte in Abhängigkeit der Platinmenge von mit homogen (NMCA 02) und inhomogen (NMCA S6) gesputterten Proben

2.1.2.4 Einfluss der inhomogenen Platinbelegung

Mit dieser umfangreichen Untersuchung von insgesamt sechs Serien zu je acht Proben wurde das ECP als Funktion des Flächengewichts an Platin auf der Probe und dessen Verteilung sowie dem Bedeckungsgrad untersucht. In Abbildung 3 sind die ECP Werte der inhomogen mit Platin aufgesputterten Proben einer Serie (NMCA S6) im Vergleich zu den homogen aufgesputterten Proben in Abhängigkeit der Platinmenge dargestellt. Die ECP Werte der inhomogenen Proben unterschieden sich nur unwesentlich von den homogenen Proben. Die ECP Werte der inhomogenen Proben sind gegebenenfalls geringfügig grösser (25 bis 50mV) als die der homogen aufgesputterten Proben.

Als wesentliches Ergebnis folgt aus diesen Versuchen, dass das ECP der Proben weitgehend unabhängig ist sowohl von den untersuchten Verteilungen des Platins auf den Stahloberflächen als auch von den beiden Bedeckungsgraden (50% und 25%). Es erwies sich ebenfalls, dass die homogen mit Platin aufgesputterten Proben und die inhomogen aufgesputterten Proben denselben Grenzwert betreffend Flächengewicht an Platin aufweisen müssen, damit das ECP bei stöchiometrischer Dosierung von Wasserstoff und Sauerstoff unter den Grenzwert von -230mV verringert wird.

Die verschiedenen Verteilungen von Platin innerhalb eines gegebenen Bedeckungsgrades konnten bei keiner der gemessenen Probeserien differenziert werden. Dies impliziert, dass das Flächengewicht an Edelmetall auf der Probe der allein entscheidende Parameter zur Einstellung des ECP ist. Das bedeutet wiederum, dass durch ein nasschemisches Verfahren zum Abscheiden von Platin, welches zwangsläufig inhomogen ist, kein Einfluss auf die ECP-Einstellung zu erwarten ist, solange der Grenzwert des Flächengewichts auf der Probe eingehalten wird.

Im Unterschied zur Wirkung auf das ECP, welche bei homogener und inhomogener Abscheidung von Edelmetall im wesentlichen gleich sind, unterscheidet sich das Oxidationsverhalten der Stahlproben. Bei homogen behandelten Proben bilden sich Korrosionsschichten, die zumindest visuell von einer unbehandelten Probe nicht unterschieden werden können. Die Proben durchlaufen das charakteristische Farbspektrum von gelblich braun über dunkelbraun bis schliesslich grauschwarz. Bei inhomogener Platinabscheidung kann ein lokales Muster von anodischen und kathodischen Stellen festgestellt werden, welches deutlich ausgeprägt und sichtbar ist, so dass man nicht mehr von Flächenkorrosion im eigentlichen Sinn sprechen kann, sondern von der Ausbildung lokaler galvanischer Elemente ausgegangen werden muss. Diese Änderung im Aufbau der Korrosionsschicht hat ihrerseits sowohl Folgen für die Korrosionsrate der Probe insgesamt als auch für den Aktivitätsaufbau in der Korrosionsschicht.

2.1.2.5 ECP-Verhalten von Stahlproben, welche nach dem GE-Verfahren mit Platin belegt wurden

Eine Serie voroxidiertes und nicht voroxidiertes Proben wurde nach dem GE-Verfahren (90µg/l Pt) mit Platin belegt und unter stöchiometrischen und nicht stöchiometrischen Gasbedingungen im Reaktorwasser untersucht. In Abbildung 4 ist das ECP-Verhalten bei einem H₂/O₂ -Verhältnis von 2 von nur elektropolierten Proben und in Abbildung 5 von elektropolierten und voroxidierten Proben dargestellt.

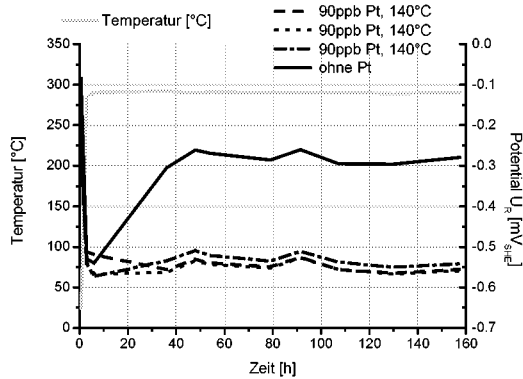


Abbildung 4: ECP Verhalten der Proben nach GE-Verfahren beschichtet

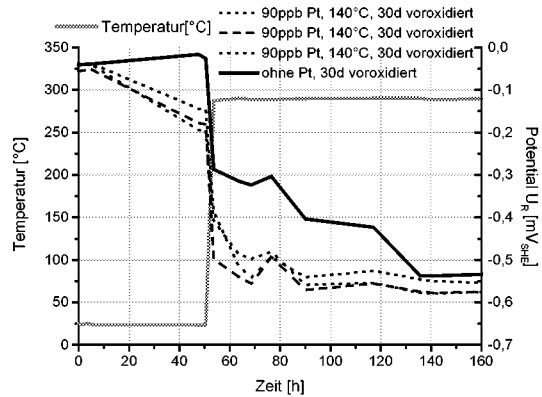


Abbildung 5: ECP Verhalten der voroxidierten Proben und nach GE-Verfahren beschichtet

Aus Abbildung 4 und Abbildung 5 ist zu erkennen, dass die ECP-Werte bei Aufbringen der Arbeitstemperatur von 288°C auf -500 bis -600mV absinken und ein ähnlicher Verlauf auftritt, wie er bei den homogen aufgesputterten Proben beobachtet wurde. Auch bei den GE-Proben gilt, dass ab einem H₂/O₂-Verhältnis kleiner 0.5 eine sprunghafte Erhöhung des ECP eintritt und auch die Voroxidation keinen signifikanten Unterschied aufweist. In Abbildung 5 ist zu sehen, dass die mitlaufende Referenzprobe, welche kein Platin enthielt, schon in kurzer Zeit das erwartete positive ECP verlor und einen identischen ECP-Wert annahm wie die GE-Proben. Daraus lässt sich schlussfolgern, dass sich das Platin der voroxidierten GE-Proben mobilisieren konnte und den ganzen Autoklaven und damit auch die Referenzprobe mit Platin "kontaminierte". Dies deutet auf eine gewisse Unbeständigkeit der nasschemischen Platinabscheidung beim GE-Verfahren bei nur voroxidierten Proben hin. Im Gegensatz dazu wurde bei entsprechenden Untersuchungen mit elektropolierten Proben ohne Voroxidation diese Mobilisierung von Platin nicht festgestellt.

Das bedeutet, dass bezüglich der Haftung des Platins auf den Proben eine klare Abhängigkeit vom gewählten Verfahren der Edelmetallabscheidung besteht. Da im Reaktor grosse Flächen wie beispielsweise die Brennelementoberflächen Senken für das Platin darstellen, ist zu befürchten, dass sich das Edelmetall an den „falschen“ Stellen absetzt. Die Haftung des Edelmetalls auf den Stahlflächen ist auf frischen Stahlproben besser als auf voroxidierten Proben, was wiederum für den vorliegenden Anwendungsfall ungünstig ist, da in der Regel oxidierte Reaktormaterialien durch das NMCA-Verfahren geschützt werden sollen.

Im Vergleich mit der Probeserie mit dem aufgesputterten Platin zeigt sich eine identische ECP-Absenkung an den voroxidierten und nicht voroxidierten GE-Proben in den Bereich von -500 bis -600mV/SHE. Der ECP- Wert der Proben, die nach dem GE- Verfahren in 90µg/l Pt ausgelagert wurden, entspricht einer Platinmenge von etwa 0.01 µg/cm².

2.1.2.6 Einfluss des NMCA-Verfahrens auf die Kontamination

Der Aktivitätsaufbau in der Oxidschicht ist stark von deren Zusammensetzung abhängig. Daher ist die Untersuchung des Zusammenhanges des NMCA- Verfahrens und dessen Konsequenzen auf den Aktivitätsaufbau von grosser Bedeutung. Elektropolierte und zum Teil voroxidierte Proben, die homogen mit Platin aufgesputtert waren, kamen zur ECP Messung in dem Autoklaven zum Einsatz. Zusätzlich wurde während 13 Tagen 30ml/h ein Co-60 Tracer mit 15Bq/ml zudosiert. Auf den Einsatz der GE- Proben wurde auf Grund des nicht genügendem Haften vom Platin verzichtet. Die Proben wurden anschliessend gammaspektrometrisch auf ihre Co-60 Aktivitätsaufnahme untersucht. In Abbildung 6 sind die ECP Werte

und Co-60 Aktivitätsaufnahme der voroxidierten und nicht voroxidierten Proben in Abhängigkeit von der Platinbelegung dargestellt. Anhand des Verlaufes der ECP-Werte ist wiederum erkennbar, dass ab einem Platingehalt 0.01 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ keine nennenswerten Unterschiede der Potentialverringerng aufgetreten sind. Vergleicht man den Potentialverlauf mit der Co-60 Aktivitätsaufnahme ist ein annähernd gleiches aber spiegelverkehrtes Verhalten ersichtlich. Die Co-60 Aufnahme steigt mit zunehmender Platinmenge, ab dem Gehalt von 0.01 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ jedoch nicht mehr nennenswert. Die Co-60 Aufnahme scheint unabhängig von der Vorbehandlung der Proben proportional der Verringerung des Potentials zuzunehmen. In Abbildung 7 wurde deshalb die Co-60 Aktivitätsaufnahme in Abhängigkeit vom Potential von allen Proben dargestellt.

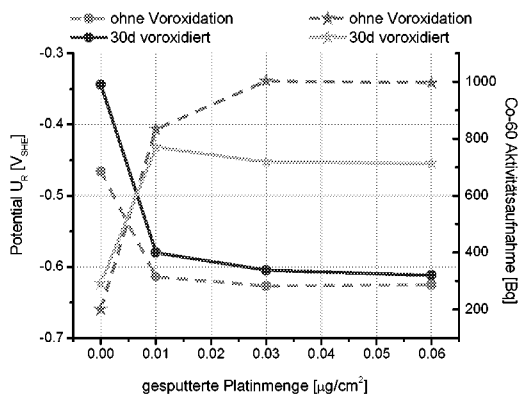


Abbildung 6: ECP Werte und Co-60 Aktivitätsaufnahme der voroxidierten und nicht voroxidierten Proben in Abhängigkeit von der Platinbelegung

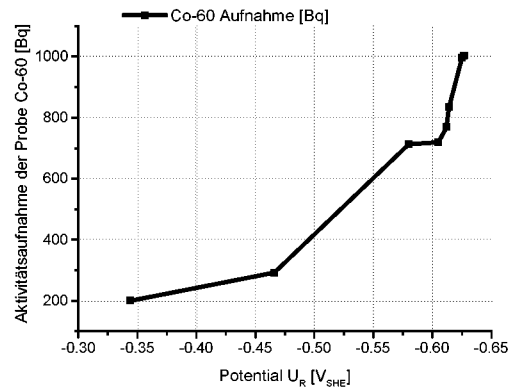


Abbildung 7: Abhängigkeit der Co Aufnahme vom Potential

Es zeigt sich, dass mit abnehmenden ECP die Co-60 Aktivitätsaufnahme annähernd linear steigt. Für die Anwendung des GE-Verfahrens im Kraftwerksbetrieb würde die Potentialsenkung, welche zur Verringerung der Empfindlichkeit der Materialkomponenten auf interkristalline Spannungsrisskorrosion beiträgt, einen negativen Einfluss auf die Adsorption der radioaktiven Kobaltionen auf den austenitischen Stahloberflächen ausüben.

2.2 Teilprojekt „Thermodynamische Modellierung der Oxidbildung unter LWR-Bedingungen“

In Zusammenarbeit mit dem Labor für Entlagersicherheit (PSI) und dem Institut für Geochemie und Mineralogie (Ukrainischen Akademie der Wissenschaften) wurde versucht, eine thermodynamische Modellierung der Oxidbildung des CrNi-Stahles AISI 316Ti (Werkstoffnummer DIN 1.4571) nachzubilden. Es wurde eine Modellierung angestrebt, die von elementaren thermodynamischen Daten, wie der Gibbsschen Energie, der Bildungsenthalpie und entropischen Anteilen wie sie in kristallographischen Systemen auftreten können, ausgeht. Obschon diese Arbeit ihre ursprüngliche Motivation in der Aufklärung des Co-Aktivitätsaufbaus auf Reaktoreinbauten findet, ist sie auf Fe-Cr-Ni-Spinelle beschränkt. Die Problematik der Co- und Zn-Spinelle, die den Aktivitätsaufbau wesentlich bestimmen, kann auf Grund fehlender thermodynamischer Daten zur Zeit nicht behandelt werden.

Die thermodynamischen Grunddaten der chemischen Spezies, aus welchen die chemischen Verbindungen unter den Reaktorbedingungen, 90 bar und 290°C, hervorgehen können, mussten zuerst zusammen getragen werden. Zusätzlich dazu wurde ein Modell für sogenannte „feste Lösungen“ von Spinellen im System Fe-Cr-Ni-O entwickelt. Die chemische Zusammensetzung des Systems, bestehend aus Stahl und Wasser, wurde zuerst nach dem Prinzip der Minimierung der Gibbsschen Energie mit dem GEM-Selektor-Code berechnet. Folgende zwei Fälle wurden untersucht:

1. Ausgehend von der spezifizierten chemischen Zusammensetzung des rostfreien Stahls wurde die Bildung der Oxidphasen in Abhängigkeit der Fugazität von Sauerstoff im System Fe-Cr-Ni-O studiert und der selektive Abbau von Stahl quantifiziert.

2. Das aquatische System Fe-Cr-Ni-O-H wurde untersucht, wobei ein festes Verhältnis der Oxidmenge 1g / (1kg H₂O) bei thermodynamischen Gleichgewichtsbedingungen angenommen wurde.

Die nachfolgenden Abbildungen enthalten die wesentlichen Resultate. Es sind zuerst die Resultate der Oxidation von Stahl in einem wasserfreien System als Funktion des Ausdehnungsvermögens (Fugazität) von Sauerstoff dargestellt und anschließend das entsprechende aquatische System. Das erste Modellsystem enthält die Komponenten Fe, Cr, Ni, und Sauerstoff (ohne Wasser) bei den Bedingungen von 290°C und 90 bar. Das aquatische System wird um die Komponente Wasserstoff im Vergleich zum ersten System erweitert.

2.2.1 Resultate und Interpretationen

In Abbildung 8 und Abbildung 9 ist die Oxidation von Stahl als Funktion des fiktiv ins System dosierten Sauerstoffs dargestellt und zeigen die Abfolge der Oxide, gebildet aus den Hauptlegierungselemente des Stahls. Die Angabe der Oxidbildung in Abhängigkeit des Sauerstoff- Ausdehnungsvermögens erlaubt Vergleiche zu anderen Systemen.

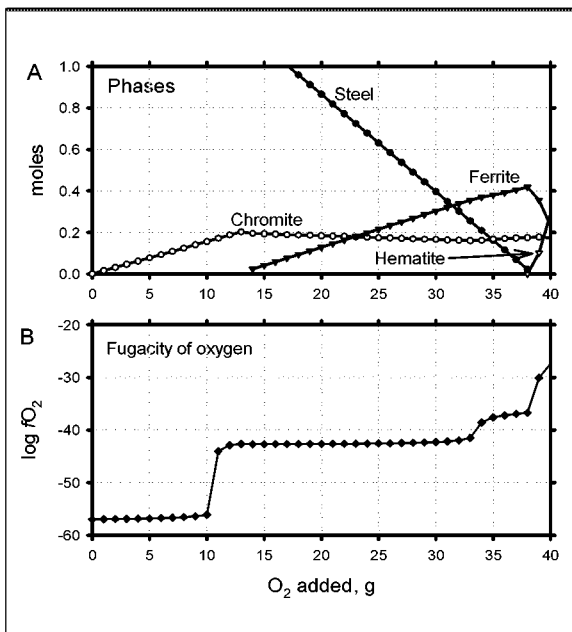


Abbildung 8: Quantifizieren der Oxidphasen in Funktion des Sauerstoffs oder dessen Fugazität. Im GEM Model werden 100g austenitischer rostfreier Stahl mit Sauerstoff titriert. Das Modellsystem enthält die Komponenten Fe, Cr, Ni, und Sauerstoff (ohne Wasser) und ist den folgenden Bedingungen unterworfen: 290°C und 90 bar.

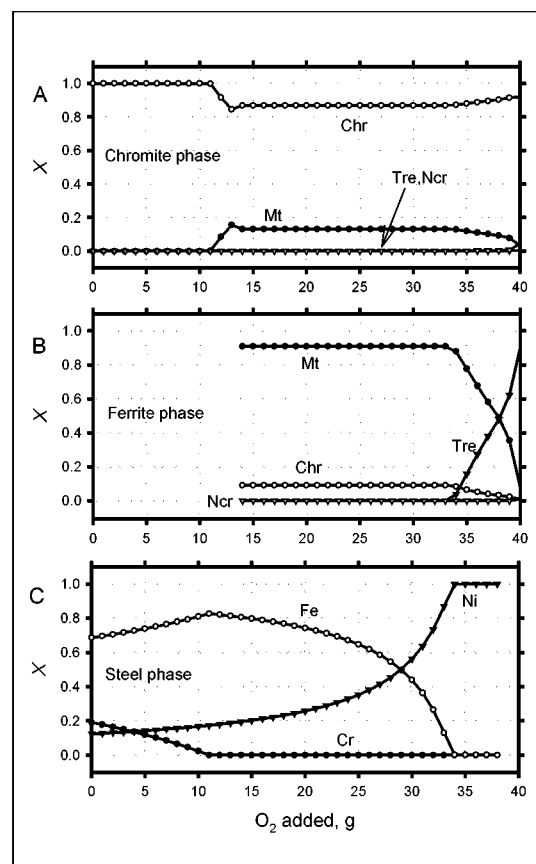
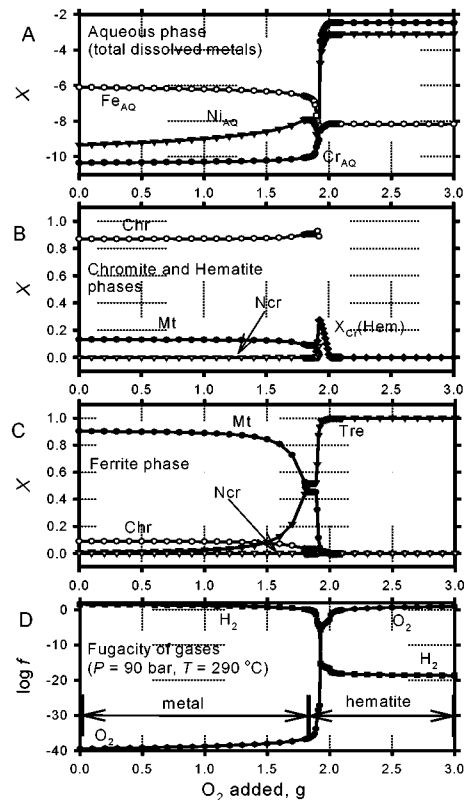


Abbildung 9: In (A, B) werden die Molenbrüche der gebildeten Spinelphasen dargestellt und in (C) Abbau des austenitischen Stahls in demselben Titrationsprofil wie in der vorhergehenden Abbildung. X steht für Molenbruch und Mt- Magnetit, FeFe₂O₄; Chr- Chromit FeCr₂O₄; Tre- Trevorite NiFe₂O₄; Ncr- Nichromit NiCr₂O₄.

Die Abbildung 10 zeigt die Oxidbildung im entsprechenden aquatischen System, Fe-Cr-Ni-O-H-e. Dabei ist besonders auffällig, dass im Bereich des Wechsels von reduzierenden Bedingungen zu oxidierenden Bedingungen dramatische Phasenwechsel eintreten. Unter schwach oxidierenden Bedingungen steigt die Löslichkeit der Legierungselemente im Wasser um Größenordnungen an. Das bedeutet für den Kraftwerksbetreiber, dass bezüglich der Mobilisierung von gelösten Metallen ein Wechsel von reduzierenden zu oxidierenden Bedingungen im Reaktorwasser am meisten beiträgt. Beispielsweise steigt die gelöste Konzentration von Ni- und Cr-Ionen besonders deutlich an. Gleichzeitig werden unter diesen wechselnden Redoxbedingungen die Ferritphasen von Magnetit nach Trevorit umgebaut und die Chromite beginnen sich aufzulösen. Bei zunehmender Sauerstoff-Fugazität dominiert schliesslich Hämatit.

Abbildung 10 (rechts): Sauerstoff-Titrationsprofil im aquatischen System Fe-Cr-Ni-O-H-e bei 290°C und 90 bar. (A) zeigt die totale gelöste Konzentration der Legierungselemente im Wasser; (B und C) zeigen die Zusammensetzung der Chromspinelle resp. Ferritspinelle; (D) stellt die Fugazität von Wasserstoff und Sauerstoff in Abhängigkeit des titrierten Sauerstoffs dar.



Als Fazit aus dieser Modellierarbeit folgt:

Die Oxidation der Hauptlegierungselemente von rostfreiem Stahl unter Reaktorbedingungen können mit unserem Modellansatz in guter Übereinstimmung mit den Erfahrungen aus dem Kraftwerksbetrieb berechnet werden. Wir können damit die Oxidation von rostfreiem Stahl unter aquatischen Bedingungen von Raumtemperatur bis zu LWR-Reaktorbedingungen vorausberechnen und die löslichen Verbindungen quantitativ angeben.

Hingegen ist die zusätzliche Berücksichtigung von Kobalt und Zink im betrachteten System Fe-Cr-Ni-O-H-e mit erheblichen Schwierigkeiten verbunden, die einen neuen Modellansatz nötig machen würde, da die thermodynamischen Aktivitäten von Co- resp. Zn- Spinellen zur Zeit nicht widerspruchsfrei berechnet werden können.

2.3 Teilprojekt: Kobalteinbau in die Oxidschichten mit und ohne Einfluss von Zink

Die Verringerung des Einbaus von Co-60 in die Oxidschicht der Stahloberflächen ist von entscheidender Bedeutung für die Reduktion des Strahlungspegels in Leichtwasserreaktoren. Der Wirkungsmechanismus der verminderten Einlagerung von Kobalt in die Oxidschicht bei Anwesenheit von Zink wurde dabei nach folgenden Gesichtspunkten untersucht:

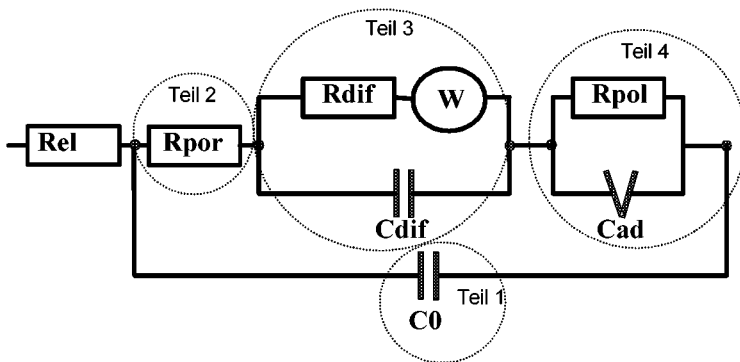
1. Einwanderung in die Oxidschicht durch Mikroporen
2. Einbau in das Kristallgitter (Leerstellen- bzw. Zwischengitterbesetzung)
3. Eindiffusion durch Volumen- bzw. Korngrenzdiffusion

Um den Einfluss von Zink auf die Qualität der Struktur und der Oberflächenbeschaffenheit der Oxidschicht, hinsichtlich ihrer Schutzwirkung (Dicke, Defekte, Korrosion an der Metall-/ Oxid Grenzschicht) gegenüber der Kobalteinlagerung beurteilen zu können, wurde die elektrochemische Impedanzspektroskopie (EIS) angewendet. Die Photoelektrochemie liefert Aussagen inwiefern Kristallgitterbesetzungen durch das Zink den Kobalteintrag beeinflussen, was sich durch

Veränderungen der Halbleitereigenschaften der Oxidschicht äußert. Mit Hilfe der Sekundärionen-Massenspektrometrie (SIMS) werden Informationen über die chemische Zusammensetzung der Oxidschicht und den Kobalteintrag in Gegenwart von Zink gewonnen. Die Anlage wurde dazu speziell zur Messung von Kobalttiefenprofilen eingerichtet. Auch die Probenoxidation erfolgte in einem angepassten zweistufigen Prozess. Zuerst wurde eine definierte Oxidschicht ohne Kobalt hergestellt und darauf folgte eine Oxidation mit Kobalt, um somit den Kobalteintrag während dem gesamten Oxidschichtwachstum bestimmen zu können.

Um Erkenntnisse über den Einfluss von Zink auf die Struktur und die Oberflächenbeschaffenheit der Oxidschicht hinsichtlich ihrer Schutzwirkung zu gewinnen, wurden elektrochemische Impedanzmessungen durchgeführt. Zur Auswertung der Impedanzspektren benötigte es ein Ersatzschaltbild, welches aus verschiedenartigen Verknüpfungen von Impedanzelementen (Widerstand, Kapazität u.s.w.) zusammengesetzt ist. In Abbildung 11 ist das zur Simulation der Impedanzspektren verwendete Ersatzschaltbild dargestellt. Es liegt einem Modell zugrunde, welches sich aus 4 Teilen (in Abbildung 11 eingekreist) zusammensetzt:

- Teil 1: Schichtkapazität: Die Oxidschicht ist eine dielektrische Schicht, welche mit einer Kapazität C_0 beschrieben wird.
- Teil 2: Porenanteil: Die Oxidschicht ist porös, wobei der Porenwiderstand R_{por} den gesamten Porenanteil, unabhängig davon wie weit die Poren in die Oxidschicht hinein reichen, beschreibt.
- Teil 3: Diffusionsteil: Innerhalb der Poren bzw. im Bulkmaterial finden Diffusionsprozesse statt, welche in einfachster Näherung durch eine Warburg Impedanz, wobei der Ionentransport einer linearen Diffusion folgt, beschrieben werden. Dem Warburgparameter W wurde ein Widerstand R_{dif} in Serie für vorgelagerte Prozesse und eine Diffusionskapazität C_{dif} für Adsorptionsprozesse parallel geschaltet.
- Teil 4: Adsorptionsteil: Am Porengrund und an der Metall-/ Oxidgrenzschicht tritt Adsorption auf. Diese wird durch eine Kapazität C_{ad} beschrieben. Zur Beschreibung von Inhomogenitäten, bzw. der Raumladungszone mit ortsabhängiger Leitfähigkeit kann statt einer Kapazität eine Verlustkapazität, die einer frequenzunabhängigen Phase zugrunde liegt, eingesetzt werden. Dieses Element ist durch einen Verlustphasenwinkel ϕ , der für eine Abweichung des Phasenwinkels von -90° verantwortlich ist, gekennzeichnet. Parallel dazu findet an der Metall-/ Oxidgrenzschicht und am Porengrund, wenn diese an das Metall hinunterreichen ein Ionendurchtritt statt. Dies wird mit einem Durchtritts- bzw. Polarisationswiderstand, R_{pol} beschrieben.



Rel	– Elektrolytwiderstand
C_0	– Schichtkapazität
R_{por}	– Porenwiderstand
W	– Warburgimpedanz
R_{dif}	– Diffusionswiderstand
C_{dif}	– Diffusionskapazität
C_{ad}	– Adsorptionskapazität
R_{pol}	– Polarisationswiderstand

Abbildung 11: Ersatzschaltbild zur Simulation aller Impedanzspektren

Aus der Kapazität der Oxidschicht C_0 wird die Schichtdicke d der Oxidschicht nach Gl. 1 bei einem bekannten ϵ_r berechnet,

$$d = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r A}{C_0} \quad \text{Gl. 1}$$

wobei, ϵ_0 die absolute Dielektrizitätskonstante, ϵ_r die relative Dielektrizitätskonstante und A die Fläche ist. Da die relative Dielektrizitätskonstante nicht genau angegeben werden kann, wurde ein Wert für $\epsilon_r = 5$ eingesetzt. Dieser Wert ergibt eine gute Korrelation mit den Ergebnissen aus den SIMS Messungen. Zur Abschätzung der Oxidschichtdicke aus den SIMS Messungen wurde die Zählrate des Sauerstoffs des Tiefenprofils herangezogen und der entstandene Krater mit einem Profilmeter ausgemessen. Die Ergebnisse der Oxidschichtdicken aus den SIMS Tiefenprofilen und den Schichtkapazitäten C_0 aus der Impedanzspektroskopie (EIS) sind in Abbildung 12 aufgetragen.

Der Porenwiderstand R_{por} gibt einen Hinweis über die gebildeten Poren in der Oxidschicht, die ein Maß für die Schutzwirkung der Oxidschicht sind. Eine gut schützende Oberfläche besitzt daher einen hohen Porenwiderstand. Auskunft über die Porosität der gesamten Schicht soll der auf die Schichtdicke normalisierte Porenwiderstand geben (siehe Abbildung 13).

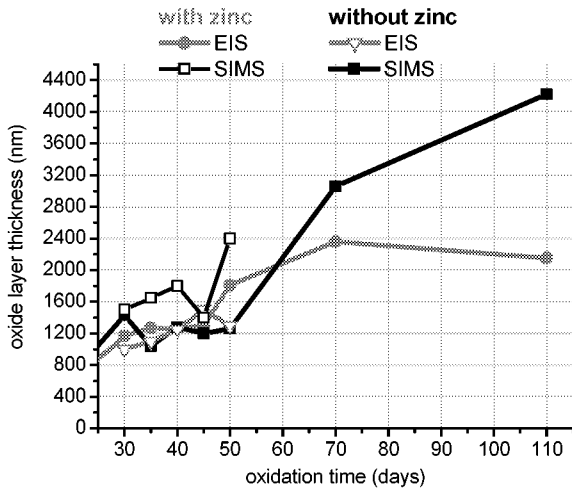


Abbildung 12: Abgeschätzte Oxidschichtdicke aus SIMS und EIS mit und ohne Zinkzugabe

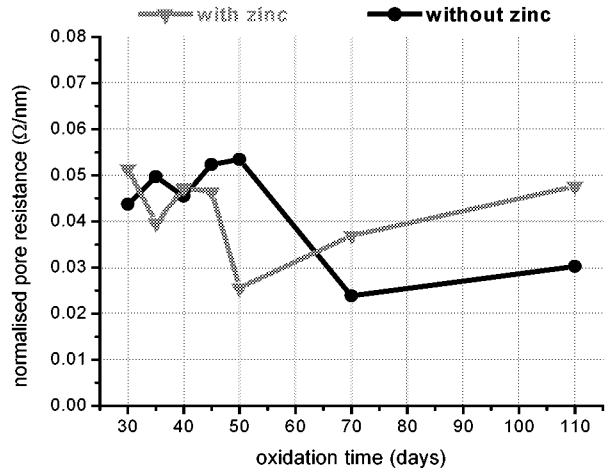


Abbildung 13: Porenwiderstand normalisiert, mit und ohne Zinkzugabe

Die Oxidschichtdicke nimmt mit der Oxidationszeit wie erwartet zu. Die Ergebnisse aus der Impedanzspektroskopie stimmen gut mit denen aus den SIMS-Messungen überein. Unter Zugabe von Zink sind nach längeren Oxidationszeiten dünnere Schichten zu erwarten. Der Porenanteil verändert sich unwesentlich mit zunehmender Oxidationszeit, bzw. nimmt leicht zu. Der Zusatz von Zink wirkt sich nur geringfügig auf den Porenanteil der Oxidschicht aus. Die Vermutung war, dass sich die Poren unter Zugabe von Zink verschliessen würden.

Der Polarisations- bzw. Durchtrittswiderstand R_{pol} spiegelt den Durchtritt der Metallionen durch die Grenzfläche Metall/Oxidschicht wider und ist indirekt proportional der Korrosionsstromdichte, die Aussagen über die Korrosionsgeschwindigkeit des Stahles ermöglicht. Eine weitere Größe für die Korrosionsreaktion bzw. zeitabhängige Diffusion von Ionen durch die Schicht ist die Warburgimpedanz. In Abbildung 14 ist die auf die Schichtdicke bezogene Warburgimpedanz W ($k\Omega/s^{0.5}\cdot nm$) und in Abbildung 15 der auf die Schichtdicke bezogene Polarisationswiderstand R_{pol} ($k\Omega/nm$) in Abhängigkeit der Oxidationszeit mit und ohne Zinkdosierung aufgetragen.

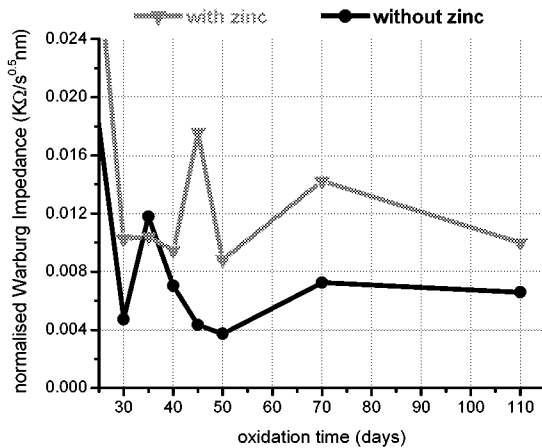


Abbildung 14: Warburgimpedanz normalisiert, mit und ohne Zinkzugabe

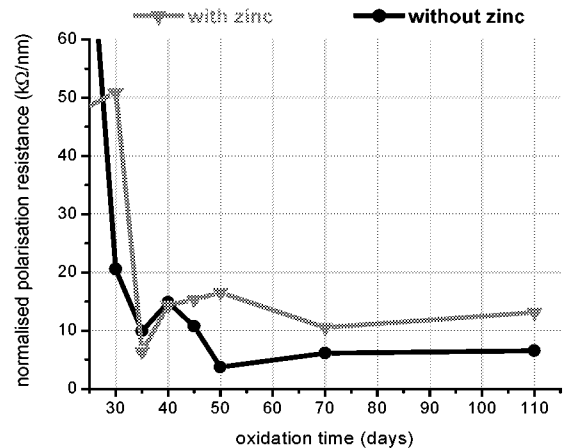


Abbildung 15: Polarisationswiderstand normalisiert, mit und ohne Zinkzugabe

Die Diffusion der Ionen durch die Schicht scheint unter Zugabe von Zinkionen erschwert, wobei der Porenanteil gleich bleibt. Der Durchtritt der Ionen durch die Grenzfläche Metall-/ Oxidschicht, der als Maß für die Korrosion betrachtet werden kann, wird mit zunehmender Oxidationszeit erleichtert, bis sich ein Gleichgewichtszustand einstellt. Unter Zinkzugabe ist die Korrosion etwas langsamer, was eine geringere Schichtdicke erklärt.

Aus den Ergebnissen der Impedanzmessungen lässt sich schlussfolgern, dass Zink die Poren nicht verschließt und sich auch keine korrosionsbeständigere Deckschicht bildet. Möglicherweise werden die Poren nur etwas enger durch das Zink, was die Korrosion nicht hindert, sondern nur zum Teil erschwert. Der Porenwiderstand ist bei einer geringfügigen Porenverengung (<30%) durch Zugabe von Zink mit Hilfe der elektrochemischen Impedanzspektroskopie nicht signifikant unterscheidbar. Bei einem Porenverschluss durch Zinkzugabe würde der Widerstand signifikant unterschiedliche Werte zeigen, bzw. es müsste sogar ein anderes Modell zur Simulation der Messungen aufgestellt werden. Da sich jedoch der Polarisationswiderstand und die Diffusionsimpedanz unter Zinkzugabe nur geringfügig erhöhte, könnte sich eine transport- und durchtrittshindernde Schicht durch den Einfluss von Zink bilden, was mit einer Porenverengung erklärt werden kann.

Die Halbleitereigenschaften sollen Aussagen liefern, inwiefern Zink in das Gitter eingebaut wird und damit den Kobalteintrag beeinflusst. Die Halbleitereigenschaften wurden mit Hilfe der Photoelektrochemie bestimmt.

Die photoelektrochemische Anlage besitzt als Lichtquelle eine 150W Xe-Kurzbogenlampe deren Lichtstrahl über einen Monochromator und einen Chopper mittels Linsen auf die Probe fokussiert wird. Der Chopper dient zur Referenzmessung am Potentiostaten. Das Licht wird in rechteckige Pulse einer bestimmten Frequenz „zerhackt“, welche eine Erzeugung von Stromimpulsen derselben Frequenz im Potentiostaten bewirken. Wird die Probe unter dem Einfluss des Lichtstrahls in einer bestimmten Richtung polarisiert, kann der Halbleitertyp der Probe ermittelt werden. Die potentialabhängigen Photoströme wurden bei einer Wellenlänge von 350nm aufgenommen, da sie an dieser Stelle ein Maximum erreichen. In Abbildung 16 ist der Photostrom in Abhängigkeit vom Potential bei einer Wellenlänge von 350nm der Proben, die mit bzw. ohne Zink oxidiert wurden, dargestellt.

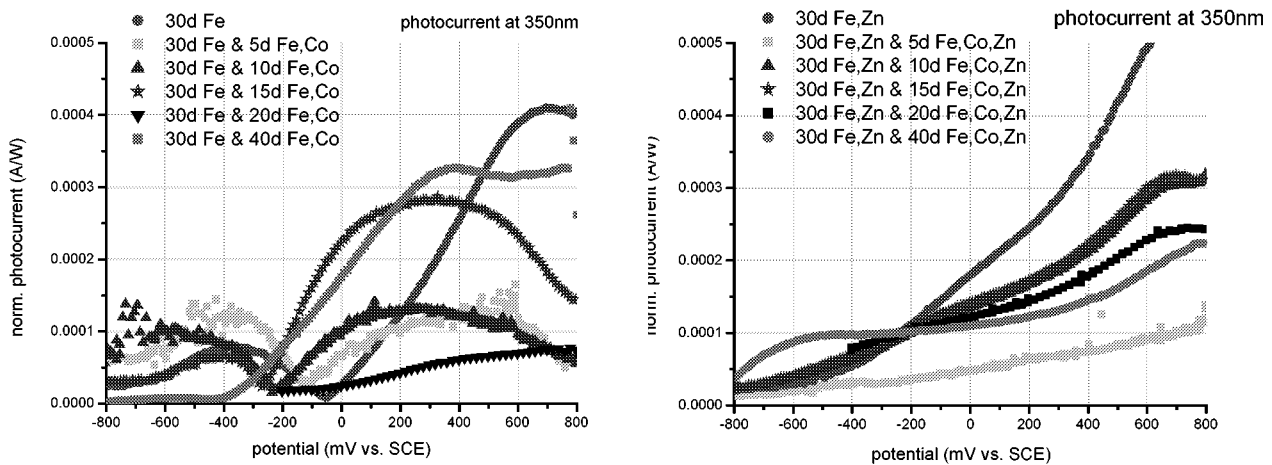


Abbildung 16: Potentialabhängige Photoströme bei einer konstanten Wellenlänge (350nm) der Proben die ohne (links) bzw. mit Zinkzugabe(rechts) oxidiert worden sind

Die Photoströme der Proben, die ohne Zink oxidiert wurden, weisen ein p- und n-Typ Halbleiterverhalten auf, da in der Nähe des Flachbandpotentials (Photostrom gegen 0) ein Anstieg in negativer und positiver Richtung zu erkennen ist. Die Photoströme der mit Zink oxidierten Proben dagegen, weisen einen kontinuierlich steigenden Verlauf zu positiveren Potentialen. Sie sind überwiegend n-Typ Halbleiter. Die Zugabe von Kobalt zeigt keinen Einfluss und damit wirkt sie sich anders als die Zugabe von Zink auf das Halbleiterverhalten aus. An den Halbleitereigenschaften lässt sich feststellen, dass Zink in das Kristallgitter eingebaut und damit Bestandteil der Oxidzusammensetzung wird. Es besetzt jedoch nicht die gleichen Gitterplätze im Oxid wie das Kobalt und kann damit auch nicht das Kobalt aus den Gitterplätzen verdrängen.

In Abbildung 17 sind die SIMS- Kobalttiefenprofile und deren Modellierung von Proben, die 30 Tage mit Fe und 5, 10, 15 Tage mit Fe + Co (links) bzw. 30 Tage mit Fe + Zn und 5, 10, 20 Tage mit Fe + Zn + Co (rechts) oxidiert worden sind, dargestellt. Die Kobalttiefenprofile, wurden unter folgenden Annahmen modelliert:

1. Oxidschicht besteht aus zwei unterschiedlichen Phasen.
2. In jede Phase diffundiert das Kobalt mit je einem konzentrationsunabhängigen Diffusionskoeffizienten D_1 und D_2 .
3. Die Phasengrenze ist nicht fixiert, d.h. die gesamte Oxidschicht wächst zeitabhängig.
4. Auf der Oberfläche der wasserseitigen Phase ist die Kobaltkonzentration von der chemischen Reaktionsgeschwindigkeit abhängig.

Die Lösung des allgemeinen Fick'schen Gesetzes der Kobaltdiffusion in einer vorhandenen Oxidschicht hat folgende Form (s. Gl.2):

$$c = A \cdot \operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{D_1 t}}\right) + B \cdot \operatorname{erfc}\left(\frac{x + 2hD_2 t}{2\sqrt{D_2 t}}\right) \quad (\text{Gl. 2})$$

Man erkennt in Abbildung 17, dass die Messpunkte mit dem Modell gut übereinstimmen. Die Resultate der Diffusionskoeffizienten D_1 und D_2 und Reaktionsgeschwindigkeiten k der Proben, die 30 Tage mit Fe und 5, 10, 15 und 20 Tage mit Fe + Co bzw. 30 Tage mit Fe + Zn und 5, 10, 15 und 20 Tage mit Fe + Zn + Co oxidiert wurden, sind in Abbildung 18 dargestellt.

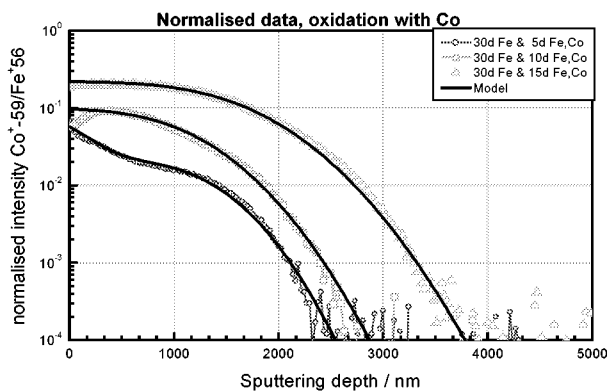


Abbildung 17: Modellierung des normierten Tiefenprofils der Kobaltdiffusion in die Oxidschicht der Proben, die ohne Zink oxidiert worden sind

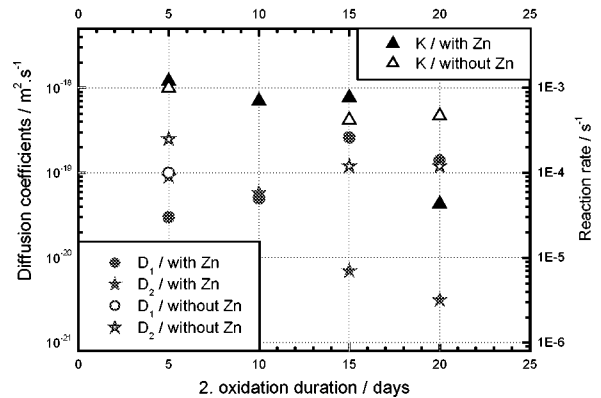


Abbildung 18: Kobaltdiffusionskoeffizienten beider Phasen D_1 und D_2 und Reaktionsgeschwindigkeiten k der Proben, die ohne bzw. mit Zinkzugabe oxidiert worden sind

Die Diffusionskoeffizienten verringern sich in der zweiten Phase wenn Zink vorhanden ist. Die Grenze für eine maximale Volumendiffusion für die Eisenionendiffusion im Magnetit beträgt [8] $10^{-20} \text{ m}^2/\text{s}$. Die ermittelten Diffusionskoeffizienten von Kobalt sind grösstenteils oberhalb dieser Grenze.

Die Untersuchungen mit der beschriebenen Messtechnik haben gezeigt, dass Zink in das Kristallgitter der Oxidschicht eingebaut wird und Fehlstellen besetzt. Kobalt dagegen verhält sich anders und kann demzufolge wahrscheinlich auch nicht vom Zink im Kristallgitter verdrängt werden, was oft in der Literatur beschrieben ist. Die Verringerung des Einbaus von Kobalt in die Oxidschicht der Stahloberflächen ist eher durch eine Porenverengung unter Zinkzugabe zu erklären. Die ermittelten Diffusionskoeffizienten von Kobalt liegen oberhalb der Grenze der Volumendiffusion, welche durch das Vorhandensein von Poren beeinflusst sind. Im Inneren der Oxidschicht verringert sich der Diffusionskoeffizient unter Zinkzugabe.

3. Nationale Zusammenarbeit

Projektbegleitung:

An Projektsitzungen mit dem Projektbegleiter, Dr. M. Furrer/HSK, welche regelmässig stattfanden, wurde die Jahresplanung und der Fortschritt der Arbeiten kontrolliert, diskutiert und teilweise modifiziert. Folgende Unterlagen bestehen dazu: Jahresarbeitsprogramm, und Quartalsberichte [Ref. 1- 3].

On Call Auftrag an das PSI/LWV:

Die HSK beauftragte das PSI/LWV in Form eines On-Call Auftrages, eine fachliche Einschätzung der KKM-Selbstbeurteilung zur Chemie und Radiochemie auszuarbeiten. In der Zielsetzung soll das PSI einen fachtechnischen Bericht mit beurteilendem Charakter über den PSÜ-Bericht einreichen. Aus methodischen Gründen wurde der PSÜ-Bericht zuerst als Ganzes charakterisiert und bewertet. Anschliessend wurden gemäss dem Inhaltsverzeichnis des PSÜ-Berichts die einzelnen Kapitel zusammengefasst und kommentiert (siehe Ref. 9, TM-43-01-17).

4. Internationale Zusammenarbeit

Es bestand eine Zusammenarbeit mit Dr. Kurepin von der Ukrainischen Akademie der Wissenschaften betreffend thermodynamischer Daten zur Berechnung der Oxid-Stabilität unter Reaktorbedingungen. Herr Dr. Kurepin hat bei uns in den Jahren 2000/2001 je einen Monat als Gastwissenschaftler mit dem Ziel verbracht, aus den weltweit verfügbaren Datensammlungen die für unsere Anwendung nötigen Daten zusammenzutragen. Anschliessend wurde in Zusammenarbeit mit Herrn D. Kulik (PSI) die Fe-Cr-Ni Spinellbildung mit dem Modell GEM-Selektor/ GEMS-PSI berechnet [8].

5. Bewertung 2001 und Ausblick 2002

Das Projekt Kontaminations- und Korrosionskontrolle (KOKORR) wurde Ende 2001 erfolgreich abgeschlossen.

Der thematische Schwerpunkt von KOKORR lag in diesem Jahr beim Vergleich der elektrochemischen Potentiale (ECP) von CrNi-Stahlproben unter Siedewasserreaktor-Bedingungen, unter Anwendung der Wasserstofffahrweise HWC und in Zusammenhang mit der Edelmetalldosierung (Noble Metal Chemical Addition, NMCA). Diese Ergebnisse sind von grosser Bedeutung für die Kernkraftwerksbetreiber in Bezug auf die Reduktion des elektrochemischen Potentials zur Verringerung der möglichen Anfälligkeit zur Spannungsrisskorrosion.

Mit Hilfe der thermochemischen Modellierung wurde ein Ansatz gefunden, bei dem die Oxidation von rostfreiem Stahl unter aquatischen Bedingungen von Raumtemperatur bis hin zu LWR- Reaktorbedingungen vorausberechnet und die löslichen Verbindungen quantitativ angeben werden können. Der Oxidationsprozess der Hauptlegierungselemente von rostfreiem Stahl unter Reaktorbedingungen konnte mit diesem Modellansatz in guter Übereinstimmung mit den Erfahrungen aus dem Kraftwerksbetrieb berechnet werden. Obschon diese Arbeit ihre ursprüngliche Motivation in der Aufklärung des Co-Aktivitätsaufbaus auf Reaktoreinbauten findet, beschränkt sie sich auf die Bildung der Eisen-, Chrom- und Nickel Spinelle, wie sie aus den Hauptlegierungselementen von rostfreiem Stahl zu erwarten sind.

Die Einlagerung von Kobalt in Korrosionsschichten unter NWC- Bedingungen sowie der Einfluss der Dosierung von Zink auf den Einbau von Kobalt wurde mittels verschiedener elektrochemischer und oberflächenanalytischer Methoden untersucht. Die Ergebnisse zeigen, dass der Kobalteinbau unter Zinkzugabe verringert wird, was die Erfahrungen der Zinkdosierung in LWRs bestätigt. Es wird ein Modell des Kobalttransports in die Korrosionsschichten und deren Beeinflussung durch das Zink vorgeschlagen. Diese Ergebnisse sind von grosser Bedeutung für die Kraftwerks-Chemie bei Anwendung der Zinkdosierung.

6. Referenzen

1. G. Repphun, I. Mailand : Quartalsbericht 2000/1, AN-43-00-09
2. I. Mailand, M. Nicolet, B. Gerodetti: Quartalsbericht 2001/1, AN-43-01-14
3. A. Hiltbold, I. Mailand, M. Nicolet, B. Gerodetti: Quartalsbericht 2001/2, AN-43-01-26

4. H. Deseneux, C. Dequeldre, I. Mailand,: „Study of oxidised layers of Zircaloy by photoelectrochemistry”, Annual Report 2000, PSI, Switzerland
5. A. Hiltpold „Modelling radioactive contamination in corrosion scales under boiling water reactor conditions“, Diplomarbeit, Universität Kaiserslautern/Deutschland
6. A. Almazouzi, I. Mailand., „Effect of Zn addition on Co-pick up and growth of oxide layer during the corrosion of Stainless Steel under simulated BWR conditions”, TM-43-00-26 (PSI)
7. G. Repphun, A. Hiltpold, Corrosion potential and contamination, Journal of Power Plant Chemistry, 2 (2000)
8. V.A. Kurepin, D.A. Kulik, A. Hiltpold, M. Nicolet: „Thermodynamic Modelling of Fe-Cr-Ni-Spinel Formation at the Light-Water reactor Conditions”, PSI-Report (to be published).
9. Hiltpold A.: „Chemie und Radiochemie des Kernkraftwerks Mühleberg im Zeitraum 1990 bis 2000“, TM-43-01-17
10. Wambach J., Wokaun A., and Hiltpold A.: Poster of Oxidation of Stainless Steel under Dry and Aqueous Conditions: Oxidation Behaviour and Composition, 9th European Conference on Applications of Surface and Interface Analysis, ECASIA'01; 30. September – 5. October, 2001, Avignon, France
11. Mailand, I., Almazouzi, A.: „Study of Cobalt build-up in oxide layers on Stainless Steel under BWR-conditions with and without the zinc influence”, Proceedings, VGB- Conference „Chemie im Kraftwerk 2001“ VGB-TB 437, Essen, 2001



Datum: 19.2.2002
Von: N. Jaussi
An: M. Zünd
cc: W. Pauli

PROJEKTBEGLEITERBEWERTUNG 2001 RIKKOR

Einleitung

Im Rahmen des vorliegenden Forschungsprojektes soll das Rissverhalten von ferritischen Reaktor-Druck-Behälter (RDB) Stählen, Schweissnähten und Wärme-Einfluss-Zonen (WEZ) unter transienten Betriebsbedingungen experimentell untersucht werden. Das Projekt wurde für drei Jahre geplant. In diesem Bericht werden die Ergebnisse des zweiten Projektjahres vorgestellt. Die für dieses Jahr gesetzten Ziele wurden erreicht.

Dehnungsinduzierte Risskorrosion (DRK)

Als wesentliche Einflussparameter wurden das Korrosionspotential, der Sulfatgehalt, die Temperatur der Umgebung und das Verhalten der Dynamischen Reckalterung (DSA) sowie die Belastungsgeschwindigkeit erkannt. Unter stark oxidierenden Bedingungen wurde in allen Werkstoffen ein Maximum der DRK Anfälligkeit bei mittleren Temperaturen (ca. 200-250°C) und sehr niedrigen Dehnraten beobachtet.

Schwingrisskorrosion (SwRK)

Für alle Werkstoffe nahm der Rissfortschritt pro Schwingzyklus mit abnehmender Belastungsfrequenz zu, während die SwRK-Risswachstumsrate mit absteigender Frequenz abnahm. Stabiles SwRK-Risswachstum wurde bis zu sehr niedrigen Frequenzen hinab beobachtet. Die ASME Code, Section XI Risswachstumsraten werden dabei für tiefe Belastungsfrequenzen und Temperaturen >150°C deutlich überschritten. Das Risswachstum setzt sich aus dem mechanische und dem korrosionsgestützten Risswachstum zusammen. Bei niederfrequenter Belastung und stark oxidierenden Bedingungen ist der Beitrag des korrosionsgestützten Risswachstums im Bereich 10 bis 1000 mal grösser als der Beitrag durch mechanische Ermüdung.)

Dynamische Reckalterung (DSA), mittels Zugversuch

Das DSA-Verhalten der RDB Stähle und des Schweissgutes wurde in Zugversuchen an Luft im Temperaturbereich von 25 bis 350°C untersucht. Die Spannungs-Dehnungskurven zeigten über den untersuchten Temperatur- und Dehnratenbereich ein komplexes Verhalten. In allen Werkstoffen wurden klare Anzeichen für DSA beobachtet. Die ausgeprägtesten Effekte traten bei der Zugfestigkeit und etwas weniger stark bei der Brucheinschnürung auf. Bei unterschiedlichen Temperaturen zeigen sich verschiedene Verläufe der Spannungs-Dehnungskurven. Bei tieferen Temperaturen ($T \leq 100-150^\circ\text{C}$) wurde in allen Werkstoffen direkt oberhalb der Streckgrenze ein unterschiedlich stark ausgeprägtes Fließplateau mit Lüdersdehnungen bis 2% beobachtet.

Das Projekt im Rahmen der internationalen Zusammenarbeit

Als Vollmitglied der Fachgruppe ICG-EAC (International Cooperative Group on Environmentally Assisted Cracking of Light Water Reactor Materials) steht die PSI Gruppe in engem Kontakt mit der internationalen Fachwelt. Ein reger Fachaustausch wird zudem mit den Institutionen EPRI (BWR VIP), VGB sowie im Rahmen weiterer internationaler Zusammenarbeit mit OECD/CSNI PWG 3 gepflegt. Das PSI Programm "RIKKOR" ist eingebettet und abgestimmt mit den Forschungsprogrammen dieser Organisationen.

Programm für das Jahr 2002

- Abschluss der Parametersensitivitätsstudie zum Einfluss von Temperatur und Belastungsgeschwindigkeit auf das EAC-Risswachstumsverhalten mit Probender Wärmeeinflusszone (WEZ) der Biblis C Umfangsschweißnaht.
- Charakterisierung der SpRK-Anfälligkeit der WEZ bei verschiedenen Temperaturen.
- Parameterstudie zum Einfluss der mechanischen Belastungen im Temperaturbereich maximaler SpRK- und DRK/SwRK-Risswachstumsanfälligkeit mit den anfälligsten RDB-Werkstoffen.
- Identifikation der für die Risskorrosion relevanten, transienten SWR- Betriebszustände und kritischen Komponentenbereiche und Ausarbeitung von Schlussfolgerungen/Empfehlungen bezüglich Regelwerken.
- Abschlussbericht bis Ende Januar 2003
- Konferenzbeiträge und Publikationen in wissenschaftlichen Zeitschriften.

Das Programm RIKORR-II behandelt einen wichtigen Schadensmechanismus (nebst Ermüdung und Neutronenversprödung) im Bereich des Alterungsmanagements sicherheitsrelevanter Komponenten in Kernanlagen.

Das Projekt ist gut angelegt und wird folgerichtig durchgeführt. Die für das Jahr 2001 gesetzten Ziele wurden im wesentlichen erreicht. Es wurden wesentliche Schritte vorwärts getan. Es zeichnet sich jetzt ab, dass das Projekt, dessen Dauer noch ein weiteres Jahr umfasst, grundlegende Aussagen über die wesentlichen Einflussparameter erbringen wird.

Das PSI hat die Fortsetzung der Forschung zur Ermüdungsfrüherkennung über den 31.12.2002 hinaus in einem Projekt RIKORR-III vorgeschlagen. Die Sektion MBT hat mit Stellungnahme vom 5. Dezember 2001 empfohlen, diesem Vorschlag zu folgen. Unter anderem soll der Einfluss der Wasserstoff- und Edelmetalleinspeisung auf das Risskorrosionsverhalten untersucht werden.

RIKORR

Risskorrosion in druckführenden ferritischen Komponenten des Primärkreislaufes von SWR

Autor und Koautoren	H.P. Seifert, S. Ritter, U. Ineichen, U. Tschanz
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut
Adresse	Paul Scherrer Institut, CH-5232 Villigen PSI
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 310 44 02, hans-peter.seifert@psi.ch , www.psi.ch und http://lww.web.psi.ch/lwi0.htm
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	37689 / 77428
Dauer des Projekts (von – bis)	1. 1. 2000 bis 31. 12. 2002

Zusammenfassung

Im Rahmen des vorliegenden Forschungsprojektes wird das Risskorrosionsverhalten von ferritischen Reaktordruckbehälter(RDB)-Stählen (unbeeinflusster Grundwerkstoff und Wärmeeinflusszonen (WEZ)) und von RDB-Schweissgutwerkstoffen unter transienten und stationären Siedewasserreaktor(SWR)-Betriebsbedingungen experimentell untersucht. Die Versuche unter konstanter Last und monoton ansteigender Last mit konstanter Lastrate sowie bei niederfrequenter zyklischer Belastung mit Bruchmechanikproben in sauerstoffhaltigem Heisswasser bei Temperaturen zwischen 150 und 288 °C lieferten folgende Zwischenergebnisse:

Dehnungsinduzierte Risskorrosion (DRK) und Schwingrisskorrosion (SwRK): Als wesentliche Einflussparameter wurden das Korrosionspotential (ECP), der Sulfat-Gehalt und die Temperatur der Umgebung, der Schwefel-Gehalt des Stahls sowie die Belastungsgeschwindigkeit und –höhe identifiziert. Die DRK-Anfälligkeit nimmt mit ansteigendem ECP, Sulfat-Gehalt der Umgebung und Schwefel-Gehalt des Stahls zu. Unter stark oxidierenden Bedingungen ($ECP > 100 \text{ mV}_{SWE}$) wurde in allen Werkstoffen (RDB-Grundwerkstoff und Schweissgut) ein Maximum der DRK-Anfälligkeit bei mittleren Temperaturen ($\approx 200 - 250 \text{ °C}$) und sehr niedrigen Dehnraten ($10^{-6} - 10^{-4} \text{ s}^{-1}$) beobachtet. Die DRK-Risswachstumsraten waren für alle Werkstoffe sehr ähnlich und nahmen mit ansteigender Dehnrates und ansteigender Temperatur bis zu einem Maximum bei 250 °C zu. Das Maximum der DRK-Anfälligkeit bei mittleren Temperaturen wird auf die Dynamische Reckalterung (Dynamic Strain Ageing, DSA) dieser Stähle zurückgeführt. Das DSA-Verhalten und der Gehalt an interstitiell gelöstem Stickstoff und Kohlenstoff können demnach ebenso wichtig sein wie der Schwefel-Gehalt dieser Stähle. In zyklischen Versuchen wurde unter stark oxidierenden Bedingungen ($ECP > 100 \text{ mV}_{SWE}$) für alle Temperaturen und Werkstoffe eine Zunahme des SwRK-Rissfortschritts pro Zyklus mit abnehmender Belastungsfrequenz beobachtet. Stabiles, stationäres SwRK-Risswachstum wurde bis hinab zu sehr niedrigen Frequenzen von 10^{-5} Hz festgestellt. Die SwRK-Risswachstumsraten waren für alle Werkstoffe sehr ähnlich und nahmen mit ansteigender Temperatur bis zu einem Maximum bei 250 °C zu.

Konservativität der Regelwerke: Die ASME XI Ermüdungsrisswachstums-Grenzkurven des ASME BPV Regelwerks können bei niederfrequenter, zyklischer Belastung ($< 10^{-3} \text{ Hz}$) unter simulierten SWR-Bedingungen sowohl in RDB-Grund- als auch –Schweissgutwerkstoffen deutlich überschritten werden und sind deshalb im Gegensatz zu hohen Frequenzen nicht konservativ. Diese niederfrequenten Belastungen sind charakteristisch für Anfahr- und Abfahrvorgänge sowie für spezielle Betriebszustände mit Temperaturschichtungsphänomenen. Für eine bessere Bewertung sind weitere Experimente bei niedrigerer Belastungshöhe und insbesondere genauere Informationen zu den wasserchemischen und lokalen thermomechanischen Randbedingungen unter diesen Betriebsbedingungen notwendig. Die BWR VIP 60 Spannungsrisskorrosions(SpRK)-Grenzkurven für das SpRK-Risswachstum unter stationären SWR-Bedingungen können sowohl bei kleinen Lastfluktuationen („Ripple Loading“) als auch bei mittleren Temperaturen (200 – 250°C) für RDB-Stähle, die eine ausgeprägte DSA-Anfälligkeit zeigen, überschritten werden. Die Grenzkurven sind deshalb auf ihre Gültigkeit für RDB-Schweissnähte und WEZ und insbesondere für den Speisewasserstutzen ($T \approx 220 \text{ °C}$, kleine Lastfluktuationen nicht ausschliessbar) zu überprüfen. Für den RDB-Grundwerkstoff im stationären SWR-Leistungsbetrieb ($T \approx 270 - 290 \text{ °C}$, \approx statische Belastung) sind die SpRK-Grenzkurven durch umfassende Laborexperimente bestätigt.

0. Abkürzungen, Symbole und Einheiten

Abkürzungen

Abkürzung	Bedeutung
AMES	Ageing Materials Evaluation and Studies
ASME	American Society of Mechanical Engineers
ASME BPV	ASME Boiler and Pressure Vessel Code Committee
ASTM	American Society of Testing and Materials
ASTM E 399	Test Method for Plane-Strain Fracture Toughness of Metallic Materials
BWR VIP	Boiling Water Reactor Vessel and Internals Project
C(T)	Compact Tension Specimen: Kompaktzugprobe
CIEMAT	Research Centre for Energy, Environment and Technology, Spanien
COD _{LL}	Crack Opening Displacement at Load Line: Rissöffnung an der Lastlinie
CSNI	Committee on the Safety of Nuclear Installations
DCPD	Direct Current Potential Drop Method: Gleichstrompotentialsonde
DO	Dissolved Oxygen: Konzentration an gelöstem Sauerstoff
DRK	Dehnungsinduzierte Risskorrosion
DSA	Dynamic Strain Ageing: Dynamische Reckalterung
DWR	Druckwasserreaktor
EAC	Environmentally-Assisted Cracking
ECP	Electrochemical Corrosion Potential: Freies Korrosionspotential
EPRI	Electric Power Research Institute
FRAD	Film Rupture/Anodic Dissolution Mechanism
GE	General Electric
HAC	Hydrogen-Assisted EAC Mechanism
HSK	Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen
HWC	Hydrogen Water Chemistry, Wasserstoffchemiefahrweise
ICG-EAC	International Co-operative Group of Environmentally-Assisted Cracking of LWR Materials
KTA	Kerntechnischer Ausschuss
KTA 3201.1	Sicherheitstechnische Regel des KTA 3201.1: Komponenten des Primärkreislaufes von LWR Teil 1: Werkstoffe und Erzeugnisformen
LWV	Labor für Werkstoffverhalten

LWR	Leichtwasserreaktor
MPA	Staatliche Materialprüfungsanstalt, Universität Stuttgart, Deutschland
NEA	Nuclear Energy Agency
NRC	National Regulatory Commission, USA
NRI	Nuclear Research Institute, Rez, Tschechische Republik
NWC	Normal Water Chemistry, Normalwasserchemiefahrweise
OECD	Organisation for Economic Co-operation and Development
OECD/NEA/ CSNI PWG 3	OECD/NEA/CSNI Principal Working Group 3:"Integrity of Structures and Components"
PEER	Panel of Experts for Evaluation and Review
RDB	Reaktordruckbehälter
REM	Rasterelektronenmikroskop(ie)
SKI	Statens Kärnkraftinspektion
SpRK	Spannungsrissskorrosion
SRL	Slow Rising Load Test: Versuch mit monoton ansteigender Last mit konstanter Lastrate
SSRT	Slow Strain Rate Test: langsamer Zugversuch mit konstanter Dehnrate
SSY	Small Scale Yielding: Kleinstbereichsfließen
SWE	Standard-Wasserstoffelektrode
SWR	Siedewasserreaktor
SwRK	Schwingrissskorrosion
TÜV	Technischer Überwachungsverein, Deutschland
VGB	Technische Vereinigung der Grosskraftwerksbetreiber, Deutschland
VTT	Technisches Forschungszentrum Finnland
WEZ	Wärmeeinflusszone
WKP	Wiederkehrende Prüfung

Symbole und Einheiten

Symbol	Einheit	Bezeichnung
A_5	%	Bruchdehnung
Δa	μm oder mm	Rissfortschritt
$\Delta a/\Delta N$	$\mu\text{m}/\text{Zyklus}$	Rissfortschritt pro Zyklus
da/dt	m/s	zeitlicher Verlauf des Risswachstums
Δa_{DRK}	m oder mm	Rissfortschritt durch DRK

Δa_{EAC}	μm oder mm	Rissfortschritt durch EAC
Δa_{SWRK}	μm oder mm	Rissfortschritt durch SwRK
$\Delta a_{EAC}/\Delta t_{CL}$	m/s	gesamter Rissfortschritt während des Versuches geteilt durch Versuchsdauer unter konstanter Last
$\Delta a_{DRK}/\Delta t_E$	m/s	DRK-Risswachstumsrate in „Slow Raising Load“ Versuchen
$dCOD_{LL}/dt$	mm/s	Rissöffnungsrate an der Lastlinie
δ	mm	Probenaufweitung
ΔK	$\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$	Schwingbreite des Spannungsintensitätsfaktors
Δt_{CL}	h	Versuchsdauer unter konstanter Last
Δt_R	h	„Rise Time“
ECP	mV_{SWE}	freies Korrosionspotential
κ	$\mu\text{S/cm}$	spezifische elektrische Leitfähigkeit
K_I	$\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$	Spannungsintensitätsfaktor
$K_{I,i}$	$\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$	K_I -Wert bei Rissinitiiierung durch DRK
$K_{I,U}$	$\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$	K_I -Wert bei Initiierung von duktilem mechanischen Risswachstum in inerter Umgebung
K_{ISCC}	$\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$	K_I -Schwellenwert für SpRK
ν	Hz	Frequenz
O_2	ppb od. ppm	Konzentration an gelöstem Sauerstoff
R	-	Verhältnis von Unter- zur Oberlast: $R = K_{\min} / K_{\max}$
R_p	MPa	Streckgrenze
R_m	MPa	Zugfestigkeit
T	$^{\circ}\text{C}$	Temperatur
Z	%	Brucheinschnürung

1. Projektziele

1.1 Technischer Hintergrund

Sicherheit und Lebensdauer von Leichtwasserreaktoren (LWR) werden massgeblich durch die Strukturintegrität des Reaktordruckbehälters (RDB) bestimmt. Neben Ermüdung und Strahlenversprödung ist auch die Risskorrosion als relevanter Alterungsmechanismus für den RDB zu betrachten. Die Gewährleistung eines sicheren Anlagenbetriebes setzt eine genaue Kenntnis der Systembedingungen voraus, die zur Risskorrosion führen können. Zuverlässige quantitative Daten zur Initiierung und zum Wachstum von Korrosionsrissen sowie ein genaues Verständnis der zugrundeliegenden Mechanismen sind wesentlich für eine genaue Bewertung der möglichen Auswirkungen der Risskorrosion auf die RDB-Strukturintegrität und für die Definition von gezielten Abhilfe- und Gegenmassnahmen.

Basierend auf der äusseren mechanischen Belastung lassen sich drei Grundtypen des korrosionsgestützten Risswachstums (EAC) unterscheiden, die sich nach Tabelle 1 den verschiedenen LWR-Betriebsbedingungen zuordnen lassen [1].

Korrosionsgestütztes Risswachstum (EAC)			
Mechanismus	SpRK Spannungsrissskorrosion	DRK Dehnungsinduzierte Risskorrosion	SwRK Schwingungsrissskorrosion
Belastungsart	statisch	dynamisch (monoton ansteigend oder sehr niederzyklisch)	zyklisch (nieder- oder hochzyklisch)
LWR Betriebsbedingungen	stationärer Leistungsbetrieb	Anfahr-/Abfahrvorgänge Temperaturschichtung	thermische Ermüdung Temperaturschichtung
Quantitative Charakterisierung	BWR VIP 60 Disposition Lines	weitgehend ausstehend	ASME III und XI
Projekte am PSI	SpRK II CASTOC	RIKORR CASTOC	CASTOC

Tabelle 1: Risskorrosionsarten in niedriglegierten Stählen unter SWR-Bedingungen.

Fälle von betrieblichen Rissbildungen durch korrosionsgestütztes Risswachstum in druckführenden ferritischen Komponenten waren in der Vergangenheit relativ selten. Die Schadensfälle traten meist in Siedewasserreaktoren (SWR) und nur sehr selten in Druckwasserreaktoren (DWR) auf [2]. Am häufigsten betroffen waren Rohrleitungen, selten Druckbehälter und extrem selten Reaktordruckbehälter [2]. In den meisten dieser Fälle waren sowohl dynamische mechanische Zusatzbeanspruchungen (z. B. durch Temperaturschichtungsphänomene, Temperatur- und Druckzyklen während transients Betriebsbedingungen, z.B. Anfahr-/Abfahrvorgänge) als auch oxidierende Umgebungsbedingungen involviert [2]. Die aufgetretenen Fälle werden der DRK oder der niederzyklischen SwRK zugeordnet [1, 3]. Unter stationären SWR-Normalbetriebsbedingungen, d.h. bei vorwiegend statischer mechanischer Belastung von Behältern und Rohrleitungen und hoher Reinheit des Speise- und Reaktorwassers, wurde bislang kein Korrosionsrisswachstum beobachtet [1 - 3].

Umgebungseffekte sind in den für die Ermüdungsauslegung und -überwachung geltenden und angewandten kerntechnischen Regelwerken bisher nicht direkt (ASME-Code III zur Rissinitiation) oder nur zum Teil (ASME Code XI zum Risswachstum) berücksichtigt. Neuere Untersuchungen zeigen aber, dass unter gewissen betriebsrelevanten Kombinationen aus Umgebung, Belastung und Werkstoff die Grenzkurven in den entsprechenden Regelwerken nicht immer konservativ sind [4 - 11]. Dennoch decken die Regelwerke die meisten Betriebszustände auch bei Berücksichtigung möglicher Umgebungseffekte konservativ ab und waren in der Vergangenheit auch recht erfolgreich im Vermeiden von Ermüdungsschäden. Sowohl die Betriebserfahrung [12] als auch neuere Laboruntersuchungen [13] deuten darauf hin, dass zumindest Anlagenzustände, bei denen es zu Temperaturschichtungsphänomenen in Behälterstutzen und den angrenzenden Rohrleitungen kommen kann, sowie gewisse Änderungen von Betriebszuständen (wie z. B. das Anfahren und Abfahren einer Anlage) durch die Regelwerke nicht immer konservativ abgedeckt sind. Bei den für diese Betriebszustände charakteristischen mittleren Temperaturen (120 - 290 °C), niedrigen Belastungsfrequenzen ($< 10^{-3}$ Hz) und für den SWR charakteristischen hohen Korrosionspotentialen liegen zur Zeit keine oder nur stichprobenhafte DRK- und SwRK-Risswachstumsdaten vor. Aufgrund der in diesem Temperatur-/Belastungsgeschwindigkeitsbereich in diesen Stählen beobachteten Dynamischen Reckalterung kann eine im Vergleich mit dem RDB-Grundwerkstoff erhöhte Anfälligkeit von Schweißnähten und ihrer Wärmeeinflusszonen gegenüber DRK und SwRK nicht ausgeschlossen werden [14 - 16]. Am PSI wurde deshalb ein neues Risskorrosionsprojekt gestartet, um diese bestehenden Wissenslücken und Unsicherheiten zu beseitigen und die tatsächlich vorhandenen Sicherheitsmargen besser abschätzen zu können.

1.2 Zielsetzungen und Arbeitsprogramm des Forschungsvorhaben

Im Rahmen des vorliegenden Forschungsprojektes wird das Risskorrosionsverhalten von ferritischen RDB-Stählen unter transienten SWR-Betriebsbedingungen experimentell untersucht. Im Vordergrund steht die Ermittlung belastbarer DRK-Risswachstumsraten, die für Sicherheits- und Strukturintegritätsbewertungen verwendet werden können. Neben verschiedenen RDB-Stählen mit unterschiedlichen Schwefel- und Aluminium-Gehalten wird insbesondere das Risskorrosionsverhalten der Umfangsschweißnaht eines nicht eingesetzten RDB (Biblis C, PWR, 1200 MWe, Fertigung 1976) und ihrer Wärmeeinflusszone (WEZ) untersucht. Die hinsichtlich der DRK besonders kritischen Korrosionssystembedingungen werden mittels einer Parametersensitivitätsstudie identifiziert. Dies ermöglicht es, kritische Komponenten und Betriebszustände herauszufinden, die nicht durch die geltenden Regelwerke zur Ermüdungsauslegung und -überwachung konservativ abgedeckt sind. In einem zweiten Teil ist vorgesehen, die offenen Fragen zur SpRK abzuklären. Im Vordergrund steht dabei die SpRK-Anfälligkeit von RDB-Schweißnaht und WEZ im transienten SWR-Dauerbetrieb. Abschliessend werden die möglichen Auswirkungen von kleinen Lastfluktuationen infolge Druck- und Temperaturschwankungen auf das SpRK-Risswachstum bei überwiegend statischer Belastung („Ripple Loading“) untersucht.

1.3 Zielsetzungen und Arbeitsprogramm für 2001

Die wesentlichen Zielsetzungen und geplanten Arbeiten für das Jahr 2001 umfassten [17 – 19]:

- Abschluss der Parametersensitivitätsstudie zum Einfluss von Temperatur und Belastungsgeschwindigkeit auf das EAC-Risswachstumsverhalten für den RDB-Grundwerkstoff und das Schweißgut. Start erster Untersuchungen mit der Wärmeeinflusszone (Kap. 2.1).
- Abschluss der Charakterisierung der Biblis C RDB-Werkstoffe [18, 23 – 25]:
 - Zug- und Kerbschlagversuche mit Grundwerkstoff und Schweißgut.
 - Mikrohärtmessungen im Bereich der Schmelzlinie und Wärmeeinflusszone.
 - Zusammenstellung der Fertigungsspezifikationen für die RDB-Schweißnaht.
- Charakterisierung der Dynamischen Reckalterung der untersuchten RDB-Werkstoffe (Kap. 2.2):
 - Zugversuche bei verschiedenen Temperaturen und Dehnraten.
 - Messung von N_{frei} und N_{tot} , „Internal Friction“-Messungen (nur ausgewählte Werkstoffe).
- Zwischenbericht bis Ende Oktober 2001 [20].
- Konferenzbeiträge:
 - ICG-EAC 2001 (April 2001, Seoul, SK) [21, 22].

- 10th Int. Symp. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors (August 2001, Lake Tahoe, USA) [13].

2. Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

2.1 Experimentelle Parameterstudie zur Risskorrosion

2.1.1 Untersuchte Werkstoffe

In den Experimenten wurden vier verschiedene niedriglegierte RDB-Stähle sowie eine Schweissnaht von einem nicht in Betrieb gesetzten RDB (Biblis C, DWR, 1200 MWe, 1976) untersucht (Tabelle 2 - 4). Diese Stähle werden weltweit und in schweizerischen Kernkraftwerken in druckumschliessenden Komponenten eingesetzt.

Werkstoff	Bez.	Norm	S-Gehalt [Gew. %]	Wärmebehandlung
20 MnMoNi 5 5 ≡ SA 533 B Class 1	a	KTA 3201.1	0.004	Härtung: 910 - 920 °C / 6 h / WQ Anlassen: 640 - 650 °C / 9.5 h / OK
SA 508 Class 2 ≡ 22 NiMoCr 3 7	b	ASME	0.004	Härtung: 900 °C / 8 h / WQ Anlassen: 600 °C / 9 h / Luft
SA 533 B Class 1 ≡ 20 MnMoNi 5 5	c	ASME	0.018	Härtung: 915 °C / 12 h / 860 °C / 12 h / WQ Anlassen: 635 °C / 12 h / OK
22 NiMoCr 3 7 ≡ SA 508 Class 2	d	KTA 3201.1	0.007	Härtung: 890 - 900 °C / 6.83 h / WQ Anlassen: 640 - 650 °C / 17.25 h / Luft Spannungsarmglühung*
S3 NiMo 1 RDB-Schweissnaht	e	KTA 3201.1	0.007	*Spannungsarmglühung: 540 - 555 °C / 59 h / 465 °C / 590 - 610 °C / 21 h / 465 °C / 590 - 605 °C / 11.25 h / Luft

WQ: abgeschreckt in Wasser OK: abgekühlt im Ofen

Tabelle 2: Verwendete Werkstoffe.

Legierung a, c und d besitzen eine granulare bainitische Mikrostruktur mit einer mittleren Korngrösse (ehemalige Austenitkörner) von 10 bis 20 µm. Legierung b besitzt eine gemischte bainitisch/ferritisch-perlitische Mikrostruktur mit einer mittleren Korngrösse von 20 µm. Die räumliche Verteilung der Mangansulfideinschlüsse ist in allen Legierungen homogen. Die Schweissnaht besitzt ein sehr feinkörniges, ferritisches Gefüge mit einer mittleren Korngrösse ≤ 6 µm mit extrem kleinen, fein verteilten sphärischen MnS-Einschlüssen. Die chemische Zusammensetzung, Mikrostruktur und mechanischen Eigenschaften der untersuchten Stähle erfüllen die Anforderungen der entsprechenden kerntechnischen Regelwerke und Normen (KTA, ASME-BPV) für die druckführenden Komponenten des Primärkreislaufes von LWR [1]. Im wesentlichen unterscheiden sich die untersuchten Stähle in ihren Aluminium- und Schwefelgehalten bzw. in ihrem Gehalt an MnS-Einschlüssen, der das Risskorrosionsverhalten massgeblich beeinflussen kann [14, 26].

Werkstoff		C	Si	Mn	P	S	Cr	Mo	Ni	V	Al	Cu
20 MnMoNi 5 5	a	0.21	0.25	1.26	0.004	0.004	0.15	0.5	0.77	0.008	0.013	0.06
SA 508 Cl. 2	b	0.21	0.27	0.69	0.005	0.004	0.38	0.63	0.78	0.006	0.015	0.16
SA 533 B Cl. 1	c	0.25	0.24	1.42	0.006	0.018	0.12	0.54	0.62	0.007	0.03	0.15
22 NiMoCr 3 7	d	0.215	0.20	0.91	0.008	0.007	0.42	0.53	0.88	0.007	0.018	0.04
Schweissnaht	e	0.054	0.17	1.19	0.013	0.007	0.04	0.55	0.94	0.006	0.0053	0.06

Tabelle 3: Chemische Zusammensetzung (in Gew.%).

Werkstoff		Raumtemperatur				288 °C
		R _{P0.2} [MPa]	R _m [MPa]	A ₅ [%]	Z [%]	R _{P0.2} [MPa]
20 MnMoNi 5 5	a	485	648	19.3	72.1	418
SA 508 Cl. 2	b	448	611	17.9	71.0	396
SA 533 B Cl. 1	c	468	616	21.0	43.0	411
22 NiMoCr 3 7	d	448	600	25.2	70.6	-
S3 NiMo 1	e	492	592	17.4	73.3	430

Tabelle 4: Mechanische Eigenschaften (Zugversuch DIN 50145, B5X50 Proben). Mittelwerte von Zugproben in T- und L-Richtung. (R_{P0.2}: Streckgrenze, R_m: Zugfestigkeit, A₅: Bruchdehnung, Z: Einschnürung).

2.1.2 Versuchsdurchführung

Da die Versuchsdurchführung und –auswertung sowie der Messaufbau im Rahmen des BFE-Jahresberichtes 2000 [27] und in einem PSI-Bericht [28] detailliert beschrieben sind, werden im folgenden nur die wesentlichsten Aspekte kurz beschrieben.

Das Risskorrosionsverhalten der verschiedenen Stähle wurde in Versuchen unter konstanter Last (SpRK) und in Versuchen mit langsam monoton ansteigender oder niederzyklischer Last (DRK, SwRK) in modernen Heisswasserkreisläufen unter simulierten SWR/NWC-Bedingungen in sauerstoffhaltigem Heisswasser bei einer Temperatur von 150 bis 288 °C experimentell untersucht. Belastungsbedingungen und Wasserchemie (Sulfat- und Sauerstoffgehalt) wurden hierbei gezielt variiert. Die Untersuchungen wurden mit 25 mm dicken bruchmechanischen Kompaktzugproben (1T-C(T)) durchgeführt, die hauptsächlich in T-L- oder L-T-Richtung (entsprechend ASTM E 399) gefertigt wurden. Vor dem Versuchsbeginn wurden die Proben bei Raumtemperatur in Laborluft mit einem Schwingriss definierter Länge versehen.

Die Heisswasserkreisläufe mit Autoklaven mit integrierten elektromechanischen Zugmaschinen erlauben es, die im Betrieb auftretenden mechanischen, thermischen und wasserchemischen Bedingungen realitätsnah zu simulieren. Das Autoklavenvolumen von 10 Liter wird 3 bis 4-mal pro Stunde ausgetauscht. Dies ist zur Aufrechterhaltung konstanter wasser- und elektrochemischer Bedingungen ausreichend. Im Bereich der Probe beträgt die Strömungsgeschwindigkeit einige mm/s. Sauerstoffgehalt, Leitfähigkeit, Durchfluss, Druck und Temperatur werden im Vorlauf- und Rücklauf des Niederdruck-/temperaturkreislaufs kontinuierlich gemessen. Zusätzlich wird im Hochdruck-/temperaturbereich Last, Temperatur, Druck, Korrosions- und Redoxpotential erfasst.

Der gewünschte Sauerstoffgehalt und die Leitfähigkeit werden über die Messwerte im Vorlaufwasser durch abwechselndes Einblasen von Argon und eines Argon/Sauerstoff-Gemisch bzw. durch die Zudosierung von 0.2 molarer wässriger Na₂SO₄-Lösung zum hochreinen Heisswasser (< 0.06 µS/cm) eingestellt. Die Sulfatkonzentration beträgt zwischen < 1 ppb (κ ≤ 0.06 µS/cm) und 365 ppb (κ = 1.0 µS/cm). Das Korrosionspotential wird durch die Konzentration an gelöstem Sauerstoff eingestellt. Das Korrosionspotential der Proben und das Redox-Potential der Umgebung (Pt-Elektrode) werden kontinuierlich mit einer externen Ag/AgCl-Referenzelektrode mit einem digitalen Multimeter mit hoher Eingangsimpedanz (> 10¹⁴ Ω) gemessen [29].

Das Risswachstum während des Versuches wird mit der Gleichstrompotentialsonde (DCPD) verfolgt. Für die Gleichstrompotentialsonde wurde experimentell eine Auflösungsgrenze von 5 µm ermittelt [28]. Nach dem Versuch wird das Risswachstum fraktographisch mit dem Rasterelektronenmikroskop ausgemessen und die kontinuierlichen Messungen, falls notwendig, mit Hilfe der fraktographischen Ergebnisse korrigiert [28]. Bei gleichmäßigem Risswachstum über die gesamte Probenbreite unterscheiden sich die Ergebnisse der DCPD und der Fraktographie um weniger als 5 %.

2.1.3 Dehnungsinduzierte Risskorrosion (DRK)

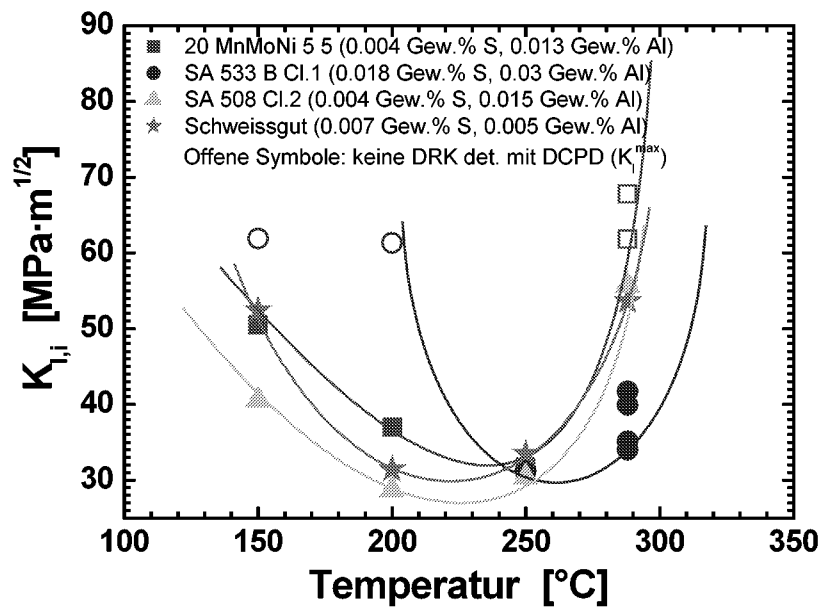
Der Einfluss von Beanspruchungsgeschwindigkeit, Umgebung (ECP, Sulfat, Temperatur) und Werkstoff (Schwefel-Gehalt, Mikrostruktur) auf die DRK-Rissinitiiierung und das DRK-Risswachstum wird im Rahmen einer Parameterstudie in Versuchen mit langsam, monoton ansteigender Last mit konstanter Lastrate („Slow Rising Load“ (SRL) Tests) untersucht. Im BFE-Jahresbericht 2000 [27] wurde eingehend diskutiert, wie die DRK-Anfälligkeit und das DRK-Risswachstum niedriglegierter RDB-Stähle in sauerstoffhaltigem Heisswasser durch das synergistische Zusammenwirken von Beanspruchungsgeschwindigkeit, Umgebung (ECP, Sulfat) und des Schwefel-Gehaltes des Stahls kontrolliert werden. Im folgenden werden deshalb nur die neuen Ergebnisse zum Einfluss der Temperatur und der Mikrostruktur (Schwefel-Gehalt, Dynamische Reckalterung, Schweissgut vs. Grundwerkstoff, Mikrostruktur) vertieft behandelt.

2.1.3.1 Einfluss der Temperatur

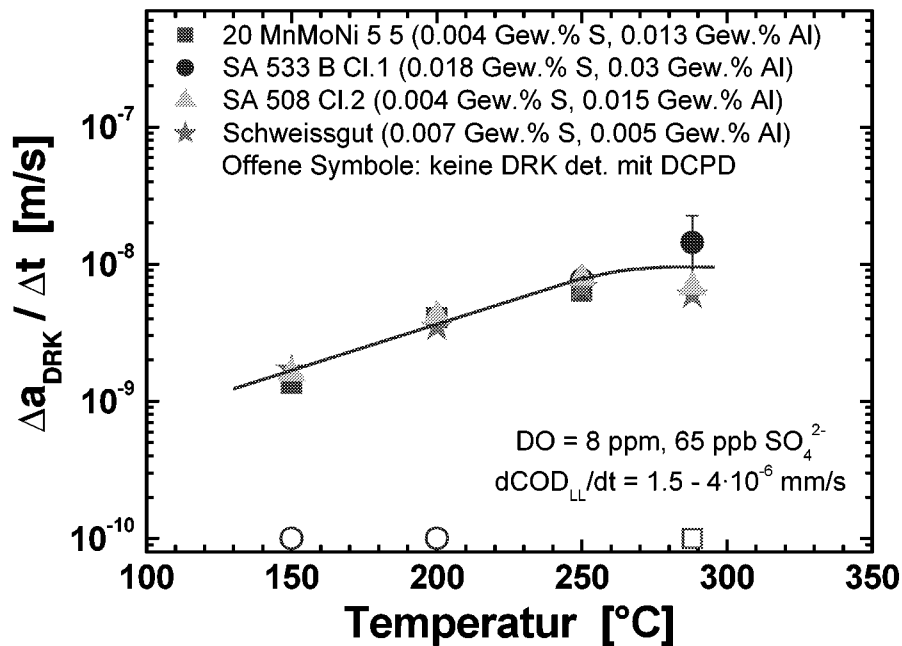
Der Einfluss der Temperatur wurde an drei RDB-Grundwerkstoffen mit niedrigem und hohem S- bzw. Al-Gehalt (Legierung a, b und c) und an dem Biblis C Schweissgutwerkstoff e in Heisswasser bei einem Sauerstoff- und Sulfatgehalt von 8 ppm bzw. 65 ppb zwischen 150 und 288 °C untersucht. Das Korrosionspotential steigt dabei mit abnehmender Temperatur leicht von +130 mV_{SWE} bei 288 °C auf +250 mV_{SWE} bei 150 °C an. Für die Versuche wurde eine Beanspruchungsgeschwindigkeit (Rissöffnungsrate von $4 \cdot 10^{-6}$ mm/s) im Bereich der maximalen DRK-Anfälligkeit bei 288 °C gewählt.

Die Abbildungen 1 und 2 zeigen den Einfluss der Temperatur auf die Rissinitiiierung bzw. das Risswachstum. Bei 288 °C konnten in allen Legierungen ausser dem RDB-Stahl a DRK-Risswachstum mit der DCPD nachgewiesen werden. Der niedrigste Rissinitiiierungswert $K_{i,i}$ wurde im Stahl c (0.018 Gew.% S) mit hohem Schwefel-Gehalt beobachtet, gefolgt vom Schweissgut e (0.007 Gew.% S) mit einem mittleren und der Legierung b (0.004 Gew.% S) mit einem tiefen Schwefel-Gehalt. Die entsprechende DRK-Risswachstumsrate war für den Stahl mit hohem Schwefel-Gehalt leicht höher als für die beiden anderen Legierungen. Bei 250 °C wurden in allen RDB-Stählen und dem Schweissgut vergleichbare $K_{i,i}$ -Werte und DRK-Risswachstumsraten beobachtet. Bei 200 °C und 150 °C zeigte der RDB-Stahl c mit hohem Schwefel-Gehalt als einzige Legierung überraschenderweise kein DRK-Risswachstum. Im untersuchten Belastungsgeschwindigkeitsbereich wurde bei allen Legierungen ein Maximum in der DRK-Anfälligkeit (Minimum der $K_{i,i}$ -Werte) bei mittleren Temperaturen von 200 bis 250 °C beobachtet. Darunter und darüber schien die Anfälligkeit wieder abzunehmen. Die DRK-Risswachstumsraten nahmen hingegen für alle Legierungen mit zunehmender Temperatur von 150 bis 250 °C leicht zu und es wurde ein Maximum/Plateau bei/oberhalb von 250 °C beobachtet. Falls DRK-Risswachstum mit der Gleichstrompotentialsonde nachgewiesen werden konnte, lagen die Risswachstumsraten für alle RDB-Werkstoffe und die Schweissnaht sehr nahe beieinander. Die niedrige DRK-Anfälligkeit des RDB-Stahles c mit hohem Schwefel-Gehalt bei 200 und 150 °C ist überraschend und zeigt ganz klar, dass der Schwefel-Gehalt nicht der einzige Materialparameter ist, der einen starken Einfluss auf die Risskorrosionsanfälligkeit ausüben kann.

Zwischen 150 und 250 °C wurde für das DRK-Risswachstum eine Aktivierungsenergie von 32 ± 3 kJ/mol bestimmt. Diese stimmt recht gut mit der Aktivierungsenergie für SwRK-Risswachstum von 40 bis 50 kJ/mol (siehe Kap. 2.1.4) und für SpRK-Risswachstum von 30 bis 50 kJ/mol unter aggressiven Umgebungsbedingungen überein [30]. SSRT-Versuche [31] an glatten Rundzugproben bei ähnlichen Dehnraten und Umgebungsbedingungen zeigen dieselben Temperaturtrends wie in unseren SRL-Experimenten mit angeschwungenen Bruchmechanikproben.



Figur 1: Einfluss der Temperatur auf die DRK-Rissinitierung in den RDB-Stählen a, b, c mit niedrigem und hohem Schwefel-Gehalt sowie im Schweissgut e mit mittlerem Schwefel-Gehalt bei einer Rissöffnungsrate von $4\cdot 10^{-6}$ mm/s und Standardumgebungsbedingungen (8 ppm O_2 , 65 ppb SO_4^{2-}).

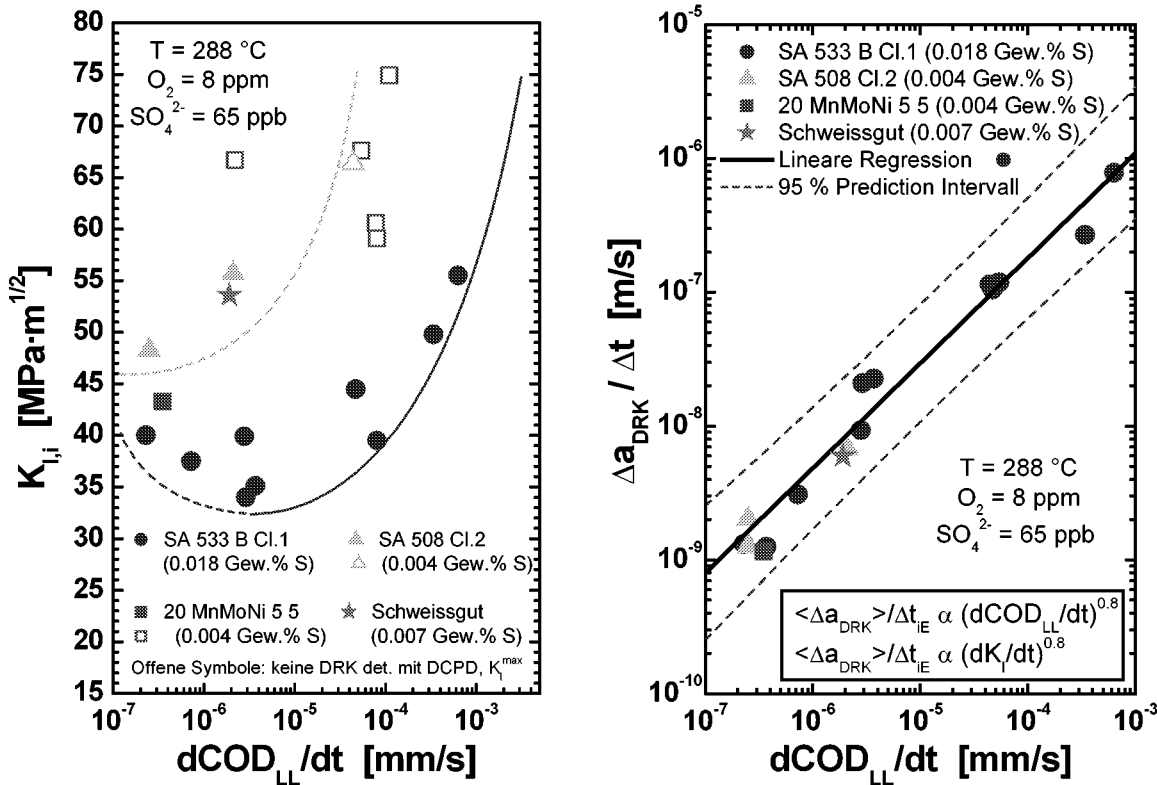


Figur 2: Einfluss der Temperatur auf das DRK-Risswachstum in den RDB-Stählen a, b, c mit niedrigem und hohem Schwefel-Gehalt sowie im Schweissgut e mit mittlerem Schwefel-Gehalt bei einer Rissöffnungsrate von $4\cdot 10^{-6}$ mm/s und Standardumgebungsbedingungen (8 ppm O_2 , 65 ppb SO_4^{2-}).

2.1.3.2 Einfluss von Schwefel-Gehalt und Dynamischer Reckalterung (DSA)

In sauerstoffhaltigem Heisswasser (8 ppm O_2) ausreichender Reinheit ($\leq 65 \text{ ppb } \text{SO}_4^{2-}$) wurde bei 288 $^{\circ}\text{C}$ in unseren Untersuchungen ein positiver Einfluss eines niedrigen Schwefel-Gehaltes auf die DRK-Anfälligkeit beobachtet. In den

Stählen mit niedrigem und mittlerem Schwefel-Gehalt waren in den SRL-Versuchen deutlich höhere Spannungsintensitätsfaktoren $K_{I,i}$ zur Initiierung von DRK-Risswachstum notwendig als im Stahl mit dem hohen Schwefel-Gehalt (Fig. 1 und 3). Auf das DRK-Risswachstum hatte ein niedriger Schwefel-Gehalt und die Probenorientierung hingegen unter diesen stark oxidierenden Umgebungsbedingungen keinen nennenswerten Einfluss (Fig. 2 und 3). Bei vergleichbaren Beanspruchungsgeschwindigkeiten (Rissöffnungsraten) lagen die gemessenen Risswachstumsraten für alle Stähle jeweils im Streuband für den Stahl mit hohem Schwefel-Gehalt, vorausgesetzt, dass Rissinitiation aufgetreten ist, was bei Stählen mit niedrigem Schwefel-Gehalt, wie schon erwähnt, eine höhere Spannungsintensität erforderte.



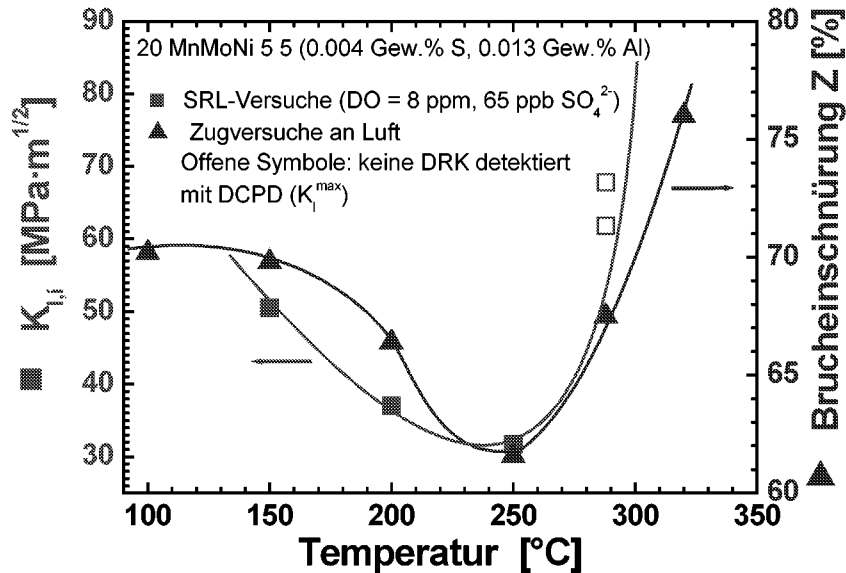
Figur 3: Vergleich der DRK-Anfälligkeit (links) und DRK-Risswachstumsraten (rechts) verschiedener RDB-Stähle mit unterschiedlichen Schwefel-Gehalten in SRL-Versuchen bei 288 °C in sauerstoffhaltigem Heisswasser. Insbesondere bei hohen Dehnraten wird in den Stählen mit niedrigem Schwefel-Gehalt eine deutlich geringere DRK-Anfälligkeit (höhere $K_{I,i}$ -Werte) beobachtet. Falls DRK-Rissinitiation auftritt, liegen die DRK-Risswachstumsraten der Stähle mit niedrigem und mittlerem Schwefel-Gehalt im Streuband der Ergebnisse für den Stahl mit hohem Schwefel-Gehalt.

Der positive Einfluss eines niedrigen Schwefel-Gehaltes auf die DRK-Anfälligkeit bei Temperaturen oberhalb von 250 °C und Sulfat-Gehalten ≤ 65 ppb kann durch die Wahl geeigneter Kombinationen von Korrosionspotential (bzw. Sauerstoffgehalt) und Sulfat-Gehalt der Umgebung (BFE-Jahresbericht 2000, [27]) und/oder von Temperatur (Fig. 1) und Dehnraten (Fig. 3) vollständig überdeckt werden.

So wurde z. B. bei Zugabe einer ausreichenden hohen Menge von Sulfat (365 ppb) bei 288 °C und einem Sauerstoff-Gehalt von 8 ppm in den Stählen mit niedrigem und hohem Schwefel-Gehalt dieselbe DRK-Anfälligkeit beobachtet [1]. Während bei einem hohen Korrosionspotential und Sulfat-Gehalt der Umgebung also kein Einfluss des Schwefel-Gehalts beobachtbar ist, macht sich dieser hingegen mit abnehmendem ECP (Sauerstoffgehalt) und zunehmender Reinheit des Kühlmittels verstärkt bemerkbar. Dieses Verhalten kann sehr gut mit den existierenden Modellvorstellungen verstanden werden (siehe BFE-Jahresbericht 2000 [27]).

Bei tieferen Temperaturen von 150 und 200 °C wurde in den Stählen mit niedrigem Schwefel-Gehalt und dem Schweissgut mit mittlerem Schwefel-Gehalt eine deutlich höhere DRK-Anfälligkeit beobachtet als im RDB-Stahl mit hohem Schwefel-Gehalt (Fig. 3). Die Stähle mit niedrigem Schwefel-Gehalt zeigten des weiteren bei extrem niedrigen Dehnraten ($\leq 10^{-5}$ s $^{-1}$) in höchstreinem Heisswasser (< 1 ppb SO_4^{2-}) bei 8 ppm beinahe dieselbe DRK-Anfälligkeit wie der Stahl mit hohem Schwefel-Gehalt [1]. Dieses Verhalten kann nicht alleine mit den bisherigen Modellvorstellungen erklärt

werden, da man unter diesen Bedingungen in den Stählen mit niedrigem Schwefel-Gehalt eher eine tiefere oder bestenfalls gleich hohe DRK-Anfälligkeit erwarten würde. Neben dem Schwefel-Gehalt des Stahls scheinen deshalb auch noch andere Werkstoffparameter einen Einfluss auf die Risskorrosionsanfälligkeit auszuüben.



Figur 4: Vergleich der DRK- und DSA-Anfälligkeit von Legierung a bei einer Dehnrates von 10^{-5} s^{-1} . Die Temperatur-Minima und -verläufe der Rissinitierungswerte $K_{I,i}$ aus SRL-Versuchen in sauerstoffhaltigem Heisswasser und der Bruchdehnung aus Zugversuchen an Luft stimmen gut überein.

Die DRK-Anfälligkeit der Stähle mit niedrigem Schwefel-Gehalt unter extrem niedrigen Dehnraten bei 288 °C sowie das Maximum der DRK-Anfälligkeit beim mittleren Temperaturen von 200 - 250 °C deuten klar darauf hin, dass die Dynamische Reckalterung unter gewissen Kombinationen von Temperatur und Dehnrates einen starken Einfluss auf das Risskorrosionsverhalten in anfälligen RDB-Stählen ausüben kann (siehe hierzu Kap. 2.2). Die in Zugversuchen und bei Messungen der inneren Reibung beobachtete DSA-Anfälligkeit korreliert gut mit der Temperatur- und Dehnratesabhängigkeit der DRK-Anfälligkeit und insbesondere mit der unterschiedlichen SpRK-Anfälligkeit bei mittleren Temperaturen [14]. Dies ist in Figur 4 beispielhaft für Legierung a gezeigt. Wie aber in Figur 2 zu erkennen ist, zeigen nach erfolgter Rissinitierung alle Werkstoffe unter diesen stark oxidierenden Bedingungen vergleichbare Risswachstumsraten. Die DSA scheint deshalb primär einen Einfluss auf die DRK-Anfälligkeit (Rissinitierung) auszuüben, nicht aber auf das nachfolgende DRK-Risswachstum, zumindest unter diesen stark oxidierenden Bedingungen.

2.1.3.3 Vergleich der DRK-Anfälligkeit von RDB-Schweissgut und -Grundwerkstoff

Wie in Abbildungen 1 und 2 zu erkennen ist, zeigt das Schweissgut in den SRL-Versuchen bei den hohen Korrosionspotentialen und erhöhten Sulfat-Gehalten dasselbe DRK-Verhalten wie die RDB-Grundwerkstoffe. Aufgrund der günstigen Morphologie der MnS-Einschlüssen (sehr kleine, feindisperse, kugelförmige MnS-Einschlüsse) in Schweissnähten, wird ihnen sehr oft eine bessere Risskorrosionsbeständigkeit zugeordnet [26]. Der sehr niedrige Al- und hohe O-Gehalt in Schweissgutwerkstoffen kann allerdings zu einem hohen Gehalt an interstitiell gelöstem N und somit zu einer ausgeprägten DSA-Anfälligkeit führen [14]. Aus diesen Gründen kann eine gegenüber dem Grundwerkstoff erhöhte Risskorrosionsanfälligkeit im DSA-Temperatur/Dehnratesbereich nicht vollständig ausgeschlossen werden. In Zugversuchen bei unterschiedlichen Temperaturen und Dehnrates und bei Messungen der inneren Reibung zeigte das Schweissgut e trotz seines sehr niedrigen Al-Gehaltes eine gegenüber den anderen RDB-Werkstoffen leicht reduzierte DSA-Anfälligkeit (siehe Kap. 2.2). Aufgrund der vergleichbaren DSA-Anfälligkeit und der hohen Korrosionspotentiale und erhöhten Sulfat-Gehalte in den SRL-Versuchen ist deshalb das vergleichbare DRK-Verhalten nicht überraschend.

2.1.3.5 Zusammenfassung des bisher zur DRK gewonnenen Kenntnisstandes

Das DRK-Risswachstum langer Risse ($> 100 \mu\text{m}$) wird im wesentlichen durch die **Rissspitzendehnrates** sowie durch die **Konzentration an schwefelhaltigen Anionen** (bzw. dem pH) im Elektrolyten im Bereich der Risspitze kontrolliert. Für das Auftreten von DRK müssen gleichzeitig **kritische Bedingungen** im Rissystem auftreten, d.h. eine **hohe Aktivität an schwefelhaltigen Anionen** und eine **langsame positive Rissspitzendehnrates** (und positive plastische Zug-Dehnung). Werden diese Bedingungen nicht erreicht, wird kein oder nur sehr geringes (und oft lokales) Risswachstum beobachtet. Werden diese kritischen Bedingungen erreicht oder überschritten, beobachtet man DRK-Risswachstum, das im wesentlichen nur von der Belastungsgeschwindigkeit abhängt. Unter stark oxidierenden Bedingungen ($\text{ECP} > 100 \text{ mV}_{\text{SWE}}$) nimmt dabei die DRK-Anfälligkeit (Rissinitiation) mit abnehmender Dehnrates ab mit einem möglichen Maximum bei sehr tiefen Dehnrates von 10^{-6} bis 10^{-4} s^{-1} , während die DRK-Risswachstumsrate mit zunehmender Dehnrates monoton nach einem Potenzgesetz mit einem Exponenten von ca. 0.8 ansteigt. Oberhalb einer Dehnrates von 10^{-3} s^{-1} wird kein DRK-Risswachstum mehr beobachtet [27].

Als wesentliche Einflussparameter wurden das Korrosionspotential (bzw. Sauerstoffgehalt), der Sulfat-Gehalt und die Temperatur der Umgebung, der Schwefel-Gehalt und das DSA-Verhalten (Gehalt N_{frei} und C_{frei} -Gehalt) des Stahls sowie die Belastungsgeschwindigkeit und -höhe identifiziert. Innerhalb gewisser Grenzen nimmt die DRK-Anfälligkeit mit ansteigenden ECP, Sulfat-Gehalt der Umgebung und Schwefel-Gehalt des Stahls zu. Unter stark oxidierenden Bedingungen ($\text{ECP} > 100 \text{ mV}_{\text{SWE}}$) wurde in allen Werkstoffen (RDB-Grundwerkstoff und Schweissgut) ein Maximum der DRK-Anfälligkeit bei mittleren Temperaturen ($\approx 200 - 250 \text{ }^\circ\text{C}$) und sehr niedrigen Dehnrates ($10^{-6} - 10^{-4} \text{ s}^{-1}$) beobachtet. Die DRK-Risswachstumsraten waren für alle Werkstoffe sehr ähnlich und nahmen mit ansteigender Dehnrates und ansteigender Temperatur zu, mit einem Maximum/Plateau bei/oberhalb von $250 \text{ }^\circ\text{C}$.

Unter simulierten transienten SWR-Betriebsbedingungen wurden im Beanspruchungsgeschwindigkeitsbereich dK_I/dt von 0.1 bis $500 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}/\text{h}$ bei hohen Korrosionspotentialen ($\text{ECP} \geq 150 \text{ mV}_{\text{SWE}}$) und ausreichend hohen Spannungsintensitätsfaktoren ($K_I > 30 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$) hohe DRK-Risswachstumsraten von 10^{-9} m/s (30 mm/Jahr) bis $8 \cdot 10^{-7} \text{ m/s}$ (25000 mm/Jahr) beobachtet. Die zur Rissinitiation erforderlichen hohen Spannungsintensitätsfaktoren K_I von mindestens $30 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ entsprechen allerdings relativ tiefen Rissen im RDB mit Risslängen deutlich oberhalb der Nachweisgrenze der ZfP-Methoden. Wenn auch solch hohe Risswachstumsraten unter realen SWR-Bedingungen nur bedingt auftreten können, so helfen diese Ergebnisse mit, viele der aufgetretenen DRK-Schadenfälle zu verstehen. Insbesondere die Beobachtung, dass relativ wenige, kurzzeitige Transienten mit ausgeprägten thermomechanischen Zusatzbeanspruchungen ausreichend waren um relativ tiefe DRK-Risse in Rohrleitungen zu erzeugen [12, 32] sind in diesem Lichte nicht mehr überraschend.

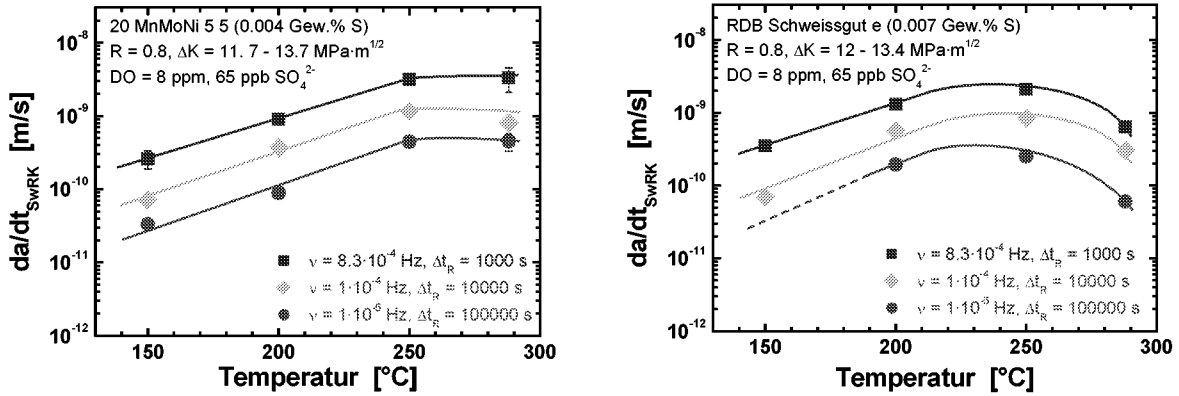
2.1.4 Schwingrisskorrosion (SwRK)

Das SwRK-Risswachstumsverhalten der RDB-Stähle a, b, c und des Schweissgutwerkstoffes e werden im Rahmen einer Parameterstudie systematisch untersucht. Hierzu werden lastgesteuerte, niederzyklische SwRK-Versuche mit konstanter Lastamplitude in sauerstoffhaltigem Heisswasser durchgeführt. Es wird jeweils eine sägezahnförmige Belastung verwendet. Temperatur, Belastungsfrequenz, Spannungsverhältnis R und Schwingbreite des Spannungsintensitätsfaktors ΔK werden dabei systematisch variiert.

2.1.4.1 Einfluss von Temperatur und Frequenz

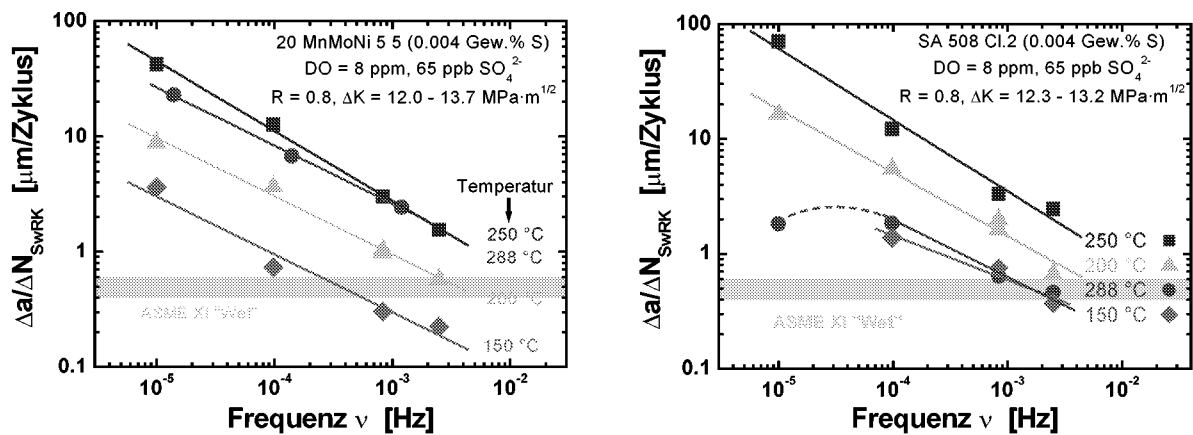
Der Einfluss der Temperatur und Frequenz wurde bei einem Spannungsverhältnis R von 0.8 und einer Schwingbreite des Spannungsintensitätsfaktors ΔK von $12 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ in sauerstoffhaltigem Heisswasser untersucht.

Für alle Werkstoffe und Belastungsfrequenzen stiegen sowohl der Rissfortschritt pro Schwingzyklus $\Delta a/\Delta N_{\text{SwRK}}$ als auch die Risswachstumsrate da/dt_{SwRK} mit ansteigender Temperatur von 150 bis $250 \text{ }^\circ\text{C}$ an. In den RDB-Werkstoffen a und c änderte sich die Risswachstumsraten bei einem weiteren Anstieg der Temperatur auf $288 \text{ }^\circ\text{C}$ nicht mehr wesentlich. Im RDB-Werkstoff b und dem Schweissgut e wurde ein Maximum der SwRK-Risswachstumsrate bei $250 \text{ }^\circ\text{C}$ beobachtet, darüber fiel die Risswachstumsrate wieder ab. Dieses Verhalten ist beispielhaft in Figur 5 für Legierung a und das Schweissgut e dargestellt. Im Temperaturbereich von 150 bis $250 \text{ }^\circ\text{C}$ wurde für das SwRK-Risswachstum eine Arrhenius-Aktivierungsenergie zwischen 40 und 50 kJ/mol für die unterschiedlichen Temperaturen und Belastungsfrequenzen berechnet.



Figur 5: Einfluss der Temperatur auf das SwRK-Risswachstum bei unterschiedlichen Frequenzen im RDB-Stahl a und im Schweissgut e.

Für alle Werkstoffe und fast alle Temperaturen nahm der Rissfortschritt pro Schwingzyklus $\Delta a/\Delta N_{\text{SWRK}}$ mit abnehmender Belastungsfrequenz zu, während die SwRK-Risswachstumsrate da/dt_{SWRK} mit absteigender Frequenz wie erwartet abnahm. Nur bei 288 °C wurde in den RDB-Werkstoffen b, c und dem Schweissgut e sowie bei 250 °C in Legierung c kein weiterer Anstieg des Rissfortschritt pro Schwingzyklus $\Delta a_{\text{EAC}}/\Delta N$ bei einer Reduktion der Belastungsfrequenz von 10^{-4} auf 10^{-5} Hz beobachtet. Stabiles, stationäres SwRK-Risswachstum wurde bis zu sehr niedrigen Frequenzen von 10^{-5} Hz hinab beobachtet. Der Einfluss der Belastungsfrequenz ist beispielhaft für die RDB-Werkstoffe a und b in Figur 6 dargestellt. Zusätzlich ist auch die ASME XI SwRK-Risswachstumsrate aus dem ASME BVP Regelwerk [33] für entsprechende Belastungsbedingungen eingetragen. Die ASME XI-Risswachstumsraten werden dabei für Belastungsfrequenzen $\leq 10^{-3}$ Hz und Temperaturen > 150 °C deutlich überschritten.



Figur 6: Einfluss der Belastungsfrequenz auf den korrosionsgestützten Rissfortschritt pro Zyklus $\Delta a/\Delta N_{\text{SWRK}}$ bei unterschiedlichen Temperaturen im RDB-Stahl a und b.

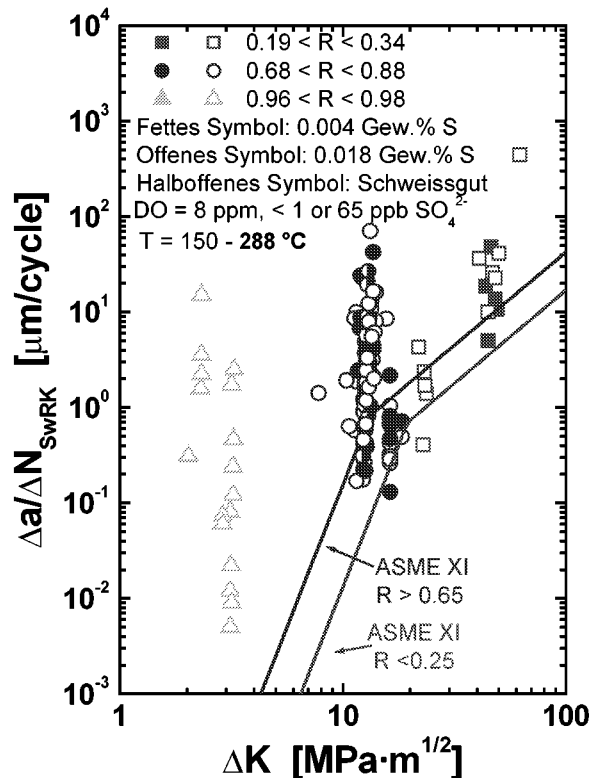
Im Gegensatz zur Ermüdungsrisswachstum wird bei der SwRK ein ausgeprägter Einfluss der Belastungsfrequenz beobachtet. Das Risswachstum setzt sich hier aus dem rein mechanischen und dem korrosionsgestützten Risswachstum zusammen. Ersteres ist rein zyklisch kontrolliert, während letzteres primär ein zeitabhängiger Prozess ist, der nur während der Lastanstiegsphase mit positiver (Zug) Rissspitzendehnrates und bei Zutritt des Mediums zum Risskanal (ausreichende Rissöffnung) auftritt. Wie in Figur 3 gezeigt wurde, hängt die Geschwindigkeit des korrosionsgestützten Risswachstums und somit auch der gesamte Rissfortschritt pro Zyklus stark von der Dehnrates (bzw. Belastungsfrequenz)

ab. Bei niederfrequenter Belastung ($\leq 10^{-3}$ Hz) und stark oxidierenden Bedingungen ist der Beitrag des korrosionsgestützten Risswachstums zwischen 10 bis 1000 mal grösser als der Beitrag durch die rein mechanische Ermüdung (Figur 8).

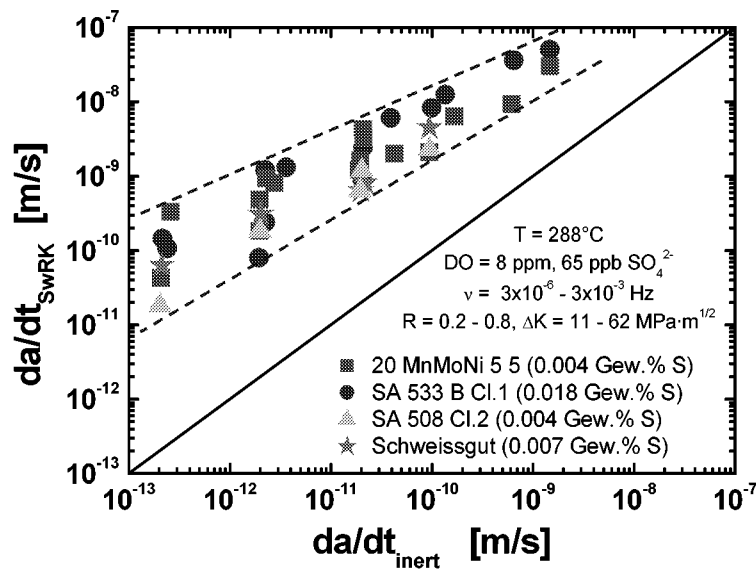
2.1.4.2 Einfluss der Belastungsbedingungen

Weitere SwRK-Versuche wurden bei verschiedenen Spannungsverhältnissen R (und Schwingbreiten des Spannungsintensitätsfaktors ΔK) von 0.2 bis 0.34 (22.9 bis 64.4 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$), 0.7 bis 0.88 (7.8 bis 18.4 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$) und 0.96 bis 0.98 (2.3 bis 3.2 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$) in sauerstoffhaltigem Heisswasser (8 ppm O_2 , < 1 oder 65 ppb SO_4^{2-}) bei Temperaturen zwischen 150° und 288 °C durchgeführt. In Figur 7 sind die entsprechenden Rissfortschritte pro Zyklus $\Delta a/\Delta N$ gegen die aufgeprägte Schwingbreite des Spannungsintensitätsfaktors ΔK aufgetragen und mit den entsprechenden ASME-XI-Risswachstumskurven aus dem ASME BPV Regelwerk [33] verglichen. Wie erwartet nimmt $\Delta a/\Delta N$ mit zunehmendem ΔK für alle Bedingungen zu. Die Rissfortschritte pro Zyklus überschreiten dabei bei allen Temperaturen sowohl in den RDB-Stählen mit niedrigem und hohem Schwefel-Gehalt als auch im Schweissgut sowie bei hohen und niedrigen R -Werten die entsprechenden ASME-XI-Risswachstumskurven deutlich um einen Faktor 2 bis 50. Werte unterhalb der entsprechenden ASME-XI-Risswachstumskurven wurden nur bei Belastungsfrequenzen $\geq 10^{-3}$ Hz beobachtet. Die Abweichung von der ASME XI-Risswachstumskurve nimmt dabei mit abnehmender Frequenz, zunehmendem Spannungsverhältnis R sowie zunehmender Temperatur (mit einem Maximum bei 250 °C) zu.

In Figur 8 sind die SwRK-Risswachstumsraten da/dt_{SwRK} gegen die entsprechenden Ermüdungsrisswachstumsraten da/dt_{inert} an Luft unter ansonsten identischen Belastungsbedingungen für eine Temperatur von 288 °C aufgetragen. Man erkennt wie die umgebungsbedingte Beschleunigung des Ermüdungsrisswachstums mit abnehmender Belastungsfrequenz und zunehmendem Spannungsverhältnis R ansteigt. Das sauerstoffhaltige Heisswasser führt hier je nach Belastungsbedingungen zu einer 10 bis 1000-fachen Beschleunigung des Ermüdungsrisswachstums.



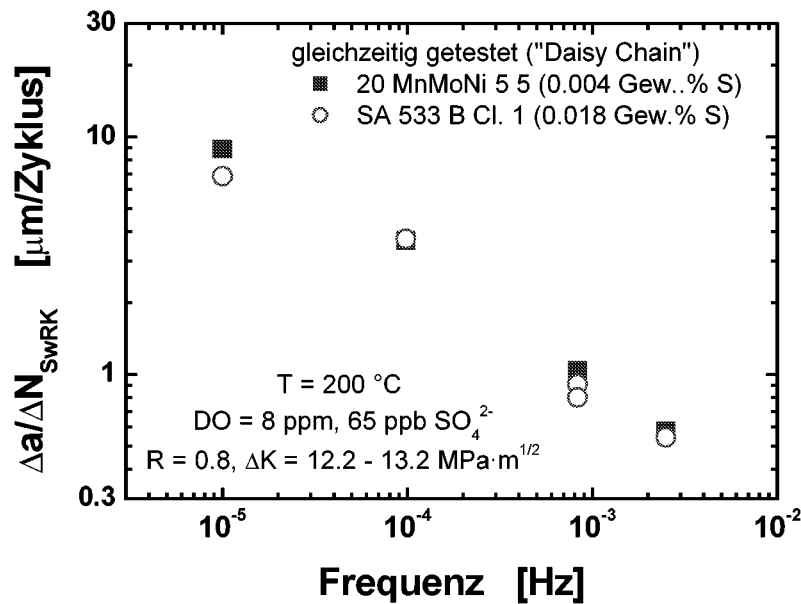
Figur 7: Korrosionsgestützter Rissfortschritt pro Zyklus $\Delta a/\Delta N_{\text{SwRK}}$ in Abhängigkeit der aufgeprägten Schwingbreite des Spannungsintensitätsfaktors ΔK für verschiedene Spannungsverhältnisse R . Zum Vergleich sind die Referenzrisswachstumskurven aus dem ASME BPV Regelwerk (Appendix A, Section XI) eingetragen.



Figur 8: Vergleich der SwRK-Risswachstumsraten da/dt_{SwRK} von verschiedenen RDB-Stählen und Schweissgutwerkstoffen bei unterschiedlichen Belastungsbedingungen in sauerstoffhaltigem Heisswasser bei 288 °C. Die SwRK-Risswachstumsraten da/dt_{SwRK} sind dabei gegen die Ermüdungsrisswachstumsrate da/dt_{inert} an Luft unter ansonsten identischen Bedingungen aufgetragen.

2.1.4.3 Einfluss der Material-Parameter

Unter diesen stark oxidierenden Umgebungsbedingungen zeigten sowohl die RDB-Stähle mit niedrigem und hohem Schwefel-Gehalt als auch das Schweissgut über einen weiten Bereich von Belastungsbedingungen (Frequenz, R , ΔK) ein vergleichbares SwRK-Risswachstumsverhalten. Dies ist beispielhaft für eine Temperatur von 288 °C in Figur 8 dargestellt. Die SwRK-Risswachstumsraten aller Werkstoffe liegen über einen weiten Belastungsbereich in einem schmalen Streuband von weniger als einer Grössenordnung. Weder der Schwefel-Gehalt (Figur 9) noch die Mikrostruktur (Figur 8) haben unter diesen Bedingungen einen starken Einfluss auf das SwRK-Risswachstum. Das vergleichbare Verhalten ist primär auf die stark oxidierenden Umgebungsbedingungen zurückzuführen, welche zu einer starken Anreicherung von Schwefel-haltigen Anionen durch Migration im Bereich des Rissspitzenelektrolyts führen, so dass bei allen Werkstoffen die kritische Konzentration überschritten wird.

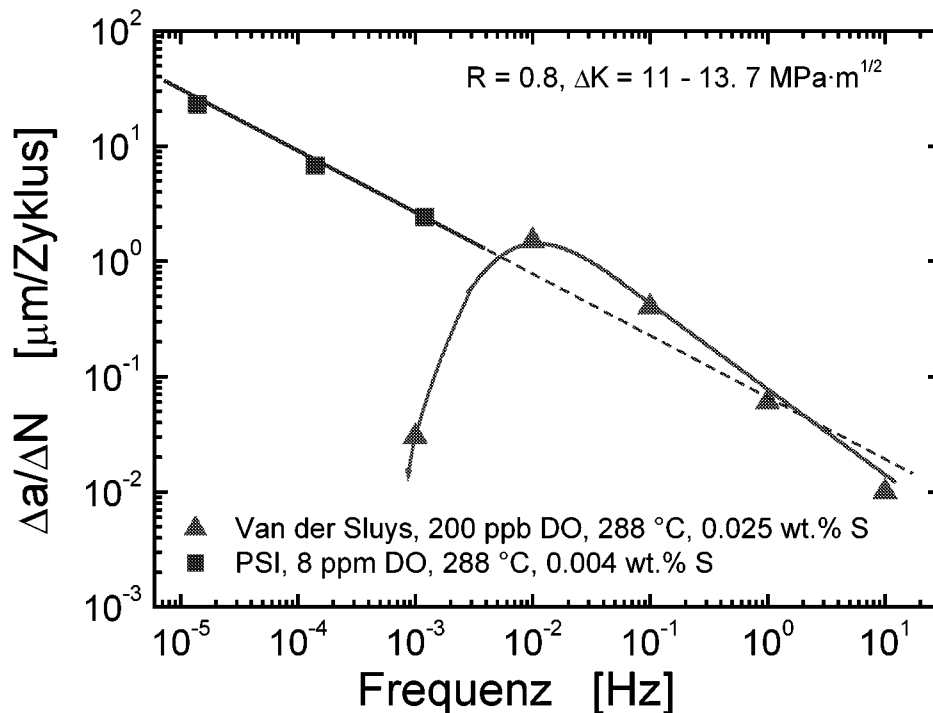


Figur 9: Vergleich des korrosionsgestützten Rissfortschritts pro Zyklus $\Delta a / \Delta N_{\text{SwRK}}$ für zwei gleichzeitig in sauerstoffhaltigem Heisswasser bei 200 °C getestete RDB-Stähle mit niedrigem (Legierung a) und hohem Schwefel-Gehalt (Legierung c).

2.1.4.4 Vergleich mit Literaturdaten

In der Literatur findet man nur sehr wenige Untersuchungen unter vergleichbaren Umgebungs- und Belastungsbedingungen. Vergleichbare Temperaturtrends und SwRK-Risswachstumsraten wie am PSI wurden in sauerstoffhaltigem Heisswasser bei 8 ppm O₂ in Untersuchungen von Siemens KWU bei einer Frequenz von $3 \cdot 10^{-3}$ Hz beobachtet [34]. In allen bisherigen SwRK-Untersuchungen unter DWR- und SWR-Bedingungen [26] wurde bis zu einer kritischen Frequenz hin ein Anstieg des Rissfortschritts pro Zyklus mit abnehmender Belastungsfrequenz mit einer ähnlichen Steigung wie in den PSI-Untersuchungen beobachtet. Unterhalb dieser kritischen Frequenz fällt der Rissfortschritt pro Zyklus mit abnehmender Frequenz wieder auf entsprechende Werte in inerter Umgebung ab. Die kritische Frequenz scheint dabei mit ansteigendem Korrosionspotential abzunehmen.

Van der Sluys et al. [35] beobachteten unter simulierten SWR-Bedingungen eine Abnahme des Rissfortschritts pro Zyklus unterhalb einer kritischen Frequenz von ca. 10^{-3} bis 10^{-2} Hz. Die kritische Frequenz fiel mit ansteigender Schwingbreite ΔK und abnehmender Temperatur ab. Im Gegensatz zu diesem Verhalten, wurde am PSI unter vergleichbaren Belastungsbedingungen, stabiles stationäres SwRK-Risswachstum bis hinunter zu 10^{-5} Hz beobachtet. Zwar wurden das Korrosionspotential in den Untersuchungen von Van der Sluys nicht gemessen, aufgrund des geringeren Sauerstoffgehalts von 200 ppb (gegenüber 8 ppm am PSI) kann ein leicht tieferes Korrosionspotential ($-50\text{ mV}_{\text{SWE}}$ gegenüber $+150\text{ mV}_{\text{SWE}}$) erwartet werden, wenn auch dieser Aspekt durch den deutlich höheren Schwefel-Gehalt des Stahls (0.025 Gew.-% gegenüber 0.004 Gew.-% S) bis zu einem gewissen Grad kompensiert wird. In Figur 10 sind die PSI-Ergebnisse mit den entsprechenden Untersuchungen von Van der Sluys verglichen. Als wesentlicher Unterschied und wichtige neue Erkenntnis der PSI-Untersuchungen ist die Beobachtung zu werten, dass unter stark oxidierenden Bedingungen ($\text{ECP} \geq +100\text{ mV}_{\text{SWE}}$) bis hinunter zu sehr tiefen Frequenzen, stabiles SwRK-Risswachstum beobachtet wird. Unter oxidierenden SWR-Bedingungen sind deshalb auch unbedingt die niederfrequenten Belastungen bei Sturkturintegritätsbetrachtungen bezüglich der Risskorrosion zu berücksichtigen.

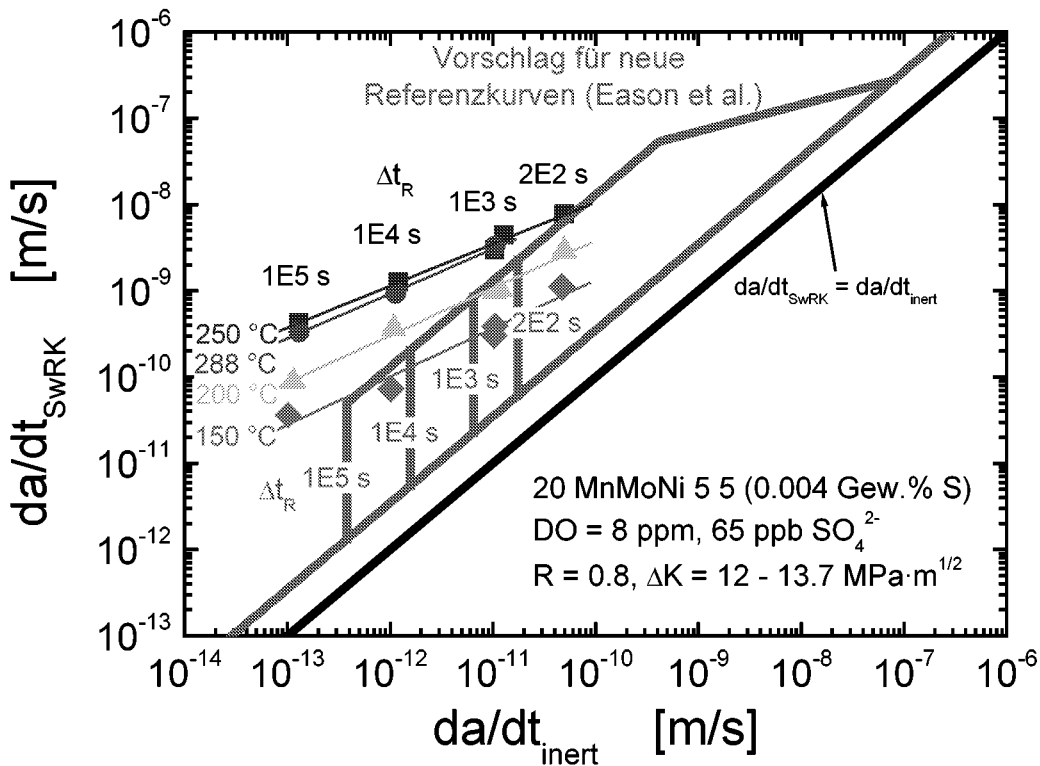


Figur 10: Beobachtete Frequenzabhängigkeit des korrosionsgestützten Rissfortschritts pro Zyklus $\Delta a/\Delta N_{\text{SwRK}}$ in Untersuchungen von Van der Sluys et al. [35] und des PSI. Im Gegensatz zu Van der Sluys wurde am PSI bis hinab zu sehr tiefen Frequenzen von 10^{-5} Hz stabiles SwRK-Risswachstum beobachtet.

2.1.4.6 Vergleich mit ASME XI

Wie in Figuren 6 und 7 zu erkennen ist, können die Referenz-Ermüdungsrisswachstumskurven bei Umgebungseinfluss des ASME BPV Regelwerkes (Section XI, Appendix A) [33] bei niederfrequenten Belastungen ($< 10^{-3}$ Hz) unter stark oxidierenden Bedingungen sowohl in RDB-Stählen mit niedrigem und hohem Schwefel-Gehalt als auch in Schweissgutwerkstoffen im Temperaturbereich zwischen 150 und 288 °C um einen Faktor 2 bis 50 überschritten werden. Die Abweichung von den Referenzrisswachstumskurven nimmt dabei mit abnehmender Frequenz und zunehmender Temperatur und Spannungsverhältnis zu.

Die heutigen ASME XI Ermüdungsreferenzrisswachstumskurven bei Umgebungseinfluss basieren auf experimentellen Ergebnissen, die vor 1980 erzeugt wurden. Die Kurven hängen explizit von der Schwingbreite des Spannungsintensitätsfaktors ΔK und vom Spannungsverhältnis R ab, nicht aber von anderen Faktoren, wie z. B. der Frequenz, die einen starken Einfluss auf die Risskorrosion ausüben können. In der Zwischenzeit wurden viele neue Forschungsprogramme zur SwRK durchgeführt. Basierend auf dieser erweiterten Datenbasis wurde durch Eason et al. [10, 11] ein Vorschlag für neue Referenzrisswachstumskurven ausgearbeitet, welcher den starken Einfluss der Belastungsfrequenz bzw. Dehnrate berücksichtigt. Die SwRK-Datensammlung für diesen Vorschlag ist aber immer noch relativ klein und basiert im wesentlichen auf Versuchen mit einem Korrosionspotential von $\leq +50 \text{ mV}_{\text{SWE}}$, Temperaturen von ca. 288 °C und Belastungsfrequenzen $\geq 5 \cdot 10^{-4}$ Hz [11]. Es besteht also weiterhin ein ausgeprägter Mangel an Daten für stark oxidierende Bedingungen ($> +100 \text{ mV}_{\text{SWE}}$), niedrige Belastungsfrequenzen $< 10^{-3}$ Hz, mittlere Temperatur von 150 bis 270 °C, aber auch für sehr hohe Spannungsverhältnisse $R \geq 0.95$. Der Mangel an Versuchsdaten unter diesen Kombinationen führt zu einer relevanten Unsicherheit bezüglich der Konservativität der neu vorgeschlagenen Referenzkurven. In Figur 11 sind die vorgeschlagenen Referenzkurven mit den Ergebnissen der SwRK-Versuche am PSI mit dem RDB-Stahl a mit niedrigem Schwefel-Gehalt verglichen. Die neu vorgeschlagenen Referenzkurven sind zwar konservativer als die bisherigen ASME XI-Kurven, können aber weiterhin bei niederfrequenter Belastung bei Frequenzen unterhalb von $8 \cdot 10^{-4}$ Hz und Temperaturen ≥ 150 °C deutlich überschritten werden.



Figur 11: Vergleich der in Legierung a beobachteten SwRK-Risswachstumsraten da/dt_{SwRK} mit den neu vorgeschlagenen Risswachstumsgrenzkurven nach Eason et al. [10] Die SwRK-Risswachstumsraten da/dt_{SwRK} sind dabei gegen die Ermüdungsrisswachstumsraten da/dt_{inert} an Luft unter ansonsten identischen Bedingungen aufgetragen. Auch die neuen Referenzkurven können bei niederfrequenter Belastung ($\leq 10^{-3}$ Hz) überschritten werden. (Δt_R : Zeitintervall für den Lastanstieg von der Unter- zur Oberlast).

2.1.5 Spannungsrissskorrosion (SpRK)

Im abgeschlossenen SpRKII-Projekt wurde in sauerstoffhaltigem Heisswasser bei allen untersuchten RDB-Grundwerkstoffen selbst bei 8 ppm O_2 und 65 ppb SO_4^{2-} bei einer Temperatur von 288 °C bis zu hohen Werten des Spannungsintensitätsfaktors nur eine äusserst geringe SpRK-Risswachstumsanfälligkeit beobachtet [1, 20]. Das SpRK-Risswachstum klang innerhalb einer kurzen Zeitdauer nach der Lastaufbringung oder nach dem Wechsel von zyklischer zu konstanter Last kontinuierlich ab und kam typischerweise innerhalb von 100 bis 1000 h zum Stillstand. Schnelles, langanhaltendes Risswachstum konnte nur bei extrem hohen Belastungen nahe dem K_{Ij} -Wert oder bei stark verunreinigtem Kühlmittel (ausserhalb des EPRI Action Level 3, wo eine Schnellabschaltung des Reaktors empfohlen wird) nicht ausgeschlossen werden [1, 20]. Der konservative Charakter der BWR VIP 60 SpRK-Grenzkurven [36] wurde im Rahmen dieser Untersuchungen für den RDB-Grundwerkstoff und den stationären SWR-Leistungsbetrieb bei heutiger Wasserchemiefahrweise (EPRI- oder VGB-Richtlinien) durch zahlreiche Laborexperimente weiter bestätigt.

Der Einfluss der Temperatur und kleiner Belastungsfluktuationen bei hohem Spannungsverhältnis ($R > 0.95$) auf das SpRK-Risswachstum verschiedener RDB-Grundwerkstoffe wurde im Rahmen des BFE-Jahresberichtes 2000 [27] eingehend diskutiert. Diese ersten orientierenden Untersuchungen zeigten klar, dass die SpRK-Grenzkurven sowohl bei niederfrequenten, sehr kleinen Lastfluktuationen bei hohem Spannungsverhältnis („Ripple Loading“) als auch bei mittleren Temperaturen (200 – 250 °C) für RDB-Stähle, die eine ausgeprägte Anfälligkeit für DSA zeigen, überschritten werden können.

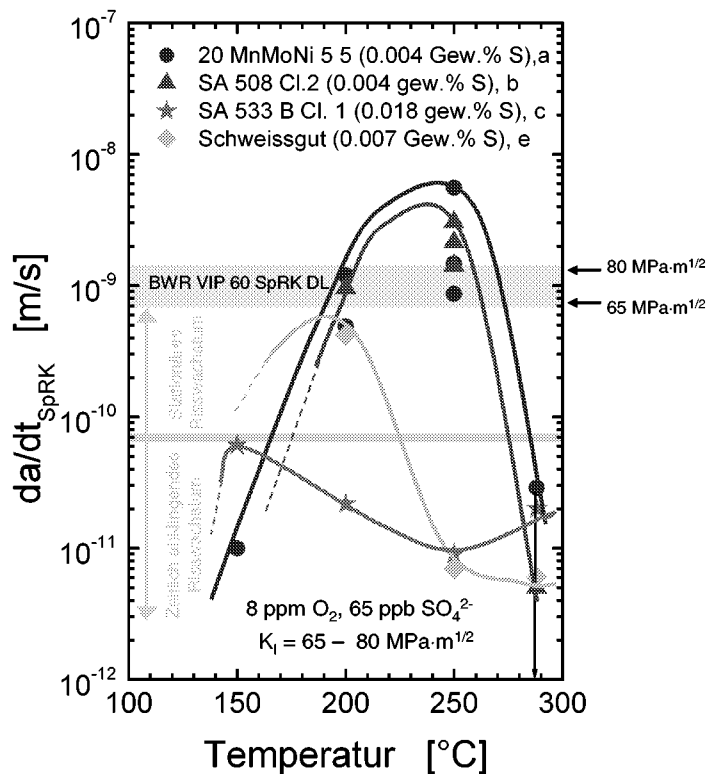
Im folgenden werden die neuen Resultate zum Einfluss von Temperatur, Mikrostruktur und bei periodischer Teillastung vertieft diskutiert.

2.1.5.1 Einfluss der Temperatur

Der Einfluss der Temperatur auf das SpRK-Risswachstum wurde in weiteren Versuchen mit dem RDB-Stahl b mit niedrigem S- und Al-Gehalt sowie mit dem Schweissgut e mit mittlerem S- und sehr tiefem Al-Gehalt in Heisswasser mit einem Sauerstoff- und Sulfatgehalt von 8 ppm bzw. 65 ppb untersucht. Das Korrosionspotential nahm hierbei leicht von +250 mV_{SWE} bei 150 °C auf +130 mV_{SWE} bei 288 °C ab. Durch eine sägezahnförmige, zyklische Belastung bei einer Frequenz von $8 \cdot 10^{-4}$ Hz und einem Spannungsverhältnis R von 0.8 wurde jeweils vor der Versuchsphase unter konstanter Last ein aktiv wachsender Korrosionsriss (3 bis 300 mm/Jahr) erzeugt.

Der RDB-Stahl b mit niedrigem S- und Al-Gehalt zeigte dabei sowohl bei 200 und 250 °C stabiles, stationäres SpRK-Risswachstum mit Risswachstumsraten von bis zu $3 \cdot 10^{-9}$ m/s (95 mm/Jahr) bei einem relativ hohen K_I -Wert von 75 MPa·m^{1/2}. Bei 288 °C hingegen wurde eine extrem geringe SpRK-Anfälligkeit mit sehr geringen SpRK-Risswachstumsraten (< 0.6 mm/Jahr) beobachtet. Im Schweissgut e wurde trotz des relativ hohen K_I -wertes sowohl bei 288 und 250 °C nur eine geringe SpRK-Anfälligkeit mit Risswachstumsraten < 0.6 mm/Jahr beobachtet. Bei 200 °C wurde dagegen stabiles, stationäres SpRK-Risswachstum von $4.2 \cdot 10^{-10}$ m/s (13 mm/Jahr) bei einem K_I -Wert von 66 MPa·m^{1/2} festgestellt. Die entsprechenden Versuche bei 150 °C sind zur Zeit noch im Gange.

Bei mittleren Temperaturen von 200 – 250 °C zeigten die beiden RDB-Stähle mit niedrigem S- und Al-Gehalt (Legierung a und b) sowie das Schweissgut e mit mittlerem S- und sehr tiefem Al-Gehalt ein Maximum in der SpRK-Anfälligkeit mit Risswachstumsraten im Bereich und knapp oberhalb der BWR VIP 60 SpRK-Grenzkurve [36], während im RDB-Stahl c mit hohem S- und Al-Gehalt über den Temperaturbereich von 150 – 288 °C das gleichartige Verhalten wie bei 288 °C mit zeitlich abklingendem SpRK-Risswachstum mit extrem geringen Risswachstumsraten (< 0.6 mm/Jahr) beobachtet wurde. Die Ergebnisse bei 150 und 288 °C liegen dagegen für alle Werkstoffe deutlich unter dieser Grenzkurve. Die unterschiedliche Temperaturabhängigkeit der verschiedenen Legierungen ist in sauerstoffhaltigem Heisswasser bei hohen K_I -Werten von 65 - 80 MPa·m^{1/2} in Figur 12 zusammengestellt.



Figur 12: Einfluss der Temperatur auf das SpRK-Risswachstum in sauerstoffhaltigem Heisswasser in den RDB-Stählen a, b und c sowie im Schweissgutwerkstoff e.

Als mögliche Ursache für das Maximum der SpRK-Anfälligkeit bei mittleren Temperaturen wird die DSA betrachtet. Bei gleichem Gesamtgehalt an N kann der niedrige Al-Gehalt in Legierung a, b und e zu einer erhöhten Konzentration von interstitiell gelöstem N führen. In Messungen der inneren Reibung und in Zugversuchen bei verschiedenen Temperaturen

und Dehnraten wurden in allen Materialien Anzeichen für eine DSA-Anfälligkeit beobachtet, also auch im RDB-Stahl c mit hohem Al-Gehalt, welcher über den ganzen Temperaturbereich eine geringe SpRK-Anfälligkeit aufweist (Kap. 2.2). Die DSA-Anfälligkeit dieses Materiales ist primär auf einen hohen Gehalt an interstitiellem C zurückzuführen. Die geringe SpRK-Anfälligkeit dieses Materials bei mittleren Temperaturen muss durch weitere Versuche überprüft werden.

2.1.5.2 Einfluss der Mikrostruktur

Ein bainitisches (Standard), ferritisches-perlitisches (Gleichgewicht) und martensitisches Gefüge wurden im Stahl mit hohem Schwefel-Gehalt (Legierung c) durch verschiedene Wärmebehandlungen erzeugt. Die unterschiedlichen Gefüge und Wärmebehandlungen sind in Tabelle 5 miteinander verglichen.

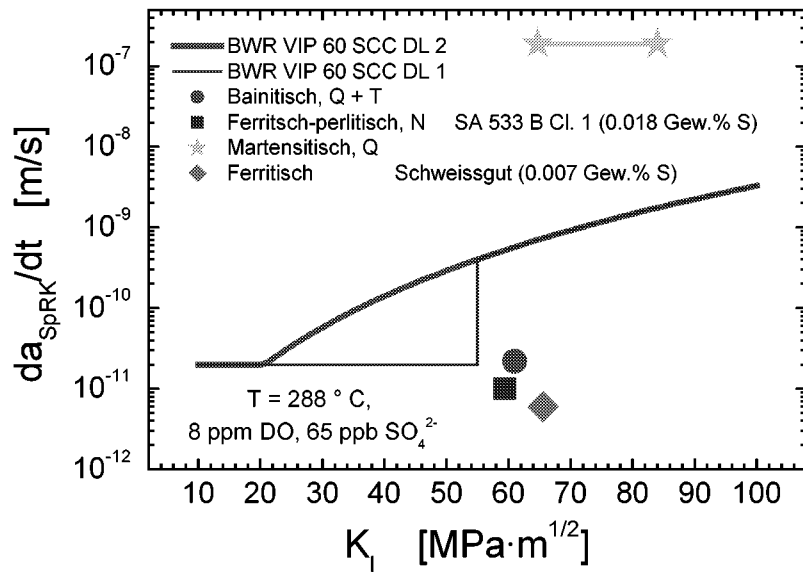
1.1.1.1 Legierung c, SA 533 B Cl. 1, 0.018 Gew.% S			
Parameter	Q + T	N	Q
Wärmebehandlung	915 °C/12 h/ 860 °C/12 h/WQ 635 °C / 12 h / FQ	900 °C / 30 min / FQ	900 °C / 30 min / WQ
Mikrostruktur	bainitisch	ferritisch-perlitisch	martensitisch
Vickershärte	197 HV10	260 HV10	466 HV10
$R_P^{288\text{ °C}}$	411 MPa	577 MPa	960 MPa
Korngrösse	16 μm	15 μm	-

WQ: abgeschreckt in Wasser, FQ: abgekühlt im Ofen

Tabelle 5: Angewandte Wärmebehandlung und resultierende Gefüge in Legierung c.

Da die Morphologie der MnS-Einschlüsse durch die angewandten Wärmebehandlungen unverändert bleibt kann die unterschiedliche EAC-Anfälligkeit auf die unterschiedliche Mikrostruktur und Streckgrenze zurückgeführt werden. Unter langsam, monoton ansteigender Last in sauerstoffhaltigem Heisswasser (8 ppm O_2 , 65 ppb SO_4^{2-}) bei 288 °C wurde im martensitischen Gefüge eine deutlich höhere DRK-Anfälligkeit und höhere DRK-Risswachstumsraten beobachtet als im bainitischen und ferritisch-perlitischen Gefüge, welche beide ein vergleichbares DRK-Verhalten zeigten [27]. Unter konstanter Last trat in sauerstoffhaltigem Heisswasser (8 ppm O_2 , 65 ppb SO_4^{2-}) bei 288 °C beim martensitischen Gefüge schnelles, stabiles SpRK-Risswachstum im Bereich von $2 \cdot 10^{-7}$ m/s (6300 mm/Jahr) auf, während das SpRK-Risswachstum bei den beiden anderen Gefügen sehr rasch abklang und Risswachstumsraten $< 2 \cdot 10^{-11}$ m/s (0.6 mm/Jahr) beobachtet wurden. Bei 288 °C zeigte sowohl das ferritisch-perlitische als auch das ferritische Gefüge des RDB-Schweissguts e dasselbe SpRK-Verhalten wie das für den RDB-Grundwerkstoff charakteristische bainitische Gefüge (siehe Figur 13). Schwefel-Gehalt und Orientierung der Proben zeigten hier zudem keinen erkennbaren Einfluss auf das SpRK-Risswachstum, was primär auf die extrem geringe SpRK-Anfälligkeit unter diesen Bedingungen zurückgeführt werden kann [1]. In Figur 13 sind die SpRK-Risswachstumsraten für die unterschiedlichen Gefüge bei vergleichbaren K_I -Werten mit den BWR VIP 60 SpRK-Grenzkurven verglichen. Nur bei einem martensitischen Gefüge wurden unter diesen Bedingungen die Grenzkurven überschritten.

Zwar tritt ein martensitisches Gefüge in ordnungsgemäss hergestellten und wärmebehandelten RDBs nicht auf, aber im Bereich der WEZ beobachtet man in der am stärksten aufgehärteten Zone einen sehr engen Bereich mit einer ähnlichen Mikrostruktur, wobei dessen Härte durch die Spannungsarmglühung knapp unterhalb der Anlasstemperatur auf Werte < 350 HV beschränkt ist. Die Ergebnisse weisen aber auf die Notwendigkeit von SpRK- und DRK-Experimenten an WEZ von Schweißnähten hin. Solche Experimente mit der WEZ der Umfangsschweißnaht von Biblis C sind auf Ende dieses/Beginn des nächsten Jahres geplant.



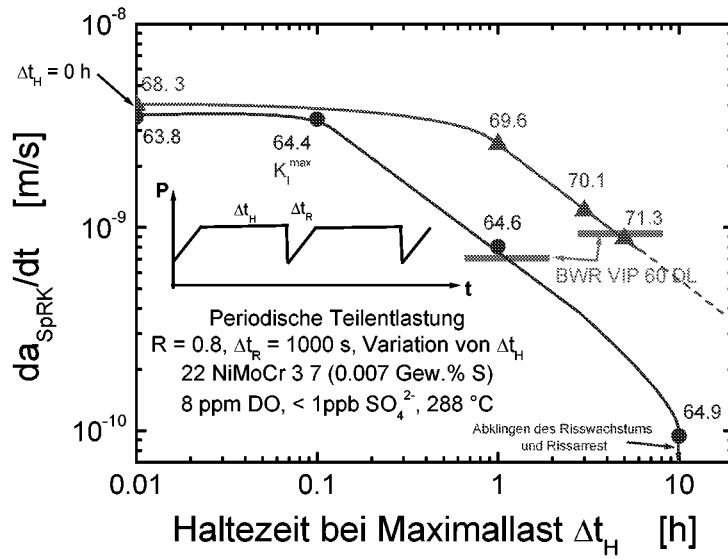
Figur 13: Einfluss der Mikrostruktur auf das SpRK-Risswachstum in sauerstoffhaltigem Heisswasser bei 288 °C. Die BWR VIP 60 SpRK-Grenzkurven wurden hier nur für das martensitische Gefüge überschritten.

2.1.5.3 Versuche mit periodischer Teilentlastung

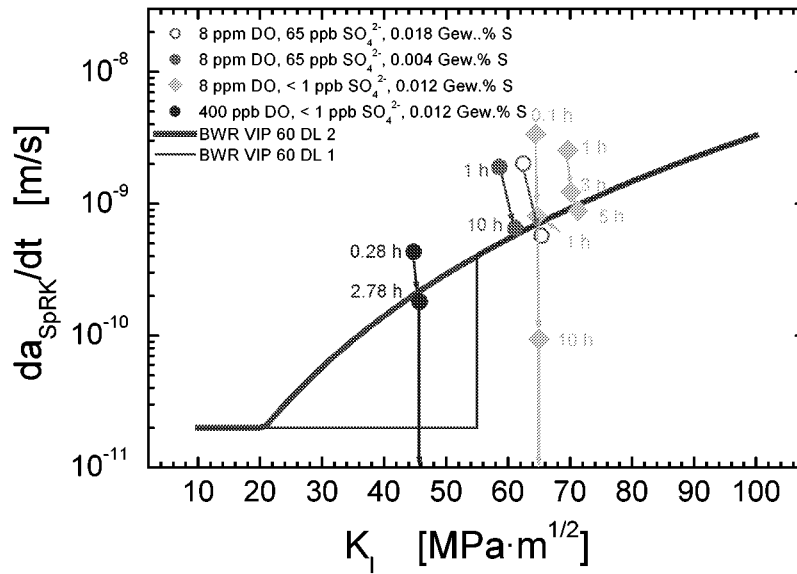
Bei einer Temperatur von 288 °C wurde bisher in sauerstoffhaltigem Heisswasser (8 ppm O_2 , $\text{ECP} = +150 \text{ mV}_{\text{SWE}}$) selbst bei einem Sulfatgehalt von 65 ppb unter rein statischer Belastung kein stabiles, langanhaltendes SpRK-Risswachstum beobachtet. Neben dem Einfluss kleiner Belastungsfluktuationen bei sehr hohem Spannungsverhältnis R [27] wurde deshalb auch der Einfluss einer periodischen Teilentlastung in ersten orientierenden Experimenten untersucht. In periodischen Abständen wurden die Proben in 200 s auf 80% der Maximallast teilentlastet und danach sofort wieder in 1000 s auf die Maximallast belastet. Zwischen diesen Teilentlastungen wurde die Last für eine bestimmte Haltedauer Δt_H konstant gehalten. Die Haltedauer wurde hierbei systematisch zwischen 0 h (Sägezahnbelastung) und 10 h (Trapezbelastung) variiert und die entsprechende SpRK-Risswachstumsrate da/dt_{SpRK} gemessen. Die SpRK-Risswachstumsraten bei sehr langen Haltedauern können als konservative Abschätzung für das SpRK-Risswachstum unter rein statischer Belastung bei gleichem K_I^{max} -Wert unter den Testbedingungen verwendet werden.

Figur 14 zeigt das Ergebnis eines solchen Versuches mit dem RDB-Stahl d in hochreinem Heisswasser (8 ppm O_2 , < 1ppb SO_4^{2-}) bei einer Temperatur von 288 °C für zwei verschiedene K_I^{max} -Werte bei Maximallast. Die K_I^{max} -Werte nehmen dabei unter konstanter Last mit zunehmender Risslänge leicht zu. Wie erwartet nahm die SpRK-Risswachstumsrate mit zunehmender Haltedauer bei Maximallast ab. Die Risswachstumsraten konvergierten jedoch zu langen Haltedauern hin nicht auf einen stabilen, von der Haltedauer unabhängigen Wert, der als konservative Abschätzung für das SpRK-Risswachstum unter konstanter Last verwendet werden könnte, sondern oberhalb von Haltedauern zwischen 3 h bis 10 h wurde jeweils ein Abklingen des Risswachstums und Rissarrest beobachtet.

In Figur 15 sind die in Versuchen mit Teilentlastung an verschiedenen RDB-Werkstoffen gemessenen SpRK-Risswachstumsraten mit den BWR VIP 60 SpRK-Grenzkurven verglichen. Man erkennt, dass je nach K_I^{max} -Wert und Werkstoff die SpRK-Risswachstumsraten bei Haltedauern oberhalb von 1 h bis 10 h unter die SpRK-Grenzkurve 2 fallen. Bei Haltedauern oberhalb von 3 bis 10 h wurde in Übereinstimmung mit bisherigen Untersuchungen unter konstanter Last stets ein Abklingen des Risswachstums und Rissarrest beobachtet. Der konservative Charakter dieser Grenzkurven bei 288 °C für den RDB-Grundwerkstoff bei statischer Belastung wurde deshalb durch diese Versuche weiter bestätigt.



Figur 14: Einfluss der Haltedauer Δt_H auf das SpRK-Risswachstum in Versuchen mit periodischer Teillastung in sauerstoffhaltigem Heisswasser.



Figur 15: Vergleich der in Versuchen mit periodischer Teillastung gemessenen Risswachstumsraten mit den BWR VIP 60 SpRK-Grenzkurven.

2.1.5.4 Zusammenfassung des bisher gewonnen Kenntnisstandes zur SpRK

Stabiles, stationäres SpRK-Risswachstum wurde unter folgenden Bedingungen beobachtet :

- $T \approx 288 \text{ °C}$:

- Niederfrequente ($10^{-2} - 10^{-4} \text{ Hz}$) Lastfluktuationen bei hohem R-Wert (>0.95) [27, 37].
- Periodische Teillastung mit Haltedauern $\leq 10 \text{ h}$.

- $K_I \rightarrow K_{II}$ Gew.% S \uparrow , DSA $\uparrow \rightarrow K_{II} \downarrow$ [1, 20].
- Belastung nahe der plastischen Grenzlast [1, 20].
- $SO_4^{2-} + Cl^- \geq \approx 500$ ppb (d.h. > EPRI Action Level 3) [1, 30].
- Martenistische Mikrostruktur, hohe Härte ($\geq \approx 350$ HV).

- **Mittlere Temperaturen (200 – 250 °C):** Bei Stahl mit ausgeprägter DSA-Anfälligkeit, d.h. mit hohem Gehalt an freiem N oder C [27, 37].

Ansonsten klang das SpRK-Risswachstum kontinuierlich ab und kam nach kurzer Zeit zum Stillstand oder es wurden nur sehr geringe SpRK-Risswachstumsraten im Bereich weniger hundert μ m pro Jahr beobachtet.

Unter gewissen Bedingungen („Ripple Load“, mittlere Temperaturen und Anfälligkeit für DSA) wurden selbst bei guter Reinheit des Heisswassers SpRK-Risswachstumsraten im Bereich oder z.T. leicht oberhalb der „BWR VIP 60 SpRK-Grenzkurve 2“ beobachtet. Es stellt sich deshalb die Frage nach der Konservativität der beiden Grenzkurven. Für den RDB im stationären SWR-Leistungsbetrieb liegen die Temperaturen typischerweise im Bereich von 270 – 290 °C und für die meisten Bereiche kann mit sehr guter Approximation eine statische Beanspruchung vorausgesetzt werden. Die Grenzkurven sind hier für den RDB-Grundwerkstoff konservativ und müssen noch für Schweissnaht und WEZ überprüft werden. Für den Speisewasserstutzen, wo deutlich tiefere Temperaturen bis hin zu 220 °C auftreten und zumindest temporär auch gewisse Belastungsflektuationen beobachtet werden, stellt sich die Frage, ob hier die Grenzkurven allenfalls korrigiert werden müssen.

2.2 Experimentelle Untersuchungen zur Dynamischen Reckalterung (DSA)

2.2.1 Hintergrund

Unsere eigenen Untersuchungen deuten klar darauf hin, dass materialeitig neben dem Schwefelgehalt auch die Dynamische Reckalterung („Dynamic Strain Ageing“, DSA) einen starken Einfluss auf das Risskorrosionsverhalten niedriglegierter Druckbehälterstähle in Heisswasser, insbesondere auf deren Dehnraten- und Temperaturabhängigkeit, haben kann [13, 14] (siehe Abbildung 4). Die DSA wird in niedriglegierten Stählen im Temperaturbereich von 100 – 350 °C bei (plastischen) Dehnraten unterhalb von $10^{-2} s^{-1}$ beobachtet. Vergleichbare Temperatur/ Dehnraten-Verhältnisse treten in druckführenden Komponenten typischerweise während transienten SWR-Betriebszuständen, wie z. B. dem Anfahren/Abfahren einer Anlage, auf. Die Betriebstemperatur von druckführenden SWR-Komponenten (RDB: 270 – 290 °C, Speisewasserleitungssystem: 200 – 220 °C) liegen zudem im Bereich maximaler DSA-Effekte.

Phänomenologisch äussert sich die DSA in Zugversuchen in einem Maximum der Festigkeits- (R_m , R_p) und Minimum der Duktilitätswerte (Z , A_5) bei mittleren Temperaturen von ca. 200 – 250 °C. Ohne diesen Effekt nehmen die Festigkeits- und Duktilitätswerte bei Temperaturzunahme kontinuierlich ab bzw. zu. Des weiteren wird eine Zunahme (Abnahme) der Festigkeitswerte (Duktilitätswerte) mit abnehmender Dehnraten beobachtet (negative Dehnratenabhängigkeit), während ausserhalb des DSA-Bereichs genau die entgegengesetzten Effekte auftreten. In der Spannungs-Dehnungskurve werden in diesem Bereich oft periodisch meist sägezahnförmige Spannungsabfälle von bis zu 50 MPa, sogenannte „Serrations“ beobachtet (siehe Figur 16). In anfälligen Werkstoffen wird im DSA-Bereich ausserdem auch eine Verschlechterung der Ermüdungs- und Bruchzähigkeitseigenschaften beobachtet. Mikroskopisch äussert sich die DSA in einer starken Zunahme der Versetzungsdichte und starken Lokalisierung der plastischen Verformung. Die Abnahme der lokalen Bruchzähigkeit und insbesondere die starke Lokalisierung und Verstärkung der plastischen Verformung in der plastischen Zone vor der Risspitze und die damit einhergehende Erhöhung der Risspitzenverformung und –dehnraten sind vermutlich die Hauptgründe für den Einfluss der DSA auf das korrosionsgestützte Risswachstum [14, 20].

Das DSA-Verhalten niedriglegierter Stähle wird im wesentlichen durch den Gehalt an interstitiell gelöstem, freiem C und N bestimmt. Wegen seiner deutlich höheren Löslichkeit bei Raumtemperatur und seiner geringeren Tendenz Ausscheidungen während des Abkühlens oder Anlassens zu bilden, wurde bisher dem freien N eine stärkere Bedeutung zugeordnet. Der Effekt von C und N ist additiv und umso ausgeprägter, je grösser die Konzentration an freiem C und N ist. Der Gehalt an freiem C und N hängt vom Stahlherstellungsprozess (Al- oder Si-beruhigt), vom Wärmebehandlungszustand (Temperatur des Anlassens oder der Spannungsarmglühung) als auch von der chemischen Zusammensetzung (C_{tot} , N_{tot} , Al, Cr, Mo, V, O, etc.) des Stahles ab. Wichtig sind hier insbesondere der Gesamtgehalt an C und N, sowie Legierungselemente wie Al, Cr, Mo und V, die als starke Nitrid- und Karbidbildner wirken. Die Gehalte an freiem N und C sind nicht in den kerntechnischen Regelwerken spezifiziert. Unterschiedliche Gehalte an freiem C und N von ansonsten identischen niedriglegierten RDB-Stählen mögen deshalb ein weiterer Grund für die grosse Streuung der Riss-

korrosionsdaten, insbesondere für die unterschiedlichen Temperaturtrends, sein. Risskorrosion wird in niedriglegierten RDB-Stählen auch unter Temperatur-/Dehnraten-Bedingungen oder in Materialien beobachtet, wo keine oder nur geringe DSA-Effekte zu erwarten sind. DSA ist deshalb keine Voraussetzung für das Auftreten von Risskorrosion und sollte demnach als zusätzlicher Beitrag zum Risswachstumsprozess zusammen mit anodischer Auflösung und Wasserstoffversprödung betrachtet werden. Wegen des möglichen, starken Einflusses der DSA auf die Risskorrosion niedriglegierter RDB-Stähle unter SWR-Bedingungen, wurde das DSA-Verhalten der untersuchten Stähle eingehend charakterisiert. Hierzu wurde die Konzentration an interstitiell gelöstem N und der Gesamtgehalt an N in Zusammenarbeit mit Prof. Atkinson (Sheffield Hallam University) bestimmt. Das plastische Deformationsverhalten wurde am PSI in CERT-Zugversuchen an Luft charakterisiert. In Zusammenarbeit mit Prof. Hänninen (Helsinki University of Technology) wurde das DSA-Verhalten von ausgewählten Stählen weiter durch Messung der inneren Reibung („Internal Friction“) mittels eines Torsionspendel bestimmt. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen wurden an der „10th Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors“ publiziert [14]. Eine eingehende Diskussion dieser Ergebnisse, der metallphysikalischen Grundlagen der DSA sowie der möglichen Wechselwirkungen zwischen der DSA und der Risskorrosion findet sich im RIKORR-Zwischenbericht [20]. Im folgenden werden deshalb nur einige ausgewählte Ergebnisse beispielhaft dargestellt.

2.2.2 Charakterisierung des DSA-Verhaltens mittels Zugversuchen

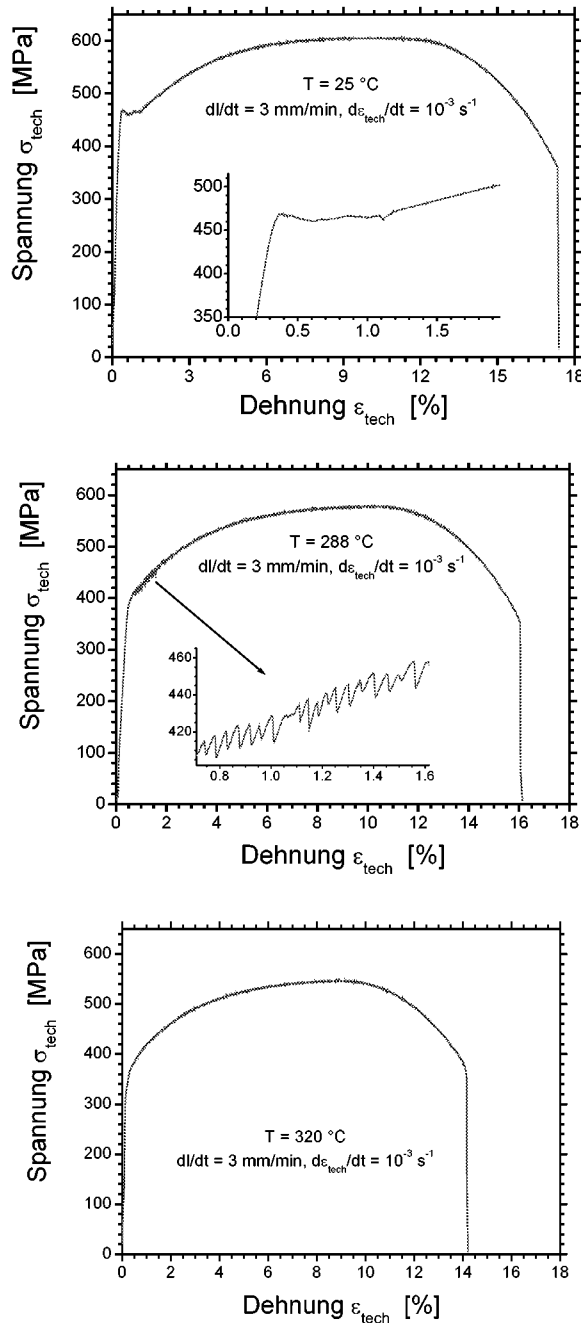
Das DSA-Verhalten der Legierungen a, c, d und des Schweissgutes e (siehe Tabelle 2 - 4) wurde in Zugversuchen an Luft bei Dehnraten zwischen $2 \cdot 10^{-6}$ und 10^{-2} s^{-1} im Temperaturbereich von 25 bis 350 °C charakterisiert. Die Versuche wurden weggesteuert in einer elektromechanischen Zugmaschine mit zylindrischen Rundzugproben mit einem Durchmesser von 5 mm und einer Messlänge von 50 mm durchgeführt. Die Verschiebung wurde mit einem optischen Extensometer an den Proben direkt gemessen. Die aufgeprägte konstante Abzugsgeschwindigkeit des Querhauptjochs resultierte in einer konstanten Dehnrate (technische Dehnung). Die Wärmebehandlung und ausgewählte chemische Elemente, welche einen starken Einfluss auf das DSA-Verhalten haben, sind in Tabelle 6 zusammengestellt.

Material	S [%]	C [%]	N _{tot} [ppm]	N _{frei} [ppm]	O [ppm]	Al [ppm]	Mn [%]	Wärmebehandlung
20 MnMoNi 5 5 a	0.004	0.21	70	30	140	130	1.26	910 - 920 °C / 6 h / Wasser / 640 - 650 °C / 9.5 h / Ofen
SA 508 Cl. 2 b	0.004	0.21	110	2		150	0.69	900 °C / 8 h / Wasser 600 °C / 9 h / Luft
SA 533 B Cl. 1 c	0.018	0.25	60	<1	20	300	1.42	915 °C / 12 h / 860 °C / 12 h / Wasser / 635 °C / 12 h / Ofen
22 NiMoCr 3 7 Biblis C Grundwerkstoff d	0.007	0.22	80	3		180	0.91	870 - 905 °C / 7 h / Wasser/ 635 - 655 °C / 11 h / Luft + PWHT
S3 NiMo 1 Biblis C Schweissgut e	0.007	0.05	110	16	260	53	1.19	PWHT: 540-555 °C / 59 h / 465 °C / 590 – 610 °C / 21 h / 465 °C / 590 - 605 °C / 11.5 h / Luft

Tabelle 6: Übersicht der untersuchten Werkstoffe: Wärmebehandlungen und ausgewählte Legierungselemente, die einen Einfluss auf das DSA-Verhalten ausüben können.

Die Spannungs-Dehnungskurven zeigten über den untersuchten Temperatur- und Dehnratenbereich ein komplexes Verhalten. In allen Werkstoffen wurden klare Anzeichen für DSA beobachtet, wenn auch in unterschiedlichem Masse. Die ausgeprägtesten Effekte traten bei der Zugfestigkeit und etwas weniger stark bei der Bruchdehnung auf. Bruchdehnung und Streckgrenze zeigten hingegen keine klar erkennbaren Trends oder die Effekte gingen innerhalb der typischerweise beobachteten Streubreite dieser Größen unter.

Figur 16 zeigt am Beispiel von Legierung d die unterschiedlichen Verläufe der Spannungs-Dehnungskurven bei verschiedenen Temperaturen. Bei tieferen Temperaturen ($T \leq 100 - 150 \text{ }^\circ\text{C}$) wurde in allen Materialien direkt oberhalb der Streckgrenze ein unterschiedlich stark ausgeprägtes Fließplateau, welches auf die statische Reckalterung zurückzuführen ist, mit Lüdersdehnungen von bis zu 2% beobachtet. In einigen Fällen wurde auch eine ausgeprägte obere und untere Streckgrenze beobachtet. Die Höhe des Fließplateaus und die Lüdersdehnung nahmen jeweils mit zunehmender Temperatur ab und verschwanden vollständig oberhalb von $150 \text{ }^\circ\text{C}$. Im untersuchten Dehnratenbereich wurden abrupte, sägezahnförmige Spannungsabfälle von 10 bis

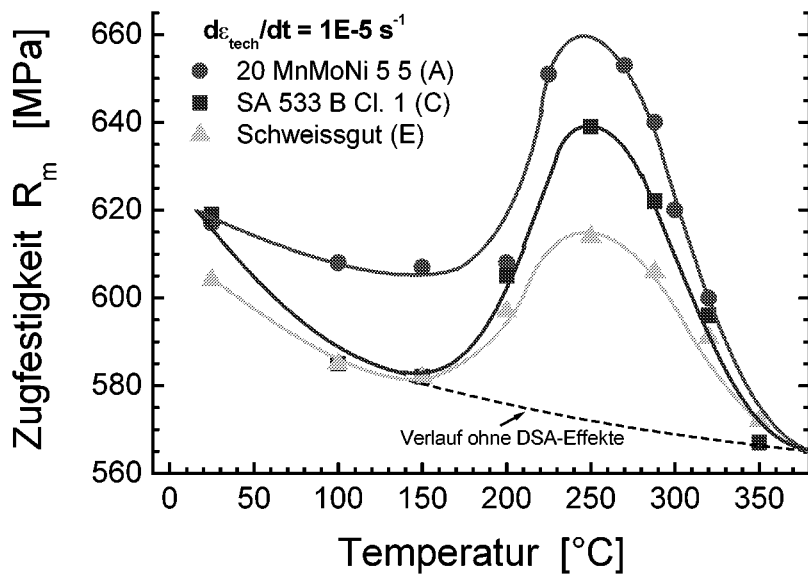


Figur 16: Typische Spannungs-Dehnungskurven aus Zugversuchen an Luft mit Legierung d bei einer Dehnrade von 10^{-3} s^{-1} bei 25, 288 und $320 \text{ }^\circ\text{C}$. Bei $25 \text{ }^\circ\text{C}$ sind ein Fließplateau und bei $288 \text{ }^\circ\text{C}$ sägezahnförmige Spannungsabfälle erkennbar, während bei $320 \text{ }^\circ\text{C}$ weder ein Fließplateau noch Spannungsabfälle beobachtet wurden.

30 MPa in den Spannungs-Dehnungskurven bei allen Materialien bei Temperaturen zwischen 200 und 250 °C (in einigen wenigen Fällen auch bei 288 °C) beobachtet. Die abrupten Spannungsabfälle erschienen jeweils direkt nach dem Überschreiten der Streckgrenze (→ sehr geringe kritische Dehnungen für DSA) und wurden z. T. bis hin zur Zugfestigkeit beobachtet. Oberhalb von 288 °C wurden weder Fließplateaus noch Spannungsabfälle beobachtet.

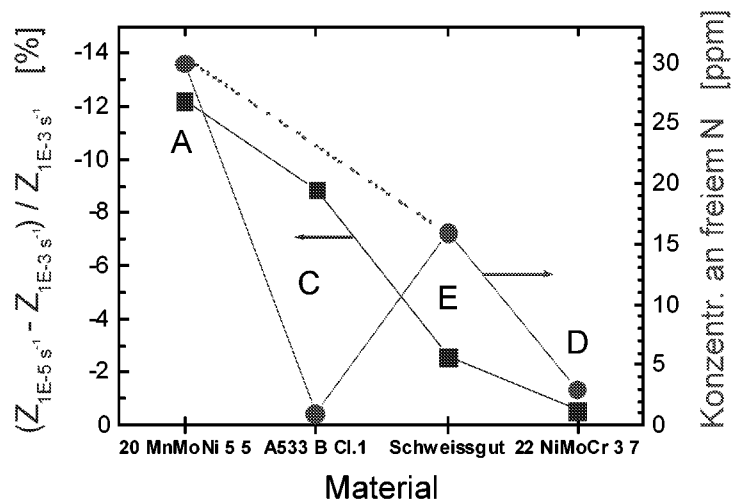
In Figur 17 sind der Verlauf der Zugfestigkeit in Abhängigkeit der Temperatur bei einer Dehnrate von 10^{-5} s^{-1} von Legierung a und c sowie vom Schweissgut e miteinander verglichen. Für alle Materialien wurde ein Maximum der Zugfestigkeit (und Minimum der Brucheinschnürung) bei ca. 250 °C beobachtet. Alle Werkstoffe zeigten die typischen Merkmale der DSA (Maximum/Minimum der Zugfestigkeit/Brucheinschnürung bei mittleren Temperaturen, negative Dehnratenabhängigkeit der Festigkeits- und Duktilitätswerte im DSA-Bereich, periodische Spannungsabfälle, usw.), allerdings mit unterschiedlichem Ausmass. Basierend auf der Änderung von Zugfestigkeit oder Brucheinschnürung nimmt die Anfälligkeit gegenüber DSA in der folgenden Reihenfolge ab:

20 MnMoNi 5 5 (a) > SA533 B Cl. 1 (c) > weld (e) > 22 NiMoCr 3 7 (d)



Figur 17: Verlauf der Zugfestigkeit in Abhängigkeit der Temperatur bei einer Dehnrate von 10^{-5} s^{-1} für Legierung a, c und das Schweissgut e. Der verschieden stark ausgeprägte Anstieg der Zugfestigkeit bei ca. 250 °C widerspiegelt die unterschiedliche DSA-Anfälligkeit der verschiedenen Werkstoffe. Ohne DSA-Effekte würde die Zugfestigkeit in etwa der gestrichelten Linie folgen.

Abgesehen von Legierung c, korreliert die DSA-Anfälligkeit der Werkstoffe sehr gut mit der gemessenen Konzentration an interstitiell gelöstem N (Figur 18). Die ausgeprägte DSA-Anfälligkeit in Legierung c ist vermutlich auf einen erhöhten interstitiellen Kohlenstoffgehalt aufgrund der hohen Kohlenstoffgesamtkonzentration zurückzuführen. Die beobachtete DSA-Anfälligkeit korrelierte weiterhin auch sehr gut mit der experimentell beobachteten DRK- und SpRK-Anfälligkeit dieser Werkstoffe bei mittleren Temperaturen [13, 14, 37] (siehe auch Figur 4 und 12).



Figur 18: Vergleich der Konzentration von interstitiell gelöstem Stickstoff mit der DSA-Anfälligkeit der Legierungen a, c, d und des Schweissgutes e. Die relative Änderung der Bruchdehnung bei einer Reduktion der Dehnrates von 10^{-3} auf 10^{-5} s^{-1} bei $250 \text{ }^\circ\text{C}$ kann dabei als Mass für die unterschiedliche DSA-Anfälligkeit der Legierungen a, c, d und des Schweissgutes e betrachtet werden.

2.2.3 Charakterisierung des DSA-Verhaltens mittels Messungen der inneren Reibung

Die Messung der inneren Reibung („Internal Friction, IF oder Q^{-1}) erfolgte an der Helsinki University of Technology mit ausgewählten Werkstoffen (Legierung a, c und Schweissgut e) mit einem invertierten Torsionspendel bei einer aufgeprägten Dehnrates von $5 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ und einer Heizrate von $1.5 \text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ zwischen RT und $450 \text{ }^\circ\text{C}$. Die Proben ($1.5 \times 0.8 \times 50 \text{ mm}$) wurden in L-Richtung gefertigt. Neben dem Ausgangszustand wurden die Werkstoffe auch mit und ohne Wasserstoffbeladung sowie bei unterschiedlichen Kaltverformungsgraden (Kaltwalzen bis zu 40 % Dickenreduktion) getestet, um die Verhältnisse in der plastischen Zone vor der Risspitze zu simulieren. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind eingehend in [14] diskutiert. Im folgenden sollen nur einige ausgewählte Beispiele gezeigt werden.

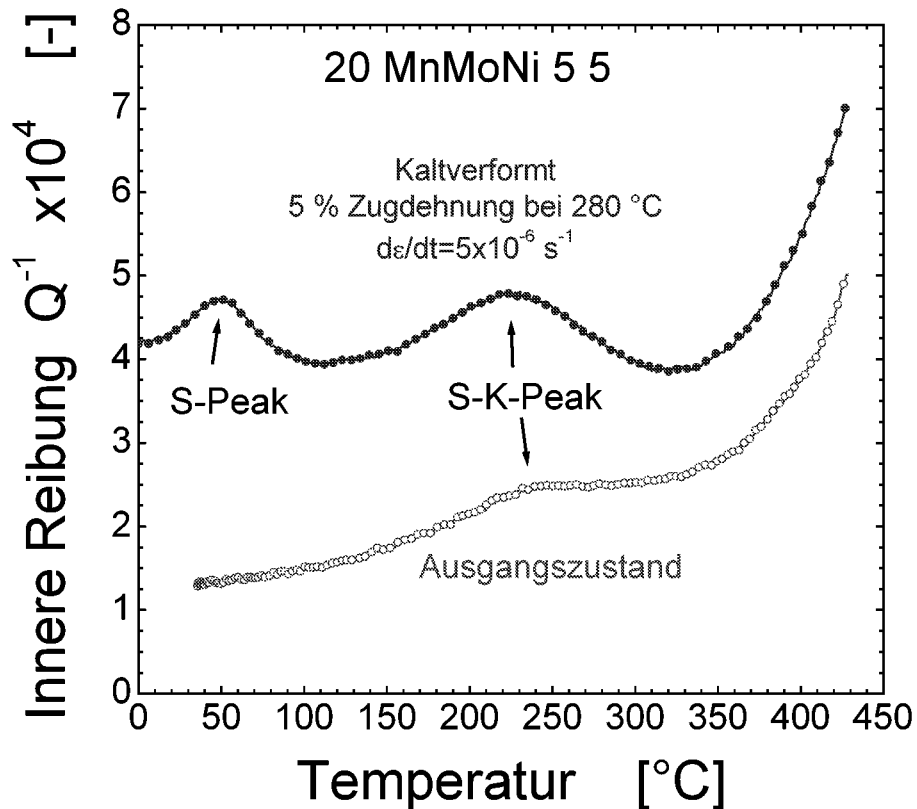
Bei einem Torsionspendel wird jeweils die Eigenschwingung des Systems angeregt und anschliessend die Dämpfung der freien Schwingung verfolgt. Aus dem Abklingen der Amplitude aufeinanderfolgender Schwingungen lässt sich der Energieverlust pro Schwingung (= innere Reibung) bestimmen. Durch unterschiedliche Pendelgewichte lassen sich unterschiedliche Eigenfrequenzen einstellen.

Figur 19 zeigt beispielhaft ein IF-Spektrum der Legierung a im Ausgangszustand und nach 5% Kaltverformung. In einem typischen IF-Spektrum ist die innere Reibung Q^{-1} als Mass für die Energiedissipation bei anelastischem Verhalten gegen die Temperatur aufgetragen. Aus der Lage und Grösse der Peaks sowie aus der Temperaturverschiebung von Peak-Maxima bei unterschiedlichen Frequenzen lassen sich Rückschlüsse bezüglich des Verhaltens von Zwischengitteratomen und ihrer Wechselwirkung mit Versetzungen ziehen. Ein typisches IF-Spektrum niedriglegierter Stähle enthält jeweils ein Snoek-Peak, welches mit der Umverteilung von C und N Zwischengitteratomen zwischen Oktaederlücken im kubischraumzentrierten Gitter erklärt wird. Die Höhe des Snoek-Peaks (S-Peak) ist ein Mass für die Konzentration von stochastisch im ganzen Gitter verteiltem interstitiellem C und N und kann deshalb auch als Mass für die DSA-Anfälligkeit der untersuchten RDB-Stähle betrachtet werden. Neben dem Snoek-Peak wird meist auch ein breiter Snoek-Koester-Peak (S-K-Peak) bei Temperaturen zwischen 150 und $250 \text{ }^\circ\text{C}$ beobachtet. Dieser wird mit der Bewegung der Zwischengitteratome im Spannungs-Dehnungsfeld von Versetzungen in Verbindung gebracht. Die Höhe des Snoek-Koesters-Peak korreliert mit der Dichte von beweglichen Versetzungen und der Konzentration an Zwischengitteratomen entlang dieser Versetzungen und ist deshalb ein Mass für die Stärke der auftretenden DSA-Effekte.

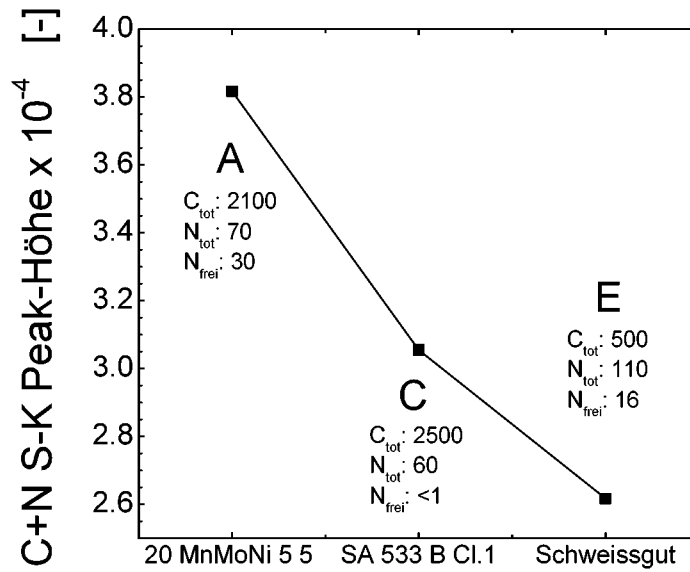
Im Ausgangszustand wurde nur im Schweissgutmaterial ein schwacher Snoek-Peak beobachtet. Dies deutet darauf hin, dass die Bulk-Konzentration von interstitiellem N im Schweissgut am höchsten ist. In Legierung A und C liegt der Bulk-Gehalt unterhalb der Nachweisgrenze von ca. 10 ppm. In allen Materialien wurde ein schwacher Snoek-Koester-Peak bei

einer Temperatur von ca. 230 °C beobachtet. Legierung C besitzt den ausgeprägtesten S-K-Peak, was vermutlich auf den erhöhten C-Gehalt zurückzuführen ist.

Im kaltverformten Zustand mit einer deutlich höheren Versetzungsdichte wurde dagegen wie erwartet ein ausgeprägter S-K-Peak, aber auch ein S-Peak beobachtet. Die Höhe des S-K-Peaks nahm mit zunehmender Kaltverformung bzw. Versetzungsdichte zu. In Figur 20 ist die S-K-Peak-Höhe bei jeweils 30% Kaltverformung mit der Konzentration an Zwischengitteratomen in den unterschiedlichen Werkstoffen verglichen. Im Gegensatz zu bisherigen Annahmen, bei denen die DSA-Anfälligkeit niedriglegierter Stähle primär auf den freien N-Gehalt zurückgeführt wurde, zeigten diese Untersuchungen klar, dass der freie C-Gehalt ebenso wichtig ist wie der freie N-Gehalt und im Fall von Legierung c (mit sehr niedrigem N-Gehalt) sogar zu dominieren scheint. Zur Zeit gibt es allerdings keine direkte Methode zur Messung des freien C-Gehaltes, so dass dieser nur indirekt über die Messung des freien N-Gehaltes und IF-Messungen abgeschätzt werden kann.

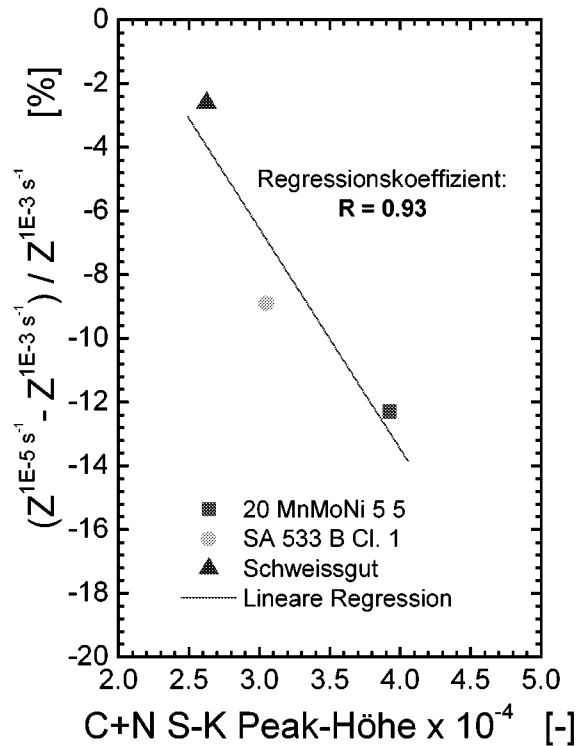


Figur 19: IF-Spektrum der Legierung a im Ausgangszustand und bei 5 % Kaltverformung im DSA-Bereich bei 280 °C. Im Ausgangszustand ist ein schwacher Snoek-Koester-Peak, im kaltverformten Zustand ein ausgeprägter Snoek-Koester- und Snoek-Peak zu erkennen.



Figur 20: Höhe des C+N–Snoek-Koesters-Peak bei einem Kaltverformungsgrad von 30 % sowie Gehalte an freiem N und Gesamtkonzentration von C und N für Legierung a, c und das Schweissgut e.

Die IF-Ergebnisse stimmen gut mit den experimentellen Resultaten der Zugversuche und der beobachteten Risskorrosionsanfälligkeit überein. So korreliert z. B. die S-K-Peak-Höhe sehr gut mit der in Zugversuchen beobachteten DSA-Anfälligkeit (Figur 21).



Figur 21: Korrelation zwischen der C+N-Snoek-Koester-Peak-Höhe bei einem Kaltverformungs-grad von 30 % und der relativen Änderung der Bruchesehnung bei einer Reduktion der Dehnrates von 10^{-3} auf 10^{-5} s^{-1} bei $250 \text{ }^\circ\text{C}$.

2.3 Publikationen 2001

- **J. Heldt, H.P. Seifert:** „Stress Corrosion Cracking of Low-Alloy, Reactor-Pressure-Vessel Steels in Oxygenated, High-Temperature Water“, Nuclear Engineering and Design, Vol. 206, 2001, pp.57-89.
- **H.P. Seifert, S. Ritter:** “EAC of Low-Alloy RPV Steels under BWR Conditions – Progress Report of the RIKORR Project”, PSI-Bericht, 2001, in Druckvorbereitung.
- **H.P. Seifert, S. Ritter:** “SCC of Low-Alloy RPV Steels under BWR Conditions – New Observations”, Minutes of the 2001 Annual Meeting of the International Cooperative Group on Environmentally Assisted Cracking of Light Water Reactor Materials, Ed.: J. Hickling, Low-Alloy Steel Session, Paper L4, pp. L4.1 – L4.40, Kyongju, Korea, April 23 –27, 2001.
- **H.P. Seifert, S. Ritter:** “Strain-Induced Corrosion Cracking of Low-Alloy RPV Steels under BWR Conditions”, Minutes of the 2001 Annual Meeting of the International Cooperative Group on Environmentally Assisted Cracking of Light Water Reactor Materials, Ed.: J. Hickling, Low-Alloy Steel Session, Paper L3, pp. L3.1 – L3.47, Kyongju, Korea, April 23 –27, 2001.
- **H. Hänninen, H.P. Seifert, Y. Yagodzinsky, U. Ehrnstén, O. Tarasenko, P. Aaltonen:** “Effects of Dynamic Strain Aging on Environment-Assisted Cracking of Low Alloy Pressure Vessel and Piping Steels”, 10th Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, (CD-ROM, Paper No. 47), August 6 - 10, 2001, Lake Tahoe, Nevada, USA.
- **H.P. Seifert, S. Ritter, J. Heldt:** „Strain-Induced Corrosion Cracking of Low-Alloy Reactor Pressure Vessel Steels under BWR Conditions“, 10th Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, (CD-ROM, Paper No. 3), August 6 - 10, 2001, Lake Tahoe, Nevada, USA.
- **S. Ritter, H.P. Seifert:** „Spannungsrissskorrosion an ferritischen Reaktordruckbehälter-Stählen unter Siedewasserreaktor-Bedingungen“, 27. MPA-Seminar, Paper No. 25, pp. 25-1 – 25-20, Stuttgart, Deutschland, 4. – 5. Oktober, 2001.
- **S. Ritter, H.P. Seifert:** „Characterization of the Lower Shell and Weld Material of the RPV of Biblis C“, PSI-Bericht, 2001, in Druckvorbereitung.
- **H.P. Seifert:** „Literature Survey on the SCC/SICC of Low-Alloy Steels in High-Temperature Water“, PSI-Bericht, 2001, in Druckvorbereitung.

3. Nationale Zusammenarbeit

Auf nationaler Ebene findet die Zusammenarbeit und der Technologietransfer in erster Linie im unmittelbaren kerntechnischen Umfeld statt. Die Überwachungs- und Aufsichtsbehörde HSK und die Schweizer Kraftwerke wurden im Rahmen der HSK-PSI-Projektstatusgespräche/ Quartalsitzungen [18 – 20] und anderer Veranstaltungen regelmässig über den aktuellen Stand der Arbeiten informiert. Die HSK und das Kernkraftwerk Leibstadt unterstützen das Projekt bei der Zusammenstellung der wasserchemischen und thermomechanischen Randbedingungen von transienten SWR-Betriebsbedingungen.

4. Internationale Zusammenarbeit

Als Vollmitglied der Fachgruppe ICG-EAC (International Co-operative Group on Environmentally-Assisted Cracking of Light Water Reactor Materials) stehen wir in engem Kontakt mit der internationalen Fachwelt. Die eigenen Forschungsbeiträge werden in diesem internationalen Gremium regelmässig vorgestellt, diskutiert und mit anderen Projekten koordiniert [21, 22]. Ein reger Erfahrungs-/Informationsaustausch wird zudem mit Institutionen wie EPRI (BWR VIP), VGB sowie im Rahmen breiterer internationaler Zusammenarbeit (OECD/NES/CSNI PWG 3) gepflegt. Auf dem Gebiet der DSA wurde dieses Jahr mit Prof. H. Hänninen von der Helsinki University of Technology zusammengearbeitet und die Ergebnisse dieser Untersuchungen in einer gemeinsamen Publikation an der „10th Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors“ veröffentlicht [14].

Innerhalb des Projektes „CASTOC“ [23] im 5. EU-Rahmenprogramm (2000 – 2003) (EURATOM, EU Nr. FIKS-2000-00048 / BBW Nr.: 99.0715) besteht auf dem Gebiet der Risskorrosion ferritischer Druckbehälter- und Rohrleitungsstähle eine intensive Zusammenarbeit mit den Projektpartnern MPA Stuttgart, Frameatom ANP (beide Deutschland), VTT (Finnland), CIEMAT (Spanien) und NRI (Tschechische Republik). Die Projekte „RIKORR“ und „CASTOC“ sind komplementär und ergänzen sich gut. Die Zusammenarbeit auf diesem Gebiete führender europäischer Labors gewährleistet eine breite Absicherung und hohe Akzeptanz der Ergebnisse. Alle Teilnehmer des Projektes haben in der Vergangenheit eng mit nationalen Behörden (HSK, TÜV, SKI), Kraftwerksbetreibern und -betreiberorganisationen (EPRI, VGB) sowie Kraftwerksherstellern (Siemens, ABB, GE) zusammengearbeitet. Durch die aktive Mitarbeit im Rahmen breiterer internationaler Kooperationen und Netzwerke (ICG-EAC, AMES, OECD/CSNI/NEA PWG3) und Zusammenarbeit mit Regelwerksausschüssen (KTA, ASME BPV) ist die Umsetzung und der Transfer der Ergebnisse, welches eine der primären Zielsetzungen des „CASTOC“-Projektes darstellen, gewährleistet. Nach Abschluss der Projekte „RIKORR“ und „CASTOC“ sollte zusammen mit den bereits durchgeführten Arbeiten auf dem Gebiet der SpRK eine Bewertung der möglichen Auswirkungen der Risskorrosion auf die Strukturintegrität und Sicherheit des RDB von SWR-Anlagen möglich sein. Insbesondere auf den Gebieten der DRK und niederzyklischen Schwingrisskorrosion ist im Zusammenhang mit Fragen der Sicherheit und Lebensdauer sowie der risikoorientierten Optimierung von Überwachungs-, Prüf- und Instandhaltungsprogrammen ein weitergehender Forschungsbedarf abzusehen, da unter diesen Bedingungen die bisher geltenden Regelwerke zur Ermüdungsauslegung und -überwachung nicht konservativ sind und bezüglich des Risikos nicht ausgewogen erscheinen. Längerfristig könnte sich das Gewicht von den Risswachstumsuntersuchungen allerdings in Richtung der Entwicklung neuartiger, zuverlässiger Methoden zur Früherkennung und Überwachung dieser Schädigungsmechanismen verschieben.

5. Bewertung 2001 und Ausblick 2002

5.1 Bewertung 2001

Die Zielsetzungen für 2001 wurden vollumfänglich erreicht. Durch den Ausfall wesentlicher Versuchskomponenten und einzelner Messgeräte kam es zu einigen ungeplanten, längeren Versuchsunterbrüchen und infolge dessen zu einer leichten Verzögerung (ca. 2 Monate) im Versuchsprogramm. Das Programm kann aber bis zum Ende des Projektes wie vorgesehen durchgeführt werden, und es sind keine Korrekturmaßnahmen notwendig.

5.2 Schlussfolgerungen

Folgende vorläufigen Schlüsse können aus den bisher gewonnenen Versuchsergebnissen und fraktographischen Untersuchungen gezogen werden:

1. EAC-Risswachstumsmechanismus:

Das beobachtete Risswachstumsverhalten kann zur Zeit am besten durch eine Kombination und Überlagerung der folgenden Mechanismen verstanden werden:

- Oxidfilmbruch/anodische Auflösung (Film Rupture/Anodic Dissolution (FRAD))
- Wasserstoffinduzierte Risskorrosion (Hydrogen-assisted EAC (HAC))
- Dynamische Reckalterung (Dynamic Strain Ageing (DSA))

Bei Temperaturen $\geq 120 - 180^\circ\text{C}$ und mittleren Festigkeitswerten ($R_p \approx 300 - 500 \text{ MPa}$) dominiert der FRAD-Mechanismus. Bei Temperaturen $\leq 120 - 180^\circ\text{C}$ oder bei hoher Festigkeit / Härte ($R_p \geq 800 \text{ MPa}$, $\geq 350 \text{ HV}$) dominiert die wasserstoffinduzierte Risskorrosion. Bei geeigneten Kombinationen von Temperatur ($150 - 300^\circ\text{C}$) und Belastungsgeschwindigkeit ($10^{-8} \text{ s}^{-1} \leq d\epsilon/dt \leq 10^{-2} \text{ s}^{-1}$) und einem anfälligen Werkstoff (hohe Konzentration an freiem N und C) kann auch DSA wesentlich zum Rissfortschritt beitragen, ist allerdings keine Voraussetzung für das Auftreten von EAC in diesen Stählen.

2. Einflussfaktoren auf das EAC-Risswachstum im RDB-Grundwerkstoff:

Das EAC-Risswachstum langer Risse ($> 100 \mu\text{m}$) wird im wesentlichen durch die Rissspitzendehnrates und die Konzentration an schwefelhaltigen Anionen (SO_4^{2-} , HS^- , S^{2-}) im Risspitzenelektrolyt (bzw. dem pH) kontrolliert. Für das Auftreten von EAC müssen im Bereich der Rissspitze kritische Bedingungen, d.h. eine ausreichend hohe Konzentration

an S-haltigen Anionen und eine langsame positive Dehnrage, gleichzeitig auftreten und aufrechterhalten werden. Die Risspitzendehnrage wird im wesentlichen durch die Belastungsgeschwindigkeit ($d\varepsilon/dt$, dK_I/dt) und -höhe (ε , K_I , ΔK) sowie durch das Risswachstum selbst bestimmt. Die Konzentration an S-haltigen Anionen wird im wesentlichen durch die Auflösung der MnS-Einschlüsse im Risskanal, die Konzentration an S-haltigen Anionen im Kühlmittel sowie durch den Stofftransport im Risskanal durch Diffusion, Migration und Konvektion bestimmt. Ein hohes Korrosionspotential begünstigt durch die Migration die Anreicherung von S-haltigen Anionen im Bereich der Risspitze.

3. Möglicher Einfluss von DSA und erhöhte Anfälligkeit aufgehärteter Zonen der WEZ:

Es wurden klare Hinweise auf einen Einfluss der DSA auf das EAC-Risswachstumsverhalten gefunden, zumindest bei gewissen Kombinationen von Temperatur und Belastungsgeschwindigkeit sowie einem anfälligen Material (niedriger Al-Gehalt, hoher Gehalt an freiem N und C). Die Ergebnisse zeigen deutlich die Notwendigkeit für weitergehende Untersuchungen mit Schweissnähten und WEZ sowie für Untersuchungen bei mittleren Temperaturen. Ebenso wurden Hinweise für eine gegenüber dem bainitischen Gefüge deutlich erhöhte DRK- und SpRK-Anfälligkeit eines martensitischen und stark aufgehärteten Gefüges gefunden. Ähnliche Gefügezonen, wenn auch deutlich weniger stark aufgehärtet, werden z. T. auch in der WEZ von Schweissnähten beobachtet.

4. Konservativität von Grenzkurven und Regelwerken:

- ASME XI: Die Grenzkurven in ASME XI können bei niederfrequenter ($\leq 10^{-3}$ Hz) zyklischer Belastung unter SWR-Bedingungen sowohl in RDB-Grund als auch –Schweissgutwerkstoffen deutlich überschritten werden und sind deshalb im Gegensatz zu hohen Frequenzen nicht konservativ. Insbesondere bei extrem niederfrequenter Belastung und hohen Werten von ΔK und $K_{I,max}$ werden relativ grosse SwRK-Rissfortschritte beobachtet. Diese niederzyklischen Belastungen sind charakteristisch für Anfahr- und Abfahrvorgänge sowie für spezielle Betriebszustände mit Temperaturschichtungen. Es ist zu berücksichtigen, dass sowohl Zeitdauer als auch Zyklenzahl stark begrenzt sind, und die hohen Rissfortschritte keineswegs eine Gefahr für die Sicherheit darstellen müssen. Für eine schlüssige Bewertung sind weitere Experimente insbesondere bei niedrigeren Belastungen und genauere Informationen zu den exakten wasserchemischen und lokalen thermomechanischen Randbedingungen unter diesen Betriebsbedingungen notwendig.
- BWR VIP 60 SpRK-Grenzkurven: Die BWR VIP 60 SpRK Grenzkurven für das SpRK-Risswachstum unter SWR-Bedingungen können sowohl bei kleinen Lastfluktuationen („Ripple Loading“) als auch bei mittleren Temperaturen (200 – 250°C) für RDB-Stähle und –Schweissgutwerkstoffe mit einer Anfälligkeit für Dynamische Reckalterung („Dynamic Strain Ageing (DSA)“) überschritten werden. Die Grenzkurven sind deshalb auf ihre Gültigkeit bei tieferen Temperaturen und für RDB-Schweissnähte und WEZ, insbesondere bei tieferen Belastungen, hin zu überprüfen. Für den RDB-Grundwerkstoff im stationären SWR-Leistungsbetrieb ($T \approx 270 - 290^\circ\text{C}$, \approx statische Belastung) sind die SpRK-Grenzkurven weitgehend konservativ. Für den Speisewasserstutzen ($T \approx 220^\circ\text{C}$, kleine Lastfluktuationen nicht ausschliessbar) muss deren Anwendung überprüft werden.
- Wasserchemische und thermomechanische Randbedingungen bei SWR-Betriebstransienten: Nach Abschluss der Parametersensitivitätsstudie zur Identifikation kritischer EAC-Bedingungen werden in den Temperaturbereichen maximaler Anfälligkeit weiterführende Experimente unter möglichst betriebsnahen mechanischen und wasserchemischen Bedingungen durchgeführt. Die gezielte Festlegung der Versuchsparameter und die Bewertungen der Versuchsergebnisse hinsichtlich deren möglichen Auswirkungen auf die Sicherheit des RDB setzen eine möglichst genaue Kenntnis der Systembedingungen unter den für die Risskorrosion kritischen Betriebstransienten voraus.

5.4 Ausblick 2002

Für das letzte Projektjahr sind folgende Arbeiten geplant:

- Abschluss der Parametersensitivitätsstudie zum Einfluss von Temperatur und Belastungsgeschwindigkeit auf das EAC-Risswachstumsverhalten mit Proben der Wärmeeinflusszone (WEZ) der Biblis C Umfangsschweissnaht.
- Charakterisierung der SpRK-Anfälligkeit der WEZ bei verschiedenen Temperaturen.
- Parameterstudie zum Einfluss der mechanischen Belastungsbedingungen (ΔK , R , Δt_H , ν) im Temperaturbereich maximaler SpRK- und DRK/SwRK-Risswachstumsanfälligkeit (250 °C) mit den anfälligsten RDB-Werkstoffen (Legierung a).

- Identifikation der für die Risskorrosion relevanten, transienten SWR-Betriebszustände und kritischen Komponentenbereiche und Ausarbeitung von Schlussfolgerungen/Empfehlungen bezüglich Regelwerken/SWR-Betrieb.
- Abschlussbericht bis Ende Januar 2003.
- Konferenzbeiträge:
 - ICG-EAC 2002 (April 2002, Lyon, Frankreich).
 - NACE Corrosion 2002 (April 2002, Denver, USA).
- Publikation in wissenschaftlicher Zeitschrift nach Abschluss des Projektes.

6. Referenzen

- [1] **H.P. Seifert, J. Heldt**, „Stress Corrosion Cracking of Low-Alloy, Reactor-Pressure-Vessel Steels in Oxygenated, High-Temperature Water“, Nuclear Engineering and Design Vol. 206, 2001, pp.57-89.
- [2] **P. Scott, D. Tice**, „Stress Corrosion in Low Alloy Steels“, Nucl. Eng. & Design, Vol. 119, 1990, pp. 399 - 413.
- [3] **D. Blind**, „Zur Korrosionsrissbildung in druckführenden Kraftwerkskomponenten infolge Einwirkung von Hochtemperaturwasser“, Habilitationsschrift, Universität Stuttgart, 1991.
- [4] **O. K. Chopra**, „Environmental Effects on Fatigue Crack Initiation in Piping and Pressure Vessel Steels“, International Conference on Fatigue of Reactor Components, 31. Juli – 2. August, 2000, Napa, Kalifornien, USA.
- [5] **O.K. Chopra, W.J. Shack**, „Low-cycle Fatigue of Piping and Pressure Vessel Steels in LWR Environments“, Nuclear Engineering and Design, Vol. 184, 1998, pp. 49 - 76.
- [6] **Y.S. Garud, S.R. Paterson, R.B. Dooley, R.S. Pathania, J. Hickling, A. Bursik**: „Corrosion Fatigue of Water-Touched Pressure Retaining Components in Power Plants“, EPRI TR-106696, Final Report, November 1997.
- [7] **M. Higuchi, K. Iida**, „Fatigue Strength Correction Factors for Carbon and Low-Alloy Steels in Oxygen-Containing High-Temperature Water“, Nuclear Engineering and Design, 1991, Vol. 129, pp. 293 – 306.
- [8] **S. Majumdar, O.K. Chopra, W.J. Shack**, „Interim Fatigue Design Curves for Carbon, Low-Alloy and Austenitic Stainless Steels in LWR-Environments“, Report No. NUREG/CR-5999 (ANL-93/3), Argonne National Laboratory, Argonne, IL, USA, April 1993.
- [9] **H.S. Metha, S.R. Gosselin**, „An Environmental Factor Approach to Account for Reactor Water Effects in Light Water Reactor Pressure Vessel and Piping Fatigue Evaluations“, EPRI-Report TR-105759, EPRI, Palo Alto CA, USA, Dezember 1995.
- [10] **E.D. Eason, E.E. Nelson, J. D. Gilman**, „Technical Basis for a Revised Fatigue Crack Growth Rate Reference Curve for Ferritic Steels in Light Water Reactor Environments“, ASME PVP94-17, New York, auch in Welding Research Council Bulletin 404, New York, 1995, pp. 38 - 51.
- [11] **E.D. Eason, E.E. Nelson, J.D. Gilman**, „Modelling of Fatigue Crack Growth Rate for Ferritic Steels in Light Water Reactor Environments“, Nuclear Engineering & Design, Vol. 184, 1998, pp. 89 - 111.
- [12] **J. Hickling, D. Blind**, „Strain-Induced Corrosion Cracking in LWR Systems - Case Histories and Identification of Conditions Leading to Susceptibility“, Nucl. Eng. & Design, Vol. 91, 1986, pp. 305 - 330.
- [13] **H.P. Seifert, S. Ritter, J. Heldt**, „Strain-Induced Corrosion Cracking of Low-Alloy Reactor Pressure Vessel Steels under BWR Conditions“, 10th Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, (CD-ROM, Paper No. 3), August 6 - 10, 2001, Lake Tahoe, Nevada, USA.
- [14] **H. Hänninen, H.P. Seifert, Y. Yagodzinsky, U. Ehrnstén, O. Tarasenko, P. Aaltonen**: „Effects of Dynamic Strain Aging on Environment-Assisted Cracking of Low Alloy Pressure Vessel and Piping Steels“, 10th Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, (CD-ROM, Paper No. 47), August 6 - 10, 2001, Lake Tahoe, Nevada, USA.
- [15] **J. Atkinson, Z. Zao, J. Yu**, „Interactive Effect of Dynamic Strain Ageing with High Temperature Water on the Crack Initiation Behaviour of Reactor Pressure Vessel Steels“, Effects of the Environment on the Initiation of Crack Growth, ASTM STP 1298, pp. 199 - 215, W.A. Van der Sluys, R.S. Piascik, R. Zawierucha, Eds., ASTM, 1997.
- [16] **J. Atkinson, J. Yu**, „The Role of Dynamic Strain Ageing in the Environment-Assisted Cracking Observed in Pressure Vessel Steels“, Fatigue Fracture Engng. Mater. Struct., Vol. 20, 1997, pp. 1 – 12.
- [17] **H.P. Seifert, J. Heldt**, „Projektvorschlag: Risskorrosion in druckführenden ferritischen Komponenten des Primärkreislaufes von SWR“, PSI-AN-49-99-01, 24. 11. 1999.

- [18] **H.P. Seifert, J. Heldt, U. Ineichen, U. Tschanz**, „Risskorrosion in RDB-Stählen unter transienten SWR-Betriebsbedingungen“, HSK-PSI-Jahresprojektpräsentation 2000, 6. 12. 2000, HSK, Handout.
- [19] **H.P. Seifert, S. Ritter**, „Risskorrosion in druckführenden ferritischen Komponentnen des Primärkreislaufes von SWR“, 1. Halbjahresprojektbesprechung RIKORR 2001, 5. 7. 2001, HSK, Handout.
- [20] **H.P. Seifert, S. Ritter**, „EAC of Low-Alloy RPV Steels under BWR Conditions –Progress Report of the RIKORR Project“, PSI-Bericht, 2001, in Druckvorbereitung.
- [21] **H.P. Seifert, S. Ritter**, „SCC of Low-Alloy RPV Steels under BWR Conditions – New Observations“, Minutes of the 2001 Annual Meeting of the International Cooperative Group on Environmentally Assisted Cracking of Light Water Reactor Materials, Ed.: J. Hickling, Low-Alloy Steel Session, Paper L4, pp. L4.1 – L4.40, Kyongju, Korea, April 23 –27, 2001.
- [22] **H.P. Seifert, S. Ritter**, „Strain-Induced Corrosion Cracking of Low-Alloy RPV Steels under BWR Conditions“, Minutes of the 2001 Annual Meeting of the International Cooperative Group on Environmentally Assisted Cracking of Light Water Reactor Materials, Ed.: J. Hickling, Low-Alloy Steel Session, Paper L3, pp. L3.1 – L3.47, Kyongju, Korea, April 23 –27, 2001.
- [23] **U. Ehrnstén, J. Foehl, D. Gomez-Briceño, T. Weissenberg, A. Roth, S. Ritter, H. P. Seifert, M. Zamboch**, „Crack Growth Behaviour of Low Alloy Steels for Pressure Boundary Components under Transient Light Water Reactor Operating Conditions – CASTOC“, FISA-Conference on EU Research in Reactor Safety, November 12 – 14, 2001.
- [24] **S. Ritter, H.P. Seifert**, „Characterization of the Lower Shell and Weld Material of the RPV of Biblis C“, PSI-Bericht, 2001, in Druckvorbereitung.
- [25] **H.P. Seifert, J. Heldt**, „1. Quartalssitzung RIKORR“, 22. 8. 2000, HSK, Handout.
- [26] **H.P. Seifert**, „Literature Survey on the SCC/SICC of Low-Alloy Steels in High-Temperature Water“, PSI-Bericht, 2001, in Druckvorbereitung.
- [27] **H.P. Seifert, J. Heldt, U. Ineichen, U. Tschanz**, „Risskkorrosion in druckführenden Komponenten des Primärkreislaufes von SWR“, BFE-Jahresbericht 2000, Dezember 2000.
- [28] **H.P. Seifert, S. Ritter**, „PSI Contribution to the CASTOC Round Robin on EAC of Low-Alloy RPV Steels under BWR Conditions, PSI-Bericht 01 – 08, ISSN 1019 – 0643, August 2001.
- [29] **H.P. Seifert, J. Heldt, U. Ineichen**, „Messung des Korrosionspotentials mit einer externen Ag/AgCl-Referenzelektrode“, PSI-TM-49-97-15, 14. 11. 1997.
- [30] **A. Kraus**, „Stress Corrosion Cracking of Pressure Vessel Steels in High Temperature Water“ Diss. ETH Nr. 10644, ETH Zürich, 1994.
- [31] **E. Lenz, N. Wieling**, „Strain-Induced Corrosion Cracking of Low Alloy Steels in LWR-Systems - Interpretation of Susceptibility by Means of a three Dimensional (T, ϵ , dissolved oxygen) Diagram“, Nucl. Eng. & Design, Vol. 9, 1986, pp. 331 - 344.
- [32] **J. Hickling**, „Strain-Induced Corrosion Cracking of Low-Alloy Steels under BWR Conditions: are there still Open Issues?“, 10th Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, (CD-ROM, Paper No.156), August 6 – 10, 2001, Lake Tahoe, Nevada, USA.
- [33] **ASME XI Appendix A-4300**, 1998 ASME Boiler & Pressure Vessel Code, Section XI, Rules for In-Service Inspection of Nuclear Power Plant Components, Appendix A, Article A-4000, Subsection A-4300: Fatigue Crack Growth Rate“ ASME, New York 1998.
- [34] **A. Gerscha, E. Klausnitzer, D. Blind, J. Jansky, R. Rintamaa, T. Saario, K. Törrönen**, „Cyclic Crack Growth Studies for Predicting Crack Growth in the HDR Thermal Shock Experiments“, Proc. 2nd IAEA Specialists Meeting on Subcritical Crack Growth, NUREG/CP-0067, Vol.2, pp. 431 – 453.
- [35] **W.A. Van der Sluys, R.H. Emanuelson**, „Environmental Acceleration of Fatigue Crack Growth in RPV Materials and Environments“, Environmentally-Assisted Cracking: Science and Engineering, ASTM STP 1049, 1990, pp. 117 – 135.
- [36] **BWR Vessel and Internals Project**, „Evaluation of Stress Corrosion Crack Growth in Low Alloy Steel Vessel Materials in the BWR Environment (BWR VIP-60), EPRI TR-108709, 1999.
- [37] **S. Ritter, H.P. Seifert**: „Spannungsrissskorrosion an ferritischen Reaktordruckbehälter-Stählen unter Siedewasserreaktor-Bedingungen“, 27. MPA-Seminar, Paper No. 25, pp. 25-1 – 25-20, Stuttgart, Deutschland, 4. – 5. Oktober, 2001.



Datum: 18. Februar 2002
Von: W. Neumann
An: M. Zünd
cc: W. Pauli

PROJEKTBEGLEITERBEWERTUNG 2001 FEVER

Einleitung

Das Projekt hat das Ziel, ein zerstörungsfreies Prüfverfahren zu entwickeln, mit dem Ermüdungsschäden an Kernkraftwerkskomponenten aus metastabilem austenitischem Stahl erkannt werden können, bevor es zu Rissbildung gekommen ist. Das Verfahren will die deformationsinduzierte Martensitbildung in der Austenitmatrix ausnützen. Die Ermüdungsvorschädigung soll über den Ferromagnetismus des gebildeten Martensits erkannt werden.

Es wird mit drei verschiedenen Methoden, die sich gegenseitig ergänzen, vorgegangen:

- (1) Der Martensitgehalt der ermüdeten Werkstoffproben wird mit Neutronenbeugungsmessungen quantitativ bestimmt.
- (2) Für den Martensitnachweis unter Bedingungen, die in Kernkraftwerken gegeben sind, werden magnetische und magnetinduktive zerstörungsfreie Prüfverfahren entwickelt, die an den Neutronenbeugungsmessungen "kalibriert" werden.
- (3) Die Martensitbildung und das Mikro-Risswachstum werden modelliert.

In den Versuchen wurden die Werkstoffproben mittels niederzyklischer Dehnungen ermüdet, die von einer im Druckwasserreaktor realistischen Transienten hergeleitet wurden.

Im ersten Projektjahr, beginnend mit dem 1. Juli 1999, konnte gezeigt werden, dass bei Raumtemperatur schon im Vorriss-Ermüdungsstadium deformations-induziert genügend Martensit gebildet wird, so dass er sowohl mit der Neutronenbeugungsmethode als auch mit magnetischen und magnetinduktiven Methoden nachgewiesen werden kann. Über Schwellenwerten, unter denen keine Martensitbildung feststellbar ist, wächst der Martensitgehalt mit steigender Dehnungsamplitude und Lastwechselzahl ungefähr linear an.

Im zweiten Projektjahr 2000 wurden erste Untersuchungen zum Einfluss der Temperatur auf die dehnungs-induzierte Martensitbildung durchgeführt. Die Neutronenbeugungsmessungen an niederzyklisch ermüdeten Proben ergaben, dass der Martensitgehalt mit steigender Temperatur zwar abfällt, bis 140° aber eindeutig nachweisbar bleibt. Bei 100° und 180° wurde ein unerwartet hoher Martensitgehalt gefunden, der erklärungsbedürftig ist. Bei Temperaturen zwischen 220° und 300° wurde der Martensit in drei Proben nachgewiesen, in drei Proben hingegen nicht. Daneben wurde eine Messeinrichtung für magnetische und magnetinduktive Methoden aufgebaut und erprobt.

Begleitend zu den experimentellen Untersuchungen wurde die Modellierung der Martensitbildung und des Mikro-Risswachstums in Angriff genommen. Das Ziel der Modellierung ist, die ablaufenden Mechanismen und deren Einflussgrößen besser zu verstehen und die Interpretation der Messdaten zu unterstützen.

Arbeiten 2001

Die Arbeiten im vergangenen Jahr 2001 konzentrierten sich auf

- die Identifizierung und Untersuchung von Parametern, welche die dehnungsinduzierte Martensitbildung wesentlich beeinflussen und auf
- die Charakterisierung des Martensitgehalts durch zerstörungsfreie magnetische und magnetinduktive Messmethoden unter Einsatz der in 2000 aufgebauten Messeinrichtungen.

Es zeigte sich, dass die Martensitbildung ausser von Lastwechselzahl, Dehnungsamplitude und Temperatur in starkem Masse von dem Herstellungsverfahren und von der Wärmebehandlung des Probewerkstoffs abhängt. Für die Temperaturabhängigkeit der Martensitbildung wurde eine Gesetzmässigkeit gefunden.

Martensitgehalte in der Proben von ≥ 1 % wurden mit einem Permeabilitätsmessgerät und einer GMR-Wirbelstromsonde detektiert und die beiden Methoden erfolgreich gegeneinander kalibriert. Bei der Kalibrierung dieser magnetischen Methoden gegen die Neutronendiffraktionsmethode traten bei einem Teil der Messdaten Diskrepanzen auf. Es scheint, dass sie mit der Art der Durchführung der Neutronendiffraktionsmessungen zu tun haben. Hier besteht Klärungsbedarf. Über Messungen mit dem SQUID-System, das die weitaus empfindlichste magnetische Messmethode ist, wird noch nicht berichtet.

Das Projekt ist gut angelegt und wird folgerichtig durchgeführt. Die für das Jahr 2001 gesetzten Ziele wurden im wesentlichen erreicht. Es wurden wesentliche Schritte vorwärts getan. Es zeichnet sich jetzt ab, dass das Projekt, dessen Dauer noch ein weiteres halbes Jahr umfasst, grundlegende Aussagen über die Machbarkeit, die wesentlichen Einflussparameter und die messtechnischen Möglichkeiten erbringen wird.

Meine Beurteilung der Bedeutung des Projekts hat sich gegenüber meiner ursprünglichen Stellungnahme vom 25. Mai 1999 an Herrn Chakraborty nicht geändert. Sie soll hier nicht wiederholt werden. Das Projekt passt zu den internationalen Forschungsanstrengungen auf dem Gebiet der zerstörungsfreien Werkstoffdiagnostik.

In den verbleibenden sechs Monaten sollten die bisher erzielten Ergebnisse konsolidiert und zusammengefasst werden. Offene Fragen sollten identifiziert und soweit möglich geklärt werden. An den Proben, die bei hohen Temperaturen ermüdet wurden und nur geringe Martensitgehalte aufweisen, sollten Messungen mit dem SQUID-System durchgeführt werden, um die Grenzen der Methode zu erforschen.

Das PSI hat die Fortsetzung der Forschung zur Ermüdungsfrüherkennung über den 1. Juli 2002 hinaus in einem Projekt FEVER II vorgeschlagen. Die Sektion MBT hat mit Stellungnahme vom 5. Dezember 2001 empfohlen, diesem Vorschlag zu folgen. Nach der Klärung der Grundlagen unter Laborbedingungen sollte in FEVER II die Übertragbarkeit in die Kraftwerkspraxis im Vordergrund stehen.

FEVER

Früherkennung von Ermüdungsschädigung an Kernkraftwerkskomponenten

Autor und Koautoren	D. Kalkhof, M. Grosse, M. Niffenegger, B. Tirbonod
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut, Nukleare Energie und Sicherheit
Adresse	5232 Villigen PSI
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 310 2620, dietmar.kalkhof@psi.ch , http://www.psi.ch
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	35028 / 74784
Dauer des Projekts (von – bis)	1.7.1999 – 30.6.2002

Zusammenfassung

Das Projektziel 2001 bestand in der Identifizierung und Charakterisierung der wesentlichen Einflussgrössen auf die deformations-induzierte Martensitbildung bei LCF-Ermüdung austenitischer Stähle und der Auswahl geeigneter magnetischer Kenngrössen und Messtechniken, um den Martensitgehalt zu detektieren. Als entscheidend für die Martensitbildung erwiesen sich der Materialausgangszustand, der von der Herstelltechnologie und der Wärmebehandlung bestimmt wird, sowie die Temperatur. Einen nur geringen Einfluss hatten die chemische Zusammensetzung innerhalb der zugelassenen Toleranzen für die Stahlherstellung und die Belastungsfrequenz. Es konnten für zwei definierte Ausgangszustände, lösungsgeglüht und kaltgefertigt, Korrelationen der Martensitbildung mit der Lastwechselzahl (Lebensdauer) aufgestellt werden, die klar dokumentieren, dass die Martensitbildung als Indikator der Ermüdungsschädigung metastabiler austenitischer Stähle verwendet werden kann. Zum Einfluss der Temperatur auf die Martensitbildung bei LCF-Ermüdung sind international keine systematischen Untersuchungen bekannt. Unsere Messungen zeigen, dass sich die Temperaturabhängigkeit gut mit einem thermodynamischen Ansatz beschreiben lässt. Da die darin enthaltene Aktivierungsenergie lastabhängig ist, müssen lastabhängige Temperatur-Korrekturkurven für die Martensitbildung bestimmt werden.

Zur Bestimmung des Martensitgehaltes in den Ermüdungsproben wurde das Neutronendiffraktometer DMC der SINQ-Anlage am PSI eingesetzt. Die Neutronen durchdringen den gesamten Probenquerschnitt und ermöglichen bei entsprechend grosser Blende die Bestimmung eines mittleren Martensitgehaltes für den gesamten Mittelteil der Proben, in dem die Martensitbildung stattfindet. Die mittels Neutronendiffraktometrie bestimmten Werte dienten als Kalibrierungsdaten für die magnetischen Verfahren. Zur Detektion des Martensitgehaltes wurden 3 magnetische Messtechniken eingesetzt. Mit einem einfachen Handprüfgerät wurde die magnetische Leitfähigkeit (Permeabilität), mit der SQUID-Messtechnik die Restfeldstärke (Remanenzflussdichte) und mit einem speziellen GMR-Wirbelstrom-Sensor die Wirbelstrom-Impedanz gemessen. Die Ergebnisse der Permeabilitäts- und der Wirbelstromimpedanz-Messungen zeigen sehr gute Korrelationen mit den Neutronendiffraktionswerten. Beide Methoden sind somit prinzipiell geeignet, den Martensitgehalt zu bestimmen. Schwierigkeiten sind abzusehen bei der Übertragbarkeit auf praxisrelevante Bedingungen. Das Handgerät arbeitet in einem eng begrenzten Permeabilitätsbereich und hat eine geringe Feldempfindlichkeit, das Wirbelstromsignal hängt von Proben- und Sondengeometrie sowie von lokalen Änderungen der elektrischen Leitfähigkeit ab. Eine bessere Übertragbarkeit sollte mit der SQUID-Messtechnik möglich sein. Die entsprechenden Messungen stehen noch aus.

1 Projektziele

Werkstoffalterungsvorgänge in druckführenden Primärkreislauf-Komponenten von Leichtwasserreaktoren können sowohl die Anlagensicherheit als auch ihre Verfügbarkeit und Wirtschaftlichkeit nachhaltig beeinträchtigen und spielen bei einer möglichen Lebensdauererweiterung eine entscheidende Rolle. Der heutige Wettbewerbs- und damit Kostendruck für Stromerzeugungsanlagen setzt für den wirtschaftlichen Betrieb der Kernkraftwerke auf hohem Sicherheitsniveau den Einsatz optimierter Methoden des Lebensdauer-Managements voraus. Eine herausfordernde Aufgabe besteht in der Ermüdungsfrüherkennung. Die Zuordnung mikrostruktureller Veränderungen, wie Versetzungsbewegung, Phasentransformation sowie Mikrorissbildung zu physikalisch messbaren Größen wie elektrischer / magnetischer Widerstand und Leitfähigkeit sowie thermoelektrischer Kraft erfordert zukünftige Forschungsanstrengungen auf dem Gebiet der Werkstoffdiagnostik.

Die Werkstoffdiagnostik untersucht den Zusammenhang von alterungsspezifischen mikrostrukturellen Veränderungen und den mechanischen, elektrischen und magnetischen Eigenschaften der eingesetzten Stähle, um daraus Überwachungsmöglichkeiten des Materialzustandes mittels zerstörungsfreier Prüfmethoden abzuleiten. Bisher erfolgte nur eine Überwachung der Belastungen mittels Temperatur-Messsystemen. In Ermüdungsanalysen, die auf der Grundlage der entsprechenden Regelwerke durchgeführt werden, wird auf den Materialzustand extrapoliert. Der aktuelle Schädigungsgrad wird entsprechend der gemessenen Betriebsdaten periodisch nachgeführt. Wird ein Ausnutzungsgrad von 50% erreicht, (d.h. 50% der Lebensdauer bis zur Rissentstehung ist vergangen), ist eine prophylaktische zerstörungsfreie "Rissprüfung" vorgeschrieben.

Für die Früherkennung und Überwachung mikrostruktureller Änderungen stehen bisher keine Methoden zur Verfügung. An metastabilen austenitischen Rohrleitungsstählen treten mikrostrukturelle Veränderungen auf, die geeignet erscheinen, eine Früherkennung zu ermöglichen. Unter mechanischer Beanspruchung kommt es in den Schädigungsbereichen zu einer deformations-induzierten Phasenumwandlung vom Austenit zum Martensit. Der Martensitanteil (ferromagnetisch) kann mit Hilfe fortschrittlicher magnetischer Messtechnik (SQUID-, GMR- Messtechnik) nachgewiesen werden. Zur Kalibrierung der magnetischen Messgrößen wird der absolute Martensitgehalt mit einem Neutronendiffraktometer bestimmt. Als Anwendung werden Schädigungen untersucht, die durch thermische Schichtungen in Primärkreis-Rohrleitungen entstehen.

In den ersten 1,5 Jahren des Projektes FEVER (7/1999 - 12/2000) wurde gezeigt, dass die deformations-induzierte Martensitbildung in austenitischen Stählen als Indikator für die Ermüdungsschädigung genutzt werden kann. Der Einfluss der Lastamplitude und der Zyklenzahl auf die Martensitbildung wurde untersucht. Unter typischen Lasten für An- und Abfahrvorgänge an der Volumenausgleichsleitung ($\Delta T=100^{\circ}\text{C}$, Dehnamplitude +/- 0,40%) konnte eine deformations-induzierte Martensitbildung nachgewiesen werden. Es wurde eine Versuchstechnik aufgebaut, die es ermöglicht, niederzyklische Ermüdung gezielt mit unterschiedlichen Erschöpfungsgraden in dehnungsgeregelter Versuchsdurchführung und unter konstanter Temperatur in Werkstoffproben einzubringen. Die Martensitbildung konnte mittels hochauflösender magnetischer Verfahren in den Werkstoffproben detektiert werden.

Für das Jahr 2001 bestand die Aufgabe in der systematischen Untersuchung aller relevanten Einflussgrößen auf die Martensitbildung, um abzuklären, welches Potential in der Methode zur Früherkennung besteht. Als wesentliche Einflussgrößen sind der Material-Ausgangszustand (Herstelltechnologie, Wärmebehandlung) sowie die Temperatur und Belastungsfrequenz zu untersuchen. Zum Einfluss der Temperatur auf die ermüdungsbedingte Martensitbildung gibt es bisher weltweit keine zusammenhängenden Ergebnisse bei den untersuchten Stählen. Auch die eigenen ersten Temperaturversuche vor 2001 waren sehr verwirrend. Zur Abklärung der Einflüsse wurde eine grössere Serie an Ermüdungsproben hergestellt, die sich von den bisherigen Serien 1 und 2 in der Wärmebehandlung und einer zusätzlichen Kaltverformung unterschieden. An diesen Proben konnten die Einflüsse der Temperatur und der Belastungsfrequenz eingehend analysiert werden. Im verbleibenden 0,5 Jahr des Projektes wird versucht, die Martensitbildung kontinuierlich während des Ermüdungsvorganges mittels der ausgewählten Magnetmesstechnik zu verfolgen.

2. Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

2.1 Technischer Hintergrund

Die Werkstoffermüdung wird in Kernkraftwerken hauptsächlich durch Wechselbeanspruchungen infolge von Temperatur- und Druckänderungen verursacht. Durch An- und Abfahrvorgänge sowie im Teillastbetrieb von Kernkraftwerken kommt es zu thermischen und thermo-mechanischen Lastwechseln an Komponenten und Rohrleitungen, die bei genügend hoher Zahl an Zyklen bis zur Initiierung von Materialrissen führen können. Besonders kritisch sind Belastungen durch thermische Schichtungen und Strömungen, deren Orte nicht hinreichend bekannt sind und deshalb auch nicht überwacht werden. Da die Gefahr einer Rissbildung mit der akkumulierten Werkstoffschädigung zunimmt, gewinnt die Früherkennung derartiger Schäden an älteren Anlagen zunehmend an Bedeutung. In jüngster Vergangenheit wurde eine gewisse Zunahme an Schäden in den Kernenergie-Hauptländern USA, Japan und Frankreich durch thermo-mechanische Ermüdung registriert. Aus sicherheitstechnischer Sicht bereiten vor allem Schäden an folgenden Komponenten Probleme:

SWR Reaktordruckbehälter- Speisewasserstutzen

DWR Dampferzeuger- Speisewasserstutzen

DWR Volumenausgleichsleitung und Sprühleitungen

DWR Volumenausgleichsleitung- und Druckhalter- Stutzen

DWR Regenerative Wärmetauscher

DWR Restwärmeabfuhr- Rohrleitungssysteme

Bedingt durch Dichteunterschiede im Fluid aufgrund von unterschiedlichen Temperaturen zwischen der Unter- und Oberseite des Rohres kann es in Kombination mit geringen Durchflussraten zur thermischen Schichtung in horizontalen Teilen des Rohrsystems kommen. Thermische Schichtungen verursachen eine in Umfangsrichtung variierende Temperaturverteilung in der Rohrwand, die wiederum lokale Spannungen in der Wand und globale Biegespannungen im Rohrsystem bewirken. Ausser Schichtungen sind auch Temperaturtransienten infolge kalter oder heisser Einspeisevorgängen zu beachten, die im Extremfall zu Thermoschockbeanspruchungen führen können. Die aus Temperaturschichtungen und -transienten resultierenden Beanspruchungen sind im Rahmen der Ermüdungsanalyse zu berücksichtigen. Grundlage der Berechnungen sind Temperaturmessungen am Umfang der Rohrleitung an ausgewählten Stellen, die der Kraftwerksbetreiber und die Überwachungsbehörde festlegen. Ein Beispiel einer solchen Messung zeigen die Abb.1 und 2. Während des Anfahrens des Kraftwerkes kann es in der Volumenausgleichsleitung (VAL) eines Druckwasserreaktors (DWR) zu thermischen Schichtungen kommen. An den horizontalen Rohrleitungen sowie den Stutzenbereichen werden Temperaturmessungen durchgeführt, um die daraus resultierenden Beanspruchungen zu bestimmen. Das Messergebnis von 7 verschiedenen Umfangspositionen am horizontalen Teil der VAL (Messstelle 2) während des Anfahrbetriebs eines deutschen DWR innerhalb einer Zeitspanne von 32 Stunden ist in Abb.2 dargestellt. Man kann daraus ablesen, dass Temperaturunterschiede von Rohrunter- und -oberseite von ca. 100°C entstehen können. Die resultierenden Spannungen überschreiten die Dehngrenze des Materials, so dass pro Zyklus mit einer bleibenden plastischen Umfangsdehnung gerechnet werden muss. Treten ähnliche Transienten im Anfahr-, Teillast- und Abfahrbetrieb auf, so akkumuliert sich der plastische Anteil der Dehnung und kann bei fortgeschrittenem Alter der Anlagen zu Rissbildungen führen. Bisher ist es nicht gelungen, den Materialzustand und damit den Schädigungsgrad zu überwachen. Der bisherige Ansatz geht davon aus, dass die Beanspruchung überwacht wird, die einen bestimmten Grenzwert nicht überschreiten darf.

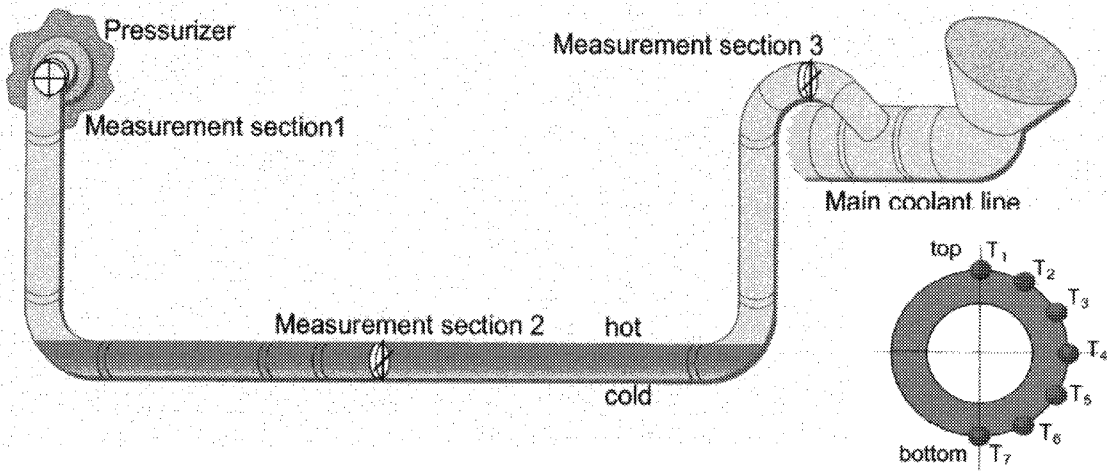


Abb.1: Messstellen an der VAL eines deutschen DWR zur Überwachung der Beanspruchung infolge thermischer Schichtungen und Temperaturtransienten, aus: [1]

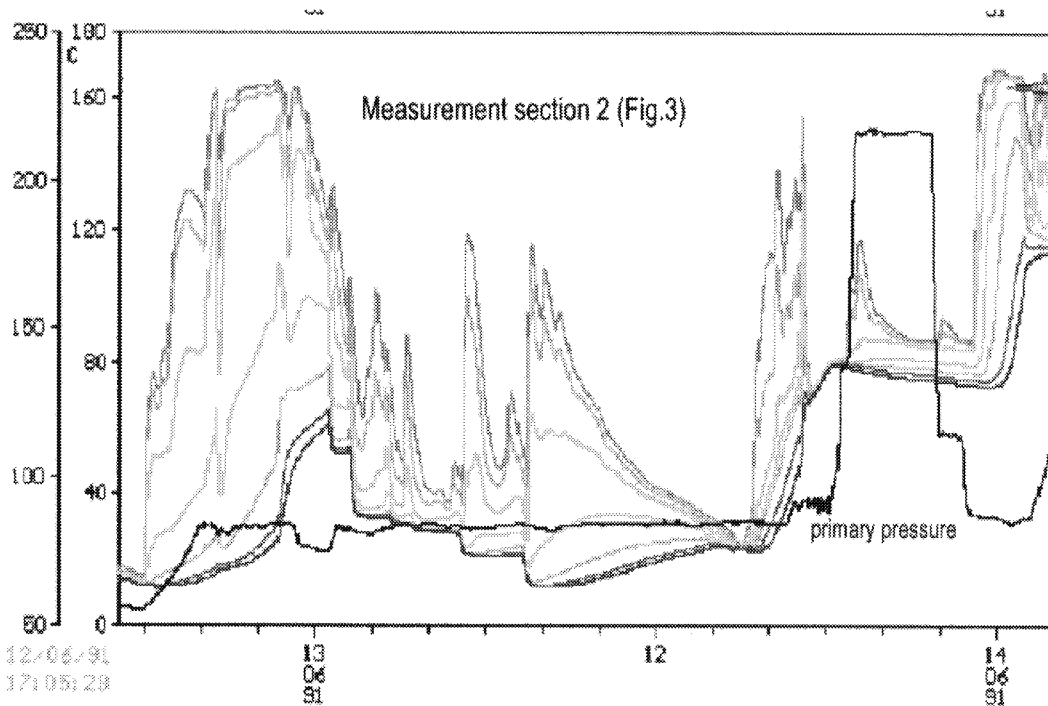


Abb.2: Temperaturmessungen an verschiedenen Umfangspositionen der VAL während des Anfahrens des Reaktors, aus [1]

2.2 Werkstoff und Versuchsdurchführung

Die Untersuchungen basieren auf der Idee, die bei der Ermüdung fortschreitende Martensitbildung in metastabilen austenitischen Stählen zu nutzen, um den Schädigungsgrad des Materials zu bestimmen [2,3]. Im Verlaufe des FEVER-Projektes wurden insgesamt 3 Probenserien untersucht (ca. 100 Ermüdungsproben). Als Untersuchungsmaterial kam der titanstabilisierte CrNi- Stahl X6CrNiTi18-10 (DIN Werkstoffnummer 1.4541, AISI 321) zum Einsatz. Das Material wurde ausgewählt aufgrund seiner metastabilen Eigenschaften, bei Unterkühlung und/oder Verformung einer teilweisen Phasentransformation von Austenit zu Martensit zu unterliegen, und aufgrund seiner weitverbreiteten Anwendung als Rohrleitungswerkstoff in der Kraftwerkstechnik. Die 3 Serien unterscheiden sich in der chemischen Zusammensetzung, der Herstelltechnologie und Wärmebehandlung. Daraus ergibt sich vor allem eine unterschiedliche Dichte an mikrostrukturellen Defekten im Ausgangszustand wie z.B. Versetzungen und Zwillinge, die die mechanischen Eigenschaften und die Martensitbildungsrate wesentlich beeinflussen. Die chemische Zusammensetzung sowie Herstellverfahren und Wärmebehandlung der einzelnen Serien ist in Tab.1 aufgelistet.

Nr.	Ch.	1.1.1.1. Cr	Ni	1.1.1.1. Si	1.1.1.1. P	S	Mo	Co			
1	WLA	0.061	17.70	9.92	0.375	0.439	1.07	0.036	0.016	0.501	0.172
2	WLA	0.020	17.05	9.60	0.140	0.450	1.88	0.028	0.030	0.320	0.100
3	K	0.022	17.70	9.84	0.148	0.381	1.85	0.029	0.022	0.334	0.118

Tab.1: Chemische Zusammensetzung und Wärmebehandlung der 3 Serien Ermüdungsproben
WLA: warmgefertigt und lösungsgeglüht, K: lösungsgeglüht und kaltgezogen

Die Serien 1 und 2 unterscheiden sich in der chemischen Zusammensetzung, wogegen Herstelltechnologie und Wärmebehandlung identisch sind. Die Serie 3 entspricht in ihrer chemischen Zusammensetzung der Serie 2, unterscheidet sich aber wesentlich in der Herstellung und Wärmebehandlung von den anderen beiden Serien. Während die Serien 1 und 2 warmgefertigt und anschliessend im Labor lösungsgeglüht wurden, erfolgte die Herstellung der Serie 3 durch Kaltziehen. Durch die Lösungsglühung der fertigen Proben der Serien 1 und 2 konnte der Anteil an δ -Ferrit sowie mikrostruktureller Defekte stark verringert werden. Die Proben der Serie 3 wurden im Labor keiner weiteren Behandlung unterworfen und kamen so zum Einsatz, wie sie vom Stahlwerk ausgeliefert wurden.

Aus den 3 Serien wurden für die Untersuchungen der deformations-induzierten Martensitbildung sowohl Zug- als auch Ermüdungsproben gefertigt. Für die Ermüdungsversuche kamen 2 verschiedene Probentypen zum Einsatz. Nach ASTM E606 wurden für die Serien 1 und 2 sogenannte „Uhrglas“-Proben und für die Serie 3 Zylinderproben hergestellt. Der Vorteil der „Uhrglas“-Proben besteht darin, dass durch die Durchmesseränderung im Messbereich die Dehnungsabhängigkeit der Martensitbildung an nur einer Probe ermittelt werden kann. Dieses Ziel stand im Mittelpunkt der Projektarbeit im Jahre 2000 und über deren Ergebnisse wurde bereits berichtet. Der Nachteil der Proben besteht in einer schwierigeren Durchführung der dehnungsgeregelten Versuche. Deshalb wurde entschieden, dass für die Untersuchungen an Serie 3 Zylinderproben mit einem Durchmesser von 10 mm verwendet werden. Um einen Vergleich der Ergebnisse aus allen Serien zu ermöglichen, wurde als plastische Lastamplitude 0,24% eingestellt, was für die Zylinderproben der Serie 3 einer totalen Dehnamplitude von 0,40% entspricht.

Die Ermüdungsversuche wurden an einer servohydraulischen Prüfmaschine (250 kN) der Fa. Schenck (Deutschland) durchgeführt. Für die Versuche im Bereich der niederzyklischen Ermüdung (LCF) kam eine spezielle Einspannung zum Einsatz, die eine hochpräzise axiale Ausrichtung der Probe gewährleistete. Die Dehnungen wurden im gesamten Temperaturbereich von 20-260°C direkt an der Probe mit einem Aufnehmer der Fa. Sandner Messtechnik (Deutschland) vom Typ EXA 20-1.25 HT gemessen. Die Versuchsdurchführung erfolgte dehnungsgeregelt mittels der digitalen Steuerung Instron FastTrack 8800 der Instron Corporation (USA). Zur Einstellung und Kontrolle der Temperatur kam eine spezielle für diese LCF Probenanordnung konstruierte Temperaturkammer vom Typ Instron SFL EC65 (GB) zum Einsatz. Die Kammer besitzt eine geringe Höhe, so dass kurze Proben-Einspannungen möglich waren. Die Temperatur an der Probenoberfläche wurde kontinuierlich während des Versuches gemessen. Beachtet werden musste, dass es bei höheren Frequenzen grösser 0,1 Hz zur Wärmeentwicklung in der Probe selbst kam, so dass hier die Umgebungstemperatur

nachgeregelt werden musste. Durch die Temperaturmessung an der Probenoberfläche wurde erreicht, dass die Versuche für alle Frequenzen bei vergleichbaren vorgegebenen Temperaturen abliefen.

Die Abb.3 zeigt beispielhaft gemessene Spannungsamplituden-Lastwechselzahl-Kurven (SN-Kurven), die bei einer Belastungsfrequenz von 1Hz und der Temperatur von 70°C erhalten wurden. Prinzipiell wird der Ermüdungsvorgang bei Stählen in 3 Bereiche unterteilt. In Phase 1 erfolgt eine Vervielfachung der Versetzungen und deren Anordnung in netzwerkartige Strukturen [3]. Die Mikrostruktur stellt sich auf die Ermüdungsbeanspruchung ein und versucht, durch eine optimale Anordnung der Versetzungen die Belastung durch lokales plastische Fließen aufzunehmen. Im SN-Diagramm ist diese Phase bei austenitischen Werkstoffen durch Entfestigung gekennzeichnet. In der 2. Phase, die auch als Sättigungsphase bezeichnet wird, wandern die Versetzungen entlang persistenter Gleitbänder an die Probenoberfläche und bilden dort Extrusionen und Intrusionen, an denen Mikrorisse von wenigen µm entstehen. Phase 2 kann sowohl durch Entfestigung als auch durch Verfestigung charakterisiert sein. In der 3. Phase kommt es zur Bildung eines technischen Anrisses von einigen mm und die SN-Kurve weist eine starke Entfestigung auf. Bei den metastabilen austenitischen Stählen werden diese Vorgänge zusätzlich von einer teilweisen Phasenumwandlung des Austenits in Martensit beeinflusst. Wie die Vorgänge im Detail ablaufen, ist noch nicht geklärt. Was alle Untersuchungen bisher übereinstimmend gezeigt haben, ist das Auftreten einer Verfestigung in der Sättigungsphase. Die Verfestigung steht in unmittelbarem Zusammenhang mit der gleichmässig fortschreitende Martensitbildung [4,7]. Auch in unseren Versuchen konnte der Zusammenhang Verfestigung und Martensitbildung bestätigt werden, wie im weiteren noch gezeigt werden wird. (Abb. 3).

Die technische Anrissentstehung wurde für alle Versuche auf 2% Lastabfall festgelegt, wobei der Lastabfall auf die maximale Spannungsamplitude der Phase 2 bezogen ist. Mit 5 Proben wurde eine mittlere Lastwechselzahl für die Anrissentstehung ermittelt und als Erschöpfungsgrad (Ausnutzungsgrad) $D = 1$ bezeichnet. Erschöpfungsgrad 1 bedeutet demnach, dass 100% Lebensdauer bis Anrissentstehung verbraucht ist. Die Materialzustände im Vorriss-Stadium werden nun derart eingestellt, dass entsprechend des Erschöpfungsgrades, der Versuch bei weniger Lastwechseln beendet wird. In Abb. 3 sind die SN-Kurven für $D = 0.6$ (blau), 0.8 (grün) und 1.0 (rot) eingetragen. Nach Versuchen mit Anrissbildung kann man anschliessend den Ermüdungsriss durch Gewaltbruch freilegen und im Rasterelektronenmikroskop (REM) untersuchen. Abb.4 zeigt eine REM- Aufnahme einer gebrochenen Probe. Deutlich sind schuppenartige Strukturen mit Schwingstreifen zu erkennen, die den Ermüdungsrissfortschritt charakterisieren.

Materialermüdung

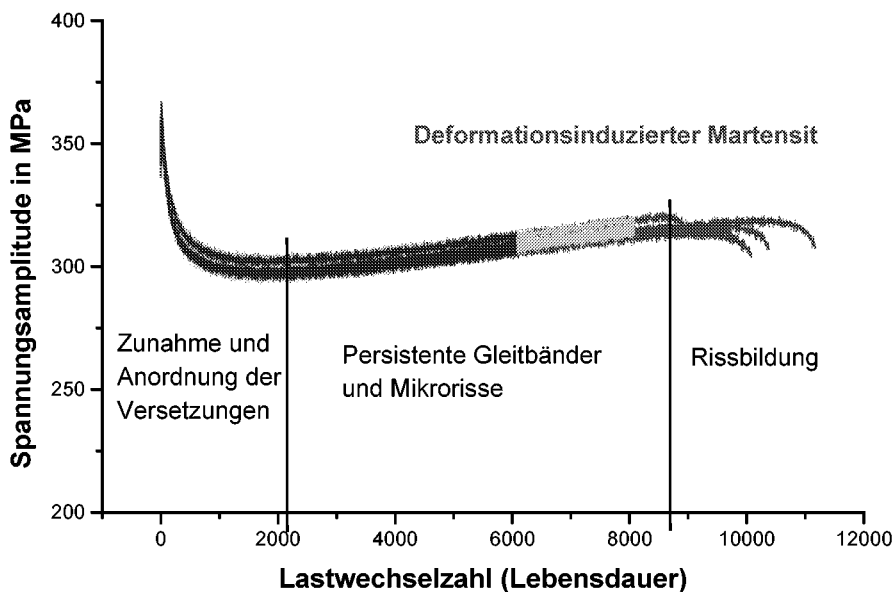


Abb.3: SN-Kurven mit der Unterteilung in Versetzungsanordnung, Sättigung und Anrissbildung bei Frequenz 1Hz und Temperatur 70°C

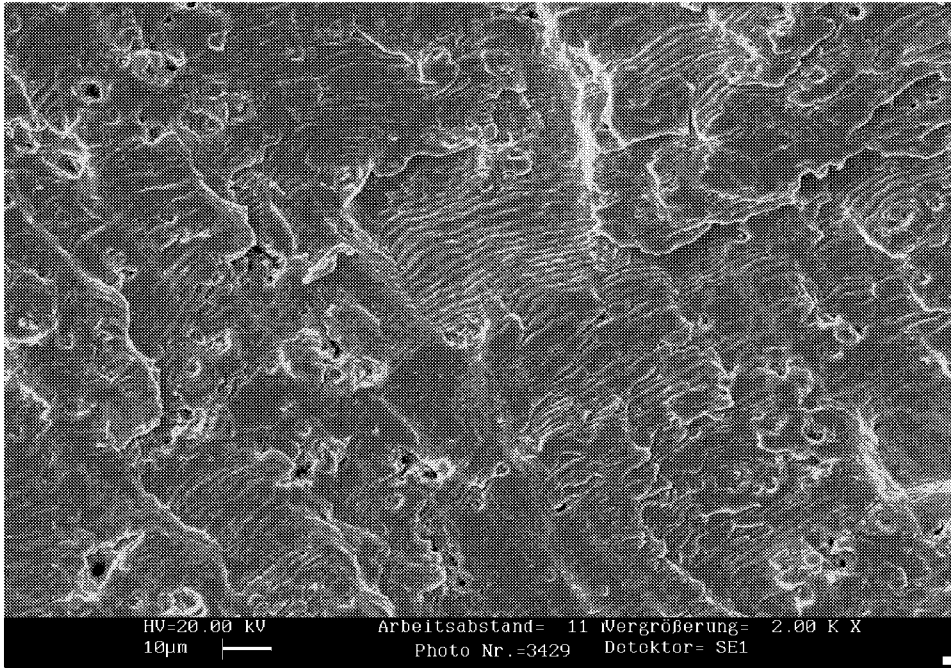


Abb.4: REM- Aufnahme der Ermüdungsrissfläche mit Schuppenstrukturen und Schwingstreifen

Um sich einen Eindruck von der Verteilung des Martensits in den ermüdeten Proben zu verschaffen, wurden metallografische Schliffe angefertigt. Dazu wurden die Proben längs geteilt und an der Oberfläche geschliffen, poliert und geätzt. Abb. 5 zeigt einen Längsschliff im Zentrum der Probe. Die dunklen Zeilen enthalten den deformations-induzierten Martensit. Räumlich gesehen bildet sich der Martensit demnach in Schalen, deren Dichte zur Mitte hin zunimmt. In Abb.6 sind die Martensitbereiche vergrößert dargestellt. Man erkennt die dunklen platten- und nadelförmigen Strukturen, die für die Martensitphase typisch sind.

Abb.7 und 8 zeigen die Martensitstrukturen, die sich in der Rissumgebung ausgebildet haben. Zunächst ist festzustellen, dass die prinzipielle Anordnung des Martensits in Schalen (Linien) nicht wesentlich gestört wird, dass es dennoch im Risspitzenbereich zu einer verstärkten Martensitbildung kommt. Dies ist bei der Bewertung der Ergebnisse der Neutronendiffraktometrie und der magnetischen Kenngrößen zu berücksichtigen.

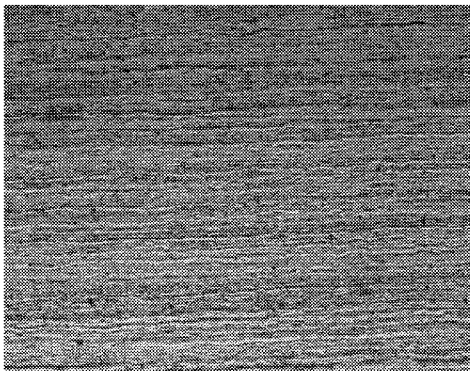


Abb.6:
Längsschliff in der Mitte einer Ermüdungsprobe mit
linienförmigem Martensitstrukturen, M = 1:50

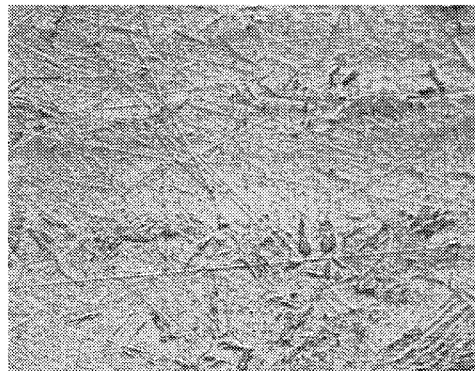


Abb.7:
Detail aus Abb.6, Platten- und Nadelförmiger
Martensit, M = 1:200

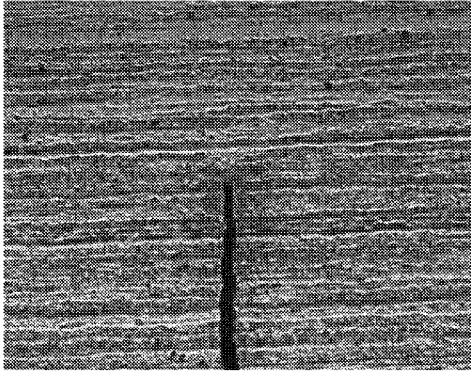


Abb.8:
Martensitausbildung an der Risspitze, M = 1:50



Abb.9:
Detail aus Abb.8, M = 1:200

Der Martensitanteil, der sich deformations-induziert in der austenitischen Matrix bildet, lässt sich quantitativ mittels Neutronen- und Röntgendiffraktometrie bestimmen. Hat man eine ausreichend starke Neutronen- oder Röntgenlichtquelle zur Verfügung, kann der Strahlquerschnitt so verringert werden, dass eine Bestimmung der Martensitverteilung in den Proben möglich wird. Die Beugungsmethoden eignen sich deshalb so gut, da Martensit und Austenit unterschiedliche Kristallgittertypen aufweisen (Martensit: raumzentriertes Gitter, Austenit: flächenzentriert), die zu einer deutlichen Unterscheidung der Beugungspeaks ausgewählter kristallographischer Ebenen führen. Die Neutronendiffraktometrie-Experimente wurden am Diffraktometer DMC durchgeführt, das aus der Spallationsneutronen-Quelle am PSI (SINQ) mit sogenannten kalten Neutronen gespeist wird. Das Gerät ist optimiert auf hohe Intensitäten und ermöglicht es, Martensitgehalte unter 1vol.% -Anteil zu bestimmen. Mit einer Neutronenwellenlänge von $\lambda = 0.38 \text{ nm}$ kam ein Streuwinkelbereich von $68^\circ \leq 2\Theta \leq 147^\circ$ zur Auswertung. Für die Messungen an den Ermüdungsproben wurde ein grosser Strahlquerschnitt von 40 mm (Breite) x 10 mm (Höhe) eingestellt, um einen mittleren Martensitanteil im Mittelteil der Proben zu bestimmen. Während der Martensitmessung wurde die Probe ständig um ihre Achse gedreht, so dass die inhomogene Martensitverteilung in den Proben ausgeglichen wurde.

Zur Bestimmung der magnetischen Kenngrössen wurden 1 Handgerät und 2 automatisierte Messplätze verwendet. Zur Bestimmung des Martensitgehaltes bot sich zunächst das Gerät Ferromaster der Fa. Fischer (Deutschland) an, das zur Bestimmung von δ -Ferrit-Anteilen in Stählen eingesetzt wird. Es basiert auf der Messung der Permeabilität (magnetische Leitfähigkeit) bzw. Suszeptibilität und besteht aus einem Dauermagnet und 2 Aufnehmerspulen. Für unsere Anwendung scheint das Gerät gut geeignet, da es für Permeabilitäten von 1-2 ausgelegt ist, d.h. der Messung von kleinen ferromagnetischen Anteilen (Domänenstruktur) in einer paramagnetischen Umgebung. Ähnliche Verhältnisse liegen auch in unseren Untersuchungsproben vor.

Mit Hilfe eines automatisierten Magnetfeldmessplatzes kann die Restfeldstärke (Remanenzflussdichte) der Proben bestimmt werden. Dazu werden die Proben vorher in einer Spule bis zur Sättigung magnetisiert und anschliessend mittels hochsensitiver Detektoren vermessen. Als Sensor kommt ein SQUID-System (Super-conducting Quantum Interference Device) zum Einsatz [9], das ein Ausmessen von geringsten ferromagnetischen Anteilen erlaubt. Zur Bestimmung der Martensitverteilung in den Proben wird ein weiteres automatisiertes Messsystem mit einer speziellen Wirbelstromtechnik eingesetzt [8]. Die Bestimmung des Martensitgehaltes über die Wirbelstromimpedanz ist schwierig, da diese Messgrösse stark beeinflusst wird vom Abstand der Sonde zur Probenoberfläche, von der Probengeometrie sowie von lokalen Unterschieden in der elektrischen Leitfähigkeit. Deshalb wird in unseren Untersuchungen die Wirbelstromimpedanz zur Visualisierung der Martensitverteilung an der Mantelfläche oder dem Längsschnitt der Proben verwendet. Zur magnetischen Martensitbestimmung stehen somit die Messung der Permeabilität und der Remanenzflussdichte sowie zur Visualisierung der Martensitverteilung die Wirbelstromimpedanzmessung zur Verfügung.

2.3 Einflussgrössen auf die Martensitbildung bei LCF-Ermüdung

2.3.1 Lastwechselzahl (Lebensdauer)

Der Einfluss der Lastwechselzahl auf die Martensitbildung war bereits Forschungsziel der Serien 1 und 2 [10]. Da die Probenzahl der ersten beiden Serien sehr begrenzt war (15 je Serie), kamen mit der neuen Serie 3 mehr Messwerte dazu, die eine wesentlich bessere Beurteilung gestatten. Alle Untersuchungen in diesem Jahr wurden zusätzlich von Zugversuchen begleitet, deren Erkenntnisse zwar nicht neu, die aber einen Vergleich der Martensitbildung bei statischer und zyklischer Belastung erlauben.

Bei zügiger quasistatischer Belastung wurden in Standardzugproben definierte Dehnungen eingebracht und anschliessend der mittlere Martensitgehalt mittels Neutronendiffraktometer (ND) bestimmt. Die Ergebnisse in Abb.9 zeigen, dass sich der Martensitgehalt mit steigender Gesamtdehnung erhöht. Es konnte eine einfache lineare Korrelation gefunden werden, mit der es möglich ist, bei bekannter Dehnung den Martensitgehalt vorherzusagen. Die Ergebnisse der Ermüdungsversuche beziehen sich auf die Bedingungen der Belastungsfrequenz von 1Hz und der Probentemperatur von 70°C, da hier die meisten Ergebnisse aus allen Serien vorliegen. Die Versuche wurden ohne Temperaturkammer an Umgebungsluft durchgeführt. Bei der Frequenz von 1Hz kommt es durch den Ermüdungsvorgang zu einer Probenerwärmung auf 70°C.

In Abb.10 sind die am Neutronendiffraktometer bestimmten Martensitgehalte der Ermüdungsproben aller Erschöpfungsgrade zusammengestellt. Der beste Fit der Ergebnisse ergibt sich mit einer quadratischen Wurzelfunktion aus der Lastwechselzahl. Das Grundgesetz der niederzyklischen Ermüdung, die Coffin-Manson Beziehung, beschreibt einen ähnlichen Zusammenhang der plastischen Dehnamplitude als quadratische Wurzelfunktion aus der Lastwechselzahl bis zum Ermüdungsbruch. Der Martensitgehalt korreliert damit mit der akkumulierten plastischen Dehnung, die als Schädigungsparameter bei LCF-Ermüdung gilt. Somit ist gezeigt, dass über den Martensitgehalt der mikrostrukturelle Schädigungsgrad bei metastabilen austenitischen Stählen bestimmt werden kann.

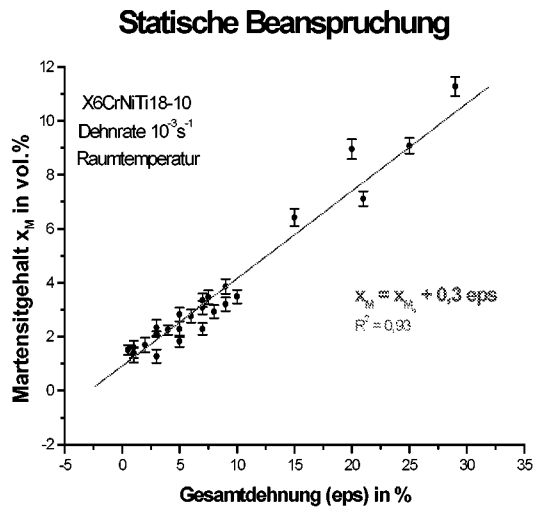


Abb.9:
Abhängigkeit des mittels ND bestimmten Martensitgehalts von der Dehnung im Zugversuch

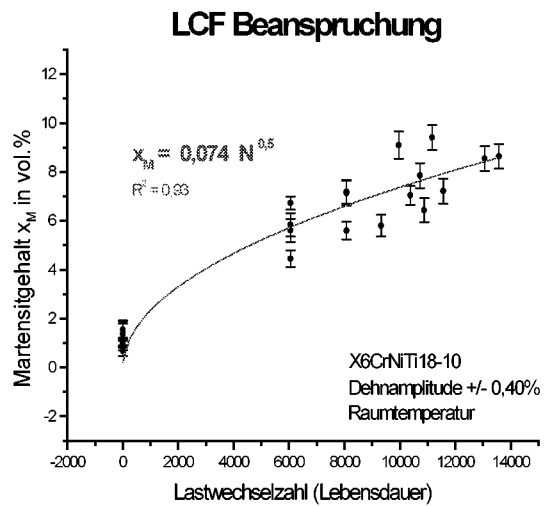


Abb.10:
Abhängigkeit des mittels ND bestimmten Martensitgehalts von der Lastwechselzahl bei 1Hz und 70°C

2.3.2 Temperatur

Eines der Hauptziele der neuen Probenserie war die Untersuchung, welchen Einfluss die Temperatur auf die Martensitbildung ausübt. Die ersten Ergebnisse aus der Serie 2 gaben ein sehr verwirrendes Bild ab. Von anderen Forschungsgruppen sind bisher kaum Untersuchungen zum Temperatureinfluss auf die Martensitbildung bei LCF-Ermüdung durchgeführt worden. Für die Untersuchungen an der neuen Probenserie kam eine spezielle Temperaturkammer zum Einsatz. Die Temperatur an der Probenoberfläche wurde kontinuierlich gemessen und die Umgebungsluft so geregelt, dass die Probentemperatur während des Versuches konstant blieb. Beispielhaft sind in Abb.11 die SN-Kurven für verschiedene Temperaturen bei der Frequenz von 0,5 Hz und dem Erschöpfungsgrad $D=1$ dargestellt. Der Einfluss ist hier unmittelbar in dem unterschiedlichen Grad der Verfestigung in der Sättigungsphase abzulesen. Das Abfallen der Verfestigung mit steigender Temperatur deutet bereits an, dass der Martensitgehalt die gleiche Tendenz aufweist. Es sei hier darauf hingewiesen, dass auch bei 260°C deformations-induzierter Martensit gefunden wurde, obwohl bereits Entfestigung vorliegt.

LCF Beanspruchung

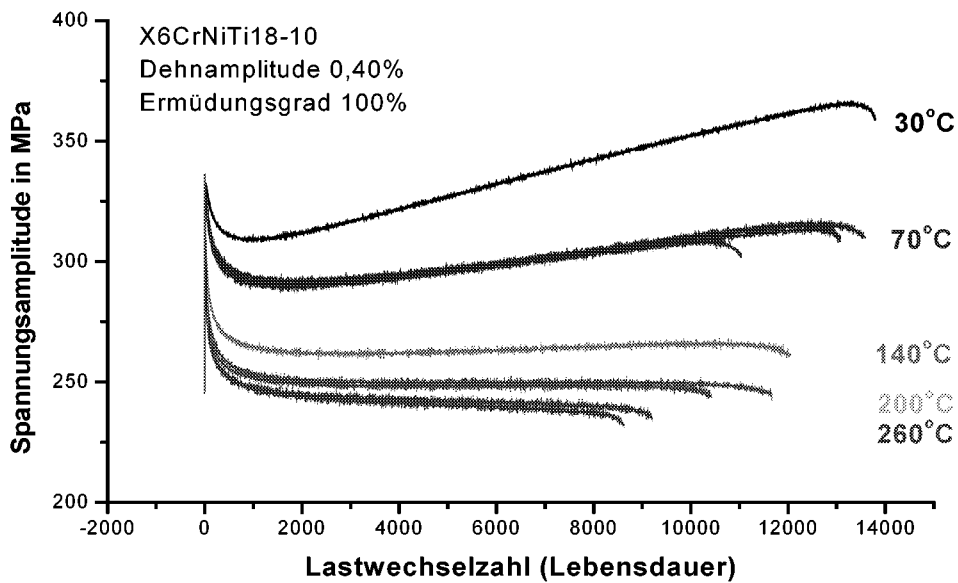


Abb.11: SN-Kurven in Abhängigkeit der Temperatur bei Frequenz 0,5 Hz und D=1

Als erster Schritt der Untersuchungen wurden Zugproben bei unterschiedlichen Temperaturen bis zu einer Gesamtdehnung von 20% beansprucht und anschliessend mittels Neutronendiffraktometrie der Martensitgehalt bestimmt. Ähnliche Untersuchungen führte bereits Angel an Stählen der Reihe AISI 304 durch [6], wobei der Martensitgehalt nur an der Oberfläche bestimmt werden konnte. Unsere Ergebnisse bei quasistatischer Beanspruchung sind in Abb.12 dargestellt. Zunächst ist es nicht überraschend, dass der Martensitgehalt mit steigender Temperatur abnimmt. Der beste Fit der Ergebnisse ergab sich mit einer Exponentialfunktion und veranlasste uns zu folgender Überlegung. Der Grundmechanismus der Martensitbildung ist thermisch aktiviert, denn er besteht in einer Unterkühlung unter die Temperatur des thermodynamischen Gleichgewichts T_0 [4]. Die Differenz T_0 zur Prüftemperatur bestimmt somit die treibende Kraft für die Martensitumwandlung. Der Einfluss der mechanischen Dehnung besteht nun darin, dass diese treibende Kraft zusätzlich um einen konstanten Betrag angehoben wird, was zur Folge hat, dass die Martensitbildung bereits bei wesentlich höheren Temperaturen beginnt als das ohne mechanische Last der Fall wäre. Da demnach der Mechanismus grundsätzlich thermisch aktiviert ist, liegt es nahe, die Temperaturabhängigkeit in der Form $\exp[-Q/k(T_0-T)]$ darzustellen. Hierbei ist Q die Aktivierungsenergie, k die Boltzmann-Konstante und T_0 die Temperatur des thermodynamischen Gleichgewichts. Für T_0 kann in der Literatur für ähnliche Stähle der Wert von 640 K gefunden werden [6]. Mit der daraus abgeleiteten Exponentialfunktion können nun die Ergebnisse gefittet werden. Für die statischen Versuche ist dies in Abb.12 ausgeführt. Die sehr gute Korrelation bestätigt die Überlegungen.

Statische Beanspruchung

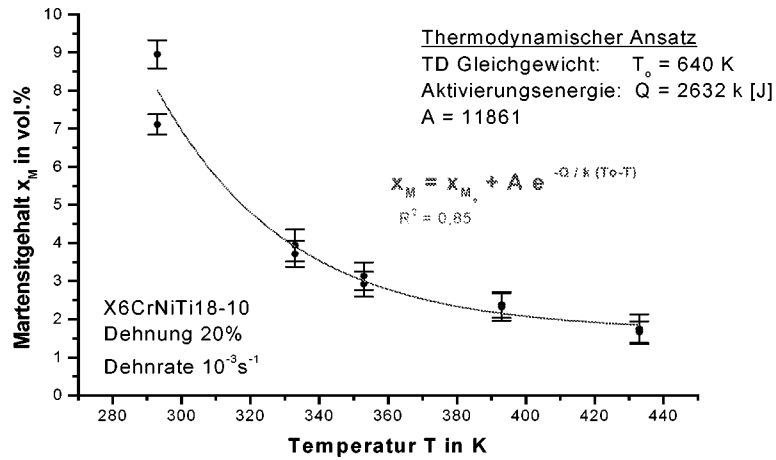


Abb.12: Abhängigkeit des Martensitgehaltes von der Temperatur bei quasistatischer Belastung, gefittet mit einem thermodynamischen Ansatz

Nach den Zugversuchen erfolgten systematische Untersuchungen zum Temperatureinfluss auf die Martensitumwandlung bei LCF-Ermüdung. Bei einem definierten Erschöpfungsgrad, konstanter Lastamplitude und Frequenz wurden Ermüdungsversuche bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt und der Martensitgehalt nach den Versuchen mittels Neutronendiffraktometrie bestimmt. Die Ergebnisse sind für $D=0,8$ und $0,5 \text{ Hz}$ in Abb.13 dargestellt. Analog dem Vorgehen bei der Auswertung der quasistatischen Versuche sind die Ergebnisse mit dem thermodynamischen Ansatz gefittet. Eine erstaunlich gute Korrelation bestätigt, dass bei der Bewertung des Martensitgehaltes zukünftig ein Temperatur-Korrekturterm der Form $\exp [-Q / k (T_0-T)]$ eingesetzt werden kann. Aus den vorangegangenen Überlegungen ist leicht zu verstehen, dass die Aktivierungsenergie Q von der Lastamplitude abhängt. Demnach ist es notwendig, Kurvenreihen bei unterschiedlichen Dehnamplituden zu bestimmen, die für die Bewertung des Martensitgehaltes notwendig sind. Die sehr geringen Streuungen der Martensitwerte bei einer definierten Temperatur (Abb.13) bestätigen die gute Qualität der Versuchsdurchführung sowohl der mechanischen Versuche als auch der Martensitbestimmung mittels Neutronendiffraktometer. Dies sind weltweit die ersten systematischen Untersuchungen der Temperaturabhängigkeit der Martensitbildung bei LCF-Ermüdung. Weitere temperaturabhängige Untersuchungen könnten wesentlich zum Verständnis der deformations-induzierten Martensitbildung beitragen.

LCF Beanspruchung

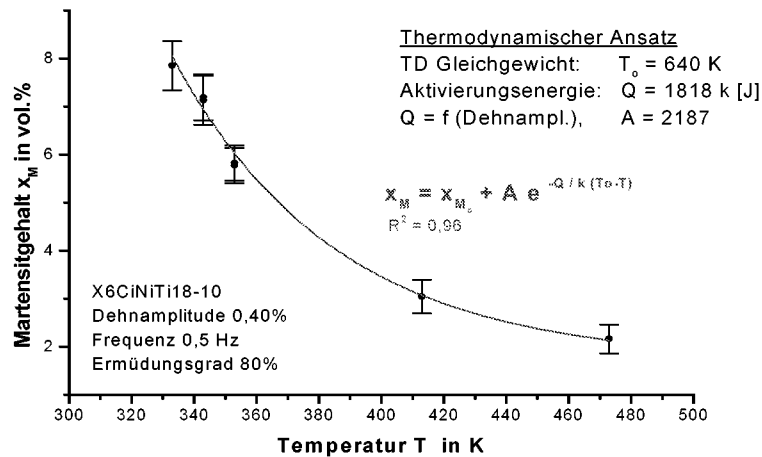


Abb.13: Abhängigkeit des Martensitgehaltes von der Temperatur bei LCF-Ermüdung, gefittet mit einem thermodynamischen Ansatz

2.3.3 Beanspruchungsfrequenz

Als weitere mögliche Einflussgrösse auf die Martensitbildung kommt die Belastungsfrequenz in Betracht. Zur Untersuchung dieses Einflusses sind Ermüdungsversuche bei definiertem Erschöpfungsgrad, konstanter Lastamplitude und Temperatur mit unterschiedlichen Frequenzen durchgeführt worden. In Abb.14 sind die entsprechenden SN-Kurven bei $D=1$ und 70°C dargestellt. Aus den Kurven ist ersichtlich, dass die Lastwechselzahlen für die Anrissbildung bei den kleineren Frequenzen gleich sind, wogegen bei der Frequenz von 1 Hz etwas geringere Lastwechselzahlen ermittelt wurden. Die gleiche Tendenz sollte sich auch bei der Martensitbildung einstellen. Abb.15 dokumentiert die mittels Neutronendiffraktometer DMC erhaltenen Martensitgehalte in Abhängigkeit der Belastungsfrequenz. Es ergibt sich demnach wie erwartet das gleiche Bild, das bereits bei den Lastwechselzahlen erhalten wurde. Bei kleinen Frequenzen existiert kein Einfluss der Frequenz auf die Martensitbildung. Bei grösseren Frequenzen wurde eine leichte Abhängigkeit bestimmt, wobei abzuklären ist, ob hier nicht ein weiterer Temperatureffekt vorliegt. Experimentell ist nur die Messung der Temperatur an der Probenoberfläche möglich. Bei höheren Frequenzen kommt es bekanntlich zur Erwärmung der Probe, die sich nicht unbedingt homogen über die Probendicke einstellen muss. Falls die ermüdungsbedingten Temperaturen in Probenmitte die Temperaturen an der Probenoberfläche überschreiten, wäre der gemessene Frequenzeffekt in Wirklichkeit ein Temperatureffekt und die Probenoberfläche müsste nachträglich angepasst werden. Zur Abklärung dieses Effektes sind Messungen der Temperaturverteilung in der Probe während des Ermüdungsversuches in Vorbereitung.

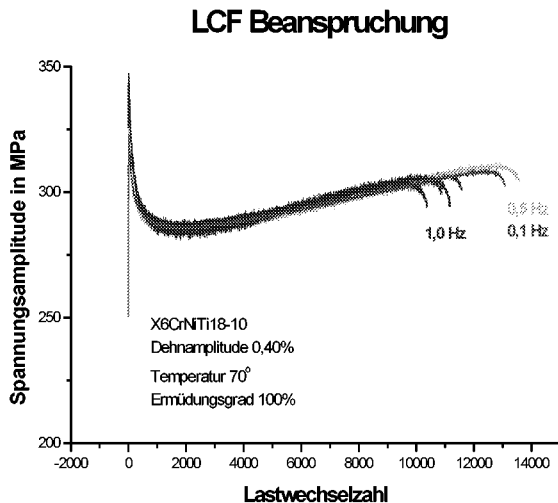


Abb.14:
SN-Kurven bei verschiedenen Belastungsfrequenzen

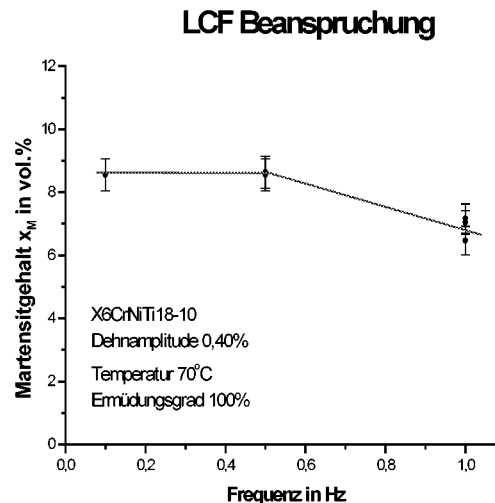


Abb.15:
Abhängigkeit des mittels ND ermittelten
Martensitgehaltes von der Belastungsfrequenz

2.3.4 Herstelltechnologie, Wärmebehandlung

Der Material-Ausgangszustand ist als wesentliche Einflussgrösse auf die Martensitbildung zu betrachten. Als Keime für die Phasentransformation kommen vor allem Überschneidungen von Schraubenversetzungen, Zwillingen und Gleitbändern in Betracht [5]. Demnach ist die ursprüngliche mikrostrukturelle Defektdichte ausschlaggebend für die deformations-induzierte Martensitumwandlung. Eine grössere anfängliche Defektdichte sollte die Wahrscheinlichkeit der Keimbildung erhöhen. Diese Überlegung lässt sich am Vergleich der Serien 1 und 2 mit der Serie 3 überprüfen. Die Ermüdungsproben der ersten beiden Serien wurden im Stahlwerk warmgefertigt und nach der Probenfertigung einer Lösungsglühung im Labor unterzogen. Der Grund für diese nachträgliche Wärmebehandlung bestand in einer Herabsetzung des δ -Ferrit-Anteils, der sich möglicherweise bei der Bestimmung der magnetischen Kenngrössen als störend erweisen könnte. Die Proben der Serie 3 wurden kaltgezogen und es erfolgte keine nachträgliche Wärmebehandlung.

Ein Vergleich der beiden Materialzustände lässt sich gut aus den Spannungs-Dehnungs-Kurven des Zugversuches ablesen. Die Ergebnisse sind in Abb.16 dokumentiert. Wie erwartet zeigt die Serie 1 und 2 eine niedrige Dehngrenze und hohe Bruchdehnung, währenddessen Serie 3 durch eine relativ hohe Dehngrenze und kleine Bruchdehnung

gekennzeichnet ist. Durch die zusätzliche Wärmebehandlung der Serien 1 und 2 sind relativ wenig mikrostrukturelle Defekte vorhanden. Dadurch werden die Versetzungsbewegungen kaum behindert und führen zur hohen Zähigkeit. Bei der Serie 3 kommt es durch die Kaltverformung zur Ausbildung relativ vieler Versetzungen, die sich gegenseitig behindern, so dass eine hohe Festigkeit erreicht wird. Damit sind 2 sehr unterschiedliche Materialzustände vorhanden und die Auswirkungen auf die Martensitbildungsrate während des Ermüdungsvorganges kann untersucht werden.

Statische Beanspruchung

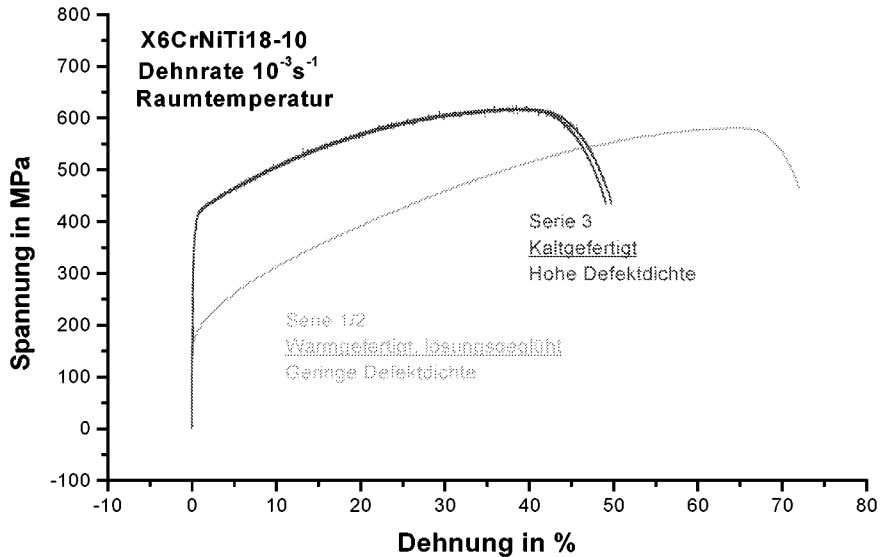


Abb.16:
Spannungs-Dehnungs-Kurven der beiden Materialzustände nach unterschiedlicher Fertigungstechnologie und Wärmebehandlung

Die Ergebnisse der Martensitbestimmung aller Serien ist in Abb. 17 zusammengestellt. Die Untersuchungen der Serien 1 und 2 wurden bereits im Jahre 2000 durchgeführt. Die neuen Werte der Serie 3 sind hinzugefügt. Es ist ersichtlich, dass erhebliche Unterschiede im Martensitgehalt auftreten. Während die wärmebehandelten Proben am Lebensdauerende nur etwa 3 vol.% Martensitanteil aufweisen, bringen es die kaltgefertigten Proben auf 9 vol.% Martensit. Auch in den Lastwechselzahlen lässt sich diese Tendenz ablesen. Der Materialzustand mit der wesentlich kleineren anfänglichen Defektdichte bildet weniger Martensit aus und erreicht eine höhere Lebensdauer. Damit ist die Überlegung bestätigt, dass die Wahrscheinlichkeit der Keimbildung durch eine anfänglich höhere Defektdichte erhöht wird. Zum anderen bringt es die Schwierigkeit mit sich, das bei einer technischen Umsetzung der Martensitüberwachung, der Material-Ausgangszustand bekannt sein muss, damit die entsprechende Kalibrierkurve eingesetzt werden kann. Hier bedarf es weiterer Forschung, um diese Kalibrierkurven zu erstellen und entsprechenden Herstellungsverfahren und Wärmebehandlungen zuzuordnen. Möglicherweise reicht es aus, den Materialausgangszustand mittels der Dehngrenze zu charakterisieren, die auch zerstörungsfrei bestimmt werden könnte.

LCF Beanspruchung

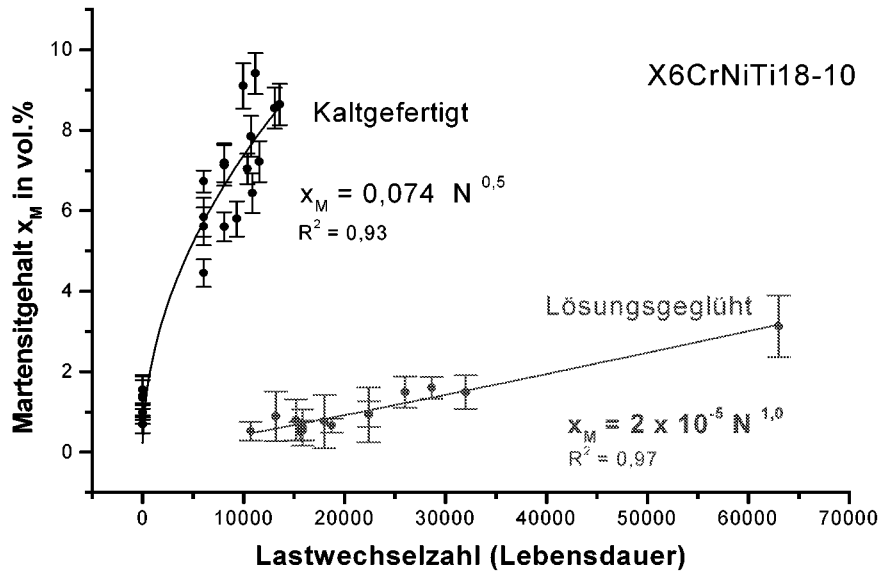


Abb.17:
Abhängigkeit der Martensitbildung von Herstelltechnologie und Wärmebehandlung am
Beispiel der Serien 1-3 bei vergleichbarer plastischer Dehnamplitude von 0,24%

2.4 Messung magnetischer Kenngrößen

2.4.1 Permeabilität

Für Messung kleiner ferromagnetischer Anteile in einer paramagnetischen Umgebung ist das relativ einfache Handmessgerätes Ferromaster der Firma Fischer (Deutschland) gut geeignet. Als Messgröße wird die Permeabilität der magnetischen Hysterese bestimmt. Da die Permeabilität von der Feldstärke abhängt und diese sich nicht im Gerät ändern lässt, wird die Permeabilität in einem festen Arbeitspunkt ermittelt. Mittels Referenzproben bestimmter Permeabilität kann das Gerät kalibriert werden. Mit dieser einfachen Messtechnik können im Bereich der Permeabilität von 1,0 bis 2,0 kleine Änderungen der magnetischen Leitfähigkeit gut detektiert werden und eine Erhöhung der magnetischen Leitfähigkeit zeigt eine Zunahme des Martensitanteils in den Proben an. Die magnetische Leitfähigkeit wird als Permeabilität aus der BH-Hysterese oder als Suszeptibilität aus der MH-Hysterese bestimmt, wobei B die magnetische Flussdichte, H die magnetische Feldstärke und M die Magnetisierung ist. In Abb.18 sind die Ergebnisse der Messungen an den quasistatisch beanspruchten Proben dargestellt. In den Zugproben wurden Martensitanteile von 1- 30vol.% durch definierte Dehnungsbeträge eingestellt. Es wird deutlich, dass der Martensitgehalt sehr gut mit der Suszeptibilität bestimmt werden kann. Es ergibt sich eine einfache lineare Korrelation, die es sogar ermöglicht, den Martensitgehalt direkt am Gerät abzulesen. Die Messungen an den Ermüdungsproben sind in Abb. 19 dokumentiert. Auch die ermüdungsinduzierten Martensitgehalte von 1-9vol.% werden vom Messgerät gut aufgelöst und auch hier ist die Verwendung einer einfachen linearen Kalibrierkurve möglich. Die Messwerte beziehen sich auf den Martensitgehalt, der mittels Neutronendiffraktometer DMC bestimmt wurde. Die Streuungen im Diagramm beinhalten somit die systematischen Messfehler sowohl aus der Ferromaster als auch aus der DMC-Messung. Aufgrund der relativ grossen Streuungen in diesem Diagramm ist eine genaue Bestimmung der zugeordneten Lastwechselzahlen (Lebensdauer) nicht möglich. Eine Einordnung in die verschiedenen Erschöpfungsgrade kann jedoch vorgenommen werden.

Um beide Messungen, Martensitgehalt mit DMC und magnetische Leitfähigkeit mit Ferromaster, miteinander zu vergleichen, sind die Messwerte an gleichen Proben direkt den Lastwechselzahlen zugeordnet und in Abb.20 dargestellt. Die schwarze Kurve entspricht den Messungen am DMC, die rote Kurve den Messungen mit dem Ferromaster. Zunächst

wird deutlich, dass beide Messungen die Martensitbildung gut auflösen und mittels einer linearen Korrelation bestimmen können. Was nun die Streuungen betrifft, so muss festgestellt werden, das in diesem Fall die magnetische Messung geringere Streuungen aufweist als die DMC-Messung. Ein Grund könnte darin bestehen, dass nicht alle DMC-Messungen mit einer kontinuierlich axialen Drehung der Probe durchgeführt wurden, so dass für einige Proben kein Mittelwert über die Mantelfläche vorliegt. Ein weiterer Unterschied besteht darin, dass das Ferromaster die unmittelbaren Oberflächenbereiche nicht erfasst und somit die gerade an der Oberfläche auftretenden Schwankungen im Martensitgehalt nicht wahrnimmt. Hier bedarf es Abklärung und methodischer Verbesserung.

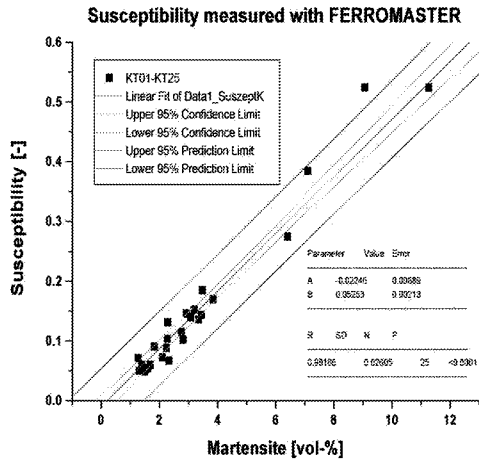


Abb.18: Messung der magnetischen Leitfähigkeit mittels Ferromaster an den quasistatisch belasteten Proben. Der Martensitgehalt wurde mittels Neutronendiffraktometer bestimmt.

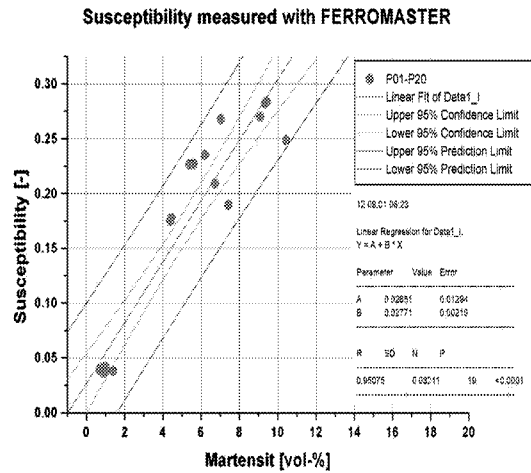


Abb.19: Messung der magnetischen Leitfähigkeit mittels Ferromaster an den Ermüdungsproben. Der Martensitgehalt wurde mittels Neutronendiffraktometer bestimmt.

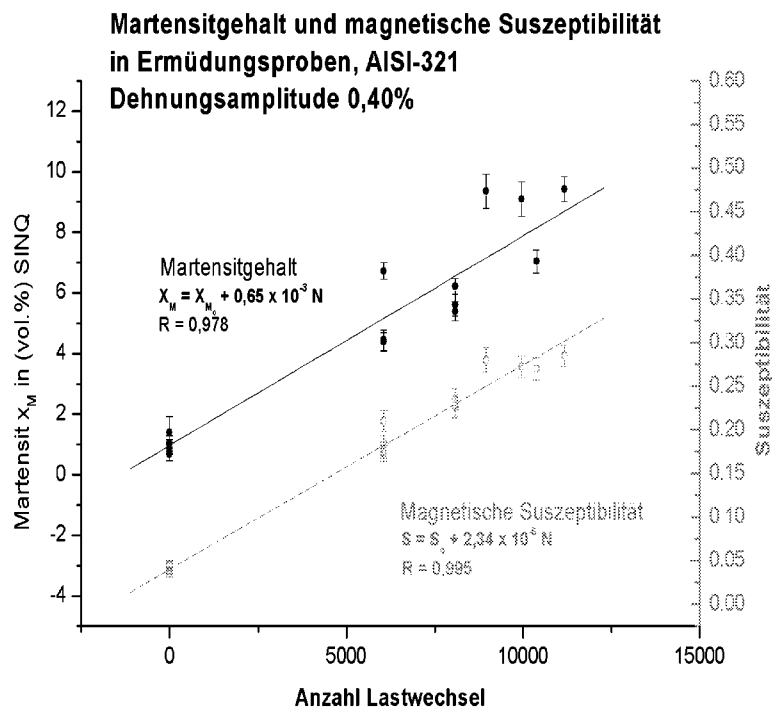


Abb.20: Vergleich der Messungen des Martensitgehalts mit dem Neutronendiffraktometer DMC und der Messung der magnetischen Leitfähigkeit mittels Ferromaster in Abhängigkeit der Lastwechselzahl

2.4.2 Wirbelstrom-Impedanz

Ausgehend von den Messungen mit dem Ferromaster Handprüfgerät wurde die automatisierte Wirbelstrommesstechnik kalibriert und eingesetzt. Wie bereits erwähnt ist das Messsignal der Wirbelstromimpedanz abhängig von einigen geometrischen und physikalischen Einflüssen, wie z.B. Abstand Sensor zur Probe, Probengeometrie, lokale Unterschiede in der elektrischen Leitfähigkeit. Dies erschwert erheblich die Bestimmung des Martensitgehalts. In der Prüfpraxis ist jedoch die Wirbelstromprüftechnik weit verbreitet und lässt sich einfach handhaben. In unseren Untersuchungen wird die Wirbelstrommesstechnik eingesetzt, um die Martensitverteilung an den Ermüdungsproben sichtbar zu machen. Als Gerät kommt ein sogenanntes GMR-Messsystem zum Einsatz (Giant-Magneto-Resistor-System). 1988 wurde in Frankreich entdeckt, dass in Strukturen mit mehreren wechselnden Schichten aus ferromagnetischem und paramagnetischem Material ein extrem starker magnetresistiver Effekt auftritt, wenn die Schichtdicken in der Größenordnung weniger Nanometer liegen. Die Basis unseres Messsystems bilden GMR-Schichtsysteme der Fa. Nonvolatile Electronics Inc., USA (NVE). NVE war zugleich der erste Anbieter für GMR-Sensoren auf dem Markt. Das Messsystem selbst wurde vom Fraunhofer Institut für zerstörungsfreie Prüfverfahren Saarbrücken entwickelt [8]. Die Vorteile des Systems liegen sowohl in einer genügend hohen Feldempfindlichkeit als auch in einer ausreichenden Ortsauflösung des Sondensystems. Das Wirbelstromimpedanz-Messsignal wurde mittels der quasistatisch beanspruchten Proben kalibriert. Ein Vergleich der Messungen der Martensitgehalte an den Ermüdungsproben, die sowohl mittels Ferromaster als auch GMR unter Laborbedingungen durchgeführt wurden dokumentiert, dass im Labor eine Martensitbestimmung mittels GMR möglich ist (Abb.21).

Mit dem kalibrierten GMR-Messsystem wurde die Oberfläche ausgewählter Proben abgescannt und die Martensitverteilung bestimmt. Abb.22 zeigt beispielhaft die Messung an einer Ermüdungsprobe des Erschöpfungsgrades $D=0,8$. Dargestellt ist die vollständige Mantelfläche der Probe im Messbereich der Dehnungssteuerung (zylindrisches Mittelstück der Probe). Es kann für alle untersuchten Proben festgestellt werden, dass die Martensitbildung inhomogen auftritt, was berücksichtigt werden muss bei der Bestimmung des Martensitgehaltes. Wie bereits erwähnt ist es notwendig, die Probe während der Messung um ihre Achse zu drehen, um vergleichbare mittlere Werte des Martensitanteils zu bestimmen. In Abb. 22 treten deutlich 2 Konzentrationsgebiete an Martensit hervor. Es kann vermutet werden, dass an einer dieser Stellen später ein technischer Anriss entsteht.

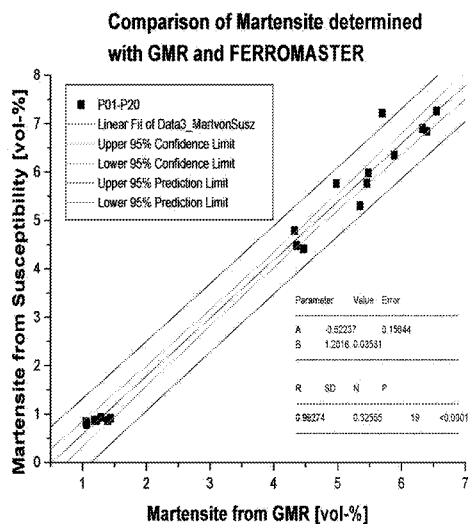


Abb. 21: Vergleich der Martensitbestimmung mit Ferromaster und GMR- Messsystem

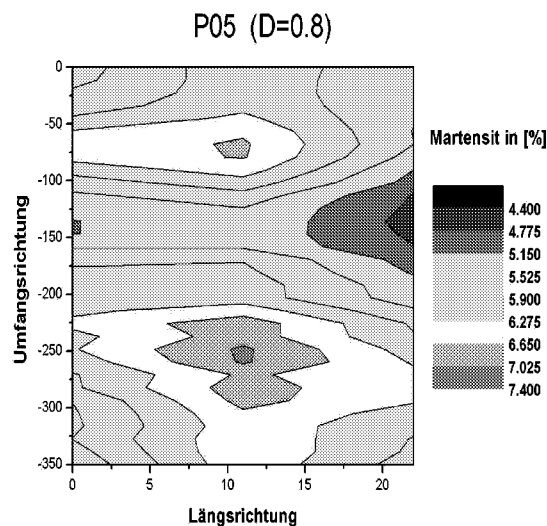


Abb.22: Mittels GMR ermittelte Martensitverteilung in der Mantelfläche einer Ermüdungsprobe mit $D=0,8$

3 Nationale Zusammenarbeit

Es bestehen enge Kontakte zur Eidgenössischen Materialprüfungs- und -forschungsanstalt EMPA in Dübendorf. Mit der Abteilung Festigkeit und Schadensanalyse werden Messtechnik und Erfahrungen auf dem Gebiet der Ermüdungsschädigung ausgetauscht. Weiterhin bestehen enge Beziehungen zur Abteilung der zerstörungsfreien Materialprüfung.

Ein wissenschaftlicher Austausch aller Projekte der Kerntechnik findet im PSI Arbeitskreis „Nuclear Materials“ statt, der monatlich im PSI durchgeführt wird. Eine besonders enge Zusammenarbeit besteht mit der Gruppe Fusionsmaterialien der EPFL. Mitarbeiter der Gruppe nutzen die PSI Geräte zur mechanischen Werkstoffprüfung und Metallographie. Mitarbeiter der EPFL tragen durch mikroskopische Untersuchungen zu den PSI-Projekten bei. Es ist vereinbart, dass Untersuchungen zur Versetzungsanordnung in den Ermüdungsproben mittels Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) von Mitarbeitern der EPFL durchgeführt werden..

Als potentielle Anwender der Martensitüberwachung sind Kontakte zu den Kernkraftwerken Beznau und Gösgen aufgenommen worden. Das Kernkraftwerk Beznau unterstützt das Projekt, indem es gemessene Temperaturdaten an der Volumenausgleichsleitung und eventuell Materialproben zur Verfügung stellt. Die Messdaten werden am Versuchsstand umgesetzt, indem die Lastzyklen realitätsnah nachgefahren werden.

4 Internationale Zusammenarbeit

Es bestehen sehr vielfältige internationale Kooperationen, die mit dem Projekt FEVER verknüpft sind. Zum einen ist es die Mitarbeit in dem EU5- Projekt GRETE („Evaluation of Non-destructive Testing Techniques for Monitoring of Material Degradation“). Zum anderen werden Messungen zur Martensitbestimmung in internationalen Forschungseinrichtungen durchgeführt. Zusätzlich findet ein Austausch aktueller Forschungsergebnisse in Konferenzen und Arbeitskreisen der OECD NEA CSNI und der IAEA statt. Das Projekt Grete FIS5-1999-00280, das im 5. EU-Rahmenprogramm EURATOM Nuclear Fission durchgeführt wird, beschäftigt sich mit der Überwachung von Materialalterung in Kernkraftwerken, insbesondere der Überwachung der Strahlungsversprödung von Reaktordruckbehältern und der Überwachung von thermischer Ermüdung in Primärkreislauf-Rohrleitungen. Folgende Projektpartner nehmen daran teil: Electricité de France (F), Nuclear Reserach and Consulting Group (NL), VTT Technical Reserach Centre (FIN), Tecnatom (SP), Institut für zerstörungsfreie Prüfverfahren (DE), EC Joint Reserach Centre Petten (EC), AEA Technology (GB), CIEMAT (SP), Forschungszentrum Seibersdorf (A), Atomic Energy Research Institute (H), Universität Hannover (DE), Nuclear Research Institute Rez (CZ), Siempelkamp (DE), Institut National des Sciences Appliquees de Lyon (F), All-Russian Institute for Nuclear Power Plants Operation (RUS), Framatome ANP (DE). Im Rahmen bilateraler Zusammenarbeit wurden Messungen des Martensitgehalts an folgenden Forschungseinrichtungen durchgeführt: Forschungszentrum Jülich (DE) und Siempelkamp Dresden (DE) mit SQUID-Messtechnik, Institut für zerstörungsfreie Prüfverfahren (DE) mit GMR-Messtechnik, Universität Hannover (DE) mit der Messtechnik der nichtlinearen harmonischen Analyse, Electricite de France (F) mit der Thermoelektrischen Kraft-Messtechnik. In die PSI-Labors kamen Mitarbeiter von Siempelkamp (DE), IzfP (DE), Universität Hannover (DE) und EdF (F) zu Gastmessungen.

Die Ergebnisse an den beiden ersten Probenserien wurden an wissenschaftlichen Konferenzen vorgetragen [10]. Weiterhin werden aktuelle Forschungsergebnisse auf dem Gebiet der Alterungsüberwachung von Kernkraftwerkskomponenten in folgenden EU-Netzwerken bzw. Arbeitsgruppen ausgetauscht, in denen Mitarbeiter von FEVER Mitglieder sind:

- AMES (Ageing Materials Evaluation and Studies)
- ENIQ (European Network for Inspection Qualification)
- NESC (Network for Evaluating Steel Components)
- OECD NEA CSNI IAGE (Working Group on Integrity and Ageing of Components and Structures)
- IAEA IWG LMNPP (Int. Working Group on Life Management of Nuclear Power Plants)

Im Rahmen des NESC Netzwerkes wird 2002 ein neues Projekt gestartet, das sich mit der Berechnung und werkstofftechnischen Bewertung thermomechanischer Transienten in Rohrleitungen beschäftigt. Bei einer Weiterführung des Projektes mit FEVER-II wäre eine Teilnahme am NESC Projekt wünschenswert.

5 Bewertung 2001 und Ausblick 2002

Im Jahre 2001 konnten die wesentlichen Einflussgrößen auf die Martensitbildung bei LCF-Ermüdung von austenitischen Stählen identifiziert und systematisch untersucht werden. Demnach sind als Einflussgrößen der Materialausgangszustand (Herstelltechnologie, Wärmebehandlung) und die Temperatur zu berücksichtigen. Es gilt folgende Abhängigkeit:

Martensitbildung = f (Material, Materialzustand, Temperatur)

Es konnte klar gezeigt werden, dass mit Hilfe des Martensitanteils im untersuchten Stahl der Erschöpfungsgrad für LCF-Ermüdung bestimmt werden kann. Dabei gibt es folgenden Zusammenhang des Martensitgehaltes mit der Lastwechselzahl:

$$\text{Martensitgehalt} = f(\sqrt{\text{Lastwechselzahl}})$$

Mit zunehmender Temperatur wird die thermodynamisch treibende Kraft für die Martensitbildung (Unterkühlung) kleiner. Dementsprechend nimmt der Martensitgehalt ab. Da der Vorgang thermisch aktiviert ist, lässt sich die Abhängigkeit folgendermassen beschreiben:

$$\text{Martensitgehalt} = f(\exp[-Q/k(T_0 - T)]), \text{ wobei}$$

Q: Aktivierungsenergie

T_0 : Temperatur des thermodynamischen Gleichgewichts

für X6CrNiTi18-10: $T_0 = 640 \text{ K}$

k: Boltzmann-Konstante

Der Einfluss der chemischen Zusammensetzung innerhalb der zugelassenen Toleranzen für X6CrNiTi18-10 und der Einfluss der Belastungsfrequenz sind gering.

Insgesamt kann eine allgemeingültige Beziehung für die Martensitbildung wie folgt aufgestellt werden:

$$\text{Martensitgehalt} = (\text{Martensitgehalt})_0 + A (\Delta \epsilon_{pl} / 2) \exp[-Q/k(T_0 - T)] \sqrt{N}, \text{ wobei}$$

$\Delta \epsilon_{pl} / 2$: Lastamplitude

N: Lastwechselzahl

Damit ist das Ziel für 2001 vollumfänglich erreicht. Die systematischen Untersuchungen zur Temperaturabhängigkeit sind weltweit neuartig. Ihre Ergebnisse waren auch das schönste Erfolgserlebnis in diesem Jahr. Sie werden im nächsten Jahr publiziert und an 2 wissenschaftlichen Konferenzen vorgestellt.

Bezüglich der Bestimmung magnetischer Kenngrössen konnte mit der Permeabilität (magnetische Leitfähigkeit) und der Wirbelstrom-Impedanz im Labor der Martensitgehalt zuverlässig bestimmt werden. Mit der GMR-Wirbelstromtechnik war es möglich, die Martensitverteilung an den Proben zu visualisieren. Für den restlichen Zeitplan des Projektes bis Juni 2002 steht noch aus, mittels magnetischer GMR-Messtechnik die Martensitbildung kontinuierlich während des Ermüdungsversuches zu messen. Weiterhin werden Messungen mit der SQUID-Messtechnik durchgeführt, die bisher nicht eingesetzt wurde.

Für eine Projektfortsetzung FEVER-II können folgende interessante Untersuchungen vorgeschlagen werden.

Wie gezeigt werden konnte, hängt die Korrelation $\text{Martensitgehalt} = f(\sqrt{\text{Lastwechselzahl}})$ stark vom Materialausgangszustand ab. Damit Kalibrierkurven für bestimmte Zustände zur Verfügung stehen, müssen Probenserien mit definierter Herstelltechnologie und Wärmebehandlung untersucht werden. Diese Bedingungen sollten sich beziehen auf konkrete Anwendungsfälle in den Kernkraftwerken, z.B. der Herstelltechnologie und Wärmebehandlung eines VAL Rohrbogens und einer VAL Schweissnaht. Verschiedene Wärmebehandlungen und Kaltverformungen könnten im PSI selbst durchgeführt werden.

Beim Temperatur-Korrekturterm der Martensitbildung hängt die Aktivierungsenergie von der mechanischen Lastamplitude ab. Um die Lastabhängigkeit zu bestimmen, sind Untersuchungen an Probenserien mit unterschiedlichen Dehnamplituden bei variabler Temperatur notwendig. Diese Untersuchungen wären neuartig und ermöglichen die Bestimmung der Aktivierungsenergie. Damit würde das Verständnis über die thermodynamisch treibende Kraft verbessert.

Bisher sind die thermischen transienten Beanspruchungen in mechanische Dehnung umgerechnet worden und die Ermüdungsversuche im Labor erfolgten mit den ermittelten Dehnamplituden bei konstanter Temperatur. Um den realen Verhältnissen in den Kraftwerken Rechnung zu tragen, sollten LCF-Versuche mit gekoppelten Dehnungs- und Temperatur-Transienten, möglichst unter kraftwerksnahen Bedingungen durchgeführt werden, z.B. thermische Schichtungen in VAL. Um diese Versuchsdurchführung zu realisieren, stehen in der Sektion Zeitstandanlagen zur Verfügung, deren Steuerung auf diese Bedingungen angepasst werden kann.

Während der nächsten Projektphase FEVER-II sollte auch eine Konzeption entstehen, wie die gewonnenen Erkenntnisse in die Prüfpraxis der Kernkraftwerke umgesetzt werden. Prinzipiell können die Manipulatoren und die Elektronik, die in den jährlichen Wiederkehrenden Prüfungen zur Kontrolle von Rohrleitungen und Stützen eingesetzt werden, auch für die

Martensitdetektion Verwendung finden. Es müssten lediglich die Sensoren und die Auswertesoftware ausgetauscht werden. Die Martensitdetektion gäbe neben den kontinuierlichen Temperaturmessungen wichtige Hinweise auf Materialbereiche, die bereits einen hohen Alterungsgrad (Ermüdung) erreicht haben. Auch eine kontinuierliche Martensitüberwachung in sicherheitsrelevanten Bereichen (Stützen der Speisewasserleitungen, Rohrleitungen zum Druckhalter) wäre denkbar und durchführbar. Für das längerfristige Ziel, einen Lebensdauermonitor aufzubauen, sind weitere grundlegende Untersuchungen notwendig. Für eine praktische Lösung besteht wohl die beste Aussicht, verschiedene magnetische Kenngrößen in einer bestimmten Art und Weise miteinander zu verknüpfen.

6 Referenzen

- [1] W. Kleinöder, H.-J. Golembiewski, Monitoring for fatigue – examples for unexpected component loading, SMIRT 16, Transactions, paper 1175 (2001)
- [2] G. Baundry, A. Pineau, Influence of strain induced martensitic transformation on the low-cycle fatigue behaviour of a stainless steel, Mater. Sci. Eng. 28 (1977), 229
- [3] M. Bayerlein, H.-J. Christ und H. Mughrabi, Plasticity induced martensitic transformation during cyclic deformation of AISI 304L stainless steel, Mater. Sci. Eng. A 114 (1989), 11
- [4] E. Hornbogen und M. Thumann, Die martensitische Phasenumwandlung und deren werkstofftechnische Anwendung, DGM Verlag, Düsseldorf, 1986
- [5] G.B. Olson and M. Cohen, Kinetics of strain-induced martensitic nucleation, Metallurgical Transactions A 6A (1975), 791
- [6] T. Angel, Formation of martensite in austenitic stainless steels, J. Iron and Steel Institute 177 (1954), 165
- [7] H.-J. Basler, Wechselverformungsverhalten und verformungsinduzierte Martensitbildung bei dem austenitischen Stahl X6CrNiTi18-10, Dissertation, Universität Kaiserslautern, 1999
- [8] M.A. Lang, Zerstörungsfreie Charakterisierung des Wechselverformungsverhaltens und der verformungsinduzierten Martensitbildung bei dem austenitischen Stahl X6CrNiTi18-10 mittels empfindlicher Magnetfeldsensoren, Universität der Saarlandes, Saarbrücken, 2000
- [9] M. Otaka, S. Evanson, K. Hasegawa, K. Takaku, Detection of thermal aging degradation and plastic strain damage for duplex steel using SQUID-sensor, SMIRT 11, Transactions Vol. L (1991), 459
- [10] D. Kalkhof, M. Grosse, M. Niffenegger, D. Stegemann, W. Weber, Microstructural Investigations and Monitoring of Degradation of LCF Damage in Austenitic Steel X6CrNiTi18-10, Proceedings of the 2000 Int. Conf. on Fatigue of Reactor Components, EPRI 1006070, June 2001, also referenced as OECD/NEA/CSNI/R (2000) 24



Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen
Division principale de la Sécurité des Installations Nucléaires
Divisione principale della Sicurezza degli Impianti Nucleari
Swiss Federal Nuclear Safety Inspectorate

Datum: 14. März 2002
Von: F. Cartier (Projektbegleiter)
An: ZM, CS, PH

PROJEKTBEGLEITERBEWERTUNG 2001 ZUSAMMENARBEIT IN DER DOSIMETRIE

Das PSI hat in Quartalsberichten regelmässig den Fortschritt der Arbeiten dargelegt und jeweils Mitte Quartal in Fachgesprächen mit der Sektion MER der HSK spezifische Sach- und Koordinationsfragen geklärt. Der Jahresbericht 2001 "Zusammenarbeit in der Dosimetrie" gibt eine sehr gute und korrekte Zusammenfassung der fünf Teilprojekte.

Das PSI hat seine Arbeiten in den Kernanlagen zur Kalibrierung der Thorax- und Schilddrüsen-Triagemessgeräte sowie eines Inkorporationsmessplatzes in Technischen Mitteilungen dokumentiert. Diese anlagenspezifische Berichte haben der HSK die Aufsicht über die technische Umsetzung der revidierten Dosimetrieverordnung (DoV) wesentlich erleichtert. Zu erwähnen ist auch die Zusammenfassung der Ergebnisse "Kalibrierung der Inkorporationstriagemessplätze von KKB, KKL, KKM und ZWILAG" in der PSI-TM-96-02-01.

Die ad hoc aufgetretenen Fragen zum "Einfluss der Gasspülung auf das Nachweisvermögen von Grossflächen-Proportionaldetektoren" hat das PSI mit der TM-96-01-08 effizient und effektiv bearbeitet, so dass die HSK als Aufsichtsbehörde fundiert Stellung nehmen konnte.

Die HSK begrüsst die Mitwirkung im EU-Projekt EVIDOS und die Weiterentwicklung des, auf dem Prinzip der "Direct-Ion-Storage" basierenden, elektronischen Dosimeters für Neutronen, insbesondere im Hinblick auf den Einsatz bei den Transporten von abgebrannten Brennelementen und von verglasten hoch radioaktiven Abfällen aus der Wiederaufbereitung.

Die "Zusammenarbeit in der Dosimetrie" ist bis Ende 2003 vereinbart.

Zusammenarbeit in der Dosimetrie

Autor und Koautoren	Ch. Schuler, M. Boschung und C. Wernli
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut
Adresse	5232 Villigen PSI
Telefon, E-mail, Internetadresse	056/310 28 78; christoph.schuler@psi.ch; http://www.psi.ch
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	DIS Nr. 80086
Dauer des Projekts (von – bis)	1. Jan. 2001 - 31. Dez. 2003

Zusammenfassung

Das Forschungsprojekt „Zusammenarbeit in der Dosimetrie“ war 2001 in fünf verschiedene Arbeitsgebiete oder Teilprojekte unterteilt, von denen zwei abgeschlossen werden konnten.

Es gelang, die Vergleichbarkeit von Triagemessresultaten in von der HSK beaufsichtigten Institutionen mittels Standardisierung der Kalibrier- und Prüfmethodik und der Gewährleistung der Rückverfolgbarkeit herzustellen. Zudem konnten aufgrund der Resultate einer Studie wertvolle Hinweise zur Messmethodik mit einem in der Handhabung komplexen Messgerätetyp gegeben und damit die Qualität der Messresultate gesichert werden.

Weiter wurde die Mess- und Auswertemethodik zur indirekten Bestimmung von Oberflächenkontaminationen untersucht. Protokolle zu Messverfahren und standardisierte Gerätekalibrierungen werden zur Gewährleistung der durch rigorose Grenzwerte geforderten hohen Messresultatequalität beitragen.

In der Neutronendosimetrie werden einerseits durch die Teilnahme am EU-Projekt EVIDOS und andererseits durch aktive Entwicklungszusammenarbeit wertvolle Erkenntnisse für dieses komplexe Teilgebiet der Dosimetrie gewonnen.

1. Projektziele

Grundsätzliches Ziel des Projekts: Gemäss Vereinbarung vom 1. Jan. 2001 ist das grundsätzliche Ziel dieses Forschungsprojektes, mit geeigneten Studien, Entwicklungsarbeiten sowie Messkampagnen auf eine Verbesserung der Dosimetrie hinzuwirken, wobei diese Arbeiten durch die Sektion Messwesen des PSI in enger Zusammenarbeit mit der HSK zu leisten sind.

Geplante Teilprojekte

Im Rahmen des Forschungsprojektes sollten im Jahr 2001 die folgenden Teilprojekte bearbeitet werden:

Nr	Teilprojekt	Ziel
01/1	Überprüfung der Kalibrierung der Triagemonitore der KKW. Durchführen von DoV-konformen Kalibrierungen gemäss separater Aufträge der KKW an die Sektion	Vergleichbarkeit von Triagemessresultaten aufgrund der Standardisierung der Kalibrier- und Prüfmethodik und der Gewährleistung der Rückverfolgbarkeit
01/2	Erarbeitung von Messverfahren und Anleitungen zur Kalibrierung von Geräten zur Bestimmung von Oberflächenkontaminationen mittels Wischtest	Normengerechte Messverfahren und Vergleichbarkeit von Messresultaten aufgrund der Standardisierung der Kalibrier- und Prüfmethodik und der Gewährleistung der Rückverfolgbarkeit
01/3	Laufende Berichterstattung über das EU-Projekt EVIDOS zur Entwicklung der Neutronendosimetrie sowie über die internationale Normentätigkeit im Strahlenschutz, insbesondere bei IEC und ISO	Gewährleistung und Aufrechterhaltung des Informationsstandes zu „state of the art“ in der Neutronendosimetrie; frühzeitiges Erfassen von Entwicklungstendenzen im Strahlenschutz
01/4	Weiterentwicklung elektronischer Neutronendosimeter auf Basis von Direct Ion Storage (DIS)	Einbringen der Erfahrungen und Prüfmöglichkeiten von Anwenderseite in ein industrielles Entwicklungsprojekt
01/5	ad hoc Einfluss der Gasspülung auf das Nachweisvermögen von gasgespülten Grossflächen-Proportionaldetektoren	Bestmöglicher Geräteeinsatz durch laufende Messqualitätskontrolle

2. Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

Übersicht Stand der Arbeiten

Teilprojekt	Abgeschlossen mit Bericht	Abschluss noch offen (Begründung in den entsprechenden Abschnitten)
01/1	[2], [3], [4]	X
01/2		X
01/3		X
01/4		X
01/5	[7]	

01/1 Überprüfung der Kalibrierung der Triagemonitore der KKW. Durchführen von DoV-konformen Kalibrierungen gemäss separater Aufträge der KKW an die Sektion

Gemäss HSK-Richtlinie R-12 sind die von der HSK beaufsichtigten Institutionen gehalten, Inkorporationen zumindest mit Triagemesseinrichtungen für Schilddrüsen und Thorax zu überwachen. Die Dosimetrieverordnung (DoV) vom 7. Okt 1999 verlangt eine Anerkennung bzw. eine Bewilligung für den Betrieb von Ganzkörper- und Thoraxmonitoren zu Inkorporations- bzw. Triagemesszwecken. Gemäss Art. 38 DoV werden die Anforderungen an Triagemesssysteme, umfassend minimale Messanforderungen, Kalibrierung und Rückverfolgbarkeit sowie Qualitätssicherung, von den Aufsichtsbehörden festgelegt. Zur Durchführung der entsprechenden technischen Prüfungen dieser Einrichtungen sind Kalibrierphantome und Schwellenansprechphantome erforderlich, die einem einheitlichen Standard entsprechen sollten. Die von einer Arbeitsgruppe mit Beteiligung von u.a. der HSK und dem PSI zuhanden der Expertengruppe für Personendosimetrie formulierten „Empfehlungen zur Standardisierung der Kalibrierung und Prüfung von Thorax- bzw. Schilddrüsenmessplätzen für Triagemessung“ beschreiben diesen anzuwendenden Standard und setzen Intervalle für die Prüfung des Schwellenansprechvermögens und für Funktionskontrollen fest.

DoV-konforme Kalibrierungen wurden unter Befolgung der oben genannten Empfehlungen für folgende Betriebe durchgeführt:

Institution	Thorax-Triagemesssystem	Schilddrüsen-Triagemesssystem	Inkorporationsmessstelle
KKM	X	X	X
KKB	X		
KKL	X	X	
ZWILAG	X	X	

Für das KKB erfolgte die Kalibrierung des Thorax-Triagemonitors schon 1999 vor Beginn dieses Teilprojekts [1]. Im KKM wurde zusätzlich eine Inkorporationsmessstelle eingerichtet.

Die Ergebnisse der einzelnen Kalibrierungen sind in den in Berichten [2], [3] und [4] beschrieben. Ein Bericht mit einer Zusammenfassung der Ergebnisse der in obiger Tabelle aufgeführten Triagemesssystem-Kalibrierungen ist vor der Fertigstellung [5].

Ausstehend ist noch eine Kalibrierung resp. eine Überprüfung der Kalibrierung der Triagemesssysteme des KKG. Das Teilprojekt wird deshalb im Jahr 2002 weitergeführt.

01/2 Erarbeitung von Messverfahren und Anleitungen zur Kalibrierung von Geräten zur Bestimmung von Oberflächenkontaminationen mittels Wischtest

In Fällen erhöhter Umgebungsphotonenstrahlungsfelder (z.B. bei Brennelement-Bahntransporten) ist eine direkte Messung von Oberflächenkontaminationen nicht mehr möglich und es muss auf die Bestimmung von Oberflächenkontaminationen mittels Wischtest zurückgegriffen werden. Mess- und Kalibrierverfahren von Geräten zur indirekten Bestimmung von Oberflächenkontaminationen sind sehr weitgehend durch ISO-Normen standardisiert. Die strengen ADR-Kontaminationsgrenzwerte für radioaktive Transporte stellen jedoch hohe Anforderungen an die eingesetzten Messinstrumente, sodass sich eine Überprüfung von Kalibrierung und Nachweisgrenzen der im Aufsichtsbereich der HSK betriebenen Wischtest-Messeinrichtungen aufdrängte. Zudem wurden vom PSI geeignete normenkonforme Kalibrierquellen angeschafft, um Rückverfolgbarkeit und Standardisierung der Kalibrierung zu garantieren, und es wurde mittels einer Umfrage erfasst, wieweit die zurzeit bei KKW und PSI eingesetzten Mess- und Auswerteverfahren normengerecht sind.

Das Ergebnis für 2001 dieses Teilprojekts kann folgendermassen zusammengefasst werden. Kalibrierungen und Überprüfungen von Messeinrichtungen sowie die Ermittlung der Nachweisgrenzen sind für KKL, ZWILAG und PSI abgeschlossen. Die in den Normen vorgeschlagenen Mess- und Auswerteverfahren werden in den oben genannten Institutionen sowie im KKB und KKG angewandt.

Im Zuge der Weiterführung dieses Teilprojekts sollen weitere Kalibrierungen durch die akkreditierte Kalibrierstelle des PSI realisiert werden. Mit Abklärungen zum Konservativitätsgrad von in den Normen vorgeschlagenen Faktoren soll dieses Teilprojekt abgeschlossen werden.

01/3 Laufende Berichterstattung über das EU-Projekt EVIDOS zur Entwicklung der Neutronendosimetrie sowie über die internationale Normentätigkeit im Strahlenschutz, insbesondere bei IEC und ISO

Der Vertrag für das EVIDOS-Projekt (Evaluation of Individual Dosimetry in Mixed Neutron and Photon Radiation Fields) im Rahmen des 5. EU-Forschungsprogrammes wurde im Oktober 2001 von allen Beteiligten unterschrieben und das Projekt konnte somit auf den 1. November 2001 gestartet werden. Das Hauptziel des Projektes ist die Überprüfung von verschiedenen Methoden bei der individuellen Dosimetrie in gemischten Neutronen-Photonen-Feldern an Arbeitsplätzen in der Nuklearindustrie. Einerseits sollen die Möglichkeiten und Grenzen von Personendosimetern bestimmt werden. Andererseits sollen auch Methoden erarbeitet werden, welche eine vernünftige Bestimmung von effektiven Personendosen aus Messungen durch Spektrometrie, Ortsdosimetrie und Personendosimetrie ermöglichen. Geplant ist, im Verlauf des 42 Monate dauernden Projektes Messungen mit verschiedenen aktiven und passiven Systemen in mehreren Anlagen in Frankreich, Deutschland, England, Belgien und Schweden durchzuführen, wobei möglichst der vollständige europäische Kernbrennstoffzyklus abgedeckt werden soll. Das PSI beteiligt sich am Projekt mit CR39-Dosimetern und den DIS-Dosimetern für Photonen und Neutronen. Die 7 Partner (PTB, IPSN, DIMNP, NRPB, SCK-CEN, SSI, PSI) haben sich im ersten Treffen geeinigt, dass im Herbst 2002 für die Kalibrierung aller Systeme erste Messungen in den simulierten Arbeitsplatz-Feldern an den Anlagen des IPSN in Cadarache stattfinden sollen. Die ersten Messungen in realen Feldern sind auf Anfang 2003 am SCK-CEN/Mol beim Reaktor VENUS geplant.

Die Normentätigkeit von IEC und ISO auf dem Gebiet des Strahlenschutzes ist zurzeit recht rege. Eine Mitarbeit in den Normenausschüssen ist bei der verfügbaren Personalkapazität nur in wenigen Fällen möglich. Die Hauptaufgabe besteht deshalb darin, eintreffende Normentwürfe an kompetente Personen weiterzuleiten und gemeinsame Stellungnahmen auszuarbeiten. Eine direkte Mitarbeit fand beim Normentwurf ISO/CD 21909 "Passive Personal Neutron Dosimeters" statt. In diesen Normentwurf sind Ergebnisse aus bisherigen Arbeiten im Rahmen der Zusammenarbeit HSK-PSI eingeflossen.

Die Berichterstattung im Rahmen dieses Teilprojekts wird im Folgejahr weitergeführt.

01/4 Weiterentwicklung elektronischer Neutronendosimeter auf Basis von Direct Ion Storage (DIS)

In Zusammenarbeit mit der Firma RADOS sind neue Typen von DIS-N-Dosimetern gebaut worden [6]. Diese Dosimeter wurden an das PSI ausgeliefert und werden unter verschiedenen Bestrahlungsbedingungen getestet. Die Entwicklungszusammenarbeit wird weitergeführt.

01/5 ad hoc Einfluss der Gasspülung auf das Nachweisvermögen von gasspülten Grossflächen-Proportionaldetektoren

Bei den KKW werden verbreitet Kontaminationsmessgeräte eingesetzt, welche mit Grossflächen-Gasdurchfluss-Proportionalzählrohren ausgerüstet sind. Der eine maximale Empfindlichkeit garantierende Gasdurchflussbetrieb wird jedoch durch periodisch durchzuführende Gasspülungen ersetzt. Wird zu kurz oder zu wenig häufig gespült, so kann dies einen Einfluss auf das Nachweisvermögen der Detektoren haben.

Ergebnisse einer Umfrage zur Spültechnik bei Betreibern solcher Messgeräte und Resultate von Laborexperimenten wurden zur Definition einer Spülmethodik verwendet, mit der eine optimale Sondenempfindlichkeit erreicht wird und Empfindlichkeitsverluste auch bei langdauerndem Messbetrieb vermieden werden.

Das Teilprojekt wurde mit dem Bericht [7] abgeschlossen.

3. Internationale Zusammenarbeit

Die im Abschnitt 01/3 beschriebene Zusammenarbeit im Rahmen des Projekts EVIDOS (Contract No FIKR-CT-2001-00175 EU-Forschungsprogramm EURATOM/NUCLEAR FISSION [BBW Nr. 01.0024]) verläuft ausgezeichnet.

4. Bewertung 2001 und Ausblick 2002

Die im Abschnitt „Geplante Teilprojekte“ beschriebenen gesetzten Ziele konnten aus Sicht des PSI für die abgeschlossenen Teilprojekte vollumfänglich erreicht werden.

Die Teilprojekte **01/1**, **01/2**, **01/3** und **01/4** werden 2002 in Rahmen des Projekts weitergeführt werden.

5. Referenzen

- [1] Schuler, Ch.: **Resultate von vorläufigen Kalibrierungen des Triage-Thoraxmessplatzes am KKB**, Paul Scherrer Institut, Technische Mitteilung TM-96-99-04, 1999
- [2] Butterweck, G. und Schuler, Ch.: **Kalibrierung des Inkorporationsmessplatzes und des Thorax- und Schilddrüsen-Triagemessplatzes des Kernkraftwerks Mühleberg (KKM)**, Paul Scherrer Institut, Technische Mitteilung TM-96-01-04, 2001
- [3] Butterweck, G. und Schuler, Ch.: **Kalibrierung des Thorax- und Schilddrüsen-Triagemessplatzes der Zwischenlager Würenlingen AG (ZWILAG)**, Paul Scherrer Institut, Technische Mitteilung TM-96-01-07, 2001
- [4] Butterweck, G. und Schuler, Ch.: **Kalibrierung des Thorax- und Schilddrüsen-Triagemessplatzes des Kernkraftwerks Leibstadt (KKL)**, Paul Scherrer Institut, Technische Mitteilung TM-96-01-09, 2001
- [5] Butterweck, G. und Schuler, Ch.: **Kalibrierung der Inkorporationstriagemessplätze von KKB, KKL, KKM und Zwilag AG – Zusammenfassung der Ergebnisse**, Paul Scherrer Institut, Technische Mitteilung TM-96-02-01
- [6] A. Fiechtner, C. Wernli and J. Kahilainen: **A Prototype Personal Neutron Dosimeter Based on an Ion Chamber and Direct Ion Storage**, Radiat. Prot. Dosim. Vol. 96, Nos. 1-3, pp 269-272, 2001
- [7] Schuler, Ch. und Butterweck, G.: **Einfluss der Gasspülung auf das Nachweisvermögen von Grossflächen-Proportionaldetektoren**, Paul Scherrer Institut, Technische Mitteilung TM-96-01-08, 2001



Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen
Division principale de la Sécurité des Installations Nucléaires
Divisione principale della Sicurezza degli Impianti Nucleari
Swiss Federal Nuclear Safety Inspectorate

Datum: 14. März 2002
Von: F. Cartier
An: ZM, CS, PH

PROJEKTBEGLEITERBEWERTUNG 2001 ZUSAMMENARBEIT IN DER RADIOANALYTIK

Die Zusammenarbeit zwischen der HSK und dem PSI auf dem Gebiet der Radioanalytik betrifft vor allem die Entwicklung, Optimierung und Implementierung von radiochemischen Analyseverfahren für die Bestimmung von Spezialnukliden (d.h. reine Beta- und Alpha-Strahler) zur Inkorporationsüberwachung von strahlenexponierten Personen, in Materialproben (z.B. Abfall) und in Umweltproben zur Immissionsüberwachung.

Im Berichtsjahr waren die Arbeiten geprägt von Weiterentwicklungen der chemischen Methoden mit neu auf dem Markt erhältlichen Separationskolonnen zur Extraktion von Plutonium, Americium, Curium, Uran, Thorium oder Neptunium in Urin-, Stuhl-, Luftfilter-, Reaktorwasser-, Wisch- oder Umweltproben. Das PSI hat in Quartalsberichten regelmässig den Fortschritt der Arbeiten dargelegt und jeweils Mitte Quartal in Fachgesprächen mit der Sektion MER der HSK spezifische Sach- und Koordinationsfragen geklärt. Der Jahresbericht 2001 "Zusammenarbeit in der Radioanalytik" gibt einen sehr guten Überblick der untersuchten Techniken.

Die zahlreiche Bodenproben aus der Umgebung der ZWILAG wurden im Berichtsjahr nun auch auf Americium analysiert. Der präsentierte Bericht ist eine wichtige Basis für die Beurteilung der Ergebnisse der Umgebungsüberwachung.

Zu erwähnen ist auch der Abschluss der Methode zur Bestimmung von ^{14}C in Pflanzen (z.B. Baumblättern). Der eingesetzte Apparat transformiert den Kohlenstoff der Probe in Benzen, das anschliessend in einen Flüssigszintillator eingebracht wird.

Das PSI hat in vielen internationalen Vergleichsmessungen mit sehr guten Resultaten abgeschlossen.

Die Vereinbarung wurde am 23. November 2001 um drei Jahre verlängert und endet am 31. Dezember 2004.

Zusammenarbeit in der Radioanalytik

Autor und Koautoren	S. Bajo; J. Eikenberg
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut, Abteilung für Strahlenschutz, Sicherheit und Entsorgung
Adresse	CH-5232 Villigen
Telefon, E-mail, Internetadresse	56-310-2339, sixto.bajo@psi.ch
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	Kredit 0.805-3100.044/8 / 69649
Dauer des Projekts (von – bis)	01.01.1998 – 31.12.2001

Résumé

Notre travail a porté sur:

- 1 Développement et mise en œuvre de méthodes radiochimiques pour la surveillance de:
 - sols, pour le dosage de ^{90}Sr , ^{63}Ni , $^{238-240}\text{Pu}$, ^{241}Am et $^{242,244}\text{Cm}$; dans les environs du PSI et du ZWILAG;
 - feuilles d'arbres: ^{14}C ; dans les environs des centrales nucléaires;
 - l'incorporation de personnes exposées: ^{90}Sr , $^{238-240}\text{Pu}$, ^{241}Am et $^{242,244}\text{Cm}$; urines (surveillance régulière, sauf ^{90}Sr) et selles (accidents);
 - l'air des laboratoires et les fumées de la station d'incinération du PSI: $^{238-240}\text{Pu}$, ^{241}Am et $^{242,244}\text{Cm}$; et
 - eaux et frottis de centrales nucléaires.
- 2 Mise à jour des instruments de mesure pour les émetteurs α , β et γ (spectromètres, compteurs proportionnels et à scintillation liquide) et des techniques de préparation de sources pour la spectrométrie α (électrodéposition) et la scintillation liquide (synthèse de benzène pour la mesure de ^{14}C).
- 3 Participation régulière à des essais d'intercomparaison internationaux: eaux, urines, sols, selles (Bundesamt für Strahlenschutz (D), PROCORAD (F), IAEA (A)).

1. Objectifs pour 2001

- 01/1 Elargissement des méthodes radiochimiques de dosage des actinides Pu, Am et Cm dans les selles à l'U, le Th et le Np
- 01/2 Elargissement de la méthode de dépistage des actinides dans les urines avec la séparation du Pu et de l'Am
- 01/3 Développement d'une méthode rapide pour le dosage des actinides dans les filtres à air
- 01/4 Dosage du ^{14}C dans les végétaux (feuilles d'arbre, cellulose, etc)
- 01/5 Travaux ad hoc pour la SDN en accord avec le directeur du projet

2. Travaux effectués et résultats

01/1 Elargissement des méthodes radiochimiques de dosage des actinides Pu, Am et Cm dans les selles à l'U, le Th et le Np

Le dosage des actinides dans les selles n'est pas une méthode de routine dans notre laboratoire. Ces analyses sont effectuées seulement en cas d'accident pouvant conduire à l'incorporation de ceux-ci. La teneur en actinides des selles est une donnée indispensable pour le calcul de la quantité ingérée et de la dose qui en résulte.

La connaissance des nucléides éventuellement incorporés (analyse de filtres à air) permet d'appliquer une méthode radiochimique simplifiée. Dans le cas contraire, une analyse systématique s'impose.

Dans tous les cas, l'échantillon est minéralisé par voie sèche dans un four où la température est graduellement portée de 200° à 500°. Les cendres sont ensuite additionnées d'acide nitrique et calcinées au four à 400°. Elles sont finalement lessivées par l'acide nitrique 8M à ébullition. Cette solution est le point de départ de la séparation des actinides.

Dans l'analyse systématique, la solution de départ traverse successivement une colonne de BIORAD 1-X2 puis une colonne UTEVA d'EICHROM. L'éluat est conditionné en acide nitrique 3 M puis appliqué sur une colonne TRU.Spec d'EICHROM. La colonne BIORAD fixe le Th et le Pu; la colonne UTEVA, l'U; et la colonne TRU l'Am et le Cm. Les nucléides fixés sont ensuite élués individuellement (Am et Cm sont élués ensemble) puis électrodéposés. Le rendement de chaque élément est en général supérieur à 80 %.

Dans le cas du dosage exclusif du Pu et/ou du Th, seule la colonne BIORAD est nécessaire. En cas de dosage simultané et exclusif de l'U et du Th la séparation peut être réalisée en milieu en acide nitrique 3 M sur la colonne UTEVA. Si seul l'Am est à doser, il suffit d'utiliser le couple de colonnes UTEVA-TRU.Spec.

Le dosage du Np n'est pas encore opérationnel. Le mode opératoire suivant est à l'étude: rétention du Np(IV) et du Pu(IV) sur une colonne BIORAD 1-X2, puis séparation par élution. La solution de lessivage des selles (acide nitrique 8 M) est testé pour amener le Np à Np(IV).

01/2 Elargissement de la méthode de dépistage des actinides dans les urines avec la séparation du Pu et de l'Am

La méthode actuelle de routine pour le dépistage des actinides dans les urines est utilisée depuis trois ans. Dans cette méthode, 250 ml d'urine est portée à ébullition, après adjonction d'acide nitrique, pour minéraliser partiellement les composés organiques. On ajoute ensuite de la résine Actinide d'EICHROM ($\text{C}_{17}\text{H}_{38}\text{O}_6\text{P}_2$ -réactif- sorbé dans du polymétacrylate -support inerte). La suspension est agitée pendant 2 h. La résine (contenant les actinides) est séparée de l'urine par filtration. On ajoute ensuite de l'alcool isopropylique sur le filtre. Le réactif (avec les actinides) passe en solution et le support reste sur le filtre. La solution d'alcool est évaporée, additionnée d'acides oxydants et évaporée à sec. On obtient ainsi un petit résidu minéralisé.

Lors de la mise en service de la méthode, le résidu minéralisé était mis en solution et les actinides mesurés par scintillation liquide. Depuis une année, les actinides sont électrodéposés et la mesure se fait par spectrométrie α . Ceci abaisse les limites de détection et permet l'identification des nucléides. L'interférence mutuelle de ^{241}Am (5486 keV) et ^{238}Pu (5499 keV) subsiste. Dans les cas nécessaires, le résidu minéralisé est mis en solution dans l'acide nitrique 8 M, porté à ébullition, refroidi et les deux nucléides sont séparés sur un échangeur anionique (BIORAD 1-X2) et finalement électrodéposés individuellement. Vu que le résidu minéralisé du départ contient des polyphosphates (le P du réactif est oxydé en acide phosphorique et la condensation de celui-ci pendant l'évaporation produit les polyphosphates), ces composés complexent fortement les actinides. Le Pu ainsi complexé n'est pas séparé de l'Am sur l'échangeur anionique. Il est donc indispensable de porter à ébullition la solution en acide nitrique 8M. Cette opération hydrolyse les polyphosphates en phosphates, qui n'ont plus d'influence sur la séparation.

La méthode actuelle utilise donc l'électrodéposition directe du minéralisat de la résine Actinide. Si la présence d'un émetteur α dans la région ^{241}Am - ^{238}Pu est détectée, la séparation de ces deux nucléides s'impose. A cet effet, le dépôt électrolytique est mis en solution. Il suffit alors d'appliquer à cette solution la méthode de séparation ci-dessus.

01/3 Développement d'une méthode rapide pour le dosage des actinides dans les filtres à air

La mesure de particules radioactives dans l'air et dans les gaz, et de gaz radioactifs dans l'air se fait en filtrant ceux-ci. Le filtre retient mécaniquement les particules. Pour retenir les gaz radioactifs on incorpore un réactif au filtre (charbon actif pour la rétention de iode).

Les filtres utilisés au PSI ont un diamètre de 25-27 mm. Ils sont en fibre de verre (type Whatman GF/A, 5.2 mg/cm²) ou en cellulose chargée de charbon (15 mg/cm²).

Le contrôle des émetteurs α sur les filtres se fait habituellement sur un compteur proportionnel avec discrimination α/β . Si la valeur limite est dépassée, on procède à une spectrométrie α . Presque toujours, le ^{210}Po (5304 keV) est à l'origine de la valeur anormalement élevée, mais les spectres montrent une longue queue, qui pourrait cacher le ^{239}Pu (5157 keV). Il est donc nécessaire de disposer d'une méthode radiochimique permettant le dosage de Pu et autres actinides dans les filtres à air. Les filtres reçus au laboratoire contiennent au plus 5 mg de poussière atmosphérique. La méthode testée comporte les étapes suivantes:

1 Mise en solution des filtres

Filtres en fibre de verre: calcination au four à 500° pour minéraliser la partie organique de la poussière retenue. Les filtres ne sont pas affectés par le traitement. Ils sont ensuite traités par l'acide fluorhydrique puis par l'acide nitrique et finalement amenés à 8 M en acide nitrique.

Filtres en cellulose: ces filtres sont pratiquement de la matière organique pure (cendres autour de 1 %). Minéralisation par les acides nitrique et sulfurique dans un appareil travaillant sous reflux total. Les minéralisats sont amenés à 8 M en acide nitrique.

2 Séparation du Pu

Faire passer les solutions du paragraphe 1 par une colonne d'échangeur anionique (BIORAD 1-X2). Le Pu est fixé mais pas l'Am ni le Cm. La colonne est lavée pour éliminer le Th et l'U. Finalement le Pu est élué, électrodéposé sur des disques en acier inoxydable et mesuré par spectrométrie α .

3 Séparation de l'Am et du Cm

L'éluat de la solution de départ du paragraphe 2 est amené à 3 M en acide nitrique et l'Am et le Cm sont séparés conjointement par chromatographie d'extraction sur une colonne TRU.Spec (passage préalable sur une colonne UTEVA si nécessaire) d'EICHROM. Ils sont finalement électrodéposés comme le Pu.

Les méthodes ont été mises à l'épreuve en ajoutant du ^{242}Pu aux deux types de filtre. Le rendement de la séparation a toujours dépassé 90 %. L'étude des fractions rejetées pendant l'analyse a montré la présence de radionucléides naturels: ^{210}Po et isotopes de Th et d'U, provenant de la poussière atmosphérique.

01/4 Dosage du ^{14}C dans les végétaux (feuilles d'arbre, cellulose, etc)

La méthode de dosage de la teneur actuelle en ^{14}C des tissus végétaux est devenue opérationnelle. Cette teneur est d'environ 300 mBq $^{14}\text{C}/\text{g C}$, indépendamment du site. L'appareil utilisé transforme le C de l'échantillon en benzène avec un rendement supérieur à 80 %.

Le parcours suivi dans l'appareil par le C de l'échantillon est le suivant: formation de dioxyde de carbone par combustion, transformation en carbure de lithium puis en acétylène et finalement en benzène, dont la pesée fournit le poids du C total. Le benzène est ensuite additionné d'un scintillateur et l'activité du ^{14}C mesurée par scintillation liquide. L'efficacité de comptage est d'environ 90 % et il n'y a pratiquement pas de quenching. Un des avantages du benzène comme produit final est sa haute concentration en C (92 %).

Le compteur à scintillation a été calibré avec des solutions témoins de ^{14}C et la méthode testée avec de l'acide oxalique NIST et autres matériaux de référence, comme des feuilles d'arbre (Université de Berne) et de la saccharose. En plus, on a participé à un essai d'intercomparaison portant sur des feuilles d'arbres de la zone PSI-centrale nucléaire de Beznau. Les teneurs trouvées (excès autour de 8.5 %) sont à comparer avec celles d'une zone éloignée des centrales nucléaires (excès autour de 7.5 %). Les résultats sont exprimés dans les unités usuelles: acide oxalique NIST et 1950 comme date de référence. Un rapport est en préparation.

01/5 Travaux ad hoc pour la SDN en accord avec le directeur du projet

Analyses de routine pour les centrales nucléaires: détermination de ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{242}Cm et ^{244}Cm dans l'eau du réacteur et dans les frottis par les méthodes décrites dans les rapports des années précédentes.

En plus, on a réalisé des déterminations d'émetteurs γ dans les eaux usées provenant de réacteurs (comparaison des résultats avec ceux de la SDN).

3. Participation à des essais internationaux d'intercomparaison

Résultats soumis en 2000 et publiés en 2001

- 1 Détermination de U et Pu dans les urines (Bundesamt für Strahlenschutz, Berlin, essai "BfS-RV-2000-Pu-240", rapport AS-01/2001).

Urines dopées avec 2-12 mBq/l des nucléides à doser. Les écarts entre nos valeurs et ceux de référence pour ^{238}U , ^{234}U et ^{240}Pu ont été inférieurs ou égales à 2 %.

- 2 Détermination de ^{232}Th dans une solution, un minerai et un sable avec des zircons (Health and Safety Laboratory, Sheffield, rapport IEAS/01/01).

Nos valeurs ont montré des écarts (valeurs de référence entre parenthèses) de -4 % (solution, 10.7 Bq/g), 2 % (minerai, 2.49 Bq/g) et -10 % (zircon, 0.55 Bq/g).

- 3 Détermination de la teneur en radionucléides de l'eau (Bundesamt für Strahlenschutz, Berlin, essai d'intercomparaison 1/2000, rapport AS 2-02/2001).

- 1) Eau dopée avec différents émetteurs β et γ dans l'intervalle 2-3 Bq/l. Nos valeurs, par rapport à celles de référence, montrent des écarts allant de -4 % à +12 % pour les émetteurs γ , de -35 % (^{89}Sr) et de +22 % (^{90}Sr).

- 2) Eau usée d'un réacteur souillée avec différents émetteurs β et γ dans l'intervalle 0.5-5 Bq/l. Nos valeurs, par rapport à la moyenne des valeurs retenues, montrent de écarts allant de -5 % à +4 % pour les émetteurs γ et de +20 % (^{90}Sr).

Résultats soumis et publiés en 2001

Détermination d'actinides dans les cendres des selles PROCORAD 2001 (Association pour la PROMotion du CONtrôle de qualité des analyses de biologie médicale en RADiotoxicologie, France).

- 1) Cendres de selles provenant de personnes non exposées et dopées au laboratoire du CEA à La Hague. Valeurs cibles 20-40 mBq par nucléide dans 3 g de cendres. Nos valeurs montrent les écarts suivants: +5 % (^{239}Pu), -2 % (^{241}Am) et +4 % (^{244}Cm)

- 2) Cendres de selles provenant de personnes exposées. Il n'y a pas de valeurs cible. Nos valeurs sont comparées aux moyennes géométriques: 1-2 mBq par nucléide dans 3 g de cendres. Nos valeurs montrent les écarts suivants: -29 % (^{239}Pu), -34 % (^{238}Pu), -12 % (^{241}Am) et -46 % (^{244}Cm).

Résultats soumis en 2001 et pas encore publiés

- 1 Détermination de la teneur en radionucléides de l'eau (Gammaring 2001, Forschungszentrum Seibersdorf, Vienne, Autriche).
- 2 Détermination de Pu, Am et U dans l'urine (Actiniden in Urin 2001, IAEA, Vienne, Autriche).
- 3 Détermination de ^{35}S dans l'urine (^{35}S in Urin 2001, Bundesamt für Strahlenschutz, Berlin).

4. Références

- [1] J. Eikenberg, G. Vezzu, S. Bajo, M. Ruethi and H. Surbeck, **Determination of ^{228}Ra , ^{226}Ra and ^{224}Ra in natural water via adsorption on MnO_2 -coated discs**. *Journal of Environmental Radioactivity*, 54, pp 109-131., 2001.



Datum: 28.2.2002
Von: SL
An: ZM
cc: PH, HA

PROJEKTBEGLEITERBEWERTUNG 2001 ROLLE VON GLUTATHION-TRANSFERASEN BEI DER REPARATUR VON STRAHLENINDUZIERTEN ZELLSCHÄDEN UND MOLEKULARBIOLOGISCHE UNTERSUCHUNGEN ZUR ZELLULÄREN RADIOSENSITIVITÄT

Einleitung, allgemeine Bemerkungen

Die Strahlenempfindlichkeit ist eine Folge davon, wie gut die Zellen strahleninduzierte Schädigungen beheben können. Um in der Therapie gezielt gegen das Tumorgewebe anzugehen, und um im Strahlenschutz die Folgen von Bestrahlungen gering zu halten, sind Informationen über die molekularen Zusammenhänge der zellulären Strahlenreaktion wichtig.

So haben sich in neueren Studien diejenigen Zellen als strahlenempfindlich erwiesen, die die Blutgefäße auskleiden (sozusagen die innere Beschichtung der Blutbahnen). Diese Gefäße gewährleisten in schnell wachsenden Tumor-Geweben oder in Schleimhäuten, die ihre Zellen oft und schnell erneuern, die Blutzufuhr und somit die Versorgung mit Nährstoffen. Werden die Endothelzellen der Blutgefäße durch Strahlung geschädigt, so wird auch die Blutzufuhr reduziert oder unterbrochen und das zu versorgende Gewebe stirbt ab. Eine Bestätigung dieser Hypothese, wie sie in neuester Zeit auch publiziert wurde, würde neue Ansatzpunkte zur Behandlung des gastro-intestinalen Syndroms ermöglichen.

Glutathion-Transferasen sind Enzyme, die bei der Entgiftung der Zellen mitwirken. In gewissen strahlenresistenten Tumoren wird das Enzym überexprimiert (vermehrt hergestellt), daher ist zu vermuten, dass es auch strahlenprotektiv (die Zelle vor strahleninduzierten Schädigungen schützend) wirken kann.

Im Projekt von Dr. Ballmer-Hofer wurde gezeigt, dass Zellen, in welchen das Enzym vermehrt gebildet wird, besser mit Strahlenschäden fertig werden.

Die grundlegenden Mechanismen, die in ihrer Summe die zelluläre Strahlenantwort ergeben, spielen sich auf molekularem Niveau ab. Wenn man diejenigen Zellen, die die Blutgefäße auskleiden, mit Hilfe von molekularbiologischen "Eingriffen" strahlenempfindlicher machen könnte, hätte man eine kombinierte Gen-/Strahlentherapie zur Hand.

Im Projekt von Dr. Jaussi wird ein Gen konstruiert, welches in unbestrahltem Zustand inaktiv ist und erst unter Einfluss von Bestrahlung sein toxisches Produkt zu bilden beginnt (strahleninduzierbares Gen). Wichtig für das Gelingen ist der Promoter, die dem eigentlichen Gen vorgeschaltete strahlenspezifische Kontrollregion, die erst das Einschalten des Gens durch Strahlung ermöglicht. Eine solche Region darf von sich aus möglichst gar keine Aktivität zeigen. Nachdem das experimentelle System etabliert worden ist, kann die Ausbeute (die Selektivität des strahlenspezifischen Gen-Systems durch geeignetere Promotoren) weiter optimiert werden.

Erreichen der Ziele 2001

Es konnte bestätigt werden, dass die Enzyme tatsächlich im Regelwerk der Strahlenresistenz mitwirken. Jetzt kann man ihre genaue Aufgabe aufklären und die Substrate, die von ihnen verändert werden, bestimmen.

Das System zur Analyse der Promoter-Aktivität funktioniert und die Aktivität selbst ist strahlenspezifisch. Nach eigenen Aussagen ist sie aber noch zu gering und zu wenig reproduzierbar, daher werden weitere Promotoren-Kandidaten auf ihre Eignung geprüft.

Einschätzung der Projekte

Beide Projekte sind im Forschungsgebiet der zellulären oder molekularen Strahlenempfindlichkeit angesiedelt, welches nicht nur höchst aktuell, sondern auch zunehmend komplex ist. Was man als "Strahlenempfindlichkeit" bezeichnet und in geeigneten Endpunkten auch messen kann, hängt von mittlerweile unzähligen molekularen Regelmechanismen ab. Eine (nach oben oder nach unten) veränderte Strahlenempfindlichkeit kann ihre Ursache an den verschiedensten Knotenpunkten dieses Netzwerkes haben. Man befindet sich in einem zentralen Gebiet, wo sich Krebsforschung, Strahlenschutz und Strahlentherapie treffen. Jede neue Erkenntnis ergänzt das Bild der (strahleninduzierten) Krebsentstehung.

Der Stellenwert liegt auch bei der Beantwortung der immer wieder gestellten Frage nach den Ursachen für die individuellen Schwankungen der Strahlenempfindlichkeit, sowie in der Möglichkeit, die Resultate für das Verständnis des Strahlenschutzes umzusetzen. Für die HSK ist es wichtig, sich in diesem Bereich bei gut strukturierten und positionierten Projekten zu engagieren.

Es werden moderne molekularbiologische Methoden angewandt, um Zellen künstlich "auf Abruf" strahlenempfindlich zu machen. Für eine Optimierung der Strahlentherapie ist dies von grosser Bedeutung und steht auch im internationalen Vergleich sehr gut. Die Resultate werden sicherlich weitere wichtige Hinweise auf die Zusammenhänge geben, die zur individuellen Strahlenempfindlichkeit führen.

Ausblick

Nicht nur die weiter zu erwartenden Resultate sind im Hinblick auf die Verbesserung der Strahlentherapie, für die Interpretation der Schwankungen in der Strahlenempfindlichkeit oder bei der strahlenbedingten Krebsentstehung interessant. Auch die molekularbiologischen Methoden werden in der strahlenbiologischen Forschung für enorme Fortschritte sorgen. Wie schnell dies geschieht, ist in einem dynamischen Gebiet wie diesem, mit seinen komplexen methodischen Ansätzen, nicht leicht vorherzusagen

R. Scheidegger

DIE ROLLE VON GLUTATHION-S-TRANSFERASEN BEI DER REPARATUR VON STRAHLENINDUZIERTEN ZELLSCHÄDEN JAHRESBERICHT 2001

Die Rolle von Glutathion-S-Transferasen bei der Reparatur von strahleninduzierten Zellschäden

Autor und Koautoren	Kurt Ballmer-Hofer, Irina Skaanes und Stephanie Suarez
beauftragte Institution	Institut für Molekulare Radiobiologie am Paul Scherrer Institut
Adresse	5232-Villigen
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 3104165, kurt.ballmer@psi.ch , http://imr.web.psi.ch/imr_psi_homepage.html
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	65680
Dauer des Projekts (von – bis)	1.1.1998-31.12.2003

Zusammenfassung

Sowohl in gesunden Organen wie auch in krankem Gewebe, wie z.B. in einem Tumor, muss die Versorgung mit Blut sichergestellt werden. Dies geschieht durch die Bildung eines Gefäßsystems, das als feinmaschiges Netz in das Gewebe einwächst. Neuere Studien zeigen, dass gerade die Endothelzellen, die die Wände der Blutgefäße auskleiden, besonders hohe Strahlenempfindlichkeit aufweisen. Dies hat zur Folge, dass Gewebe, die in besonderem Masse von einer intakten Blutzufuhr abhängen, wie z.B. die sich erneuernde Darmschleimhaut oder ein wachsender Tumor, erhöhte Strahlensensitivität zeigen. Unser Projekt hat zum Ziel, die Radiosensitivität dieser Endothelzellen in sich neu bildenden Blutgefäßen und in Tumoren zu untersuchen. Dabei haben wir uns in ersten Experimenten auf die Rolle von Glutathion-S-Transferasen (GST) bei der Detoxifizierung strahlengeschädigter Zellen konzentriert. Wir konnten zeigen, dass die Ueberexpression verschiedener GSTs in Zellen in Kultur deren Strahlentoleranz erhöht.

1. Projektziele

Das Verständnis der molekularen Mechanismen, die einer Zelle ermöglichen durch ionisierende Strahlen entstandene Schäden zu erkennen und zu reparieren, ist von fundamentaler Bedeutung bei der Evaluation der Auswirkungen von Strahlenschäden in lebenden Organismen. Im ablaufenden Jahr haben wir gezeigt, dass die bei der Detoxifizierung geschädigter Zellen wichtigen Glutathion-S-Transferasen Zellen zu schützen vermögen. Dabei wurden verschiedene GST in Expressionsplasmide kloniert und in Endothelzellen exprimiert. Erste Versuche haben unsere ursprüngliche Beobachtung bestätigt, dass hohe GST Expression Strahlen exponierte Zellen bei Dosen von ca. 9 Gy vor dem Zelltod, der Apoptose, zu schützen vermögen.

2. Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

Mehrere abgeschlossene Arbeiten [1-3] der von der HSK finanzierten Betreuerin der hier beschriebenen Arbeit sind nun auch als Dissertation eingereicht worden.

Die Resultate des Hauptprojektes der dieses Jahr durchgeführten Arbeiten umfasst die Rolle von Glutathion-S-Transferasen (GSTs) bei der durch Strahlung induzierten Zellschädigung. Glutathion-S-Transferasen sind multifunktionelle Enzyme, die in vielen verschiedenen Isoenzymen in praktisch allen aeroben Organismen vorkommen. Sie entgiften sowohl endogene toxische Substanzen als auch Xenobiotika indem sie mit diesen hydrophoben Substraten Glutathion-Konjugate bilden, die metabolisiert und ausgeschieden werden. Diese ‚Stress response Proteine‘ sind ebenfalls in die Redox-Homöostase der Zellen involviert. Sie erhöhen die Belastbarkeit der Zellen gegenüber oxidativem Stress.

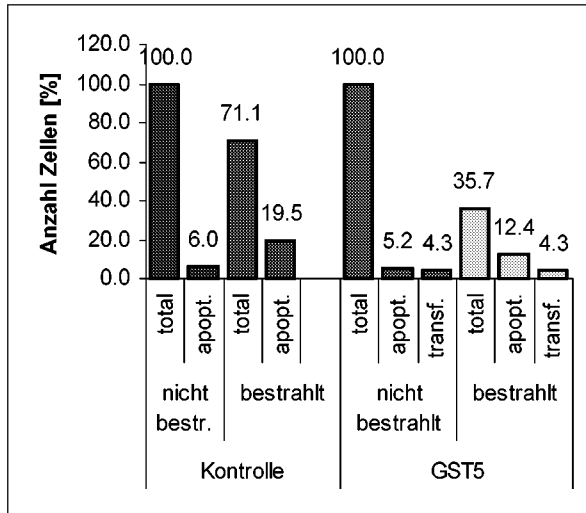
In den letzten Jahren kamen die GSTs im Zusammenhang mit der erworbenen Zytostatika- oder Strahlenresistenz maligner Tumoren ins Gespräch. Man entdeckte in solchen resistenten Tumoren oft eine Ueberexprimierung von GSTs während der Chemo- oder Strahlentherapie. GSTs spielen aber auch bei normalen Zellen eine Rolle. GSTs sind an der Beseitigung chemischer Schäden beteiligt, die durch die bei Bestrahlung entstehenden Radikale verursacht werden.

In dieser Arbeit wurden verschiedene Isoenzyme aus *Arabidopsis Thaliana* auf ihre Fähigkeit untersucht, Zellen vor Strahlenschäden zu schützen. GST5, GST9, GST10 und GST18 wurden in den Säugetiervektor p11G kloniert und in endotheliale Zellen (PAE) transfiziert. Nach der Behandlung mit Röntgenstrahlen (9 Gy) wurden die Genprodukte mittels Immunfluoreszenz sichtbar gemacht und von den transfizierten Zellen die Apoptoserate in Prozent ermittelt.

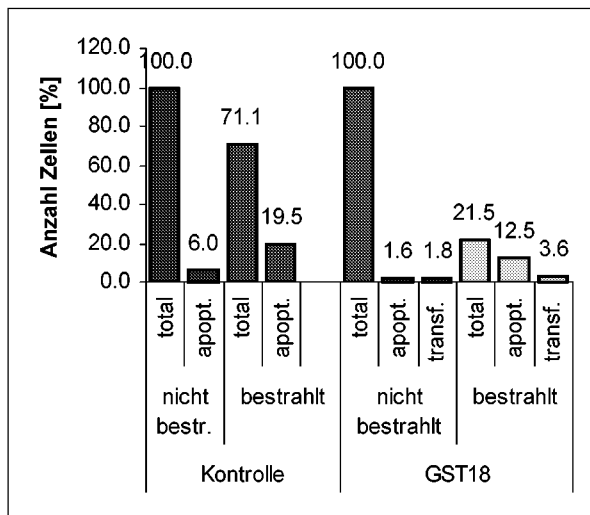
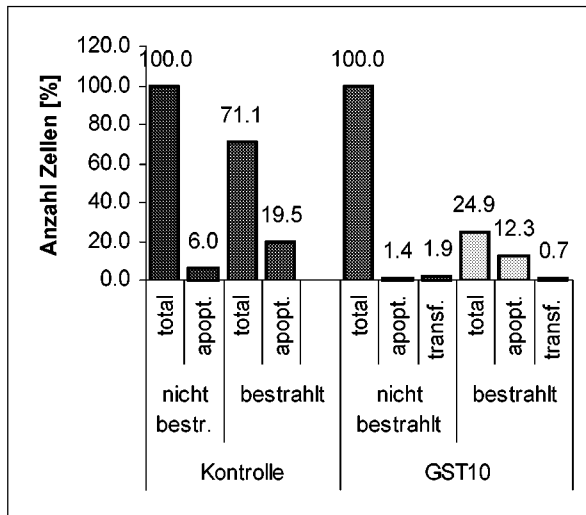
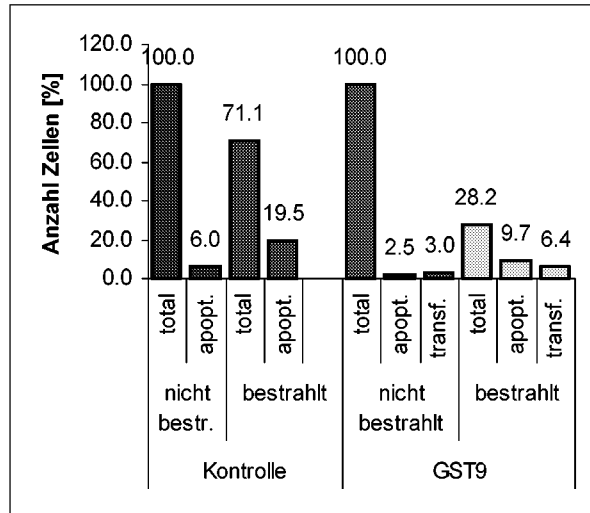
Es konnte in den GST-exprimierenden Zellen ein strahlenprotektiver Effekt nachgewiesen werden: Die mit GST5, GST9, GST10 und GST18 transfizierten Zellen zeigten klar weniger Apoptose nach Bestrahlung als die nicht transfizierte Kontrolle (Abbildung 1).

Die Kontrolle besteht aus nicht transfizierten Zellen. In Blau sind die nicht bestrahlten, in violett die bestrahlten Proben zu erkennen. Bei den mit GST transfizierten Zellen stellen die roten die nicht bestrahlten und die gelben Säulen die bestrahlten Proben dar. Als jeweils 100% wurde die totale, nicht bestrahlte Zellzahl gesetzt. Die apoptotischen, nicht bestrahlten, die transfizierten nicht bestrahlten und die totalen bestrahlten Zellen wurden in Prozent zu dieser dargestellt. Für die apoptotischen bestrahlten sowie die transfizierten bestrahlten Zellen wurde die totale Zellzahl der bestrahlten Probe als 100% angenommen.

A



B



C

D

A p11G/GST5, B p11G/GST9, C p11G/GST10, D p11G/GST18

3. Nationale Zusammenarbeit

Alle pflanzlichen GST cDNA wurden von Dr. Felix Mauch, Universität Fribourg, zur Verfügung gestellt.

4. Bewertung 2001 und Ausblick 2002

Die hier beschriebenen Resultate [4] weisen darauf hin, dass die GSTs in die Mechanismen, welche einen Tumor strahlenresistent werden lassen, eingreifen. Um ihre genaue Rolle zu verstehen, sollten die einzelnen Isoformen sowie ihre spezifischen Substrate aufgeklärt werden. Behandlung mit GST-Inhibitoren als Begleitmassnahme bei der Krebstherapie werden vielleicht in Zukunft eine vielversprechende Strategie in der Krebsbekämpfung darstellen. In Zukunft sollten auch die genauen Expressionsmuster von GST Enzymen nach Behandlung normaler Zellen mit ionisierender Strahlung untersucht werden. Diese Arbeiten werden mit MicroArray Technologie in Zusammenarbeit mit den Experten am 'Functional Genomics Center' an der Universität Zürich durchgeführt werden.

5. Referenzen

- [1] Suarez, S. (2001) Analyse fonctionnelle du VEGF et de ses recepteurs dans la signalisation angiogenique, Ph. D. thesis, Université de Provence, Aix-Marseille, France.
- [2] Scheidegger, P., Weiglhofer, W., Suarez, S., Console, S., Waltenberger, J., Pepper, M., Jaussi, R., and Ballmer-Hofer, K.
Signalling properties of a human immunodeficiency virus-encoded angiogenic peptide mimicking vascular endothelial growth factor activity. *Biochem. J.* **353**, 569-578 (2001)
- [3] Suarez, S., Ballmer-Hofer, K.
VEGF transiently disrupts gap junctional communication in endothelial cells. *J. Cell. Sci.* **114**, 1229-1235 (2001)
- [4] Skaanes, I. (2001) Die Rolle von Glutathion-S-Transferasen bei der Regulation der Strahlen-induzierten Apoptose, ETH Zürich und IMR am Paul Scherrer Institut, Villigen, Diplomarbeit, ETH Zürich.

Molekularbiologische Untersuchungen zur zellulären Radiosensitivität

Autor und Koautoren	Rolf Jaussi
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut
Adresse	5232 Villigen PSI
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 310 2877, rolf.jaussi@psi.ch , http://imr.web.psi.ch/imr_psi_homepage.html
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	23973/80385
Dauer des Projekts (von – bis)	2001-2003

Zusammenfassung

Das Wachstum der meisten Tumoren ist abhängig von der Blutversorgung. Wir haben zum Ziel die Radiosensitivität von Endothelzellen spezifisch in Tumorblutgefässen zu erhöhen. Dadurch ist eine Verbesserung der Radiotherapie von Tumoren zu erwarten und wir erhalten grundlegende Daten zur Radiosensitivität von Endothelzellen. Wir streben als Zielvorgabe eine Kombination von Gentherapie mit Radiotherapie an. Ein essentielles Ziel in diesem langfristigen Projekt ist die Etablierung eines strahleninduzierbaren Promoters. Der Stand dieser Arbeit wird im folgenden beschrieben.

Wir haben eine detaillierte Studie der Strahlenantwort eines Serum-Response-Elements (ein Teil des Promoters des fos Onkogens) durchgeführt. Wir haben transformierte menschlichen Fibroblasten (NIH3T3 Zellen), menschlichen Zervix-Karzinom-Zellen (HeLa), eine etablierte Zelllinie von Schweine-Endothel (Porcine Aortic Endothelial Cells, PAECs), und untransformierte Rat2 Ratten-Fibroblasten analysiert. Die Zellen wurden mit Reporter-Plasmid-DNA transfiziert, und danach in Medien mit unterschiedlichem Serumgehalt inkubiert mit dem Ziel, die Signaltransduktion durch Serum-Wachstumsfaktoren zu reduzieren. Es wurden verschiedene Zeitpunkte nach Bestrahlung (2,6,12 und 24h), verschiedene Dosen (0.1, 0.5, 1, 3, und 10Gy) und verschiedene Serumbedingungen (6 verschiedene Serum-Batches, Serum-Konzentrationen im Medium 0.1, 0.5, 1, 10%) und verschiedene Zeiten der Behandlung mit reduzierter Serumkonzentration (2, 4, 6, 12h) überprüft. Obwohl sporadisch eine 2-8-fache Induktion des Promoters in Luziferase-Assays gefunden wurde, liessen sich die Bedingungen zur Induktion nicht so reproduzieren, dass wir regelmässig Induktion des Promoters beobachtet hätten. Wir vermuten, dass die geeigneten Bedingungen zur Induktion unseres experimentellen Systems aufgrund der Empfindlichkeit gegenüber diversen Stress-Arten (Transfektion, Serum-Mangel und Bestrahlung) schwer zu definieren sind. Wir haben nun mit der Analyse eines weiteren, p53-abhängigen Promoter-Reporters begonnen und hoffen, dass dieser besser reproduzierbare Induktion zeigt. Ausserdem untersuchen wir in einem parrallelen Experiment die Expression einer Reihe von Genen um geeignete Promoter Kandidaten herauszufinden.

1. Projektziele

Bedeutung des Projekts: Wir möchten ein strahleninduzierbares Gen entwickeln, das zur Expression und Sekretion von toxischem Protein in bestrahlten Zellen führt. Dieses toxische Protein sollte das Gewebe lokal beschädigen und damit die Radiotherapie von Tumoren unterstützen. Die Studie ist auch von grundlegendem radiobiologischem Interesse.

Ziel für 2001: Charakterisierung eines ausgewählten Serum-Response-Elements.

Ziel für 2002: Charakterisierung von mindestens einem weiteren Promoter auf seine Eignung zur Unterstützung der Radiotherapie. Bei positivem Befund erste Ergebnisse mit der Expression eines toxischen Proteins.

2. Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

Ein Promoter mit einer hoher Untergrund-Aktivität im nichtbestrahlten Zustand stellt ein Problem für die Spezifität der geplanten Therapie dar. Deshalb haben wir nach einem Promoter gesucht, der in unbestrahlten Zellen inaktiv ist. Ein solcher Promoter stand uns durch die Vermittlung von Herrn Ballmer zur Verfügung [1]. Er besteht aus einer vierfachen Repetition der Bindungssequenz für den Hefetranskriptionsfaktor Gal. Da dieser Faktor nicht in höheren Eukaryonten vorhanden ist, zeigt der entsprechende Promoter wenig unspezifische Aktivität in menschlichen Zellen. Ein durch Genmanipulation hergestelltes Fusionsprotein aus der DNA-Bindungsdomäne des Gal Transkriptionsfaktors und der Signalübermittlungsdomäne des menschlichen Elk Transkriptionsfaktors (Gal-Elk) kann am Gal Promoter binden und die Transkription einleiten. Der Gal-Elk Transkriptionsfaktor wird durch Signale aus der MAPKinasen-Kaskade aktiviert. Diese MAPKinasen-Kaskade ist in bestrahlten Zellen aktiviert. Beispiele von vereinzelt Resultaten mit teilweise signifikanter Induktion des untenstehend beschriebenen Systems werden anhand von drei Figuren gezeigt (siehe Fig. 1-3). In einer ersten Reihe von Experimenten wurden menschliche HeLa Zellen mit einem Expressionsplasmid, das zur Produktion des beschriebenen Gal-Elk Transkriptionsfaktors führt, stabil transformiert. Dieselben Zellen erhielten auch ein Reportersystem mit einer Luciferase unter der Kontrolle des Gal Promoters (Zelllinien und Plasmide von Stratagene). Diese Zellen zeigen nach Behandlung mit erhöhter Serumkonzentration (Positivkontrolle) eine Aktivierung des Gal Promoters (Fig.1). Die Behandlung dieser Zellen mit verschiedenen Dosen von Röntgenstrahlung führte in keinem Fall zur Stimulierung des Promoters. Vermutlich reagieren diese stark transformierten Zellen anders auf Stress als normale, untransformierte Zellen.

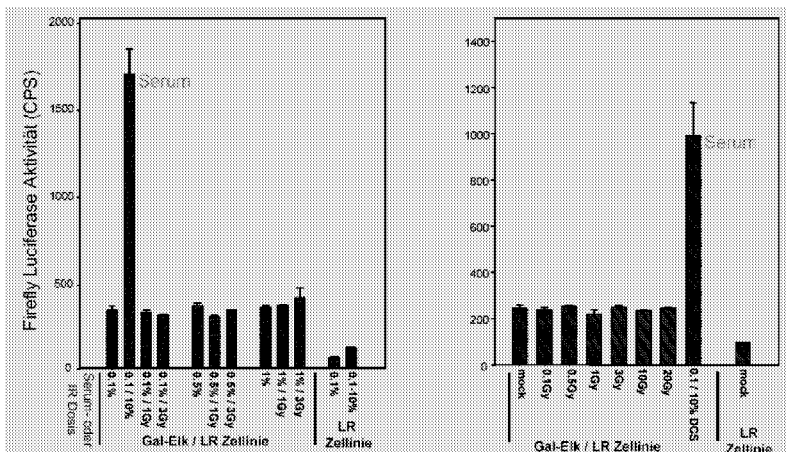


Fig. 1 Keine Induktion des Gal-Elk/Luciferase Reporter Systems in HeLa Zellen nach Bestrahlung. Mit den angegebenen Plasmiden stabil transformierte HeLa Zelllinien wurden während der exponentiellen Wachstumsphase bestrahlt. Die Aktivität des Luciferase-reporters wurde 14h nach Bestrahlung im Luminometer bestimmt. LR Zelllinie: Nur Luciferase-Reporter transfiziert. Gal-Elk/LR Zelllinie: Mit beiden Plasmiden transfiziert.

In einem zweiten Experiment wurde eine Endothel-Zelllinie, die aus Schweine-Aorta stammt, mit denselben Plasmid-DNAs transfiziert und anschliessend mit Röntgen bestrahlt (Fig. 2). Als positive Kontrolle für die Induzierbarkeit des Promoters verwendeten wir eine mit-transfizierte konstitutiv aktive Form des ras Onkogens (L61ras). Das resultierende Genprodukt stimuliert die Signaltransduktionskaskade, welche schliesslich das Elk Protein phosphoryliert und dadurch aktiviert. In den bestrahlten Endothelzellen (ohne L61ras) können wir in einem Drittel unserer Experimente eine signifikante Aktivierung des Gal Promoters beobachten. Diese Aktivierung beträgt etwa 1/400 von derjenigen in L61ras-stimulierten Zellen.

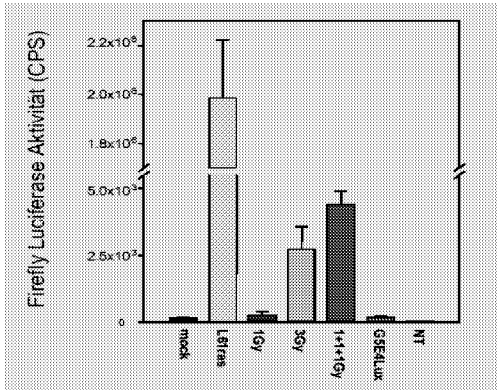


Fig. 2 Schwache Induktion des Gal-Elk/Luciferase Reporter Systems in PAEC (Porcine Aortic Endothelial Cells) nach Bestrahlung. PAECs wurden mit den angegebenen Plasmiden transfektiert und während der exponentiellen Wachstumsphase bestrahlt. Die Exposition erfolgte 14h nach der Transfektion. Nach weiteren 8h wurden Zellextrakte hergestellt und für die Luciferasenbestimmungen verwendet.

Schliesslich haben wir das Gal-Elk System in Rattenfibroblasten analysiert und wiederum sporadisch eine Induktion nach Bestrahlung gefunden (Fig. 3). Diese Induktion ist wesentlich stärker als in den transformierten PAEC. Sie ergibt ungefähr ¼ des L61ras-Signals. Wir vermuten, dass die nicht transformierten Rat2 Zellen eine intakte Stress-Signaltransduktion aufweisen und deshalb stark auf Strahlung ansprechen können.

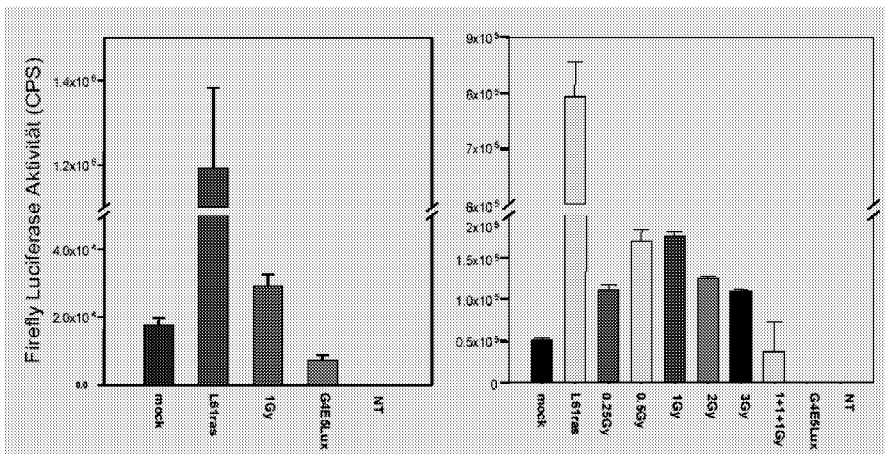


Fig. 3 Aktivierung des Gal-Elk/Luciferase Reporter Systems in Rat2 Fibroblasten nach Bestrahlung. Rat2 Zellen wurden mit den angegebenen Plasmiden transfektiert und während der exponentiellen Wachstumsphase bestrahlt. Die Exposition erfolgte 14h nach der Transfektion. Nach weiteren 8h wurden Zellextrakte hergestellt und für die Luciferasenbestimmung verwendet.

3. Bewertung 2001 und Ausblick 2002

Das Gal-Elk System kann unter den gewählten Bedingungen kaum reproduzierbar induziert werden. Wir haben deshalb mit der Eignungsprüfung weiterer Promotoren begonnen. Wir sind insbesondere an Promotoren mit Bindungsstellen für p53 oder NF-KappaB interessiert. Diese beiden Transkriptionsfaktoren sind in gestressten Zellen stimuliert und sind zentrale Faktoren, welche unter anderem das Überleben, respektive den Zelltod regulieren (siehe Kurz-Review [2]). Auf der Suche nach besser geeigneten Promotoren beginnen wir nun auch die Expression einer grösseren Anzahl von Genen in bestrahlten Zellen mit Mikroarray-Technologie zu messen. Falls wir ein stark induziertes Gen finden, so werden wir dessen Promotor isolieren und als Alternative zum Gal-Elk System verwenden.

4. Referenzen

- [1] M. Kyriakis. *Life-or-death decisions*, Nature 414:265-266, 2001.
- [2] M. Urich, M. Senften, P. E. Shaw, and K. Ballmer-Hofer. A role for the small GTPase Rac in polyomavirus middle-T antigen-mediated activation of the serum response element and in cell transformation. *Oncogene* 14:1235-1241, 1997.



Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen
Division principale de la Sécurité des Installations Nucléaires
Divisione principale della Sicurezza degli Impianti Nucleari
Swiss Federal Nuclear Safety Inspectorate

Datum: 8. Februar 2002
Von: SG
An: ZM

PROJEKTBEGLEITERBEWERTUNG 2001 METHODISCHE WEITERENTWICKLUNGEN IN DER AERORADIOMETRIE

Allgemeines

Der Vertrag wurde 1997 über eine Dauer von vier Jahren abgeschlossen. Innerhalb des Forschungsprojektes sollen die bestehenden Aerogammaspektrometrie-Messapparaturen und die dazugehörige Software weiterentwickelt werden. Im besonderen werden eine Datenakquisition mit Datentransfer zu einer Bodenstation und eine anschliessende automatische Datenauswertung in Echtzeit angestrebt, um die ausgewerteten Daten in Notfallsituationen schneller zur Verfügung zu haben. Im weiteren soll die in der Schweiz gebräuchliche Punktquellenkalibration mit ausländischen Kalibrationsverfahren verglichen werden.

Die erfassten Daten sollen durch Bildverarbeitungsmethoden in Pixeldarstellung kartiert, die Dosisraten bestimmt und der Einsatz von GIS überprüft werden. Die Teilnahme am EU-Projekt ECEAGS PL950097 bildet einen weiteren Schwerpunkt innerhalb dieses Programmes.

Wurde das anvisierte Ziel 2001 erreicht?

Mit der Dissertation von Herrn Bucher im Jahr 2000 konnte das Projekt zu seinem erfolgreichen Abschluss geführt werden. Die Projektziele wurden erreicht. Die Resultate wurden in der ETH-Dissertation Nr 13973 festgehalten.

Im Jahr 2001 wurden lediglich kleinere Abschlussarbeiten durchgeführt.

Wie schätzen Sie die Bedeutung von dieser Forschungstätigkeit ein?

Die Aeroradiometrie ist ein wichtiges Element der schweizerischen Notfallorganisation und wird seit 1994 operationell unter der Leitung der NAZ eingesetzt. Die im Rahmen dieses Projektes entwickelten Erweiterungen und Verbesserungen am Messsystem und an der Methodik erlauben nicht nur schnellere und bessere Resultate für alle beteiligten Stellen in Notfällen sondern auch eine internationale Vergleichbarkeit der Messdaten.

Was könnte noch verbessert werden?

Das Projekt war sehr erfolgreich. Um die Einsatzbereitschaft der Aeroradiometrie auch in Zukunft sicherzustellen, wurde ein Folgeprojekt im operativen Bereich gestartet.

Methodische Weiterentwicklungen in der Aeroradiometrie

Autor und Koautoren	Bucher Benno, Rybach Ladislaus
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut
Adresse	Paul Scherrer Institut, 5232 Villigen PSI
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 310 23 38, benno.bucher@psi.ch
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	H-100061
Dauer des Projekts (von – bis)	April 2001 – 31. Dezember 2003

Zusammenfassung

Im Rahmen dieses Projektes soll die Einsatzbereitschaft der Aeroradiometrie durch die ständige Wartung und Weiterentwicklung der Methodik und der Messsysteme erhalten werden. Zudem soll innerhalb des Projektes die Teilnahme der Schweiz am EU-Projekt „European Calibration and Coordination of Mobile and Airborne Gamma Spectrometry (ECCOMAGS)“ ermöglicht werden.

Im Jahre 2001 konnten die jährlichen Messflüge unter der Leitung der Nationalen Alarmzentrale erfolgreich durchgeführt werden. Erstmals wurden Profile durch die ganze Schweiz vermessen. Die Resultate zeigten eine gute Übereinstimmung mit Bodenmessungen und auch mit der aus unabhängigen Daten entstandenen Dosisleistungskarte der Schweiz. Im Verlaufe des Jahres wurde ein Konzept für die Erneuerung der Messsysteme ausgearbeitet. Dabei steht der Ersatz der in die Jahre gekommenen Rechner im Vordergrund. Im Zuge dieser Erneuerung soll zudem auch die neue Auswertesoftware im Messsystem integriert werden. Neben der aktiven Teilnahme am EU-Projekt ECCOMAGS konnte auch die Zusammenarbeit mit dem Schwedischen Strahlenschutzinstitut (SSI) weitergeführt und vertieft werden.

1. Projektziele

Die Aeroradiometrie ist ein Messmittel, das im Rahmen der *Einsatzorganisation bei erhöhter Radioaktivität* zum Einsatz kommen kann. Der Erhalt der Einsatzbereitschaft bedingt eine ständige Wartung und Weiterentwicklung der Methodik und der Messsysteme. Weiter soll die Mitarbeit der Schweiz am EU-Projekt „European Calibration and Coordination of Mobile and Airborne Gamma Spectrometry (ECCOMAGS)“ ermöglicht und die wissenschaftliche Betreuung der operationellen Einsätze durch die *Nationale Alarmzentrale* sichergestellt werden. Zudem soll die *HSK* beim Aufbau und der Anwendung von Datenbanken unterstützt werden.

Im Jahre 2001 sollte die Durchführung der jährlichen Messflüge unterstützt und die wissenschaftliche Auswertung der Daten durchgeführt werden. Zudem sollte an der Vorbereitung der im Rahmen des EU-Projektes ECCOMAGS geplanten Messübung im Jahre 2002 teilgenommen werden. Im weiteren sollte ein Konzept für die Erneuerung der im Messsystem enthaltenen Rechner erarbeitet werden. Schliesslich sollte auch die Zusammenarbeit mit dem Schwedischen Strahlenschutzinstitut (SSI) in der Softwareentwicklung weitergeführt werden.

2. Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

Im Mai 2001 erschien der Bericht zu den Messflügen 2000 [1], der die wissenschaftliche Auswertung der erhobenen Daten sowie neu gewonnene Erkenntnisse enthielt. Im selben Zeitraum wurde auch die Dissertation von B. Bucher [2] über „Methodische Weiterentwicklungen in der Aeroradiometrie“ publiziert. Ebenfalls wurde in „Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz“ des Bundesamtes für Gesundheit [3] über die Resultate der aeroradiometrischen Messungen berichtet. Zudem wurde beim Journal of Environmental Radioactivity erfolgreich ein Paper über die Verteilung der externen Dosisleistung in der Schweizer Bevölkerung eingereicht [4].

Vom 25. bis 28. Juni 2001 erfolgten die jährlichen Messflüge unter der Leitung der Nationalen Alarmzentrale. Neben der routinemässigen Vermessung der Kernkraftwerke Gösgen und Mühleberg wurden auch erstmals Profile durch die Schweiz aufgenommen. Eines führte vom Bodensee zum Genfersee, das andere von Schaffhausen nach Chiasso. Mit diesen Profilen konnte aufgezeigt werden, dass in einem Ernstfall (Radioaktiver Fallout) mit der Aeroradiometrie sehr rasch ein lückenloser Überblick über die Verstrahlungssituation möglich ist. Zudem dienen diese Profile auch als „Nullmessungen“. Vergleiche mit der Dosisleistungskarte der Schweiz [5], die aus dem Zusammenschluss von Bodenmessungen, Messungen an Bodenproben, aeroradiometrischen Messungen und in Situ gammaspectrometrischen Messungen erstellt wurde, zeigten grösstenteils eine sehr gute Übereinstimmung. Der detaillierte wissenschaftliche Bericht ist in Arbeit und wird anfangs des Jahres 2002 erscheinen.

Am 12./13. Juli fand in East Kilbride (Schottland) das erste Partnermeeting im Rahmen des EU-Projektes ECCOMAGS statt. Dort berichteten wir über die neuesten Entwicklungen in der Schweiz und stellten auch die online Datenauswertungs- und Kartierungssoftware vor. Zudem wurden erste Entscheide betreffs Datenaustausch bei der Messübung im Jahre 2002 gefällt.

Die Zusammenarbeit mit dem SSI in der Softwareentwicklung wurde weitergeführt. Anlässlich eines Arbeitsbesuchs in Schweden und der Teilnahme an der Übung LIVEX, die im Rahmen der Barents Rescue Exercises 2001 vom 16. bis 20. September in Boden (Schweden) stattfand, konnte die gemeinsame Software erfolgreich getestet und bei der Übung eingesetzt werden. Erstmals wurde die Kartierungssoftware auch mit autogestützten Systemen eingesetzt, wobei sie sich auch als grosse Hilfe bei der Orientierung im Gelände erwies. Dieser Arbeitsbesuch ermöglichte zudem, weitere Kontakte auch zu anderen Forschungsgruppen aufzubauen.

Im Oktober konnte anlässlich der Sitzung der Fachgruppe Aeroradiometrie das Konzept für die Erneuerung der Messsystemrechner vorgestellt und diskutiert werden. Es wurde entschieden, die Erneuerung so rasch als möglich an die Hand zu nehmen.

3. Nationale Zusammenarbeit

Im Rahmen des Projektes wurde mit verschiedensten Behörden und Stellen zusammengearbeitet. Neben einer engen Zusammenarbeit mit der Nationalen Alarmzentrale (NAZ), bei welcher der operationelle Einsatz der Aeroradiometrie liegt, wurden auch Kontakte zur Sektion für die Überwachung der Radioaktivität (SUER) in Fribourg, zum Institut für Geophysik der ETH Zürich und natürlich zur Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen (HSK) in Villigen gepflegt. Zudem

werden in der Fachgruppe Aeroradiometrie (FAR), welche organisatorisch der KOMAC zugeordnet ist, noch weitere interessierte Stellen zur Mitarbeit eingeladen (Institut de radiophysique appliquée (IRA), Uni Bern, ETH Zürich).

4. Internationale Zusammenarbeit

Ein Schwerpunkt in der internationalen Zusammenarbeit stellt die Teilnahme am EU-Projekt „European Coordination and Calibration of Mobile and Airborne Gamma Spectrometry“ (ECCOMAGS, FIKR-CT-2000-20098) dar. Im Rahmen dieses Projektes fand im Juni 2001 auch ein Meeting statt, wo die neuesten Erkenntnisse und Entwicklungen betreffs Aeroradiometrie in der Schweiz vorgestellt werden konnten. Zudem wurde dort auch die geplante, gemeinsame Messübung vom Mai/Juni 2002 in Schottland besprochen.

Neben diesem Projekt wurde auch die Zusammenarbeit mit dem Schwedischen Strahlenschutzinstitut (SSI) weiter gepflegt. Die gemeinsam entwickelte Software konnte anlässlich der Barents Rescue Übung in Boden (Schweden) erstmals und erfolgreich mit den schwedischen Messsystemen getestet und eingesetzt werden.

5. Bewertung 2001 und Ausblick 2002

Die für das Jahr 2001 gesetzten Ziele wurden erreicht. So konnten die Messflüge erfolgreich durchgeführt und die neue Auswertesoftware ein weiteres Mal getestet werden. Mit dem Konzept für die Rechnererneuerung in den Messsystemen konnte ein erster Schritt in Richtung Realisation getan werden. Im weiteren wurde aktiv am EU-Projekt ECCOMAGS mitgewirkt. Die Zusammenarbeit mit dem Schwedischen Strahlenschutzinstitut wurde weitergeführt und vertieft.

Im Jahre 2002 stehen einige wichtige Arbeiten bevor. Die Erneuerung der Messsysteme soll vorangetrieben und wenn möglich abgeschlossen werden. Dabei wird die neue Auswertesoftware direkt ins Messsystem integriert. Im weiteren soll in diesem Jahr auch die Datenübertragung vom Helikopter an eine Bodenstation realisiert werden. Im Jahre 2002 ist auch die neue Auswertesoftware innerhalb der Alarmorganisation des Bundes zu operationalisieren.

Zudem sollen Methoden für eine Radonkorrektur untersucht und geprüft werden. Ebenfalls soll das Potenzial einer Kombination von NaI- und Ge-Detektoren und einer kombinierten Datenauswertung untersucht werden. Zu diesem Zweck soll auch weiterhin die internationale Zusammenarbeit im Rahmen des EU-Projektes ECCOMAGS und insbesondere mit dem SSI weiterhin gepflegt werden.

Im Mai/Juni 2002 findet die Messübung im Rahmen des EU-Projektes statt. Die Schweiz soll an dieser Übung teilnehmen. Wenn möglich soll mit einem Helikopter und unserem Messsystem die Übung mitgemacht werden.

6. Referenzen

- [1] B. Bucher, L. Rybach, G. Schwarz, Chr. Bärlocher: **Aeroradiometrische Messungen im Rahmen der Übung ARM00**. Bericht für das Jahr 1999 zuhanden der Fachgruppe Aeroradiometrie (FAR). Interner Bericht, Institut für Geophysik, ETH Zürich, 2001.
- [2] B. Bucher: **Methodische Weiterentwicklungen in der Aeroradiometrie**. Dissertation Nr. 13973, Abteilung Umweltnaturwissenschaften, ETH Zürich, 2001.
- [3] B. Bucher, L. Rybach, G. Schwarz, Chr. Bärlocher: **Aeroradiometrische Aufnahmen in der Schweiz**, in: Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz, 2000. Abteilung Strahlenschutz, Bundesamt für Gesundheit, 2001.
- [4] L. Rybach, D. Bächler, B. Bucher, G. Schwarz: **Radiation doses of Swiss population from external sources**. Journal of Environmental Radioactivity, in Druck.
- [5] L. Rybach, G. Schwarz, F. Medici: **Construction of radioelement and dose-rate baseline maps by combining ground and airborne radiometric data**. IAEA-TECDOC-980, pp. 33-44, 1996.



PROJEKTBEGLEITERBEWERTUNG 2001 PALEOSEIS

Einleitung

Unter den Naturkatastrophen, die unser Land betreffen können, haben Erdbeben das grösste Gefährdungspotential. Die historischen Erdbebenkataloge geben über einen Zeitraum von knapp 1000 Jahren Auskunft über stärkere Erdbeben. In Intraplattenregionen haben grosse Erdbeben aber Wiederkehrperioden von einigen hundert bis mehreren tausend Jahren. Die historischen Kataloge können somit über diese wichtigen Ereignisse nur ungenügende Daten liefern.

Das Projekt PALEOSEIS hat zum Ziel, in den jüngsten geologischen Formationen (aktive Bruchzonen, Seesedimente) Hinweise auf solche Starkbeben zu finden. Ergänzt werden diese sedimentologischen Untersuchungen durch die Beobachtung von Erdbeben verursachten Schäden an Tropfsteinen und Sinterbildungen in Höhlen und durch die Datierung von Felssturzereignissen in der Region Basel. Mit Hilfe dieser Studien soll ein Katalog der Starkbebenereignisse für die Zeitspanne der Nacheiszeit erstellt werden.

Wurden die Projektziele erreicht?

Die Projektziele wurden in den Anhängen zur Verfügung vom 24. Februar 2000 definiert. Als Leitlinie für die Arbeiten im Jahr 2001 wurden im PALEOSEIS-Jahresbericht 2000 Zwischenziele genannt. Die Arbeiten für die Gebiete Basel und Innerschweiz haben nun beeindruckende Resultate geliefert, die damals genannten Ziele wurden in jeder Hinsicht erreicht. Aus Kapazitätsgründen mussten die Arbeiten in der Westschweiz zurückgestellt werden.

Anlässlich zahlreicher Fortschrittsmeetings und Workshops wurden die Resultate mit einem weiteren Kreis von Fachleuten diskutiert. Die Resultate der Untersuchungen in den Trenches südlich Basel konnten mit einem Artikel in der renommierten Zeitschrift Science auch international bekannt gemacht werden. Anlässlich von Veranstaltungen in Basel und Luzern wurden die Resultate auch den Medien und damit einer grösseren Öffentlichkeit vorgestellt. Die nun vorliegenden Ergebnisse lassen den Schluss zu, dass es nach Abschluss des Projektes möglich sein wird, den Starkbebenkatalog auf einen Zeitraum von mindestens 10'000 Jahren zu erweitern.

Bedeutung des PALEOSEIS-Projektes für die HSK

Die Beurteilung des Erdbebenrisikos von Kernanlagen erfolgte bis anhin auf der Grundlage einer 1977 erarbeiteten gesamtschweizerischen Gefährdungsstudie (Risikokarten der Schweiz). Probabilistische seismische Gefährdungsanalysen für Kernkraftwerke in den Vereinigten Staaten ergaben gegenüber älteren Studien signifikante Unterschiede bei den geschätzten Kennwerten für Bodenerschütterungsgrössen bei Erdbeben. Die in den USA verwendete Methode zur Bestimmung der Erdbebengefährdung ist zudem deutlich weiter entwickelt als das 1977 in der Schweiz verwendete Verfahren. Die HSK entschloss sich deshalb, auch in der Schweiz eine Neubewertung der seismischen Gefährdung der Kernanlagen gemäss dem fortgeschrittenen Stand der Wissenschaft einzuleiten. Das entsprechende Projekt PEGASOS des Unterausschusses Kernenergie der Ueberlandwerke (UAK) ist im Gang und soll bis zum Jahr 2003 entsprechende Resultate liefern. Das Projekt PALEOSEIS wird mit dem erweiterten Erdbebenkatalog einen wichtigen Beitrag zu diesen Arbeiten liefern. Es steht ausser Zweifel, dass die Resultate des PALEOSEIS-Projektes auch für die Erdbebenvorsorge in anderen Bereichen als der Kernenergie von grosser Bedeutung sein werden.

Ausblick

Die Arbeiten gehen im Jahre 2002 gemäss den Programmen weiter, sie sollen gemäss der Verfügung bis zum 30 Juni abgeschlossen werden, danach wird der Schlussbericht erstellt. Im Verlaufe des Jahres 2002 müssen die Resultate nun auch ins Projekt PEGASOS eingespielen werden.

Würenlingen, 18. Februar 2002

Der Projektbegleiter: Dr. Peter Bitterli

PALEOSEIS

Reconstructing the paleoseismological record in northern Switzerland

Autor und Koautoren	Arnfried Becker, Domenico Giardini
beauftragte Institution	ETHZ, Institut für Geophysik
Adresse	ETH-Hönggerberg, CH-8093 Zürich
Telefon, E-mail, Internetadresse	01 632 54 23, becker@seismo.ifg.ethz.ch , www.geophys.ethz.ch
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	36D0.0
Dauer des Projekts (von – bis)	1. März 2000 – 30. Juni 2002

Zusammenfassung

Die paläoseismologischen Untersuchungen konzentrierten sich im Jahre 2001 auf die Basel-Region und die Innerschweiz in der Umgebung von Luzern. Die untersuchten geologischen Archive beinhalten Seeablagerungen und Höhlen in der Innerschweiz sowie in der Baselregion zusätzlich eine aktive Bruchzone (Reinach Fault) und Felssturzböcke.

Entlang der Reinach-Verwerfung konnten drei ko-seismische Bewegungen innerhalb der letzten 8500 Jahre nachgewiesen werden, wovon ein Bewegungsereignis mit dem Basel-Erdbeben von 1356 in Zusammenhang gebracht werden kann. Die Vertikalversätze für jedes Ereignis liegen zwischen 0.5 bis 0.8m, woraus sich eine Momentenmagnitude $M_w = 6.4$ bis 6.5 abschätzen lässt. Die Rekurrenzzeit für Starkbeben vom Typ ‚Basel-1356‘ liegt in der Grössenordnung von 1500 bis 2500 Jahren.

Aus den Seeablagerungen des Seewener Sees wurden für den Ereignishorizont S5 weitere Hinweise auf seinen seismogenen Ursprung gefunden (‚mushroom structure‘ und ein über 50 cm langer ‚sandyke‘). Die Deformationen deuten auf ein weiteres Erdbeben vom Typ ‚Basel 1356‘ mit $M \geq 6$ vor ca. 11'000 Jahren (vor heute) hin.

Die Datierungen von sechs Felssturzböcken von drei Klippen südlich von Basel lieferten alle Ergebnisse zwischen 520 und 835 BP. Die Felsstürze wurden mit sehr grosser Wahrscheinlichkeit durch das Basel-Erdbeben von 1356 ausgelöst. Ergebnisse über jüngere oder ältere Felssturzereignisse liegen bisher nicht vor.

Die Untersuchungen im Vierwaldstätter See ergaben bisher 5 Ereignisse, die sich in subaquatischen Rutschmassen und Trübestromablagerungen manifestieren. Das jüngste Ereignis korreliert mit dem Luzern-Erdbeben von 1601. Auch im Seelisberger See und im Lungerer See gibt es Hinweise auf das Erdbeben von 1601, ebenfalls in Form subaquatischer Rutschmassen und Turbidite. Im Baldegger See wurden sowohl in situ Deformationen als auch Turbidite untersucht. Eine Korrelation mit Ereignissen in benachbarten Seen steht noch aus.

Für das Jahr 2002 ist ein Katalog der Starkbeben für das Gebiet der Innerschweiz und die Baselregion zu erwarten.

1. Projektziele

Ziel des Projektes ist die Erarbeitung eines Kataloges von Starkbeben für die Schweiz im Zeitraum vom Spätpleistozän bis zur Gegenwart. Zu diesem Zweck werden paläoseismologische Arbeitsmethoden auf vier verschiedene geologische Archive angewendet: aktive Bruchzonen, lakustrine Sedimente, Felssturzmassen, Höhlen. Die Untersuchungen konzentrieren sich zurzeit auf die Basel-Region sowie die Innerschweiz in der Umgebung von Luzern. Folgende Ziele wurden für das Jahr 2001 angestrebt:

Basel-Region:

- weitere Abklärungen zu den ko-seismischen Bewegungen an der Reinach-Verwerfung.
- Endgültige Auswertung und Interpretation der im Vorjahr gewonnenen 80 m Bohrkern aus Seewen
- Test der modifizierten Bohrausrüstung, Beprobung von Felssturzblöcken und Versuch der Altersbestimmung der Felssturzereignisse
- Weitere Untersuchungen von Höhlen zur Abschätzung ihres paläoseismischen Potentials.

Innerschweiz:

- Datierung verschiedener Event-Horizonte und ihre Korrelation in einzelnen und zwischen verschiedenen Seebecken.
- Nachweis, dass subaquatische Rutschungen, Turbidite und in situ-Deformationsstrukturen auf Erdbeben zurückgeführt werden können.
- Untersuchungen von Höhlen zur Abschätzung ihres paläoseismischen Potentials

2. Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

2.1 Basel-Region

Zur weiteren Abklärung der ko-seismischen Bewegungen auf der Reinach-Verwerfung wurden im Juli-August 2001 weitere zwei Untersuchungsgräben nördlich von Reinach geöffnet. Die vorläufigen Ergebnisse bestätigen im wesentlichen die Beobachtungen in den bereits im Vorjahr untersuchten benachbarten Trench sites. In einem Trench konnten aufgrund erosiver Eintiefung einer temporären Abflussrinne in die unterlagernden pleistozänen und holozänen Ablagerungen nicht alle Bewegungsereignisse nachgewiesen werden. Erste Datierungen mit der Radiokarbonmethode an Proben aus den neuen Trenchs sind in Arbeit. Datierungen mit der Thermolumineszenz-Methode an lössähnlichen Sedimenten ergaben teilweise Alter von über 14'000 Jahren. Für die vergangenen 8500 Jahre liegen Beobachtungen für 3 ko-seismische Bewegungen entlang der Reinach-Verwerfung vor mit Rekurrenzzeiten von 1500 bis 2500 Jahren. Das jüngste Ereignis kann sehr wahrscheinlich mit dem Basel-Erdbeben von 1356 in Verbindung gebracht werden (Meghraoui et al. 2001). Die Magnituden der prähistorischen Erdbeben sind mit der Magnitude des Basel-Erdbebens von 1356 vergleichbar ($M_w = 6.3$ bis 6.5).

Die Auswertung von über 80 m Bohrkernen aus dem tiefsten Beckenbereich des ehemaligen Seewener Sees konnte abgeschlossen werden. Neue Radiokarbondatierungen bestätigen das Alter des Seewener Sees von 14500 Jahren (12460 ± 85 BP). Die Ereignishorizonte, die bereits in den älteren Bohrungen nachgewiesen werden konnten, wurden auch in den neueren Bohrungen gefunden (Becker et al. 2000, 2002). Eine Eventstratigraphie ist insbesondere für das Holozän sehr gut möglich. Der Eventhorizont S5 konnte jetzt eindeutig als Seismit identifiziert werden, wofür insbesondere ein über 50 cm langer Sandyke spricht. Das dazugehörige Erdbeben hat eine Magnitude $M \geq 6$ und ereignete sich zwischen 9000-10000 v.Chr.

Nach der erfolgreichen Erprobung der neu angeschafften Bohrmaschine im Frühjahr, konnten im Sommer sechs weitere Felssturzblöcke beprobt werden. Insgesamt liegen jetzt Ergebnisse von 9 Felssturzblöcken vor. Zwei Blöcke lieferten rezente Alter (wahrscheinlich infolge Kontamination), ein Block konnte nicht datiert werden (Kalktuff) und sechs Blöcke lieferten Alter zwischen 520 und 835 BP. Es ist daher sehr wahrscheinlich, dass diese Felsstürze eine Folge des Basel-Erdbebens von 1356 sind.

Mehrere Höhlen in der Umgebung von Basel und in der Ajoie wurden besucht. Das grösste Potential für paläoseismologische Untersuchungen bietet die Höhle von Milandre. Erste Datierungsversuche mit der U-Th-Methode an

Sinterproben waren allerdings vor allem aufgrund des geringen Urangelhaltes nicht sehr erfolgreich. Es wird daher überlegt, ob zukünftig nicht besser die Radiokarbonmethode zur Datierung in den Jurahöhlen angewendet werden soll.

2.2 Innerschweiz

In den Seen der Innerschweiz (Vierwaldstätter, Baldegger, Lungener und Seelisberger See) wurden mehrere reflexionsseismische Linien gefahren, Kurzkern- und Livingstone-Bohrungen abgeteuft, die Bohrkerne wurden im Labor mit dem Multiscanner untersucht sowie lithologisch beschrieben sowie Material für Radiokarbondatierungen entnommen. In den nördlichen Becken des Vierwaldstätter Sees (Vitznaubecken, Chrütztrichter) konnten anhand der reflexionsseismischen Profile insgesamt fünf subaquatische Rutschereignisse nachgewiesen werden, die sich in den seismischen Profilen als Rutschmassen in verschiedenen Teilen des Sees sowie Turbiditablagerungen im tiefsten Seebecken bemerkbar machen. Das älteste Ereignis erfolgte im späten Pleistozän (c. 13000 v. Chr.). Die jüngsten subaquatischen Rutschungen wurden durch das Innerschweizer Erdbeben von 1601 ausgelöst. Hinweise auf dieses Erdbeben finden sich auch im Seelisberger See (Turbidit) und im Lungener See (subaquatische Rutschung), evtl. auch im Baldegger See. Die Korrelation der verschiedenen Ereignishorizonte in und zwischen den verschiedenen Seebecken ist derzeit im Gange. In situ Deformationsstrukturen, die als Seismite angesprochen werden können, sind bisher aus der Innerschweiz nur vom Baldegger See bekannt geworden.

Paläoseismologische Untersuchungen in Höhlen der Innerschweiz konzentrierten sich vor allem auf das Boniloch. Junge Bewegungen an Bruchflächen sind offensichtlich, auch zerstörte Sinterformationen sind zu beobachten. Allerdings lieferten U-Th-Datierungen für die jüngsten Ereignisse nur relativ ungenaue Alter (jünger 70'000 Jahre). Im Sommer neu entdeckte Höhlenabschnitte zeigten einen reichen Sinterschmuck mit ebenfalls zahlreichen abgebrochenen und wiederangewachsenen Sinterbildungen.

3. Nationale Zusammenarbeit

Nationale Kooperationen bestehen zwischen der Limnogeologie der ETH (Anselmetti, McKenzie) – Nutzung der Laboreinrichtungen und der seismischen Messausrüstung; Geophysik der ETH, Arbeitsgruppe Magnetik (Hirt): Suszeptibilitätsmessungen sowie Messung der remanenten Magnetisierung; Teilchenphysik der ETH Zürich (Bonani): ¹⁴C-Datierungen; Institut für Geotechnik der ETH (Bucher, Ramholt): Kompaktionsberechnungen; Geographisches Institut der Universität Zürich (Haeberli, Keller, Burga, Sampietro, Kägi): Pollenanalysen, ¹⁴C-Probenaufbereitung, Korngrössenanalysen; EAWAG (Sturm): Kullenberg- und Livingstone-Bohrungen; EMPA (Flisch): Röntgenradiographie und Röntgentomographie; Geobotanik der Universität Bern (Ammann, Rachoud): Pollenanalysen; SSKA [Schweiz. Inst. f. Speläologie und Karst] (Jeannin, Eichenberger): Planung und Koordinierung der speläologischen Arbeiten; PSI (Eikenberg): U/Th-Datierungen.

4. Internationale Zusammenarbeit

Geophysikalisches Institut der Universität Louis Pasteur in Strassburg (Meghraoui): Untersuchung aktiver Bruchsysteme; Universität East Anglia in Norwich (Davenport): Paläoseismologie; Universität Franche Comté in Besançon (Magny): Seespiegelschwankungen im Mittelland und im Jura; Universität Paris VIII (Gilli): Paläoseismologie in Höhlen; Heidelberger Akademie der Wissenschaften (Mangini): U-Th- und ESR-Datierungen, Universität Madrid (Rodriguez-Pascua): Seismite in Seeablagerungen, GFZP (Nowaczyk): Paläomagnetik.

5. Bewertung 2001 und Ausblick 2002

Das Jahr 2001 war ein äusserst erfolgreiches Jahr. Neue Untersuchungen entlang der Reinach-Verwerfung führten zu einer weiteren Bestätigung der ko-seismischen Bewegungen entlang dieser Bruchzone während des Holozäns. Auch die neueren Bohrungen aus dem Seewener See waren in Übereinstimmung mit den bereits früher untersuchten Sedimentkernen. Darüber hinaus zeigten die neueren Bohrungen z.T. sehr deutlich Hinweise auf prähistorische Starkbeben. Radiokarbondatierungen im Vierwaldstätter See zusammen mit der seismischen Korrelation lieferten deutliche Hinweise auf nur fünf subaquatische Rutschungs-Ereignisse, die das gesamte nördliche Seebecken erfassten. Darüber hinaus konnte das Innerschweizer Erdbeben von 1601 in mehreren Seen nachgewiesen werden. Neu und besonders erfolgreich war die Beprobung der Felssturzböcke in der Baselregion, die eindeutig darauf hinweist, dass das Basel-Erdbeben von 1356 entlang verschiedener Felsklippen Felsstürze auslöste. Weniger häufig als erwartet sind bisher

in situ Deformationsstrukturen (Seismite) in Innerschweizer Seen aufgetreten. U-Th-Datierungen von Sinterbildungen haben bisher nicht die erhoffte Genauigkeit erzielt, die für paläoseismologische Untersuchungen erforderlich ist. Es wird daher beabsichtigt, junge Sinterbildungen mit der Radiokarbonmethode zu datieren. Für das kommende Jahr wird für die Gebiete der Baselregion und der Innerschweiz ein (erster) Katalog der Starkbeben der letzten 14'000 Jahre erstellt werden können.

6. Referenzen

- [1] Becker, A.; Davenport, C.A.; Haeberli, W.; Burga, C.; Perret, R.; Flisch, A. & Keller, W.A. (2000): The Fulnau landslide and former Lake Seewen in the northern Swiss Jura Mountains.- *Eclogae geol. Helv.*, **93**: 291-305.
- [2] Becker, A.; Davenport, C.A. & Giardini, D. (2002): Palaeoseismicity studies on end-Pleistocene and Holocene lake deposits around Basle, Switzerland.- *Geophys. J. Int.* (in press)
- [3] Meghraoui, M.; Delouis, B.; Ferry, M.; Giardini, D.; Huggenberger, P.; Spottke, I. & Granet, M. (2001): Active normal faulting in the Rhine Graben and paleoseismic identification of the 1356 Basel earthquake.- *Science*, **293**: 2070-2073.



Datum: 20. Februar 2002

Von: M. Zünd

PROJEKTBEGLEITERBEWERTUNG 2001 CO-OPERATIVE RESEARCH ACTIVITIES US-NRC & HSK

Einleitung, allgemeine Bemerkungen

In den USA werden seit Jahren wichtige Projekte im Bereich der schweren Unfallforschung durchgeführt. Durch die vertiefte Analyse schwerer Unfälle können deren Auswirkungen detailliert ermittelt werden und die Möglichkeiten der Minderung der Unfallfolgen durch Massnahmen im Bereich der Infrastruktur und des Unfallmanagements bewertet werden. Die Schweiz beteiligt sich im Rahmen eines Abkommens mit der amerikanischen Sicherheitsbehörde *US-NRC* an einigen dieser Forschungsvorhaben:

- COOPRA (Cooperative Probabilistic Risk Assessment Research): Zusammenarbeit und Austausch von Forschungsergebnissen auf dem Gebiet der Probabilistischen Sicherheitsanalyse.
- CSARP (Cooperative Severe Accident Research Programme): Erforschung von Brennstoffschäden, Spaltproduktfreisetzung und Containmentbelastung und Verbesserung des Codes *MELCOR* zur Simulation der Abläufe bei schwere Unfällen.
- Aging related research: Untersuchung von Alterungseffekten auf Material und Komponenten.
- Safety Research on Deregulation: Untersuchung der Auswirkungen der Markt deregulierung auf die Sicherheit und Zuverlässigkeit von Kernkraftwerken.

Wurden die Projektziele des Jahres 2001 erreicht?

[1] Aging Research

Die Experimente des Jahres 2001 konzentrierten sich auf die durch Materialermüdung ausgelösten Rissbildung in austenitischen Stahlkomponenten von Leichtwasserreaktoren. Dabei wurde der Einfluss von Belastungsraten, Temperatur und Wasserchemie auf die Lebensdauer der Stähle bis zur Ermüdung untersucht.

Weiter wurden Tests zur Rissbildung an Stählen mit mittleren und hohen Fluenzen aus den Halden Phase-1 Bestrahlungsversuchen durchgeführt.

Das Unterprojekt "Materials Reliability Project" beteiligte sich an einem Bestrahlungstests im russischen BOR-60 Reaktor. Die Proben aus diesem Reaktoren werden viel höhere Fluenzen erreichen als dies in den Halden Bestrahlungsexperimenten möglich ist. Die Arbeiten dazu werden 2002 fortgeführt.

[2] CSARP - Severe Accident Research

Im jährlichen CSARP Technical Review Meeting (7. – 9. Mai 2001) mit über 70 Teilnehmern wurden die künftigen Prioritäten in der schweren Unfallforschung diskutiert. Von zusätzlicher Forschung profitieren könnte der Arbeitsbereich "Kühlbarkeit und Stabilisierung der Schmelze". Im Anschluss an das Meeting fand der MELCOR Code Users Workshop statt, in welchem die neue Version MELCOR 1.8.5 präsentiert wurde.

[3] Deregulation Research

Im Jahr 2001 wurde der Bericht "Effects of Deregulation on Safety: Implications Drawn from the Aviation, Rail, and United Kingdom Nuclear Power Industries" (NUREG/CR-6735) veröffentlicht. Zudem wurde im November 2001 in Washington D.C. ein erster Workshop zum Thema Deregulation durchgeführt.

[4] COOPRA - Probabilistic Risk Assessment Research

COOPRA ist ein Forum für die Zusammenarbeit zwischen internationalen Organisationen für den Austausch von PRA/PSA Informationen mit dem Ziel, die Entwicklung und den Einsatz von PRA/PSA Instrumenten und Methoden zu erleichtern.

Momentan bestehen 4 COOPRA-Arbeitsgruppen: 1) Risiken bei Teillast und Stillstand, 2) Feuerschäden an elektrischen Kabeln und Stromkreisen, 3) Risikoinformierte Entscheidungsfindung (RIDeM) und 4) Einfluss von organisatorischen Faktoren auf das Risiko. Weiter gibt es in 2 Spezialisten-Gruppen zu den Themen "Alterung von Kabeln" und "Unsicherheitsanalyse".

Im Jahr 2001 wurden verschiedenen technische Meetings durchgeführt. Die Berichte der Arbeitsgruppen können von den Mitgliedern jeweils auf der COOPRA Homepage eingesehen werden.

In der Arbeitsgruppe RIDeM wurde ein Forschungsbedarf zur Variabilität und Unsicherheit von PSA Studien identifiziert. Die Arbeitsgruppe arbeitet zudem am Aufbau einer Datenbank zu risikoinformierten Entscheidungen.

Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?

Die Beteiligung an diesem US-NRC Programm ist für die HSK in vielerlei Hinsicht von grosser Bedeutung:

- Die HSK profitiert direkt von der Weiterentwicklung des MELCOR Codes und verfügt jederzeit über die neueste Version dieses Codes.
- Die Resultate des Programms "Aging Research" können für das Alterungsmanagement der schweizerischen Kernkraftwerke genutzt werden. Die Betreiber werden über die wichtigsten Erkenntnisse informiert.
- Im Programm COOPRA werden PSA Standards entwickelt, die künftig auch für die Schweiz wichtig sein können.
- Die Beteiligung der HSK an den Arbeitsgruppen der Deregulationsforschung ermöglichen die Ableitung des Forschungsbedarfs für die Schweiz, bzw. die Identifikation der Auswirkungen der Marktliberalisierung auf die nukleare Sicherheit.
- Im Rahmen der Zusammenarbeitsvereinbarung zwischen der HSK und der US-NRC werden auch weitere wichtige Informationen ausgetauscht, wie zum Beispiel zur Neubewertung der Containmentbelastung bei Flugzeugabstürzen.

Ausblick und Verbesserungsvorschläge

Im Herbst 2002 wird die HSK Gastgeberin eines internationalen Workshops zum Thema "Safety Research on Deregulation" sein.

Die Zusammenarbeit in allen Unterprogrammen wird 2002 weitergeführt.

04.03.2002

Marianne Zünd

COOPERATIVE RESEARCH ACTIVITIES US-NRC & HSK JAHRESBERICHT 2001

Cooperative Research Activities US-NRC & HSK

Autor und Koautoren	A. Szukiewicz, A. Malliakos, A. Thadani, E. Hackett, J. Rosenthal, J. Persensky, J. Vora, M. Cunningham, N. Chokshi, N. Siu, R. Zimmerman, S. Basu
beauftragte Institution	US-NRC
Adresse	US Nuclear Regulatory Commission, Washington D.C. 20555-0001, USA
Telefon, E-mail, Internetadresse	ajs2@nrc.gov
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	
Dauer des Projekts (von – bis)	

Zusammenfassung

The United States Nuclear Regulatory Commission (US-NRC) and the Swiss Federal Office of Energy have concluded an agreement under which they cooperate in the research areas of severe accidents, through the Cooperative Severe Accident Research Program (CSARP), probabilistic risk assessment, through its Cooperative Risk Assessment Program (COOPRA), deregulation and aging research programs. This report summarizes the achievements of the year 2001:

Aging Research: The experimental effort in 2001 was focused on the mechanism of fatigue crack initiation in austenitic stainless steel (SS) in LWR environments. The existing fatigue life data indicate that the fatigue lives of austenitic SSs are decreased significantly in low-dissolved oxygen water; the decrease in life is greater at slow strain rates and high temperatures. Crack growth rate tests were conducted on medium-fluence and slow strain rate tests were conducted on high-fluence SSs from Halden Phase-I irradiation, to investigate the effects of material chemistry and irradiation level on the susceptibility of SSs to IASCC. The program participated in the materials reliability project (MRP) in an irradiation in the BOR-60 reactor in Russia. The specimens in the BOR-60 reactor will reach much higher fluences than are achievable in Halden irradiations. Crack growth tests were carried in 2001 out on 1-T fracture toughness (CT) specimens of Alloy 600 in the mill annealing (MA) and MA plus 30% cold weld conditions in high-dissolved oxygen (BWR) and low-dissolved oxygen (PWR like) environments.

Severe Accident Research (CSARP): The annual CSARP Technical Review meeting served a role in prioritizing severe accident issues, reaching agreement and closure of many of these issues, and providing a forum for applying the knowledge base acquired in addressing regulatory and safety issues. The meeting was attended by over 70 participants. The meeting identified melt coolability and stabilization to be an issue that would benefit from additional research addressing remaining uncertainties. The meeting was followed by a MELCOR Code Users Workshop which highlighted the use of the MELCOR severe accident code to a variety of applications.

Deregulation Research: A workshop on Deregulation was held in Washington DC in November 2001. A similar workshop is planned in Europe in October/November 2002 in order to solicit input and involve the international community.

Probabilistic Risk Assessment Research (COOPRA): Currently under COOPRA are the following four working groups: 1) Low Power and Shutdown Risk, 2) Fire-Induced Damage to Electrical Cables and Circuits, 3) Risk-Informed Decision Making RIDeM, and 4) Organizational Influences on Risk. In 2001, several upgrades were made to the COOPRA web site, which continues to be a very valuable source for PRA/PSA information. Several technical meetings were held in 2001. Technical reports were posted in the COOPRA web site and made available to the COOPRA members. The RIDeM working group posted several reports to address research needs and specifications to study the sources of variability and uncertainty in nuclear reactor PSAs. RIDeM activities are under way to develop a database of risk informed decisions.

1. Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

1.1 AGING RESEARCH

Environmentally Assisted Cracking in Light Water Reactors (2001 status)

Task 1: Environmental Effects on Fatigue Crack Initiation.

The experimental effort in 2001 was focused on the mechanism of fatigue crack initiation in austenitic stainless steel (SS) in LWR environments. The existing fatigue life data (S-N data) indicate that the fatigue lives of austenitic SSs are decreased significantly in low-dissolved oxygen (DO) (i.e., <0.01 ppm DO) water; the decrease in life is greater at slow strain rates and high temperatures. Environmental effects on the fatigue lives of these steels in high-DO (0.2 ppm) water appear to be either comparable or, in some cases, smaller than those in low-DO water. The fatigue life in high-DO is very sensitive to low levels of impurities. This activity will continue in 2002.

Task 2: Evaluation of the Causes and Mechanisms of IASCC in BWRs.

In 2001, crack growth rate (CGR) tests were conducted on medium-fluence [fluence $\approx 0.9 \times 10^{21} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$)] and slow strain rate tests (SSRTs) were conducted on high-fluence [fluence $\approx 2.0 \times 10^{21} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$)] SSs from Halden Phase-I irradiation to investigate the effects of material chemistry and irradiation level on the susceptibility of SSs to IASCC. Fracture toughness testing on materials from the Halden Phase-I was completed. The Phase I materials were all base materials. In the Halden Phase II irradiation, which is ongoing and will be completed in FY 2002, the fracture mechanics crack growth rate (CGR) specimens include cast SS, heat affected zone (HAZ) of welds, and sensitized base materials. The SSRT specimens include a range of materials and materials compositions that are expected to show reduced susceptibility to irradiation assisted stress corrosion cracking (IASCC).

Task 3: Evaluation of Causes and Mechanisms of IASCC of Austenitic SS in PWRs.

The primary activity during 2001 was participation with the materials reliability project (MRP) in an irradiation in the BOR-60 reactor in Russia. The specimens in the BOR-60 reactor will reach much higher fluences than are achievable in Halden irradiations and will approximate end-of-life conditions for PWR core structural materials. This activity will continue in 2002.

Task 4: Cracking of Nickel Alloys and Weldment

Crack growth tests were carried in 2001 out on 1-T fracture toughness (CT) specimens of Alloy 600 in the mill annealing (MA) and MA plus 30% cold weld (CW) conditions in high-DO (BWR) and low-DO (PWR like) environments. Both cyclic and constant load histories were examined. The rise times in the cyclic CGR tests ranged from 30-3000 s. During the upcoming year we will be participating in the International Coordination Group- Environmentally Assisted Cracking (ICG-EAC) round robin testing of nickel alloys and weld metals.

1.2 Severe Accident Research (CSARP)

The annual Cooperative Severe Accident Research Program (CSARP) Technical Review meeting was conducted on May 7-9, 2001. This international meeting serves a role in prioritizing severe accident issues, reaching agreement and closure of many of these issues, and providing a forum for applying the knowledge base acquired in addressing regulatory and safety issues. The meeting was attended by over 70 participants from eighteen CSARP Partner countries and from national laboratories, universities, and the NRC. Former Commissioner Rogers began the meeting with an invited presentation on "Infrastructure and Research Issues related to Good Regulation". This was followed by a presentation by Dr. S. Chakraborty of HSK (Switzerland) on "Interactions of Severe Accident Research and the Regulatory Positions."

For current generation reactors, the meeting identified melt coolability and stabilization to be an issue that would benefit from additional research addressing remaining uncertainties. The technical sessions covered two major themes: progress in phenomenological research and experiments, and progress in code development and assessment. The CSARP participants expressed their views on future directions in severe accident research as well as organization of future CSARP meetings. The views reaffirmed that melt coolability and stabilization is an area where future research should be directed. The CSARP meeting this year was followed by a MELCOR Code Users Workshop from May 10-15, 2001,

attended by more than 40 participants from fourteen CSARP countries. This workshop highlighted the use of the MELCOR severe accident code to a variety of applications, and featured the recently released version 1.8.5 of MELCOR. Research activities are currently ongoing in the areas of ex-vessel coolability, ex-vessel fuel coolant interaction (FCI), MELCOR code development and consolidation, and applications of severe accident research results to various regulatory and safety issues. Results of these activities will be provided to CSARP members as they become available.

1.3 DEREGULATION RESEARCH

In 2001 the following report was issued "Effects of Deregulation on Safety: Implications Drawn from the Aviation, Rail, and United Kingdom Nuclear Power Industries" (NUREG/CR-6735), and sent to HSK.

Based in part on this report a workshop on Deregulation was held in Washington DC on November 1 - 2, 2001. A draft of the report from the workshop as provided to Dr. Chakraborty (HSK) for comment. Dr. Chakraborty (HSK) indicated that he would be willing to sponsor a similar workshop in Europe in October/November (2002) in order to solicit input and involve the international community. We are currently pursuing this activity with HSK.

1.4 PROBABILISTIC RISK ASSESSMENT (COOPRA) RESEARCH

During 2001, COOPRA continued to be used as a forum for collaboration between international organizations to improve the sharing of PRA/PSA information and to facilitate the efficient development and use of PRA/PSA tools. Currently under COOPRA are the following four working groups:

- 1) Low Power and Shutdown Risk,
- 2) Fire-Induced Damage to Electrical Cables and Circuits,
- 3) Risk-Informed Decision Making, and
- 4) Organizational Influences on Risk.

Under COOPRA there are also two special interest groups:

- 1) Cable Aging, and 2) Uncertainty Analysis.

In 2001, several upgrades were made to the COOPRA web site, which continues to be a very valuable source for PRA/PSA information. In response to the events of September 11, 2001, the Steering Committee meeting which was originally scheduled for October, 2001, has been postponed. An effort is currently underway to coordinate a new date for the meeting with the COOPRA Steering Committee members.

Several technical meetings were held in 2001. Technical reports were posted in the COOPRA web site and made available to the COOPRA members. One such meeting took place in the USA for the working group on Low Power and Shutdown Risk. The group's status report on Low Power and Shutdown Risk, and a draft report on Low Power and Shutdown, Initiating Events was posted on the web site. The reports were also distributed to working group members on plant operating states.

Another such meeting was held in the United Kingdom for the working group on Risk-Informed Decision Making (RIDeM). Several reports were posted on the web site for the RIDeM working group to address research needs and specifications to study the sources of variability and uncertainty in nuclear reactor PSAs. RIDeM activities are under way to develop a database of risk informed decisions. Two meetings were held for the working group of Fire-Induced Damage to Electrical Cables and Circuits. The first meeting was held in France and the second in USA. This working group is nearing completion of a white paper which among other items states the working group's consensus framework to concisely define the problem area, and to define the electrical cable failures and circuit fault modes that will be analyzed.

A survey was conducted and a proposal was developed for future activities for the working group of Organizational Influences on Risk. The proposal will be one of the discussion items in the next COOPRA Steering Committee meeting.

The special interest group on cable aging is a new group. A web page was created for technical information exchange. A web page was also established for the special interest group on Uncertainty Analysis. This web page was developed for the exchange of information for research and development efforts in the broad area of PSA uncertainty analysis. On this web page, discussions of uncertainties associated with the grouping of PSA model sequences is available to the

COOPRA participants. The discussions are related to frequencies for thermal hydraulic calculations for pressurized thermal shock application.

3. Referenzen

The following reports were developed and issued to HSK.

- [1] ***Irradiation-Assisted Stress Corrosion Cracking of Model Austenitic Stainless Steel Alloys***, NUREG/CR-6687, ANL-00/21, October 2000.
- [2] ***Environmentally Assisted Cracking in Light Water Reactors***, Semiannual Report July 1999 – December 1999, NUREG/CR-4667, Vol. 29, ANL-00/23, November 2000.
- [3] ***Effects of Alloy Chemistry, Cold Work, and Water Chemistry on Corrosion Fatigue and Stress Corrosion Cracking of Nickel Alloys and Welds***, NUREG/CR-6721, ANL-01/07, April 2001.
- [4] ***Environmental Effects on Fatigue Crack Initiation in Piping and Pressure Vessel Steels***, NUREG/CR-6717, ANL-00/27, May 2001.
- [5] ***Environmentally Assisted Cracking in Light Water Reactors***, Semiannual Report January 2000 – June 2000, NUREG/CR-4667, Vol. 30, ANL-01/08, June 2001.
- [6] An ***International Conference on Wire System Aging*** sponsored by the Office of Nuclear Regulatory Research will be held on April 23-25, 2002, in Rockville, Md. U.S.A. (Copy of the announcement and Agenda was provided to S. Chakraborty (HSK).



Datum: 20. Februar 2002

Von: M. Zünd

PROJEKTBEGLEITERBEWERTUNG 2001 PHEBUS FP

Einleitung, allgemeine Bemerkungen

Seit 1997 beteiligt sich die Schweiz mit "in-kind" Forschungsbeiträgen am internationalen Programm PHEBUS FP (Fission Products). Die Modellierung (FP-Tests) von schweren Störfällen am Forschungsreaktor PHEBUS des IPSN (*Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire*) im französischen Cadarache liefert umfassende Daten zum Verhalten von Spaltprodukten im Kern, im Dampferzeuger und im Containment. Die Beteiligung an diesem Projekt verschafft der Schweiz den Zugang zu international validierten Daten, die in die Codes zur Reaktorsicherheit integriert werden können sowie die Ableitung von Massnahmen für Sicherheitskonzepte und -vorkehrungen.

Die Beiträge der Schweiz durch das *Paul Scherrer Institut*, Bereich Nukleare Energien und Sicherheit, konzentrieren sich auf die Untersuchung der Spaltproduktfreisetzung mittels Nachbestrahlungsuntersuchungen und Post-Test-Analysen sowie auf Studien zum Verhalten des Jods im Reaktorsicherheitsbehälter.

Wurden die Projektziele des Jahres 2001 erreicht?

Die Ziele der PSI-Arbeiten im Rahmen der FPT-Tests für das Jahr 2001 waren:

1) Abschluss der Radiolyseexperimente und Erfassung der wesentlichen Parameter für die Jod-Freisetzung

Die Laborexperimente zur Untersuchung der β -Radiolyse des Silberiodids wurden abgeschlossen. Sie waren so konzipiert, dass die Bestrahlungsbedingungen mit denen eines angenommenen Störfalls und der PHEBUS FP Tests vergleichbar waren. Es konnte entgegen der gegenwärtig existierenden Vorstellungen eine direkte radiolytische Zersetzung des Silberiodids nachgewiesen werden.

Den Abschluss der Radiolyseuntersuchungen bildeten Experimente, die zur Interpretation des beobachteten Anstiegs der Jodkonzentration in der Containmentatmosphäre nach der Waschphase der PHEBUS FP Versuche beitragen sollen. In dieser Phase wurden die an den Containmentwänden abgelagerten Aerosole mit der Sumpfsuspension, die im grossen Überschuss Silber enthält, abgespült. Die Experimente zeigen, dass die Verflüchtigung des Jods eine sehr komplexe Funktion der Sumpfzusammensetzung ist: Ansäuerungen und Verunreinigungen durch Luftradiolyse- oder Kabelpyrolyseprodukte können zu einer erhöhten Jod-Freisetzung führen, bzw. das Jod wird in alkalischen wässrigen Lösungen in Form von Silberiodid im Containmentsumpf zurückgehalten.

2) Durchführung von Nachbestrahlungsanalysen zur Charakterisierung des Spaltprodukt- und Brennstoffverhaltens während des Tests FPT-4

Mittels Elektronenstrahl-Mikroanalyse wurden Aerosolcharakterisierungen (Partikelgrösse, -verteilung und -morphologie, chemische Zusammensetzung) an „deposition coupons“ und Filterkartuschen im Rahmen der Post-Test-Analyse des Versuchs FPT4 vorgenommen. Wegen der verspäteten Lieferung von Filter-Leachlösungen kann die für 2001 geplante Bestimmung der Massenbilanzen der abgeschiedenen Brennstoffkomponenten, Spaltprodukte und Strukturmaterialien erst zu Beginn des Jahres 2002 erfolgen.

Die Arbeiten zur weitergehenden Auswertung der Resultate, zur Code-Modellierung und zur Umsetzung der gewonnenen Erkenntnisse aus PHEBUS fließen einerseits in das Forschungsprogramm des Bereichs Nukleare Energie und Sicherheit des PSI ein, werden aber auch in internationalen Validierungs- und Standardisierungsprojekten weiterbearbeitet, beispielsweise im EU-Projekt PHEBEN-2².

Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?

Die experimentellen Daten zur Jodfreisetzung bilden wertvolle Grundlagen für die Definition von Störfallmanagement-Massnahmen für eine wirksamere Verhinderung der Jodfreisetzung. Solche Massnahmen und weitere Schlussfolgerungen sind im Jahr 2002 zwischen der HSK, dem PSI und den KKW zu diskutieren.

Die Bedeutung des Projektes zeigt sich auch an der starken internationalen Vernetzung, die sich durch die Arbeiten entwickelt hat. Das PSI kann die erzielten Resultate in zahlreichen anderen internationalen Projekten und Arbeitsgruppen einbringen und erzielt damit einen wertvollen Rückfluss von Knowhow, von welchem letztlich auch die HSK profitieren kann.

Ausblick und Verbesserungsvorschläge

Das IPSN unter dessen Federführung PHEBUS FP durchgeführt wird, hat im Februar 2002 angekündigt, dass es auf das letzte Experiment FPT-5 verzichten will und das Programm nach Erstellung des Schlussberichts zum Test FPT-3 beenden will. Der Grund dafür ist, dass sich die Experimente sehr komplex und kostenintensiver sind als geplant. Das IPSN sieht sich nicht im Stande, die Zusatzkosten noch länger alleine zu tragen.

Die HSK hat diesen Entscheid vorläufig zur Kenntnis genommen und wird ihn mit allen Betroffenen in nächster Zeit diskutieren.

20.02.2002

Marianne Zünd

² 5. EU-Rahmenprogramm, EURATOM, Nr. FIKS-1999-00009, PHEBEN-2 – Validating of severe accident codes against PHEBUS FP for plant applications

PHEBUS FP

Fission Product Programme

- Schweizer In-Kind Beiträge -

Autor und Koautoren	H.Bruchertseifer, D.Gavillet, S.Güntay, Z.Kopajtic
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut Würenlingen und Villigen
Adresse	CH-5232 Villigen PSI
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 310 2111, horst.bruchertseifer@psi.ch , www.psi.ch
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	H 84.2-72.PRJV
Dauer des Projekts (von – bis)	11.06.1997 – 30.06.2003

Zusammenfassung

Am Forschungsreaktor „PHEBUS“ des „Institute de Protection et de Surete Nucleaire“ (IPSN) in Cadarache/FR werden in langfristigen und sehr aufwendigen Programmen schwere Störfälle modelliert, um Daten für die Sicherheitsanalyse und das Störfallmanagement von Kernkraftwerken (KKW) zu gewinnen. Das PHEBUS FP Programm ist mit einer Serie von 5 Tests (FPT0-4, siehe Übersicht Seite 1) gegenwärtig das weltweit bedeutendste internationale Vorhaben auf diesem Forschungsgebiet.

Die Schweiz ist seit 1997 beteiligt und leistet In-Kind Forschungsbeiträge, die von den Labors für Materialverhalten(LWV) und Thermohydraulik(LTH) des Bereichs Nukleare Energie und Sicherheit(NES) im Paul Scherrer Instituts(PSI) erbracht werden. Sie konzentrieren sich auf die Verfolgung des Ablaufs der Spaltproduktfreisetzung durch Nachbestrahlungsuntersuchungen(NBU) und Post-Test-Analysen(PTA) sowie auf das Studium des Verhaltens des Iods, eines der wichtigsten Kernreaktionsprodukte, im Reaktorsicherheitsbehälter, dem Containment.

Im LWV wurden mittels Elektronenstrahl-Mikroanalyse Aerosolcharakterisierungen (Partikelgrösse, -verteilung und -morphologie, chemische Zusammensetzung) an „deposition coupons“ und Filterkartuschen im Rahmen der PTA des Versuchs FPT4 vorgenommen, die Massenbilanz der abgeschiedenen Brennstoffkomponenten, Spaltprodukte und Strukturmaterialien soll demnächst bestimmt werden.

Die Arbeiten des LTH zum Projekt „Stabilität von Silber-Iodid(AgI)“ im Sumpf des Reaktorcontainments sind abgeschlossen. In realitätsnahen Laborversuchen wurden die Werte der Verflüchtigung des Iods gemessen. Sie erwies sich als äusserst komplexe Funktion der Sumpfzusammensetzung. Danach wird das Iod in alkalischen wässrigen Lösungen zum überwiegenden Teil zurückgehalten. Eine Ansäuerung bzw. Verunreinigungen, verursacht durch Luftradiolyse- oder Kabelpyrolyseprodukte, können zu erhöhten Iod-Freisetzungen führen. Die Ergebnisse wurden in einem Bericht zusammengefasst und stehen in den Arbeitsgruppen des PHEBUS FP Programms zur Diskussion. Im ersten Halbjahr des Jahres 2002, nach Auswertung aller Kommentare, wird der Projektabschlussbericht fertiggestellt.

Eine weitergehende Auswertung, die Code-Modellierung und die Umsetzung der gewonnenen Erkenntnisse sind Bestandteil des Forschungsprogramms des Bereichs Nukleare Energie und Sicherheit. Das PSI bringt die in den PHEBUS-Versuchen erhaltenen Daten in die internationalen Vorhaben zur Validierung und zur Standardisierung ein und beteiligt sich aktiv an den Projekten PHEBUS-2 und ISP46.

Ziel eines PSI-Projekts (ICHEMM) des 5.EURATOM-Rahmenprogramms ist es, aufbauend auf den bisher erhaltenen Ergebnissen, Massnahmen abzuleiten, die zur wesentlichen Verbesserung der Iodrückhaltung während eines Störfalls führen können.

Die Nachbestrahlungsuntersuchungen und Post-Test-Analysen sowie die Datenauswertung der Versuche FPT2 und FPT4 werden im Jahr 2002 fortgesetzt. Parallel dazu laufen die Vorbereitungen für den letzten Versuch des Programms, FPT3.

1. Projektziele

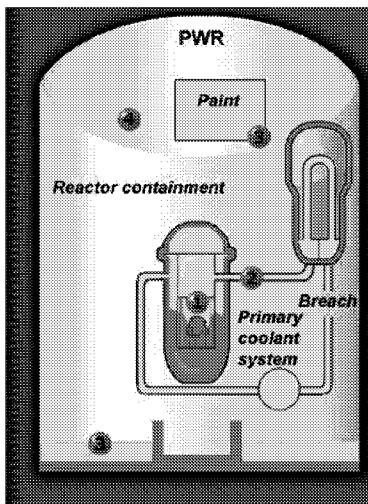
1.1 Einführung: PHEBUS FP Programm und Schweizer In-Kind Beiträge (PSI Projekte)

In Experimenten am Kernreaktor „PHEBUS“ in Cadarache/Frankreich werden Daten zur realitätsnahen Modellierung von Störfallabläufen erhalten (Schema der Anlage und Kurzfassung der Versuchsparameter: siehe nachfolgende Übersicht). Dabei wird der Verlauf der Spaltproduktfreisetzung verfolgt für den Fall, dass es durch Versagen der Kühlung des Reaktorkerns zum Schmelzen des Brennstoffs kommt. Das Projekt ist Bestandteil der international langfristig koordinierten Arbeiten zur Qualifizierung der Sicherheitsanalysen und des Störfall-Managements von Kernkraftwerken und ist integriert in die Forschung des Bereiches Nukleare Energie und Sicherheit des Paul Scherrer Instituts (NES/PSI). Das PHEBUS FP Programm ist gegenwärtig das bedeutendste und umfassendste Forschungsvorhaben zur Reaktorsicherheit. Die Finanzierung wird im Wesentlichen getragen durch die französischen Gastgeber IPSN und Électricité de France (EdF) sowie die Europäische Union. Projektorientierte Beiträge leisten die USA (NRC), Japan (NUPEC, JAERI), Korea (KAERI), Kanada (COG) und die Schweiz. Die Beteiligung der Schweiz am PHEBUS FP Programm wurde für den Zeitraum von 1997 bis 2003 vereinbart [1,2].

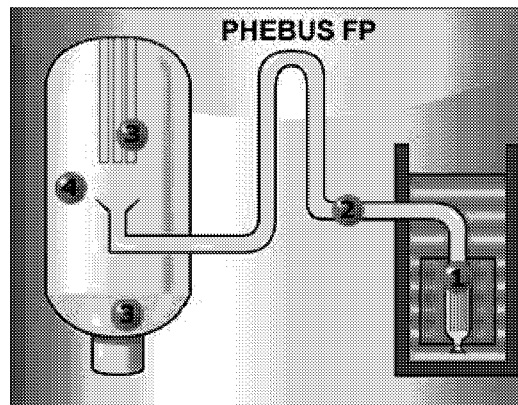
Übersicht 1: PHEBUS FP Programm

Störfall-Modellierung im Containment eines Kernreaktors

- Anlage und Parameter der Experimente -




Druckwasserreaktor(PWR)-Prinzipschema



PHEBUS FP - Schema der Versuchsanlage

Modelliert werden

- ☉ Schmelze des Brennstabbandels im Core
- ☘ Absetzverhalten der Verdampfungsprodukte im Dampferzeuger
- ⌋ Reaktionen mit der Farbe und dem Sumpf im Containment
- ⊙ Reaktionen in der Gasatmosphäre des Containments

Versuch ⁵	Brennstoff	Versuchsparameter	Containment 	Bemerkungen	Datum
FPT0	Frisch ¹ 1 Ag/In/Cd- Stab	Coreshmelze und Spaltproduktfreisetzung unter Dampf	Aerosolabscheidung, Iod-Radiochemie mit Sumpf-pH5	(¹) 9 d vorbestrahlt Sumpftemp.: 90°C	02.12.1993
FPT1	BR3 24GWd/tU ² 1 Ag/In/Cd- Stab	analog FPT0, jedoch mit bestrahltem Brennstoff	analog FPT0	(²) 6 d vorbestrahlt	26.07.1996
FPT2	BR3 32GWd/tU ³ 1 Ag/In/Cd- Stab	analog FPT1, jedoch mit reduzierten Dampfgehalt	Sumpf: pH 9	(³) siehe FPT0 Sumpftemp.: 120°C	12.10.2000
FPT4	EDF- Brennstoff 32GWd/tU ⁴	Freisetzung schwerflüchtiger Spaltprodukte and Actiniden	Nur Filter über Core, kein Dampferzeuger+Contain- ment	(⁴) nicht vorbestrahlt	22.07.1999
FPT3	BR3 24GWd/tU ² 1 B4C-Stab	analog FPT2	analog FPT2	(²) 6 d vorbestrahlt	geplant 2003
(⁵) der ursprünglich vorgesehene 6.Versuch (FPT5) wird voraussichtlich nicht mehr im Rahmen des PHEBUS FP Programms durchgeführt.					

1.1. Ziele des PHEBUS FP Programms für das Jahr 2001

Die Datenauswertung und die Fortsetzung der Labor-Untersuchungen zu den in den Jahren 1999 (FPT4) und 2000 (FPT2) durchgeführten Kernschmelz-Experimente waren für 2001 und sind auch bis 2002 die Arbeitsschwerpunkte.

Nach der Abklingphase der Aktivierungsprodukte und des Spaltproduktgemisches waren die Probenahme und –analysen bzw. Nachbestrahlungsuntersuchungen (NBU) das Hauptziel der Arbeit im Rahmen des Programms (Beginn der Post-Test-Analysen/PTA für FPT4, Konditionierung und Versand der zu analysierenden Proben an die Programmpartner ausserhalb von Cadarache für FPT2). Von besonderem Interesse waren Projekte zur Unterstützung der Interpretation der Versuchsergebnisse.

Die Auswertung der ersten PHEBUS-Experimente (FPT0 und FPT1) sollte im wesentlichen abgeschlossen und die Vorbereitungen zum „Borcarbidtest“ (FPT3, geplant für das Jahr 2003) fortgesetzt werden.

1.2. Schweizer In-Kind Beiträge

Die Schweiz ist direkt am PHEBUS FP Programm mit Forschungsprojekten des PSI beteiligt.

Der Bereich Nukleare Energie und Sicherheit (NES) kann sowohl auf langjährigen Erfahrungen auf den Gebieten der Modellierung und experimentellen Untersuchung des Ablaufs schwerer Störfälle als auch der Radiochemie and Analyse der Spaltprodukte und Actiniden zurückgreifen. Für Nachbestrahlungsuntersuchungen und Modellexperimente mit Bestrahlungen von hohen Dosisleistungen stehen mit modernen Geräten und Apparaturen ausgerüstete Hotlabors zur Verfügung. Der Kombination von Laborexperimenten mit der Verifizierung und Entwicklung von Codes zur Reaktorsicherheit kommt bei der Bearbeitung und Aufklärung komplexer Vorgänge, wie sie für Störfallszenarien typisch sind, besondere Bedeutung zu.

Ziele für das Jahr 2001 waren

1. der Abschluss der Experimente zum Einfluss der Spaltprodukt-Strahlung auf die Stabilität von Silberiodid(AgI) im Reaktorsumpf und die Zusammenfassung der Daten der Labor-experimente zu einem Ergebnisbericht;
2. Diskussion der PSI-Forschungsergebnisse im Zusammenhang mit den Messdaten des PHEBUS-Tests FPT2; Versuch einer Interpretation der nach der Waschphase des Tests FPT1 beobachteten erhöhten Iod-Freisetzung in die Containment-Atmosphäre (Task No.3: **Radiolytische Stabilität von AgI**);
3. Aerosolanalysen von Filterkartuschen und Coupons im Rahmen des Programms der Nachbestrahlungsuntersuchungen und –analysen zum PHEBUS-Test FPT4 (Task No.5: **Post-Test-Analysen für FPT4**).

2. Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

2.1 PHEBUS FP Programm

a) Kernschmelzverhalten der Brennstabbündel der Versuche FPT0/1/2

Durch den Abschluss der radiographischen Ausmessung des Brennstabbündels des Versuchs FPT2 (Oktober 2000) konnte ein erster Vergleich im Schmelzverhalten gezogen werden.

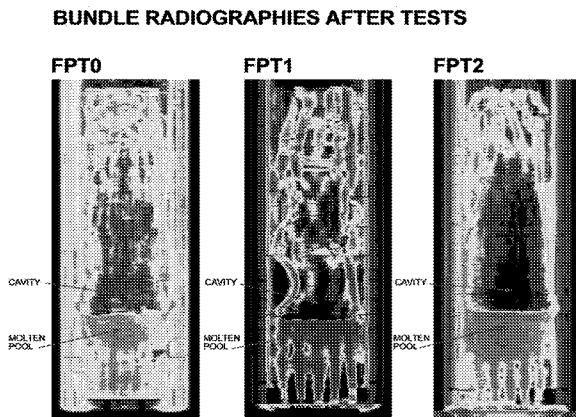


Fig.1: Vergleich der Radiographien der Schmelzrückstände der Brennstabbündel nach den Versuchen, die nach differenzierten Versuchsprogrammen, mit Brennstoff unterschiedlichen Abbrands, bei verschiedenen Dampfkonzentrationen sowie mit und ohne Borsäurezusatz (siehe Übersicht auf Seite 1) durchgeführt wurden [3].

Bemerkenswert sind die Unterschiede in der Verteilung der Brennstabbrückstände, der Ausbildung der Hohlräume und des Randverhalten der Brennstoffschmelze im Core. Die Korrelationen zu der Spaltproduktfreisetzung und den unterschiedlichen Versuchsparametern sind Gegenstand der Datenauswertung, die gegenwärtig in zwei PHEBUS-Arbeitsgruppen (Bundle Degradation Interpretation Circle/BIC und Circuit and Aerosol Interpretation Circle/CACIC) vorgenommen wird.

b) Iodverhalten im Containment während der Versuche FPT1/2

Von besonderem Interesse waren die Ergebnisse der PHEBUS Versuche bezüglich der Freisetzung und des Verhaltens des Iods, das als potentielle Hauptgefahrenquelle während eines Störfalls angesehen wird, für den Fall, dass es von der Containmentatmosphäre in die Umwelt gelangt.

Beide Tests wurden mit Silber/Indium/Cadmium-Kontrollstäben ausgeführt. Das mit dem Iod freigesetzte Silber liegt im grossen Überschuss vor und sollte entsprechend seiner Affinität zu Iod, dieses in unlösliches Silberiodid umwandeln, aus der Gasphase entfernen und im Sumpf fixieren.

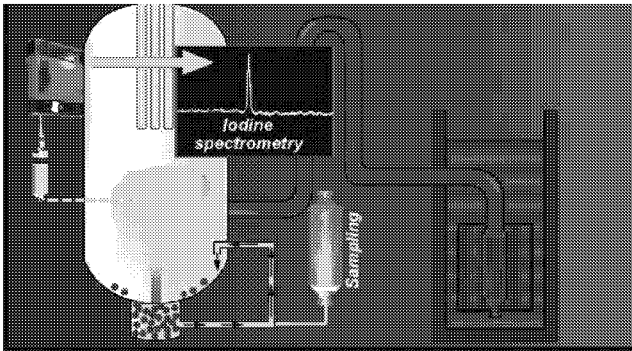
Beobachtet wurde, dass es zu grossen Teilen nach der Freisetzung als elementares Iod durch den simulierten Dampferzeuger transportiert wurde. In der Containmentatmosphäre verblieb nach dem der Prozedur des Waschen des Containments nur ein geringer Teil. Während bei einem alkalischen Sumpf der Iodgehalt schnell auf 0.01% des Gesamtinventars fällt, bleibt bei Verwendung eines sauren Sumpfs der Iodgehalt des Containmentgases konstant bei 0.1% bis zum Testabbruch. Die Aufklärung dieses Tatbestandes und die Ableitung möglicher Konsequenzen waren der Ausgangspunkt für die Zielstellung der PSI-In-Kind Forschung „Untersuchung der Radiolyse von Silberiodid“ (siehe nachfolgendes Kapitel).

Die Ergebnisse der Versuche FPT1 [4] und FPT2 [5] zum Iodverhalten im Containment sind in nachfolgender Übersicht zusammengefasst.

Übersicht 2: PHEBUS FP Ergebnisse [3-5]

Iodverhalten im Containment eines Druckwasserreaktors (Spaltproduktfreisetzung aus Core-Schmelzen mit Silber/Indium/Cadmium-Kontrollstäben)

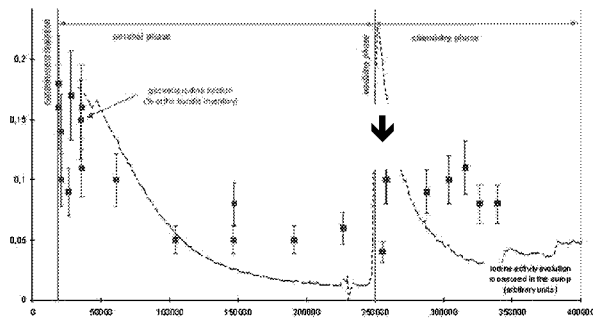
Versuchsanlage: zur Verfolgung des Iodverhaltens im Containment während der PHEBUS FP Tests



Während der PHEBUS FP Versuche wird das bei der Brennstoffschmelze im Core (rechts im Bild) freigesetzte Iod in das Containment (links) geleitet und γ -spektrometrisch erfasst.
Dann wird das Containment verschlossen und mit dem Sumpfwasser abgelagerte Aerosole abgespült (Wasch-Phase)

Messungen der Iodfreisetzung in den PHEBUS-Versuchen FPT1 und FPT2

(Ordinate: Iodkonzentration in der Containmentatmosphäre in % des Brennstoffinventars / Abszisse: Zeit von Testbeginn in sec.)



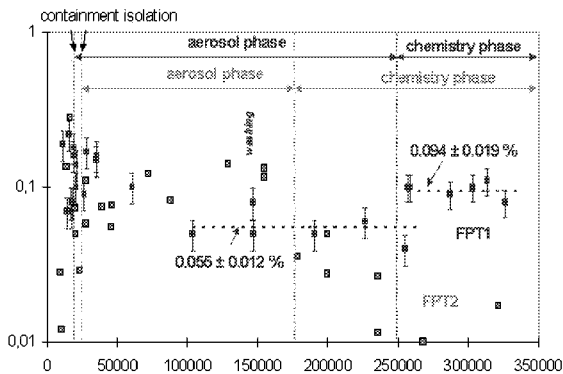
Versuch FPT1

- Verzögerte Zunahme des Iodgehalts der Gasatmosphäre des Containments (↓) nach der Waschphase auf ca. das Doppelte,
- danach Iodgehalt nahezu konstant (0,1% des Brennstoffinventars).

Phasen der Experimente:

1. Start der „aerosol phase“ durch Unterbrechung der Gaszufuhr, d.h. Isolierung des Containments
2. Abwaschen der abgesetzten Aerosole (washing phase) und anschließend
3. weitere Gasphasenmessungen (chemistry phase)

Verlauf der Iodkonzentration in der Gasphase des Containments bei einem Sumpf mit pH=5



Versuch FPT2 [3]

- Geringerer Iodgehalt der Gasatmosphäre zu Beginn der Isolierung des Containments (ca 0.01%)
- Zunahme während der Aerosolphase auf ca 0.1% gegenüber einer Abnahme im Versuch FPT1
- Abnahme nach der Waschphase auf bis auf, ca. 1/10 von FPT1 zu Versuchsabschluss

Anmerkungen

- FPT1: Messpunkte mit Fehlerangabe [4]
- FPT2: Messpunkte (vorläufig) [3]
- Phasen der Experimente s.o.

Vergleich des Verlaufs der Iodkonzentration in der Gasphase des Containments bei pH-Werten des Sumpfes von 5 und 9 für die PHEBUS-Versuche FPT1 bzw. FPT2

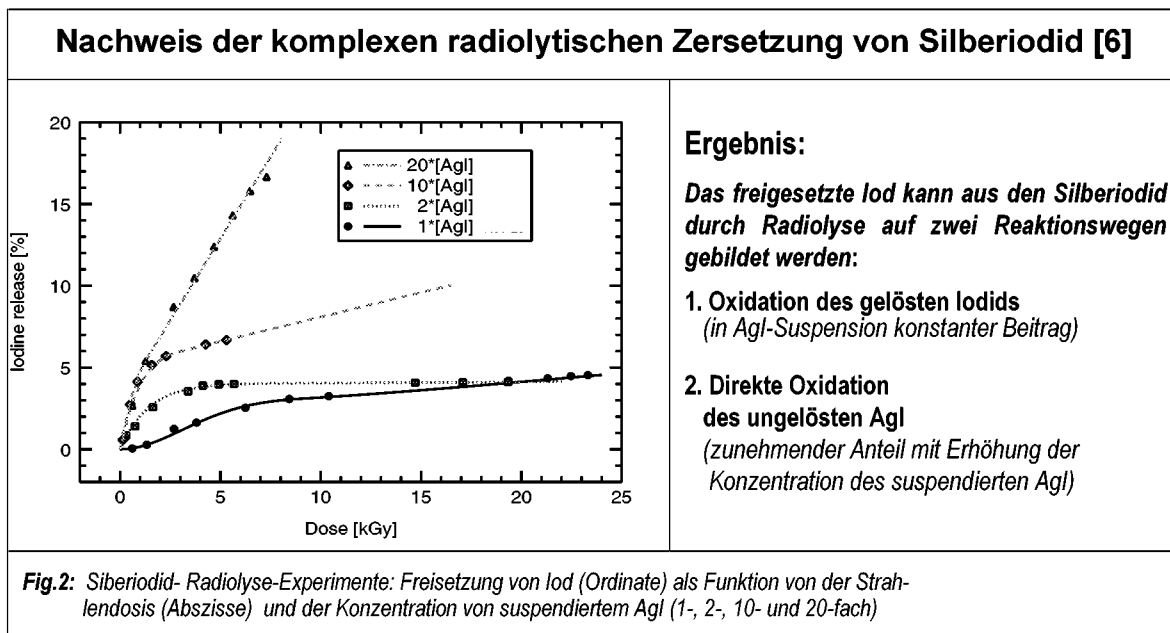
2.1 PSI-Projekte

a) Radiolyse des Silberiodids im Sumpf des Reaktorcontainments (LTH)

Die Laborexperimente zur Untersuchung der β -Radiolyse des Silberiodids wurden in der Berichtsperiode abgeschlossen. Sie waren so konzipiert, dass die Bestrahlungsbedingungen mit denen eines angenommenen Störfalls und der PHEBUS FP Tests vergleichbar waren. Dabei wurde eine neue, in Modellversuchen erstmals angewandte Technik der in-situ Bestrahlung, eingesetzt. Ein umfassendes Programm von Nachbestrahlungsanalysen ermöglichte auch Aussagen zur Speziation des Iods in den wässrigen Silberiodidsuspensionen. Eine spezielle Apparatur, eingebaut in eine Hotzelle wurde, ebenso wie die analytischen Verfahren zur Iodanalyse im Verlaufe des Projekts neu entwickelt [6].

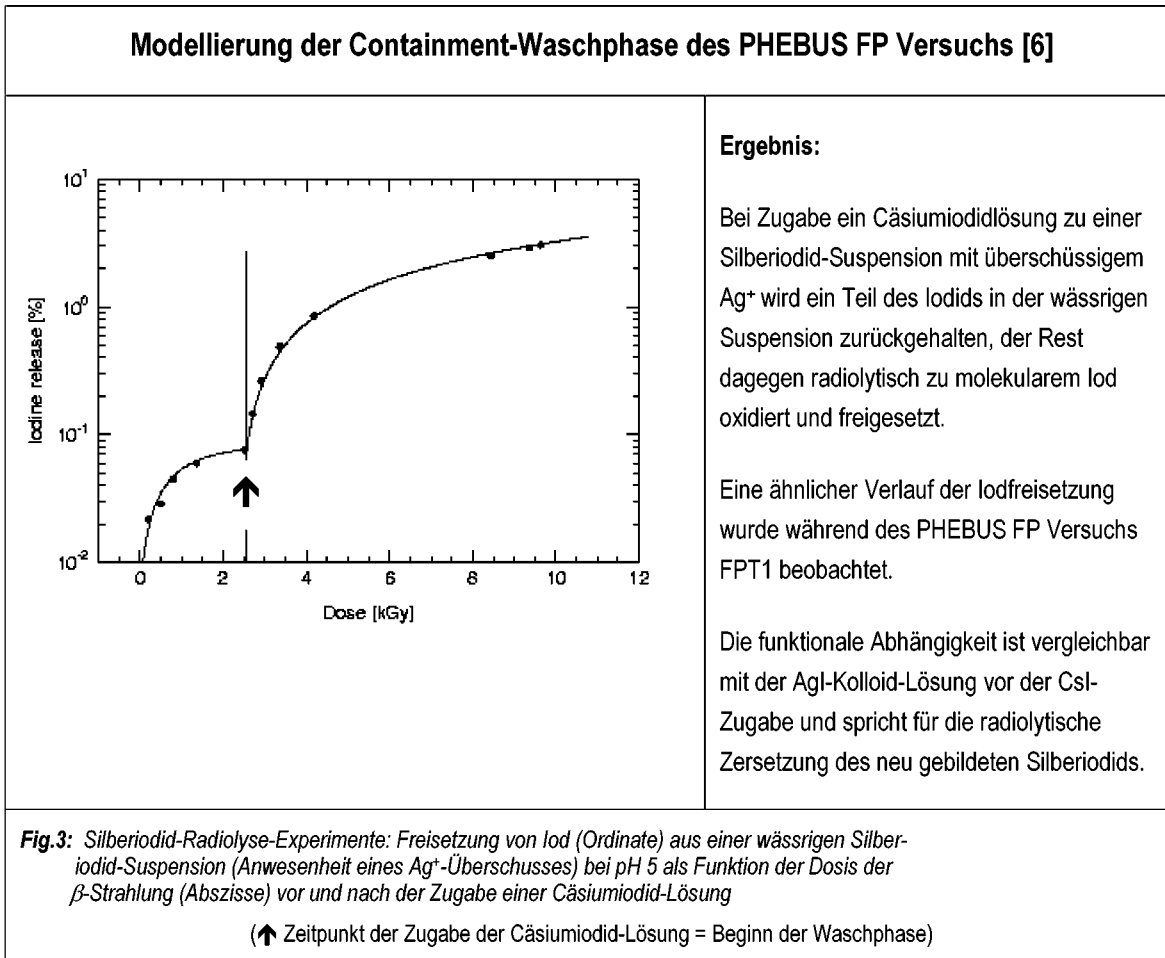
Im Ergebnis der Experimente konnte entgegen der gegenwärtig existierenden Vorstellungen eine direkte radiolytische Zersetzung des Silberiodids nachgewiesen werden.

Bisher wurde angenommen, dass nur das durch Dissoziation des AgI (sehr geringe Löslichkeit!) freigesetzte Iodid radiolytisch zu molekularem Iod oxidiert und so in die Gasphase gelangen kann. Das würde aber bedeuten, dass die Menge des freigesetzten Iods unabhängig von der Konzentration des suspendierten Silberiodids wäre. Unsere in-situ Bestrahlungen, in denen die Konzentration des ungelösten Silberiodids verdoppelt, verzehnfacht und um das 20-fache erhöht wurde, ergaben gleichlaufende Erhöhungen des Iods in der Gasphase. Sie wurden unter sonst gleichen Reaktionsbedingungen bei pH 5 der wässrigen Suspension durchgeführt und belegen den Beitrag einer direkten radiolytischen Zersetzung des Silberiodids zur Verflüchtigung des Iods.



Den Abschluss der Untersuchungen zur Radiolyse des Silberiodids bildeten Experimente, die zur Interpretation der Messungen des beobachteten Anstiegs der Iodkonzentration in der Containmentatmosphäre nach der Waschphase der PHEBUS FP Versuche beitragen sollten. In dieser Phase wurden die an den Containmentwänden abgelagerten Aerosole (darunter laut Annahme Cäsiumiodid) mit der Sumpfsuspension, die im grossen Überschuss Silber enthält, abgespült.

Zu einer Silberiodid-Suspension mit einem Überschuss an freien gelösten Silberkationen wurde eine Cäsiumiodlösung gegeben. Die Ergebnisse sind in Fig.3 dargestellt und zeigen –wie in den PHEBUS Tests–, dass trotz des im Überschuss vorhandenen Silbers eine Erhöhung der Iodfreisetzung eintritt.



Im alkalischen wässrigen Lösungen bestätigten die Ergebnisse unserer Experimente die dem Silber zugeschriebene Funktion der „vollständigen“ Fixierung im Sumpf in Form von Silberiodid. Sie kann jedoch mit abnehmendem pH-Wert drastisch zunehmen.

Nicht richtig ist es, die Freisetzung durch Radiolyse nur der radiolytischen Oxidation des durch Dissoziation freigewordenen Iodids zuzuschreiben. Eine direkte Radiolyse muss berücksichtigt werden, ebenso wie die Form, in der das Silberiodid in der wässrigen Suspension vorliegt. Die Ausbildung grosser Oberflächen, wie sie für frisch gebildete feindisperse Kolloide typisch sind, erhöhen den Beitrag einer direkten Radiolyse des AgI.

Wie bereits im Vorjahresbericht aufgezeigt, können Salpeter- und Salzsäure bzw. ihre Salze, bekannte Luftradiolyse- oder Kabelpyrolyseprodukte nicht nur durch direkte Ansäuerung der Sumpfsuspension sondern auch durch Umsetzung der Nitrat- und Chloridionen entscheidend zu Iod-Freisetzung aus einem Sumpf, der Silber im grossen Überschuss enthält, beitragen.

b) PTA für FPT4 und FPT2 (LWV)

Elektronenstrahl-Mikroanalyse (EPMA) von Aerosolen aus Filterkartuschen im Rahmen des Programms der Nachbestrahlungsuntersuchungen zum PHEBUS-Test FPT4 (Task No.5: FPT4: Post Test Analysen)

Im LWV wurden mittels Elektronenstrahl-Mikroanalyse Aerosolcharakterisierungen (Partikel-grösse, -verteilung und -morphologie, chemische Zusammensetzung) an „deposition coupons“ und Filterkartuschen im Rahmen der PTA des Versuchs FPT4 vorgenommen [7]. Die Massenbilanz der abgeschiedenen Brennstoffkomponenten, Spaltprodukte und Strukturmaterialien sollte ebenfalls 2001 bestimmt werden. Wegen der verspäteten Lieferung von Filter-Leachlösungen (ca. 5-6 Monate) können die Analysen erst anfangs 2002 gemacht werden.

Ziele des PHEBUS FPT4 Tests sind :

- Untersuchung der Freisetzung der schwerflüchtigen Spaltprodukte und der Transurane aus dem Brennstoff im Core bei hohen Temperaturen (2700°K),
- Charakterisierung des unterschiedlichen Elementverhaltens zwischen festem und geschmolzenem Brennstoff bei den Transfervorgängen und der Freisetzung

Das aus dem Brennstoff freigesetzte Material wurde in einer Batterie von 5 aufeinanderfolgenden Filtern, die sich dicht an der Quelle der Emission befinden und in einem Rückhaltefilter, eingesetzt für den Fall für Überbelastung eines der vorgeschalteten Filter, aufgefangen.

Die Filter waren bei Temperaturen, die axial von maximal 450°C bis zu 150°C variierten, im Einsatz. Alle Radionuklide, mit Ausnahme der Edelgase, werden dabei als Feststoff in den oberen Lagen der Filter abgelagert.

Die Hauptziele der FPT4-PTA waren:

- Ermittlung der Massenbilanz für die in jedem Filter abgelagerten Nuklide, um die Freisetzungsraten für die verschiedenen Zeitetappen des Versuchs zu bestimmen (1. Priorität)
- Versuch der Bestimmung der chemischen Speziation einzelner Komponenten des keramischen Materials
- Einbringen von Informationen über die Form und der Korngrößenverteilung der Aerosole, ihre Zusammensetzung und möglichst über die Speziesverteilung in den Aerosolpartikeln

Dieser Report enthält eine Synthese der mikroanalytischen Prüfung (EPMA) der Proben von abgeschiedenen Aerosolen (Teilchengrößenverteilung, Morphologie, Zusammensetzung der Teilchen).

Beschreibung der Proben

Drei verschiedene Proben, entnommen von unterschiedlichen Positionen des Abgaskanals, wurden zur Untersuchung am PSI vom IPSN vorbereitet. Ihre Kennzeichnung ist in Tabelle 1 angeführt.

Table 1: Probenkennzeichnung

Samples	PTA Kodierung
Abscheide-Coupon Nr. 2 von Filter F3	4A0-D32
Abscheide-Coupon Nr. 2 von Filter F4	4A0-D42
Obere Plenum-Sektion	Plenum n°3

Die Abscheide-Coupons stammen von Filter F3 (Freisetzung vom festen Brennstoffgemisch bis zu Temperaturen von 2430 °C) and F4 (Freisetzung nach dem Schmelzen). Die Abscheide-Coupons wurden aus INCONEL 600 Platten gefertigt. „The plenum“ war ein keramischer Zirkoniumdioxid-Zylinder, durch den das Abgas geleitet wurde.

Probenpräparation

PLENUM

Das zylindrische Filtermaterial (Fig. 4) wurde in einem Plastiksack in die Hotzelle gebracht und mit Hammerschlägen gebrochen, zunächst in grosse, dann in kleinere Stücke.

Die grossen Stücke wiesen eine heterogene Bedeckung mit einer schwarzen und grauen Aerosolschicht auf. Sie unterscheiden sich in der Filmdichte. Manche Teile zeigten schwarze schmale Streifen von vermutlich hoher Abscheidkonzentration. Die kleinen Stücke wurden auf ein Papierblatt gelegt. Sieben Stück von vermutlich unterschiedlicher Dichte wurden für die Untersuchung ausgewählt. Eine Kontamination wurde soweit wie möglich

vermieden, kann aber nicht ausgeschlossen werden, da die Auswahl in einer Brennstoff-Hotzelle durchgeführt wurde. Q-tab- und Pin-Drucke sowie eine Zerlegung der Plenumproben in Abschnitten wurde vorgenommen.

COUPONS D32(F3), D42(F4)

Von jeder Coupon-Platte (Fig. 5) wurde auf gleicher Weise wie für das Plenum ein Q-tab-Druck angefertigt.

Elektronenstrahl-Mikroanalyse (EPMA)

Die EPMA – Prüfung wurde mit einem abgeschirmten CAMECA CAMEBAX SXR Gerät (Wellenlängen dispersives Spectrometer (WDS)). An verschiedenen interessant erscheinenden Positionen wurden Sekundär-Elektronen Bilder unterschiedlicher Vergrößerungen angefertigt und bei einer typischen Vergrößerung von 2000 x für verschiedene Spaltprodukte und Elemente der Strukturmaterialien qualitative Elementverteilung gemacht (scanning über die Oberflächen von ca. 50 µm x 50 µm). Die Intensitätsskala für die Konzentration einzelner Elemente wurde vorher geeicht, so dass eine semi-quantitative Korrelation zwischen einzelnen Elementen durch den Vergleich relevanter X-ray Spektren gemacht werden kann.

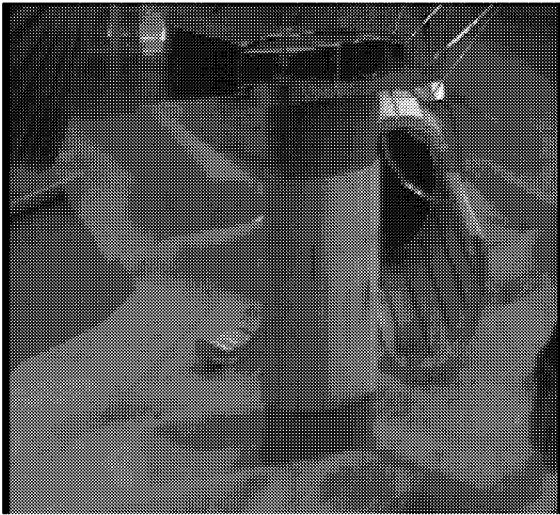


Fig. 4; Oberes Plenum, $\varnothing=76$ mm, $h=100$ mm

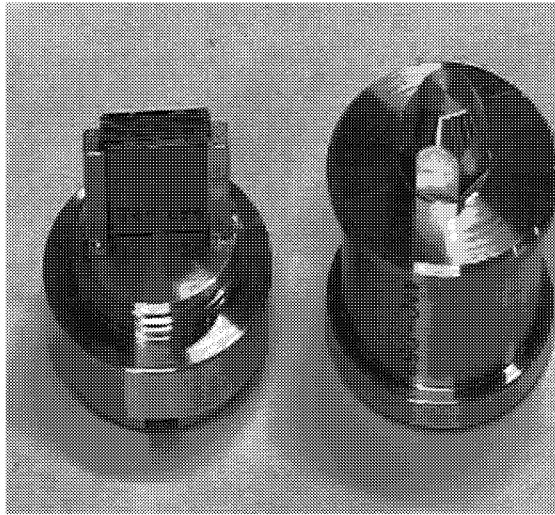


Fig. 5; Abscheide-Coupon, 20x20 mm

Der Ursprung von einzelnen Elementen in kleinen Konzentrationen kann oft nicht gänzlich erklärt werden, da eine Kontamination während der Probenvorbereitung nicht ausgeschlossen werden kann (insbesondere für Elemente Fe, Ni, Si, Al, U, Cl). Dies trifft insbesondere dann zu, wenn die Probe nicht dekontaminiert werden kann. Ein Auftreten von Elementen des Probenhalters bzw. des Grundmaterials des Filters (Hasteloy, Inconel, Stahl, Zirkon, Aluminium) kann die Interpretation der X-Ray Spektren erschweren.

ANALYSEN DES PLENUMS

Die an den Q-Tabs anhaftenden Partikel weisen eine Teilchengrößenverteilung im Bereich zwischen sub-mikro und ca. 7 µm (vgl. Fig. 6). Die grösseren Partikel in diesem Bereich erscheinen oft als Agglomerate, die teilweise aus Zirkon des Filtermaterials bestehen. Als Hauptkomponenten findet man jedoch Sn und Te und in kleineren Mengen Cs und Mo. Cs/Mo und Sn/Te findet man meist paarweise in gleichen Partikeln.

Die gleiche Teilchengrößenverteilung wie bei den Q-Tabs findet man auch bei den Pin-Prints, obwohl hier die Hauptmenge in einem etwas tieferen Bereich liegt (vgl. Fig. 7, sub-mikro bis 3 µm). Zwei Pin-Prints bzw. entsprechenden Plenumstücke weisen die gleiche Zusammensetzung, die bereits bei den Q-Tabs gefunden wurde. Bei einem Pin-Print wurde eindeutig höherer Cs/Mo-Gehalt festgestellt. In einem solchen Fall mit höheren Spaltprodukt-Konzentrationen

findet man in kleineren Mengen auch die Elemente Ag, Pd, Ba, U und I. In Cs/Mo-reichen Partikeln findet man oft gleichzeitig auch Sn und Te (vgl. Fig. 8 und Fig. 9).

Die Grenzfläche zwischen dem Plenum Filter und darauf anhaftenden Aerosol Film kann infolge unterschiedlicher Materialdichten eindeutig auf der Schnittdarstellung beobachtet werden. Die Partikel, die näher an den Grenzflächen liegen scheinen etwas grösser zu sein als diejenigen, welchen bei den Q-Tabs und Pin-Prints gefunden wurden (4 – 10 μm). Mitten drin und etwas weiter von der Grenzfläche entfernt findet man auch sehr kleine Partikel. Hier muss allerdings der Einfluss von Schleifen und der unterschiedlichen Querschnittdarstellung in Betracht gezogen werden. Es muss angenommen werden, dass die Teilchenagglomerate, infolge der Querschnittdarstellung und weil die Zwischenräume zwischen benachbarten Teilchen ebenfalls aufgefüllt sind, nicht klar erkennbar sind und die Teilchengrösse deswegen etwas überschätzt werden könnten. Sn/Te als Hauptkomponenten wurden auch hier bestätigt. Der Gehalt an Cs/Mo scheint hier etwas kleiner zu sein, als vorher bei anderen Methoden gefunden wurde. U, Ag und Pd wurden nur in Spuren als Verunreinigungen gefunden. Da für das Brennstoff-Material nur geringe Freisetzung zu erwarten war, findet man erwartungsgemäss nur wenig Uran. Der Ag-Gehalt ist wie erwartet klein, da im FPT4 Test kein „SIC control rod“ Material vorhanden war.

ANALYSEN VON COUPONS D32 UND D42

Die Q-Tabs von der Coupon Platte D42 weisen nur an einigen Positionen Ablagerungen von Aerosol Partikeln (vgl. Fig. 11). Aus diesem Grund ist die Charakterisierung für die ganze Probe möglicherweise nicht ganz repräsentativ. Cs/Mo findet man im Vergleich zu den Sn/Te generell in grösseren Konzentrationen (vgl. Fig. 14 und Fig. 15). Die Konzentration variiert, wie bereits bei Untersuchungen von Plenum gesehen wurde, je nach Position in der Probe. Mo ist stärker verbunden mit Cs als mit Ni/Fe/Cr. Diese Tatsache schliesst den Ursprung aus der Couponplatte aus, obwohl eine Wechselwirkung zwischen Cs und der Platte nicht völlig ausgeschlossen werden kann.

Der Q-Tab vom Coupon D32 war wie erwartet mit wesentlich mehr Partikeln von der Couponoberfläche bedeckt. Die starke Beladung mit Partikeln führte zur Bildung von Agglomeraten (vgl. Fig. 10). Unabhängig davon scheinen die Partikel etwas kleiner zu sein als diejenigen vom Coupon D42. Die mittlere Teilchengrösse ist vergleichbar mit der, die bei den Untersuchungen des Plenums beobachtet wurde. Die Metallkomponenten sind durch die überwiegenden Mengen von Spalt- und Aktivierungsprodukten eindeutig überdeckt. Der Anteil von Sn/Te ist hier etwas höher als beim Coupon D42 jedoch kleiner als der Anteil von Cs/Mo (vgl. Fig. 12 und Fig. 13). Ba sowie das U und Pd wurden eindeutig identifiziert. Ag und I hingegen sind in Spektren nur schwer zu erkennen, können aber in Spuren vorhanden sein.

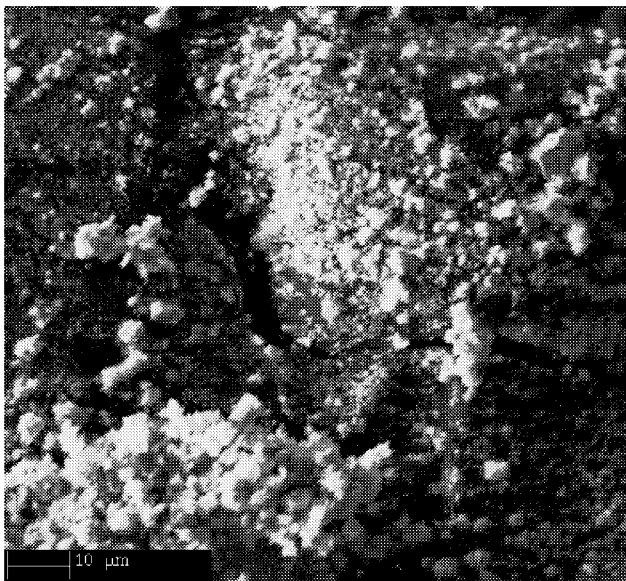


Fig. 6: Plenum N°3, SEM auf C-tab Druck

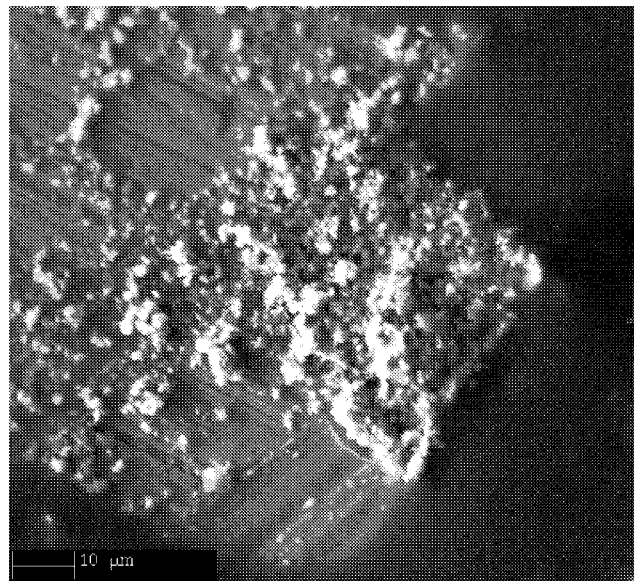
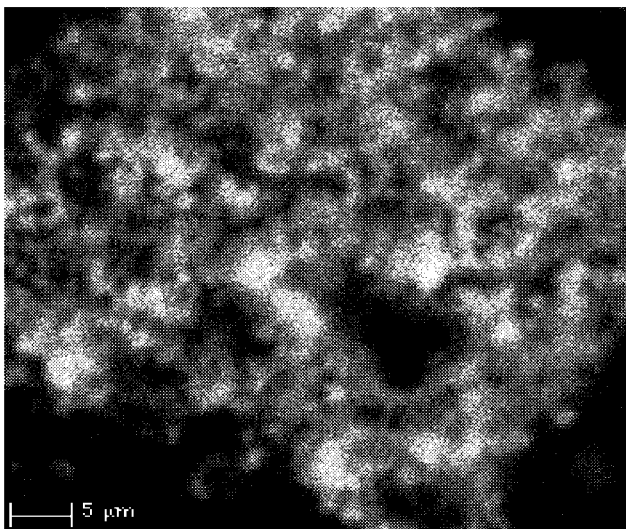
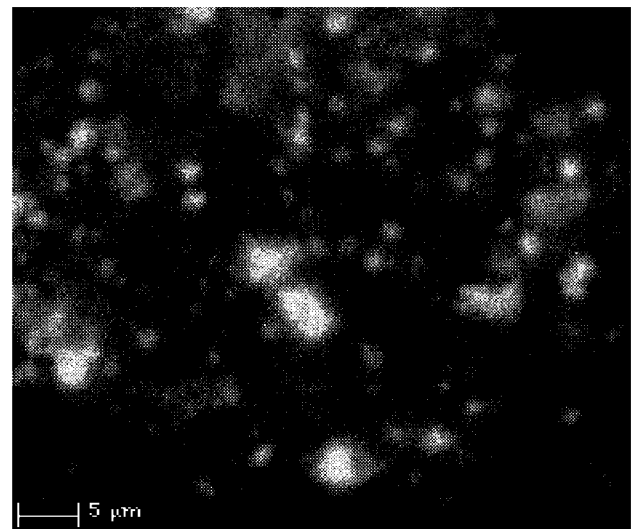


Fig. 7: Plenum N°3, SEM auf Pin-Druck



*Fig. 8: Plenum N°3, Sn-Verteilung
(X-Strahl Abbildung auf Pin-Druck)*



*Fig. 9: Plenum N°3, Te-Verteilung
(X-Strahl Abbildung auf Pin-Druck)*

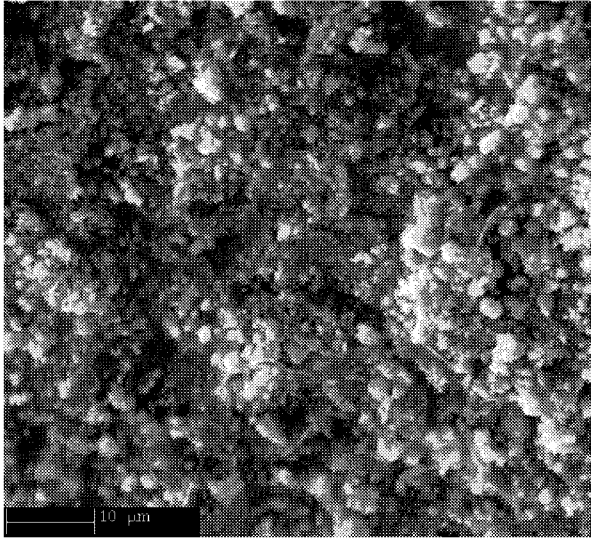


Fig. 10: Coupon D32, SEM auf C-tab Druck

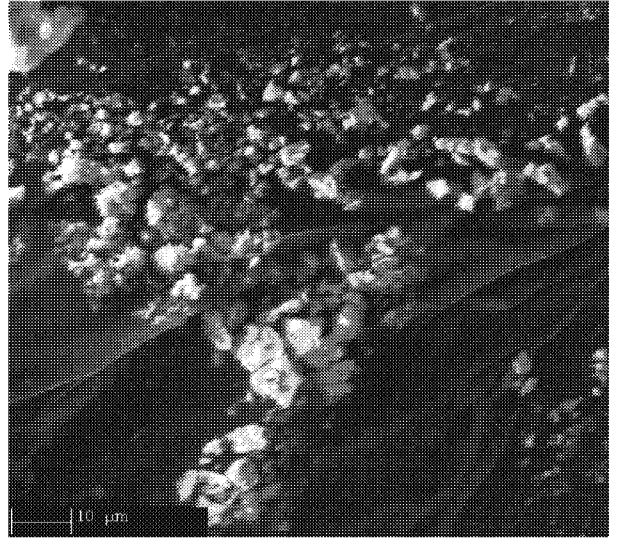


Fig. 11: Coupon D42, SEM auf C-tab Druck

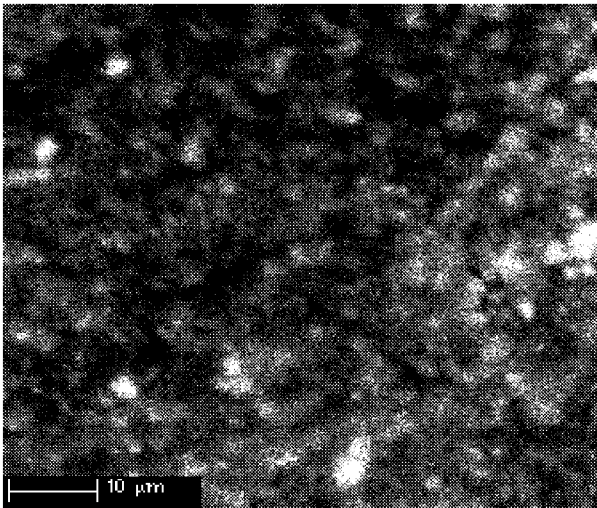


Fig. 12: Coupon D32, Cs-Verteilung; (X-Strahl-Abbildung auf Pin-Druck)

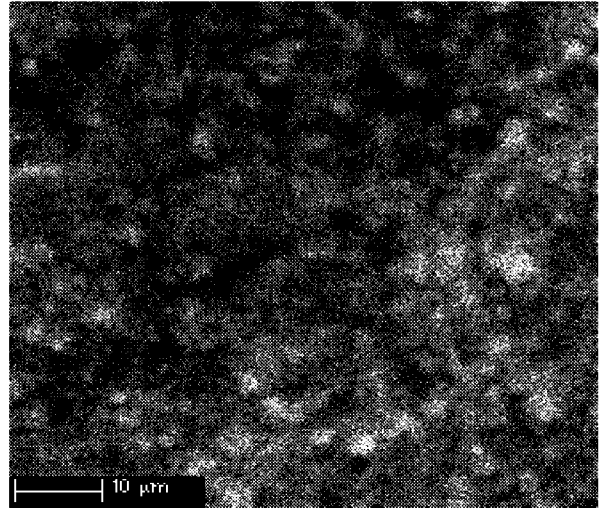


Fig. 13: Coupon D32, Mo-Verteilung (X-Strahl Abbildung auf C-tab Druck)

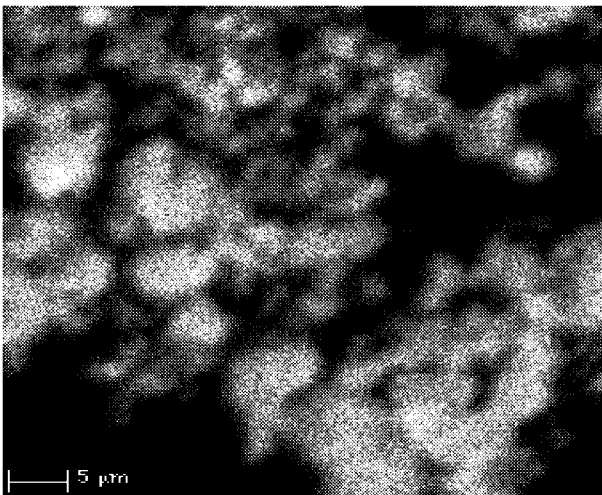


Fig. 14: Coupon D42, Cs-Verteilung; (X-Strahl Abbildung auf C-tab Druck)

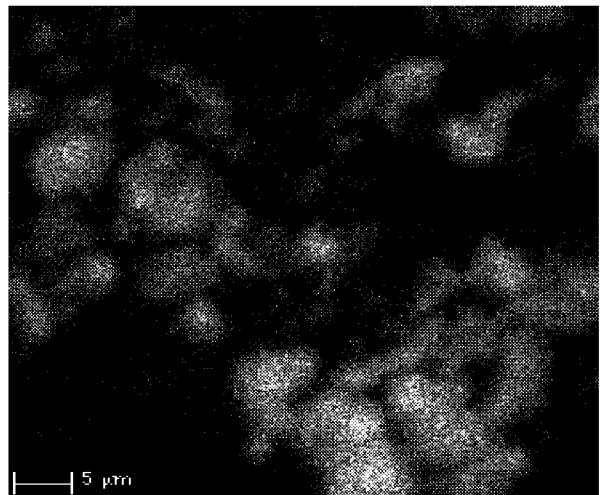


Fig. 15: Coupon D42, Mo-Verteilung (X-Strahl Abbildung auf C-tab Druck)

3. Nationale Zusammenarbeit

Das Projekt ist von Beginn an auf die Zusammenarbeit der die Nukleare Sicherheit betreffenden Institutionen in der Schweiz orientiert. Die Ergebnisse der Schweizer In-Kind Forschungsprojekte und des internationalen PHEBUS FP Programms insgesamt werden in regelmässigen Beratungen mit Vertretern der HSK, aller Kernkraftwerke und des PSI vorgestellt, diskutiert und Schlussfolgerungen für die weiteren Arbeiten gezogen. Im Mai 2000 fand die Veranstaltung am PSI statt. Auf der Agenda standen Berichte zu den letzten am IPSN in Cadarache/F durchgeführten PHEBUS FP Versuchen (FPT4 und FPT2) und die Diskussion der Ergebnisse der Forschungsbeiträge des LWV (Nachbestrahlungsuntersuchungen und -tests) sowie des LTH der Bereiches NES des PSI (Radiolytische Zersetzung des Silberiodids im Sumpf des Containments). Im Dezember 2000 stellten der Leiter des PHEBUS FP Programms M.Schwarz und das verantwortliche Direktionsmitglied des IPSN C.Lecombe die Pläne für die Fortsetzung des Programms nach dem Jahr 2003 auf einem Informationskolloquium im Kernkraftwerk Gösgen vor.

Mit LWI Zürich, einer Firma der Privatwirtschaft und Entwickler von Wasserstoffrecombiner für die KKW, die beim nächsten PHEBUS FP Versuch (FPT3) in Cadarache getestet werden sollen, besteht mit dem LTH eine enge Zusammenarbeit auf dem Gebiet der Reaktorsicherheitstechnik.

Ein wichtiger Teil der Agenda der ersten Veranstaltung mit der HSK und den KKW am PSI im Jahr 2002 werden die Schlussfolgerungen und eventuellen Massnahmen sein, die sich aus den hier berichteten Projekt-Ergebnissen ergeben. Sie betreffen insbesondere die Nutzung der experimentellen Daten zur besseren Beschreibung der Wirkung von Silber bei der Rückhaltung des Iods im Containmentsumpf bei einem hypothetischen Störfall.

4. Internationale Zusammenarbeit

Alle in diesem Jahresbericht zusammengefassten Forschungsbeiträge sind Bestandteil des PHEBUS FP Programms, dem zur Zeit grössten internationalen Programm zur Reaktorsicherheit. Neben dem IPSN und EDF des Gastgeberlandes für die Experimente am Kernreaktor sind alle bedeutenden Forschungszentren der Europäischen Union unter Führung des Instituts für Energie in Petten/NL, die USA (NRC), Canada (Scandia National Labs.), Korea (KAERI) und Japans (NUPEC, JAERI) vertreten.

In dem laufenden (5.) EU Rahmenprogramm zur Reaktorsicherheit ist das LTH des PSI mit eigenen Arbeiten an den Projekten **ICHEMM** (FIKS-CT1999-00008)[8] und **PHEBEN2** (FIKS-CT1999-00009)[9] vertreten. In PHEBEN2 werden die PHEBUS FP Daten zu den Versuchen FPT0/1 zum Containmentverhalten der verdampften Core-Komponenten umfassend analysiert, Modelle vorgeschlagen und validiert. Das ICHEMM Programm ist eine Zusammenfassung von 7 nationalen Projekten, die die bessere Beherrschung der Iodrückhaltung im Reaktorcontainment zum Ziel haben. Weiterhin wurden Pre-Test-Analysen für den PHEBUS-Versuch FPT3 mittels des Codes MELCOR 1.8.5 durchgeführt. Inhalt war die Untersuchung des Einfluss der B4C/Stahl Absorber auf die Core-Degradation und die Zusammensetzung des freiwerdenden Gases. Vorläufige Berechnungen weisen auf grosse Unsicherheiten in der Methan-Produktion hin.

Das LWV ist ebenfalls im 5. EU Rahmenprogramm mit eigenen Arbeiten an den Projekten **CONFIRM** (FIKW-CT2000-00096) [10] und **MICROMOX** (SIKS-2000-00030) [11] beteiligt.

Das PSI (LTH) ist außerdem Partner am Projekt **COLOSS** (FIKS-CT1999-00002) [12]. Es unterstützt darüber hinaus Anlagenstudien für das experimentelle Programm QUENCH[13]. Eine Reihe von Anlagenberechnungen für einen LOCA (grosser Kühlwasserleitungsbruch) und „blackout sequenzen“ werden in Zusammenarbeit mit dem Kernkraftwerk Leibstadt durchgeführt. Der Code MELCOR 1.8.5 bildet die Basis eines Zwischenberichts über Betrachtungen für die Umsetzung auf Kraftwerksanlagen. Eine Reihe von Codeverbesserungen konnte vorgenommen werden, Ihre Anwendung wird gemeinsam mit dem NRC/USA und Scandia National Labs./Kanada betrieben.

5. Bewertung 2001 und Ausblick 2002

Radiolyse des Silberiodids im Sumpf des Reaktorcontainments (LTH)

In Laborversuchen wurden die Werte der Verflüchtigung des Iods aus Silber-Iodid-Suspensionen unter Containment-Bedingungen, die einem Störfall (modelliert in den Versuchen des PHEBUS FP Programms) nahe kommen, gemessen. Sie erwies sich als komplexere Funktion der Sumpfzusammensetzung als bisher angenommen. Danach wird das Iod in alkalischen wässrigen Lösungen zum überwiegenden Teil zurückgehalten, der Sumpf wirkt als eine sichere Senke. Eine Ansäuerung bzw. Verunreinigungen, verursacht durch Radiolyse- oder Kabelpyrolyseprodukte, können zu erhöhten Iod-

Freisetzungen führen. Diesen neuen Erkenntnissen über die zusätzlichen Einflussparameter müssen entsprechend bei den Sicherheitsanalysen und Störfallszenarien (Iodmanagement) Berücksichtigung finden. Dann lässt sich der Bereich der sicheren Iod-Rückhaltung genauer definieren, die Wahrscheinlichkeit einer Iodfreisetzung weiter einschränken und ein Beitrag zur besseren Havariebeherrschung leisten.

Die Arbeiten des LTH zum Projekt „Stabilität von Silberiodid(AgI)“ im Sumpf des Reaktorcontainments sind abgeschlossen. Die Ergebnisse wurden in einem Bericht zusammengefasst und stehen in den Arbeitsgruppen des PHEBUS FP Programms zur Diskussion. Im ersten Halbjahr des Jahres 2002, nach Auswertung aller Kommentare, wird der Projektabschlussbericht erstellt. Eine weitergehende Auswertung, die Code-Modellierung und die Umsetzung der gewonnenen Erkenntnisse zur im Rahmen der Sicherheitsbetrachtungen der KKW sind Bestandteil des Forschungsprogramms des Bereichs Nukleare Energie und Sicherheit. Das PSI bringt die in den PHEBUS-Versuchen erhaltenen Daten in die internationalen Vorhaben zur Validierung und Standardisierung von Codes zur Reaktorsicherheit ein; es beteiligt sich aktiv an den Projekten PHEBUS-2 und ISP46 [14]. Mit einem Projekt zur Erarbeitung effektiverer Methoden zur Reduzierung der Freisetzung des Iods während eines angenommenen Störfalls (Abschluss des Projekts: 2003) leistet das PSI schwerpunktmässig einen auf die Anwendung in der Kraftwerkspraxis orientierten Beitrag zum 5. EURATOM-Rahmenprogramm ICHEMM. Die Erkenntnisse der Schweizer In-Kind Beiträge zum PHEBUS FP Programm sind dafür eine gute Basis und werden integraler Bestandteil der vorzuschlagenden Verbesserungen im Störfallmanagement der KKW für eine wirksamere und sichere Verhinderung der Iodfreisetzung sein.

PTA für FPT4 und FPT2 (LWV)

Für die Elektronenstrahl-Mikroanalyse musste das zylindrische Filterplenummaterial zerkleinert werden. Die grossen Stücke wiesen eine heterogene Bedeckung mit einer schwarzen und grauen Aerosolschicht auf, so dass eine repräsentative Charakterisierung möglicherweise nicht für die ganze Probe garantiert ist. Generell weisen die Analysen von Plenumproben eine Teilchengrössenverteilung im Bereich zwischen sub-mikro und ca. 10 μm aus. Die grösseren Partikel in diesem Bereich erscheinen oft als Agglomerate, die teilweise aus Zirkon des Filtermaterials bestehen. Als Hauptkomponenten findet man jedoch Sn und Te und in kleineren Mengen Cs und Mo. Cs/Mo und Sn/Te findet man meist paarweise in gleichen Partikeln. Bei einem Pin-Print wurde eindeutig höherer Cs/Mo-Gehalt festgestellt. In einem solchen Fall mit höheren Spaltprodukt-Konzentrationen findet man in kleineren Mengen auch die Elemente Ag, Pd, Ba, U und I. In Cs/Mo-reichen Partikeln findet man oft gleichzeitig auch Sn und Te. Die mittlere Teilchengrössen in beiden Coupons sind vergleichbar mit der, die bei den Untersuchungen des Plenums beobachtet wurde (zwischen 1 und 10 μm). Die starke Beladung mit Partikeln führte zur Bildung von Agglomeraten. Der Anteil von Cs/Mo im Coupon D42 ist gegenüber dem von Sn/Te etwas höher. Die Konzentration variiert jedoch von Position zu Position wie bereits bei der Untersuchung des Plenums festgestellt wurde. Die Hauptkomponenten der Aerosole im Coupon D32 sind Sn/Te und in etwas kleineren Mengen Cs/Mo. Auch hier findet man Cs/Mo-reiche Partikeln gleichzeitig mit Sn und Te. Ba, U und Pd sowie das Ag und I wurden eindeutig identifiziert, jedoch nur als Spuren. Generell kann man die Resultate wie folgt zusammenfassen:

- Den weitaus grössten Anteil an flüchtigen Materialien bilden die Komponenten der Strukturmaterialien und die Spaltprodukte. Trotz hohen Temperaturen (>2000 K) findet man nur Spuren der Brennstoffkomponenten.
- Die Aerosol-Teilchengrösse ist wie erwartet klein (<10 μm). Nach Abkühlung bilden sich meist Agglomerate.

6. Referenzen

- [1] **Beteiligung der Schweiz am nuklearen Forschungsprojekt "Phebus"**
Forschungsvereinbarung zwischen dem BEW und dem IPSN vom 11.06.1997
- [2] **Jahresbericht 2000 der nuklearen Sicherheitsforschung, HSK Villigen;**
HSK-AN-3688/KSA-AN-2100, Villigen/CH, 2001
- [3] R. Zeyen in: **Institute for Energy, Report 2001; Joint Research Centre;**
Commission of the European Communities, Petten/NL, 2002
- [4] **Final Report FPT1 - PHEBUS-PF,**
CD, adb communication, December 2000
- [5] **Quick look Report FPT2, PHEBUS PF** – February 2001, RAPPORT SEA 1/2001, IPSN Cadarache. 2001
- [6] S. Güntay, H. Bruchertseifer, R. Cripps, B. Jäckel
"Radiolytic Stability of Silver Iodide", Data Analysis and Data Report, Draft Report
PHEBUS TG390/SAWG 00/009, July 2001

- [7] R. Restani, Z. Kopajtic, D. Gavillet; **“PHEBUS FPT4-PTA: Electron Probe Micro Analyses of Filter Cartridges”**, TM-43-01-15.
- [8] **ICHEMM, “Iodine Chemistry and Mitigation Mechanisms”**, EU-FIKS-CT1999-00008, MID-TERM ASSESSMENT Report, SAM-ICHEMM-D004, July 2001
- [9] **Pheben2, “Validating Severe Accident Codes Against Phebus FP for Plant Application”**, EU-FIKS-CT1999-00009, 1. Annual Progress Report, SAM-Pheben2-P002, July 2001
- [10] **CONFIRM, „Preparation and characterisation of nitrides with actinides as candidate for ADS fuel for irradiation tests in Studsvik-reactor“**, EU-FIKW-CT2000-00096
- [11] **MICROMOX, “LWR MOX, High burn-up structure programme“** (SIKS-2000-00030)
- [12] **COLOSS, “Core Loss During a Severe Accident”**, EU-FIKS-CT1999-00002
1. Annual Progress Report, SAM-COLOSS-P003, NT/IPSN/DRS/SEMAR 0/28, March 2001
- [13] J. Birchley, **“QUENCH-07 Preliminary Post-test calculations using SCDAP/RELAP5/MOD3.2”**, EU-SAM-COLOSS-P015, 2001
- [14] **ISP 46, “Thematic Network for a Phebus FPT1 International Standard Problem”**, THENPHEBISP, EU-contract: FIKS-CT-2001-20151, Nov.2001



Datum: 20. Februar 2002
Von: M. Zünd / U. Schmocker

PROJEKTBEGLEITERBEWERTUNG 2001 MSWI – MELT-STRUCTURE-WATER INTERACTIONS DURING SEVERE ACCIDENTS IN LWRS

Einleitung, allgemeine Bemerkungen

Das Programm MSWI wird vom schwedischen *Royal Institute of Technology (RIT)* in Stockholm unter der Leitung von Prof. B.R. Sehgal durchgeführt. Neben der Schweiz treten als weitere Partner die amerikanische (US-NRC) und die schwedische (SKI) Sicherheitsbehörde sowie schwedische und finnische Kraftwerksbetreiber auf. Seit dem 01.01.1996, dem Beginn ihrer Teilnahme an diesem Programm, kann die HSK direkt auf alle erarbeiteten Resultate zugreifen und hat die Möglichkeit, die Forschungsziele mitzubestimmen.

Wurden die Projektziele des Jahres 2001 erreicht?

Im Jahr 2001 standen die folgenden Projektziele im Vordergrund:

[1] Kühlbarkeit einer Kernschmelze durch von unten eingespiesenes Wasser (DECOBI)

Die DECOBI Untersuchungen wurden Ende 2001 abgeschlossen. Die wichtigsten Erkenntnisse aus dem DECOBI Programm sind:

- Im Falle einer Hochtemperatur-Oxidschmelze mit hoher Viskosität bildete sich über den Einlass-Düsen eine poröse Struktur in Form von verzweigten Kanälen von ca. 2-3 cm Länge. Nur in diesen Bereichen erfolgte eine rasche Abkühlung der Schmelze. In allen Experimenten mit einer Oxidschmelze mit tiefer Viskosität war die poröse Struktur gleichmässig in den Ablagerungen verteilt und die Abkühlung erfolgte in allen Schmelzebereichen. Die Viskosität der Schmelze scheint also beim Kühlprozess eine wichtige Rolle zu spielen.
- Wird das Kühlwasser durch eine grosse Anzahl von Düsen von unten eingeleitet, können grosse Teile der Schmelze abgekühlt werden und es entsteht eine grosse Oberfläche dank derer die Wärme von den nicht direkt durch das Wasser gekühlten Zonen zu den direkt gekühlten Regionen abgeleitet wird.
- Eine generelle Schlussfolgerung der DECOBI Experimente ist, dass bei einer Oxidschmelze das Kühlen (Verfestigung und Abkühlung) der Schmelze durch die Einspeisung von Kühlmedium (Wasser) von unten effektiv sein kann. Die Porosität, die sich während der Abkühlung bildet, erlaubt den fortlaufenden Durchfluss des Kühlmediums sogar nach der Verfestigung, so dass schliesslich die vollständige Kühlung der Schmelze erreicht werden kann. Die durch den Wasserdampf und die lokale Druckverteilung induzierte Bildung der porösen Strukturen in der Schmelze scheint somit der kontrollierende Mechanismus bei der Kühlbarkeit zu sein.

[2] Kühlbarkeit einer Kernschmelze (POMECO-Experimente)

Die POMECO Untersuchungen wurden Ende 2001 abgeschlossen. In den durchgeführten Tests wurde die Kühlbarkeit einer Kernschmelze resp. einer Anhäufung fragmentierter Coriumteilchen auf dem Containmentboden studiert. Die wichtigsten Erkenntnisse aus dem POMECO Programm sind:

- In den Test mit ausschliesslicher Flutung von oben konnte der Abkühlungsprozess durch eine höhere Temperatur des Kühlmittels beschleunigt werden.
- Bei Abkühlung mit Kühl-Rohren (downcomers) konnte die Abkühlzeit extrem reduziert werden. In diesen Fällen war die Abkühlung durch Kühlmittel mit tieferen Temperaturen sehr viel intensiver, da pro Zeiteinheit mehr Wasser durch die "heissen" Kühlrohre dringen konnte. Es wurde auch beobachtet, dass - sowohl bei Wasserzugabe von oben als auch von unten - die Abkühlung des Bodens den Abkühlprozess als entscheidender Faktor dominiert.

[3] Wechselwirkung Schmelze-Reaktordruckbehälter (Forever-Experiment)

Bei einem schweren Störfall kann es zu einer Kernschmelze mit anschliessender Verlagerung der Schmelze in den Boden des Reaktordruckbehälters kommen. Der Druckbehälter stellt in diesem Fall die letzte Sicherheitsbarriere vor einer direkten Belastung des Containments dar. Das Ziel des Projektes FOREVER (Failure Of Reactor Vessel Retention) ist die Untersuchung der Kühlbarkeit eines geschmolzenen Kerns innerhalb des Reaktordruckbehälters sowie Untersuchungen zum Versagen des Behälters.

Die Beobachtungen aus den ersten vier FOREVER Tests zeigen, dass beim Versagen des Reaktordruckbehälters eine spröde Bruchstelle mit einer relativ kleinen Öffnung (< 2 cm) entsteht. Dieser Riss tritt in der Höchsttemperaturzone der Behälterwand auf. Sobald der Druck abgebaut ist, wird die Ausbreitung des Risses sofort unterbrochen. Ein Teil der Schmelze (~ 40%) gelangt durch den Riss nach aussen: dieses Resultat weicht relativ stark vom bisher angenommenen Wert (100% Austritt) ab.

[4] Dampfexplosionsexperimente

Die Experimente zu den Wechselwirkungen zwischen Schmelze und Kühlmedium konzentrieren sich neu auf die Untersuchung von Dampfexplosionen von Einzeltropfen. Es wurde dazu eine neue Versuchsanlage gebaut. Diese neuen Experimente haben folgende Ziele:

- Untersuchung der Auslösbarkeit und Explosivität von Hochtemperatur-Schmelzen durch einen externen Auslöser in einer kontrollierten Umgebung.
- Untersuchung des Einflusses der thermo-physikalischen Eigenschaften der Schmelze auf die Auslösbarkeit und Explosivität.
- Erarbeitung von quantitativen Daten zu den Volumenanteilen von Schmelze, Kühlmedium und Dampf im Reaktionsbereich sowie Bereitstellung von Daten zum Fragmentierungsprozess während der Explosion.

Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?

Das Projekt MWSI liefert wichtige Erkenntnisse zu den Abläufen bei schweren Unfällen. Je umfassender das Verständnis der Unfallablaufphänomene ist, desto präziser können diese modelliert werden. Dadurch werden abgesicherte Risikoquantifizierungen möglich, die beim Entscheid für technische Nachrüstungen und bei der Optimierung von Unfallbeherrschungstrategien und Notfallplanungen eine grosse Rolle spielen. So liefern die Resultate beispielsweise Erkenntnisse darüber, mit welchen Methoden die Kernschmelze nach einem Versagen des Reaktordruckbehälters gekühlt werden kann. Das Projekt wird sehr effizient und effektiv geführt und bringt hervorragende Ergebnisse.

Ausblick und Verbesserungsvorschläge

Der Vertrag mit dem RIT lief Ende 2001 aus. Die HSK strebt die Weiterführung der Zusammenarbeit mit Prof. Sehgal an. Diese soll allerdings nicht mehr im Rahmen des Projektes MSWI, sondern in einem noch zu gründenden "Kompetenz-Zentrum" erfolgen. Die entsprechenden Abklärungen für den neuen Vertrag werden in diesem Jahr getroffen. Die notwendigen finanziellen Ressourcen seitens HSK sind bereits eingeplant.

21.02.2002

Ulrich Schmocker

Marianne Zünd

MSWI

Melt-Structure-Water Interactions During Severe Accidents in LWRs

Autor und Koautoren	B.R. Sehgal, Z.L. Yang, H.S. Park, A. Karbojian, A. Giri, M.J. Konovalikhin, A. Gubaidullin, D. Paladino, A. Theerthan
beauftragte Institution	Nuclear Power Safety Division
Adresse	Royal Institute of Technology, 100 44 Stockholm, Sweden
Telefon, E-mail, Internetadresse	sehgal@ne.kth.se, http://www.egi.kth.se/nps/research
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	
Dauer des Projekts (von – bis)	

Zusammenfassung

This is the annual report for the work performed in 2001 in the research project "Melt-Structure-Water Interactions During Severe Accidents in LWRs", under the auspices of the APRI Project, jointly funded by SKI, HSK, USNRC and the Swedish and Finnish power companies. The emphasis of the work was placed on phenomena and properties which govern the droplet fragmentation, ex-vessel melt/debris coolability, and thermal and mechanical loadings of a pressure vessel during melt-vessel interaction. Most research projects in 2000, such as DECOBI, FOREVER, COSOS, COMECO, steam explosion, were continued. The experimental facilities for these projects have been fully functional in 2001. Many of the investigations performed during the course of this project have produced papers which have been published in the proceedings of technical meetings.

Significant technical advances have been achieved during the course of these studies. It was found that:

- A general conclusion that can be drawn out of the DECOBI experiments is that the cooling (solidification and quenching) of a melt pool by coolant bottom injection can be effective for a molten oxide pool. The porosity formed during the pool-coolant interaction allows continuous passage of coolant even after solidification so that the complete coolability of the melt can be achieved eventually.
- In the tests with top flooding, the bed quenching process was faster when coolant temperature was higher. In the cases of quenching with downcomers in the bed, the quenching rate was tremendously enhanced.
- For the cases with downcomers, quenching by lower temperature coolant was more intensive since more water per unit time could be delivered through the 'hot' downcomers. It was also observed that quenching with water delivery from the bottom dominates the quenching process.
- The most persistent observation from the first four EC-FOREVER tests is that the mode of vessel failure is a brittle failure of finite circumferential angle and relatively small opening (< 2 cm).
- The failure occurs in the hot zone of the vessel wall, i.e. where the temperatures are the highest. Part (~ 40%) of the melt is discharged through the failure location, which is quite different from the currently assumed discharge of 100% of the melt pool in the vessel. These results are different from those found in the Sandia tests (USNRC Program LHF and the OECD Program OLHF), mainly because the Sandia tests do not provide melt pool convection and the angular variation of vessel wall temperature.

1. Projektziele

This report presents brief descriptions of the major results obtained in the research program "Melt-Structure-Water Interaction (MSWI)" at RIT/NPS during 2001. The primary objectives of the MSWI Project in 2001 were to obtain data on:

- The melt-vessel creep process that occurs when a naturally-convecting melt pool is formed in the lower head, as a result of a severe accident.
- The droplet triggering and fragmentation process that occurs when a melt droplet is discharged into a water pool.
- Melt pool coolability characteristics by bottom coolant injection.
- The debris coolability process and the enhancement of coolability through water addition in downcomers.

Associated objectives were to (i) establish scaling relationships so that the data obtained in the experiments could be extended to prototypical accident geometries and conditions, (ii) develop phenomenological or computational models for the processes under investigation and (iii) validate the existing and newly-developed models against data obtained at RIT and at other laboratories.

In 2001, several experimental programs in 2000, such as DECOBI, FOREVER, COSOS (Corium solidification with segregation), COMECO (corium melt coolability), steam explosion projects were continued. Some research projects were completed in 2001, such as DECOBI, POMECCO, the others will be continued in 2002. So in this report, the results from DECOBI and POMECCO quenching experiments will be summarized, the steam explosion experiments will be described. The EC-FOREVER tests performed in 2001 will also be presented.

2. Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

1. Single drop steam explosion experiments

Our research activities on Molten Fuel-Coolant Interactions (MFCI) have been shifted from the Melt-Coolant mixing to single drop steam explosions. A new test facility to investigate the single drop MFCI has been constructed and a series of scoping tests have been successfully performed to verify the facility.

This new activity on single drop steam explosions aims (1) to investigate the triggerability and explosivity in a well-controlled facility with high temperature melts with an external trigger, (2) to identify the influence of melt thermo-physical properties on triggerability and explosivity of the melts, (3) to acquire quantitative data on the volume fractions of melt, coolant and vapor in the interaction zone and on the fine fragmentation process during the explosions, and eventually (4) to develop scaling methodology for the steam explosions.

The main feature of the single drop facility consists of a test chamber, an external trigger system, a melt generator, high-speed photography and X-ray radiography systems and a remote control system. For the scoping tests, three different melts, i.e., one metallic melt (Sn) and two binary oxidic melts ($\text{CaO-B}_2\text{O}_3$, $\text{WO}_3\text{-CaO}$), were tested. High-speed photo images synchronized with dynamic pressure signals were obtained.

Single Drop Test

Test Facility

Figure 1. shows the arrangement of the facility components including the X-ray radiography system. Due to X-ray operation, the facility is located inside a 650 mm thick concrete containment with a size of $3.8 \times 3.8 \times 3.85$ m which is sufficient to shield against the 320 KeV Xray, i.e., the highest energy of the Xray system. The facility consists of a test chamber, furnace, external trigger system, remote control system. The test chamber is a stainless steel rectangular chamber with four view windows on four sides. The $180 \times 130 \times 250$ mm chamber has a wall thickness of 10 mm and accommodates about 6 liters of water. Four transparent windows are made of 24mm LEXAN with dimensions of 70×150 mm. On the sidewall of the chamber, one fast response piezoelectric pressure transducer (WH102 from PCB Piezoelectronics) and one thermocouple (K-type) are installed to measure the fast transient pressure and temperature histories. At the bottom of the test chamber, an external trigger system with a small shock guide tube is mounted. The external trigger system generates a shock wave with a pressure of up to several MPa by the rapid movement of a planar piston driven by a quick discharging capacitor bank system. The shock wave guides through a stainless steel tube with mirror finished surface to the point where the melt drop may explode. Melt drop (less than 1g) placed inside a 10 mm ID ceramic tube with a 0.8 mm bottom hole is prepared at the induction furnace. The ceramic tube is mounted at the center of the furnace. The melt drop is released by pneumatically lifting the ceramic melt plug.

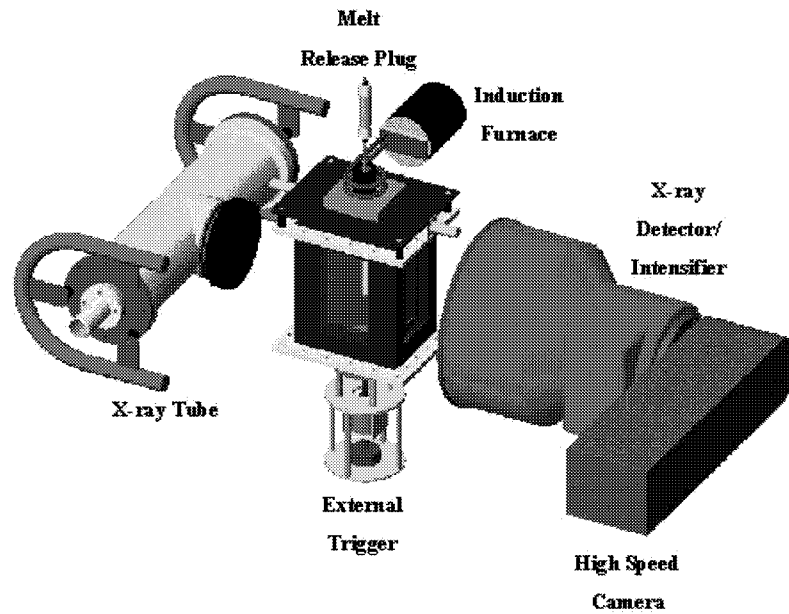


Figure 1 : Single Drop Test Facility

Instrumentation and Control System

Experimental data such as pressure and temperature signals are collected and recorded on a PC-based high speed DAS-1801HC (Kathely) data acquisition card. The high-speed DAS system is able to accommodate 32 differential analog inputs up to 0.3 MHz sampling rate. The control of the card and acquisition of data are performed by LabView software (National Instrument) on a 366 MHz Pentium-II PC. During the test, entire control, pressure and temperature signals are recorded. The entire operation of the experiment is remotely performed from the outside of the containment. Figure 2 shows the remote control system which allows the close monitoring and control of the progress of the experiment. The remote system controls furnace operation and melt delivery, the operation of external trigger, the temperature of the water etc.

To synchronize the experimental process, five sets of timers were employed. Each timer is able to operate 1sec at 1ms time resolution. The sequence of the experiment is initiated by manual operation of the melt plug lifting system which allows to release a melt drop from the melt crucible. Afterward, the melt drop was detected by a laser beam-detector system which provides a 5V TTL signal to the automatic control unit in the control system. The signal triggers various operations at their pre-set times; PC-DAS system, high-speed camera and external shock trigger system. Two video camcorders were installed inside the containment building to monitor the entire experimental process.

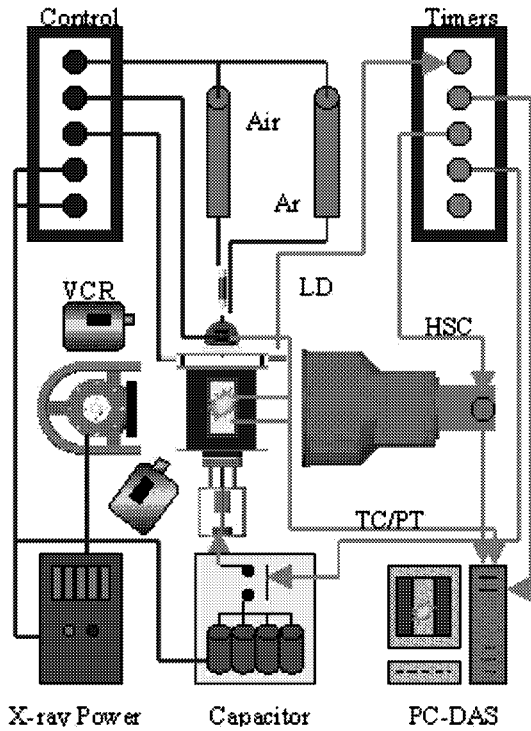


Figure 2 : Remote Control System

X-ray Radiography

Our X-ray radiography system (Figure 3) consists of X-ray tube, detector with image intensifier, high-speed CCD camera and a personal computer with an image grabber. X-ray tube (Philips MCN323) system can regulate photon energy continuously up to 320 keV with a target angle of 40° and the maximum Tungsten target current of 32 mA. The detector with an image intensifier is a Thomson TH 9432 HP quad-field unit with a maximum image view of 290 mm. The detector has a high-density phosphor screen with CsI crystal layer to detect the passing X-ray photons. The photo-electrons converted from the detected photons at photo-cathode are intensified and finally converted into visible lights at photo-anode. The high speed X-ray radiography is possible when the XR system is combined with high-speed camera (Redlake 2000) with a maximum frame rate of 8000/sec. The high-speed camera is mounted on the back of the fluorescence screen of the image intensifier.

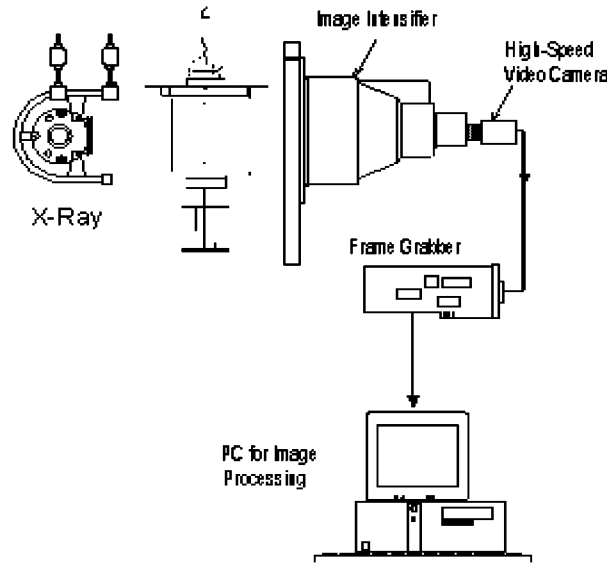


Figure 3 : X-Ray Radiography System

X-Ray Image Processing Techniques (Measurement of Void Fraction)

The basic arrangement of our X-ray radiography system (X-ray tube and detector) with a test section having an arbitrary void distribution in two-phase flow are shown in Figure 4. The intensity of the X-ray beam attenuated along the passage to the detector, following a general attenuation law is written as

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\mu L} \quad (1)$$

where I , I_0 , μ and L are the incident, detected X-ray beams, the attenuation coefficient of a material and the material thickness, respectively.

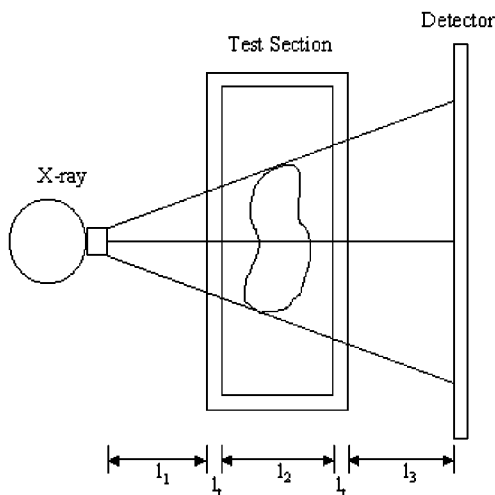


Figure 4: Arrangement of X-ray Radiography System

The attenuation coefficient strongly depends on material density and X-ray energy. Figure 5 shows the attenuation coefficient in terms of the atomic number and density at the X-ray beam energy of 100 keV. It clearly illustrates that the attenuation coefficient increases with material density.

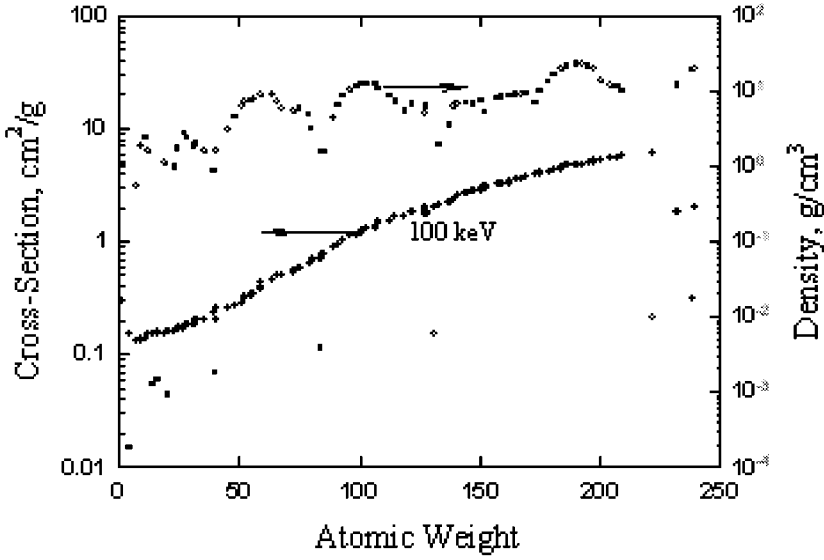


Figure 5: X-Ray Attenuation Coefficient at X-ray Energy of 100 keV

For the arrangement shown in Figure 3, assuming that X-ray attenuations at air and test section window material are negligible, the detected X-ray beam intensity, I , can be simplified as

$$\frac{I}{I_o} = \exp\{-[\mu_l + \alpha(\mu_v - \mu_l)]L\} \quad (2)$$

where subscripts, l and v , are liquid and void, I_o is the incident X-ray beam intensity, μ is the attenuation coefficient, L is the sum of the void and liquid thicknesses ($=L_r+L_v$) and α is the void fraction ($=L_v/L$). By taking the logarithm, the equation becomes,

$$\ln \frac{I}{I_o} = b_0 + m_0 \alpha \quad (3)$$

As seen in the equation (3), the logarithm of I/I_o and the void fraction have linear relationship.

The two-dimensional digital images to analyse the image gray levels, $P_{GL}(x,y)$, taken by the high-speed CCD camera are prepared as follows,

$$P_{GL}(x, y) = \ln \frac{P(x, y) - P_{DC}}{P_o(x, y) - P_{DC}} \quad (4)$$

where $P(x,y)$, $P_o(x,y)$, and P_{DC} are the original image taken by the camera, the image taken without test section, and the dark-current image. During this process, $P_{GL}(x,y)$ becomes free from the background noises contributed by the CCD camera and any spatial non-uniformity of X-ray beams and structures of the test section. In comparison to Eq. (3), the resulting gray level of $P_{GL}(x,y)$ is directly proportional to the void fraction. Therefore, $P_{GL}(x,y)$ can be expressed as,

$$P_{GL}(x, y) = b + m\alpha(x, y) \quad (5)$$

The constants, b and m , are determined from a series of calibration tests with a known void fraction distribution. This calibrated $P_{GL}(x,y)$ is then used to estimate the void distributions of the X-ray image taken during the tests. For instance, this technique was previously applied to our MIRA3L tests and showed the void map in Figure 6.

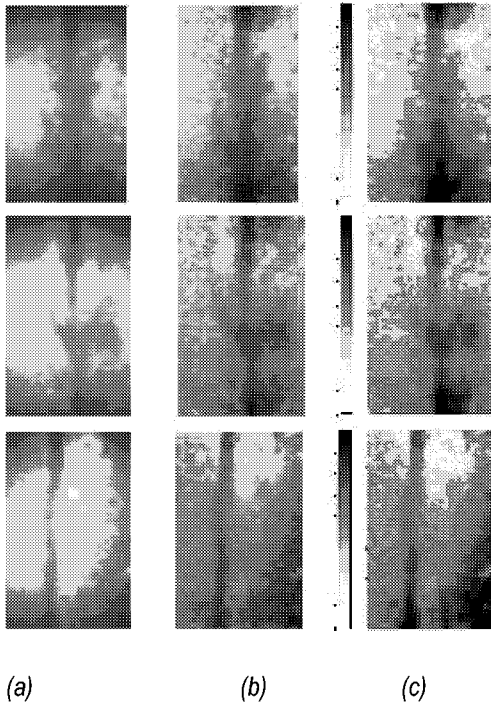


Figure 6: Images of X-ray Radiography and Void Fraction Maps After Image Processes: (a) Original Images, (b) Processed Images and (c) Void Fraction Maps.

Figure 6 illustrates that the original images show relatively brighter at center and darker at the edge of the images. This distortion of the image was corrected with the image process, which eliminated inherent background noises and enhanced the contrast of the images. This methodology of the image processing will be advanced with various filtering techniques to maximize the contrast among each component of such multiphase flow.

Single Drop Steam Explosion Scoping Tests

A series of scoping tests were performed with single melt drop of Sn, CaO-B₂O₃, and WO₃-CaO and coolant of water. Melt and coolant temperatures ranged from 950 to 1300°C and 15 to 30°C, respectively. Mass of melt drop varied from 0.1 to 3 grams. The shock pressure of 0 to 1.5 MPa was provided when the melt drop arrived at the center of the test section which corresponds to the falling height of 170 mm.

Characteristics of External Shock Trigger

Figure 7 shows a typical shock pressure measured at the wall of the test section. The shock pressure arrived at the center of the test section at 36 ms after the laser detector detected the melt drop, the pressure shows approximately 0.9 MPa. After shock arrival, the reflected waves and oscillation waves with a frequency of approximately 1 kHz were typically measured. This oscillation wave resulted from the impact of the trigger piston into the test section.

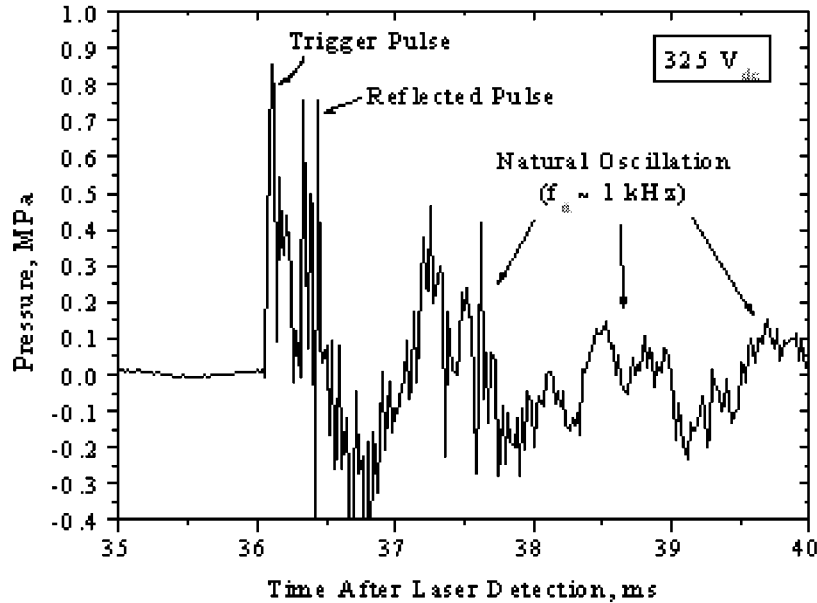


Figure 7: Typical Trigger Shock Pressure

Spontaneous Steam Explosions

A number of tests were performed with single tin drop at the melt and water temperatures of approximately 1000 and 20°C, respectively. Most of spontaneous steam explosions were induced when two drop contacts each other. The strength of the explosions was relatively weak in comparison with that of triggered steam explosions.

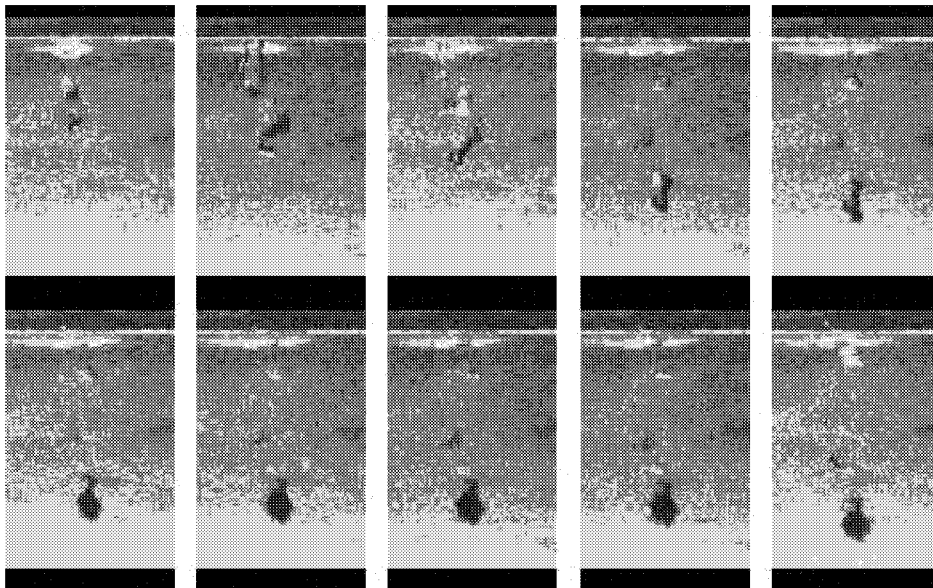


Figure 8: Spontaneous Steam Explosions (Tin); Dt=2ms

Triggered Steam Explosions

Figure 9 shows one of steam explosions triggered with a 1.0 MPa shock pressure at 150 ms after the melt detection. The melt and water temperatures were 1120 and 23°C, respectively. The mass of the tin melt was approximately 500 mg and melt velocity when the shock arrived was 1.2 m/s. As seen in the pressure signal, the initial peak of the pressure signal represents the trigger pulse and associated reflection and oscillation pulses described in the previous section. At about 155 ms the triggered explosion was visualized by the high-speed camera and its pressure pulse of 1.4 MPa was recorded accordingly.

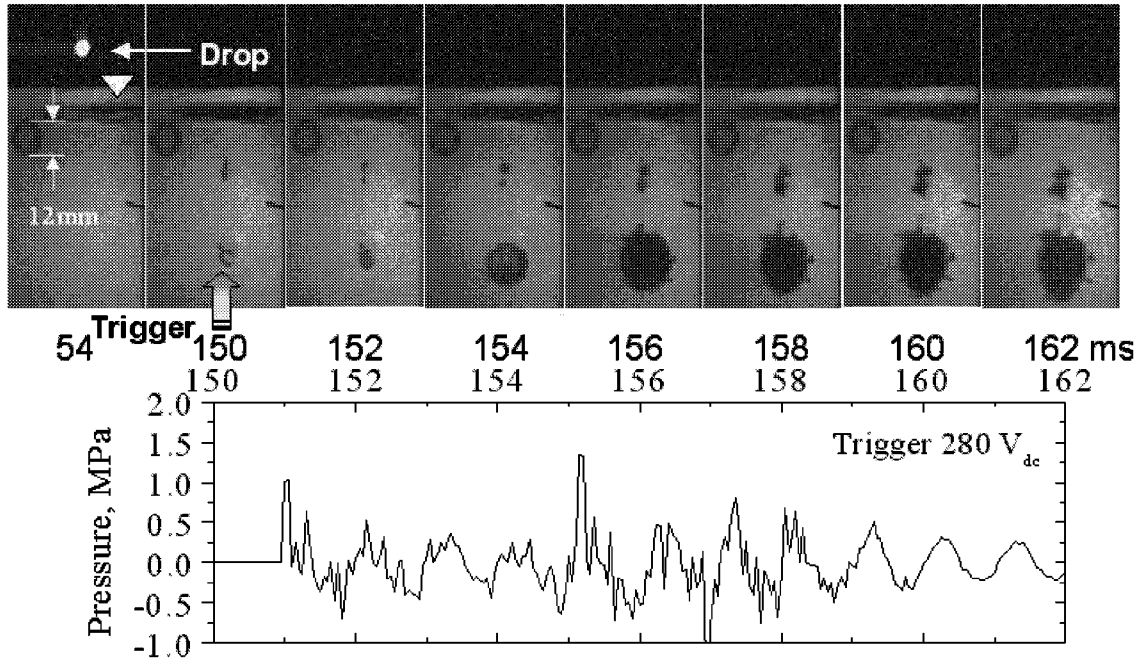


Figure 9: Triggered Steam Explosions (Tin)

For $\text{WO}_3\text{-CaO}$ melt drop, a melt drop of 1300°C was partially exploded by the trigger pulse of 1.5 MPa and produced 0.5 MPa peak pressure. However, for $\text{CaO-B}_2\text{O}_3$ melt drop, no noticeable MFCIs were observed so far.

Summary and Future Plans

KTH (RIT) single drop MFCI facility has been constructed and a number of scoping tests were successfully conducted. The facility equipped with the remote control system and the time control system for entire experimental processes and instrumentation and new induction furnace system to generate various high-temperature melt drops. Future tests will focus on X-ray radiography to quantify the multiphase parameters such as phase volume fractions and continuation of Tin, $\text{CaO-B}_2\text{O}_3$ and $\text{WO}_3\text{-CaO}$ tests to investigate the effect of trigger strength, melt/coolant temperature, etc. on single drop explosions associating with X-ray images to identify the dependency of steam explosions on the material properties.

2. Debris coolability by bottom coolant injection (DECOBI program)

In the previous report submitted to HSK in 2000, the comprehensive description of DECOBI experimental program was presented. During 2001, several new tests on DECOBI-HT facility were performed. The objective of these additional tests was to obtain additional data to perform the scaling analysis and to delineate the parametric relationship for the porosity formation mechanism. The single nozzle was employed in all of these new tests, the effects of coolant flow rate and the type of simulant materials were examined. In this report, the DECOBI program is summarized.

The overall objective of the DECOBI program at NPS/RIT is to investigate ex-vessel melt coolability by coolant injection from bottom of the melt pool.

In the medium temperature (DECOBI-MT) experiments the melt-coolant interaction characteristics were investigated with a pure molten metal pool. In the high temperature experiments (DECOBI-HT), binary non-eutectic oxides were employed whose compositions were chosen to simulate the corium ($\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$) as closely as possible.

The low viscosity and high conductivity of the liquid metal allowed mixing of the coolant with the melt and high rates of heat transfer. As a consequence, the solidification occurred quickly and high steam pressure was generated in the test section. The upper portion of debris had higher porosity in comparison to the lower portion. The first set of high temperature experiments (DECOBI-HT) employed $\text{CaO-B}_2\text{O}_3$ melt at $1100\text{-}1300^\circ\text{C}$ which has a glass type structure with low conductivity and high viscosity. Later experiments were performed with the binary oxide mixtures CaO-WO_3 and $\text{MnO}_2\text{-TiO}_2$, both of which have ceramic type (similar to $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$) structure, with low conductivity and relatively low viscosity which does not increase greatly as the melt superheat decreases and when the temperature decreases below the liquidus temperature. With the use of these three binary oxide melts, we have attempted to simulate the prototypic

conditions in which the $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ melt, which initially has very low viscosity, ablates concrete, resulting in mixing of the glass-forming SiO_2 in the melt pool, which changes its material structure and increases its viscosity greatly.

The data obtained from the high temperature experiments with ceramic structure melts show that for the low viscosity binary oxide melts, there is substantial mixing of the melt with the coolant. The high temperature and low conductivity lead to film boiling, fragmentation and solidification of the melt pool and creation of highly porous (40 to 50%) debris. The melt is quenched quite readily. The cooling scenario is similar to that for coolability of the metallic melt, however much more benign and the pressure fluctuation due to steam formation and quenching are not very violent.

Contrary to the complete coolability and quenching obtained for the high temperature ceramic type low viscosity melts, the $\text{CaO-B}_2\text{O}_3$ melt pool cooled in a channel-like volume above each open nozzle where the coolant came in contact with the melt and solidification and quenching took place. The regions of the melt beyond the channel did not come in contact with coolant and those regions cooled down slowly. The post-test examination showed that substantial porosity was created in the channel regions but very little in the other regions. The melt in the non-channel regions cooled by conduction to the cooled channel regions. This was modeled in the analysis by the unsteady heat conduction equation and the cooling rate of the unquenched regions of the melt was found to be described quite well by this analysis. It was found experimentally that the cooled and porous channeled region extended 2.5-3 cm around each nozzle. When the flow rate was decreased, the melt-coolant interaction was found to be more energetic and resulted in an eruptive ejection of melt from the test section. This led to the creation of high porosity at the upper portion of the debris.

Considering the prototypic case of cooling and quenching a large corium pool with bottom injection of water, it appears that the melt pool will be much easier to cool, solidify and quench if water is delivered as early as possible so that as few concrete products are mixed in the melt as possible. However, even later on, if the pitch of the delivery nozzles is kept below 8 cm, and the nozzles remain open melt could be quenched and the accident stabilized. The melt viscosity seems to play an important part in the bottom coolant injection phenomenology. Low viscosity melts mix more easily with the vaporized coolant and would quench earlier. This would also lead to high steam pressures. High melt temperature promotes film boiling which leads to a much more orderly coolability scenario.

Creation of porosity in the melt by the generation of vapor and its radial and axial movement due to the local pressure generation, appears to be the controlling mechanism of coolability. The continued accessibility of the coolant in these porous regions leads to melt coolability, solidification and quenching to the coolant temperature. The regions of melt which do not get in contact with coolant are cooled by heat conduction to the regions which are in contact with the coolant. By provision of a large number of nozzles, bottom injection ensures that (a) there are large regions of melt which are quenched, (b) there is a large surface area for conducting heat away from the uncooled regions of the melt to the cooled regions. These two factors provide the success of the melt coolability with bottom injection of the coolant.

3. Porous media coolability (POMECO) program - quenching

The objective of the quenching experiments is to study the quenching process in the hot homogeneous and stratified low porosity particle beds, which were quenched by, both, a water overlayer, and by injection of water from the bottom, delivered through downcomers from the overlayer.

The quenching tests were performed in the POMECO (POrous MEdia COolability) test facility. The schematic of POMECO facility is shown in Figure 1. The POMECO facility consists of water supply system, test section, heater system, measurement and DAS systems. Different sand particles are chosen to make the porous particle bed with different configurations, such as, mean particle size, porosity, and stratification. The top surface of the particle bed is covered by grids with small size holes to avoid channel formation in the particle bed and flying off of small sand particle. The cross-sectional area of the test section is 350X350mm rectangular. The height of the lower part is 500 mm and the height of the upper part is 900 mm. The maximum height of 450 mm can be reached for the sand bed. The sand bed is heated internally by resistance heaters.

The temperature of vapor generated in the test section is measured in the steam flow line, downstream of the Vortex meter. The most important measurement in this experiment is the temperature of the sand particle bed. 33 thermocouples are distributed in representative positions in the particle bed. The steam flow rate is measured by a Vortex Flow Meter made by Omega Company, which is installed in the steam drain line. The range of this meter is up to 30 liter/sec. From the steam flow rate, we can evaluate the heat removal from the bed.

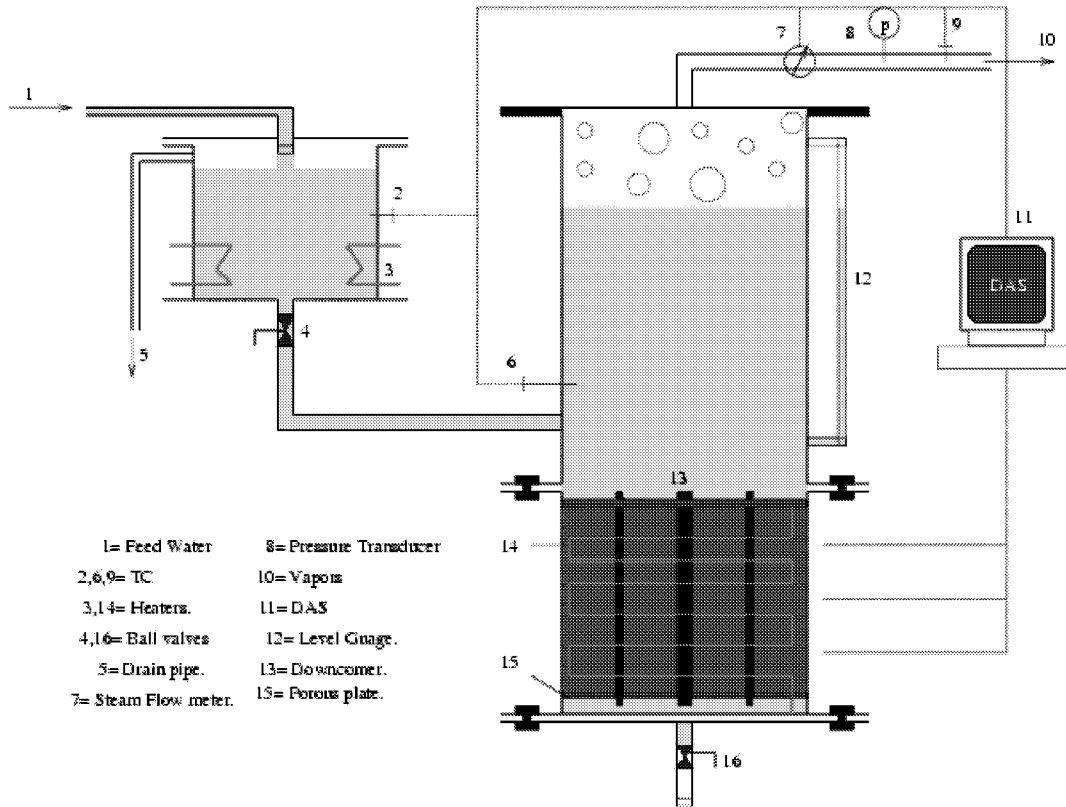


Figure 10. Schematic of the POMECO facility.

Three series of experiments have been performed for both homogeneous and stratified particle beds, respectively. The quenching tests simulating debris beds have been carried out to study the effects of porosity, mean particle size, and stratification of particle bed on the quenching process.

Tables 1 - 2 show the experimental results on quenching rates for the homogeneous particle beds both with and without downcomers. Each test series consisted of six experiments with different temperatures of coolant and number of downcomers. It can be seen that for the particle beds with relatively large mean particle sizes (series QH-2) the quenching rates are much higher in comparison to the small particle bed (series QH-1) due to the capillarity. In the cases of particulate debris coolability with coolant addition from the bottom (with downcomers), the coolant flow rate in the bed is greatly enhanced by steam formation. It was observed that during, both, top and bottom addition of water, the bottom quenching dominates the quenching process.

Table 3 lists the experimental results for the stratified particle beds. Focus of the experiments is on the effects of particle configurations (such as porosity, mean particle size and the thickness) of the fine particle layer, resting on the top of another latter, on the quenching rate. Six experiments were performed with and without a downcomer and at different coolant temperatures. It was found that cooling times in the series QH-2 and QS-1 are quite close. It may be explained by the reason that the average mean particle diameters were very close, 0.8 and 0.7 mm in these two sets of experiments, respectively. In the stratified test a big enhancement in quenching rate by downcomers was also observed.

Table 1. Experimental results of quenching tests for homogeneous particle bed (porosity - 0.4, mean particle size - 0.2 mm)

Test N	Dwcm	Water Temperature °C	Power supply W	Bed temperature, °C	Quenching time, sec	Steam discharge rate, 10 ⁻³ kg/s
QH-11	No	20	4600	450	22000	0.08
QH-12	No	90	4600	450	9300	0.15
QH-13	Yes(1)	20	4600	450	3000	0.55
QH-14	Yes(1)	90	4600	450	6000	0.7
QH-15	Yes(5)	20	4600	450	200	1.
QH-16	Yes(5)	90	4600	450	1200	1.7

Table 2. Experimental results of quenching tests for homogeneous particle bed (porosity - 0.26, mean particle size - 0.8 mm)

Test N	Dwcm	Water Temperature °C	Power supply W	Bed temperature, °C	Quenching time, sec	Steam discharge rate, 10 ⁻³ kg/s
QH-21	No	20	4600	450	2800	0.1
QH-22	No	90	4600	450	1650	2.
QH-23	Yes(1)	20	4600	450	900	0.7
QH-24	Yes(1)	90	4600	450	1200	3.
QH-25	Yes(5)	20	4600	450	200	1.
QH-26	Yes(5)	90	4600	450	700	5.

Table 3 Experimental results of quenching tests for stratified particle bed (Upper layer (130 mm): porosity - 0.4, mean particle size - 0.2; Lower layer (240 mm): porosity - 0.36, mean particle size - 1 mm)}

Test N	Dwcm	Water Temperature °C	Power supply W	Bed temperature, °C	Quenching time, sec	Steam discharge rate, 10 ⁻³ kg/s
QS-11	No	20	4600	450	1900	1.
QS-12	No	90	4600	450	1600	3.
QS-13	Yes(1)	20	4600	450	700	5.
QS-14	Yes(1)	90	4600	450	1000	6.5
QS-15	Yes(5)	20	4600	450	200	10.
QS-16	Yes(5)	90	4600	450	300	15

From the temperature histories at various locations in the particulate layer, the quenching time was determined by noting a rapid drop in the particle temperature to about the saturation temperature of water at the system pressure. In all the tests, while keeping the mean temperature the same (450°C), the temperatures in the lower and upper portions of the bed before quenching were slightly less (400°C) due to heat loss to environment. The experiments show the quench front histories of the tests QH-11 and QH-12 in comparison to the case of penetration of the water at 20°C into the bed, heated up to 450°C without internal heat generation. As it was noticed in the all top flooding tests the almost saturated water penetrates down faster. It can be explained by the fact that the steam dynamic viscosity is much lower compare to water and, hence, due to the Darcy law steam velocity is much higher. A simple zero-dimensional integral analysis has been performed based on consideration of hydrodynamic flooding due to steam formation. The analysis applies for both the cases of only top flooding, and of flooding from the top and bottom by the water delivered by downcomers. The basic assumptions are that the penetration of the quench water is uniform across the bed cross section and the steam is generated immediately after contact of water with the solid particles, and the steam heats up the water overlayer. In addition, it is assumed that the hot particles are completely quenched and cooled to water saturation temperature as the water penetrates in the bed. The quenching rate of the bed is directly proportional to the penetration rate. The results show that the model can predict the quenching time very well. It can be concluded from POMECCO quenching program that in the tests with only top flooding quenching process was faster when coolant temperature was higher. In the cases of quenching with downcomers, the quenching time was tremendously reduced. But in these cases quenching by lower temperature coolant was more intensive since more water per unit time could be delivered through the 'hot' downcomers. It was also observed that during, both, top and bottom addition of water, the bottom quenching dominates the quenching process.

4. Melt-vessel interaction (FOREVER program)

FOREVER (Failure Of REactor VESsel Retention) experiment is an integral test investigating the creep failure of a 1:10 scale reactor pressure vessel under the combined thermal and pressure loadings. It simulates the late stages of in-vessel-melt progression under nuclear reactor severe accident scenario. The objectives of the EC-FOREVER tests are to obtain multiaxial creep deformation and vessel failure mode data for the prototypical vessel geometry (scaled 1:10), under prototypical thermal and pressure loading conditions. The distinguishing feature of this test in comparison to the LHF and OLHF tests (performed at SNL, USA) is the high temperature conditions in the vessel (950-1100°C) as compared to ~ 800°C in all the LHF tests; and medium pressure, prototypic, loadings (2.5 MPa) as compared to 5-10 MPa in all the LHF tests. The scenario modelled for the FOREVER tests is the vessel depressurized scenario. The facility employs a 1/10 scaled 15 MND5- (FRAMATOM)-French steel (material obtained from FRAMATOME) lower head (hemispherical in shape) of 400 mm outer diameter, with 15 mm wall thickness. A cylindrical shell of 15Mo3-German steel, of 400 mm height and thickness of 15 mm, was welded to hemispherical lower head to make a complete vessel. To examine the real situation of nuclear reactor vessel, eight penetration rods (4 mm diameter) of Inconel 600 were welded in hemispherical half of the vessel. These penetration rods span from 15 o to 55 o from the bottom. Details of these are shown in Figs. 11 and 12. A high temperature oxide melt ($T_{liq} \approx 1027^{\circ}\text{C}$) made of 30 wt%CaO-70 wt%B₂O₃ was melted in an inductively heated (50 kW max) SiC crucible. A custom made MoSi₂ (45 kWmax) electrical heater was employed to heat up the melt in the vessel and maintain a melt pool temperature of ~1300°C. The corresponding external wall temperature (based on pre-test calculations from MVITA and ANSYS) should be in the range 950 – 1000°C. The vessel was pressurised using an argon reservoir, to about 2.5 MPa in the EC-FOREVER-3 and 3(B) tests. The measurements were made with 34 thermocouples, 22 LPTs (Linear Position Transducers) and one pressure transducer. The thermocouples were located at 7 angular positions on either side of the vessel wall, both inside and outside, and also, at 6 different locations along the centreline in the melt pool. There were 5 LPT on similar angular positions on either side of outer vessel wall and one LPT at very bottom of the outer vessel wall, to measure the displacement due to initial thermal expansion and creep. This arrangement is shown Fig. 11. Thin walled (~ 1 mm) steel tubes, 4 mm diameter, were used to protect the internal thermocouples from corrosive action of the melt. A KANTHAL tube was employed to protect the centreline thermocouples.

"FOREVER" FACILITY: Instrument Rods locations

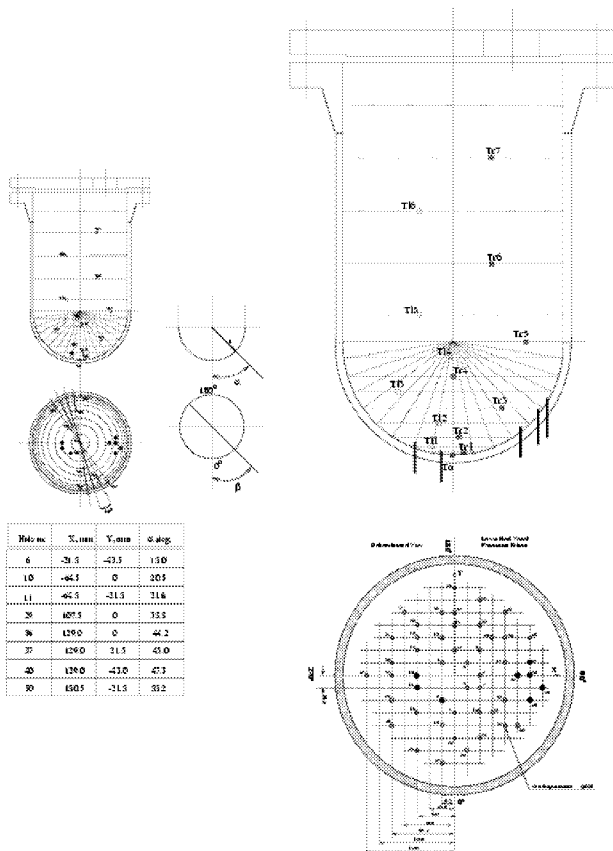


Figure 11 The internal thermocouples arrangement and their protections pipes.

Instrumentation Rods Welding

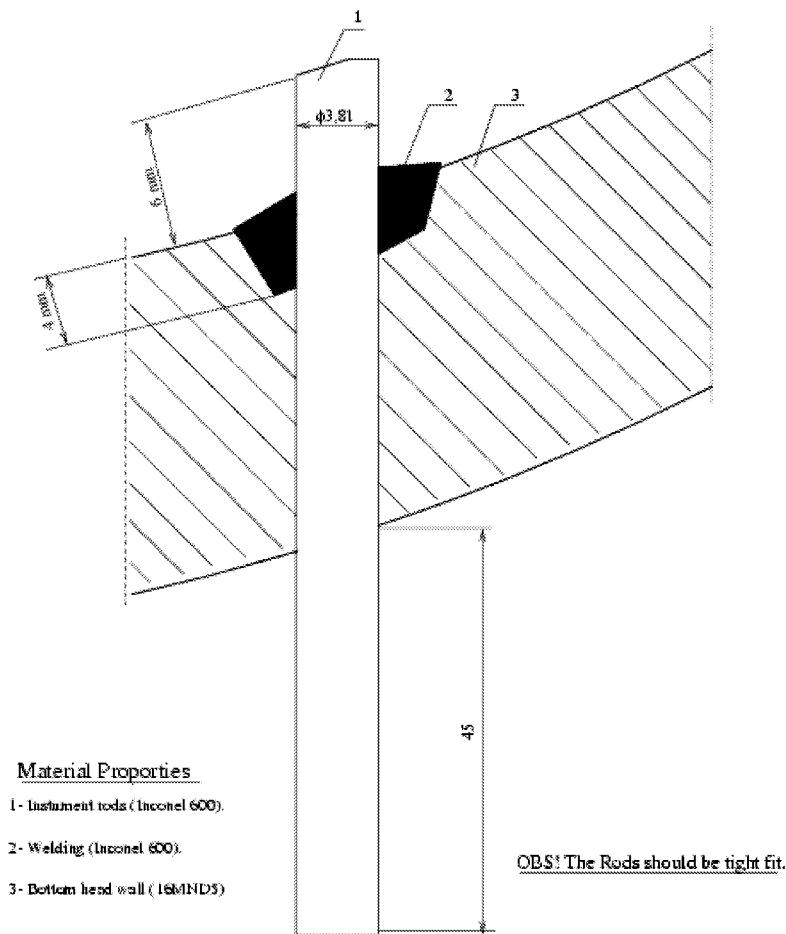


Figure 12 The Penetration and its welding specifications.

The EC-FOREVER-3 test was performed in May, 2001, with 14.5 liter of simulant melt, the failure of vessel was achieved, however, only small amount of creep was observed. The failure occurred at the welding location, which is similar to that in the EC-FOREVER-1 test. The decision was then made that the test will be repeated. Smaller amount of melt will be employed. The test was then named EC-FOREVER 3(B). The EC-FOREVER-3(B) experiment was performed on 26th July, 2001. About 12.3 litres of binary oxide melt was generated in the induction furnace and poured in to the test vessel, remotely from outside the containment where the FOREVER test facility was situated. The melt volume in this test was 1.7 litres less than that in the previous EC-3 test. It was confirmed that melt was only in hemispherical part of the vessel, which was essential to prevent the undesirable failure at the welding zone (i.e. between hemispherical and cylindrical part) which occurred in EC-3. It should be mentioned here that the selection of 12.3 litre melt in the present experiment is not arbitrary. The volume of hemisphere was measured with water. This was essential since theoretical volume shows around 1.5 litres more. The reason for discrepancy is due to construction tolerances during the head forging process. The vessel was preheated to about 300°C to avoid thermal shock on various installations inside the vessel. After preheating, heater power was switched off and then binary oxide melt was poured into the vessel. After the melt was poured, heater power was switched on and time was allowed for melt pool convection to reach steady state (by observation from the recorded thermocouple readings) and then the vessel was pressurised.

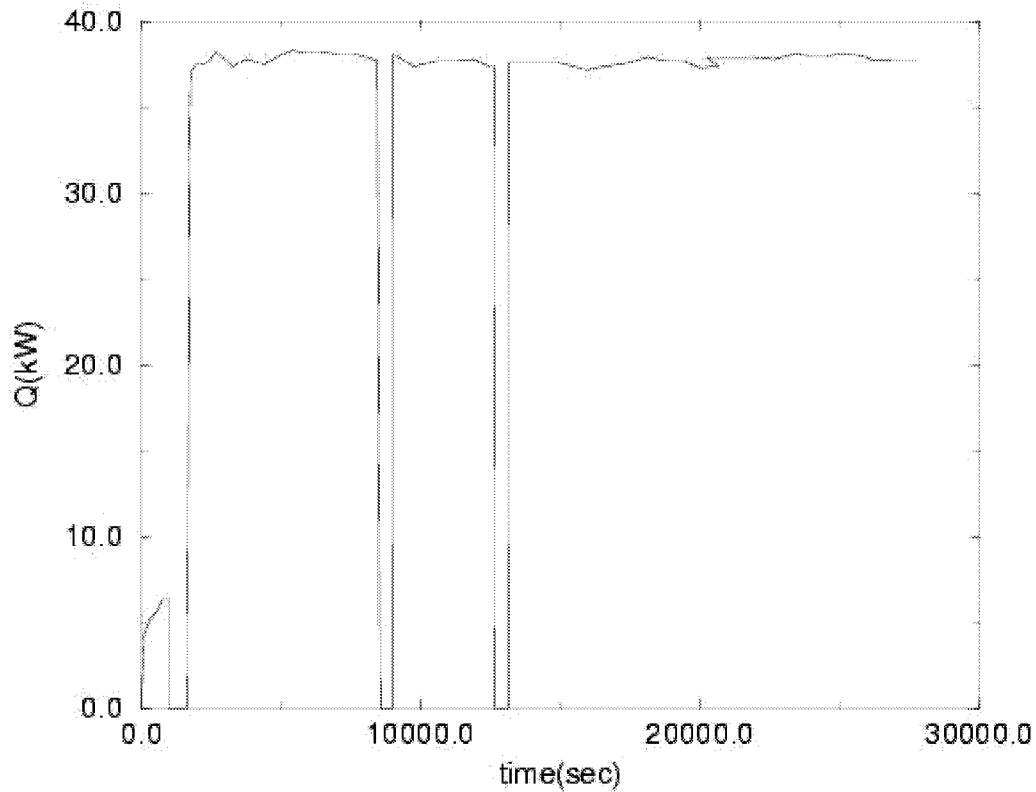


Figure 13. The power supply history

Fig. 14 shows the data from the right side LPTs along with the history of pressurisation. Fig. 15 shows the data from the left side LPTs. The external wall temperatures are shown in Figs. 16 & 17. From these figures it can be realised that as soon as the heater power was increased to 38 kW, the external wall temperatures (Figs. 16 & 17) as well as the wall displacements (Figs. 14 & 15) started to increase. Temperatures reached their maximum value in about 25 minutes. Figures 14 and 15 shows the sensitivity of the displacement/creep to the temperature. Two humps (at around 8400sec and 12600sec) in the above Figs. 14-17 are related to power supply cut off (see Fig. 13). The decrease in the external wall temperatures observed in the Figs. 16 & 17 may be attributed to, mainly, the uncovering of the heater due to vessel expansion and as a result less power being delivered to the melt. The maximum external wall temperature recorded was $\sim 900^{\circ}\text{C}$, between the angles 60° - 70° . The maximum displacement, of ~ 32 mm, was measured between the angles 45° - 60° . This corresponds to $\sim 16\%$ strain at failure.

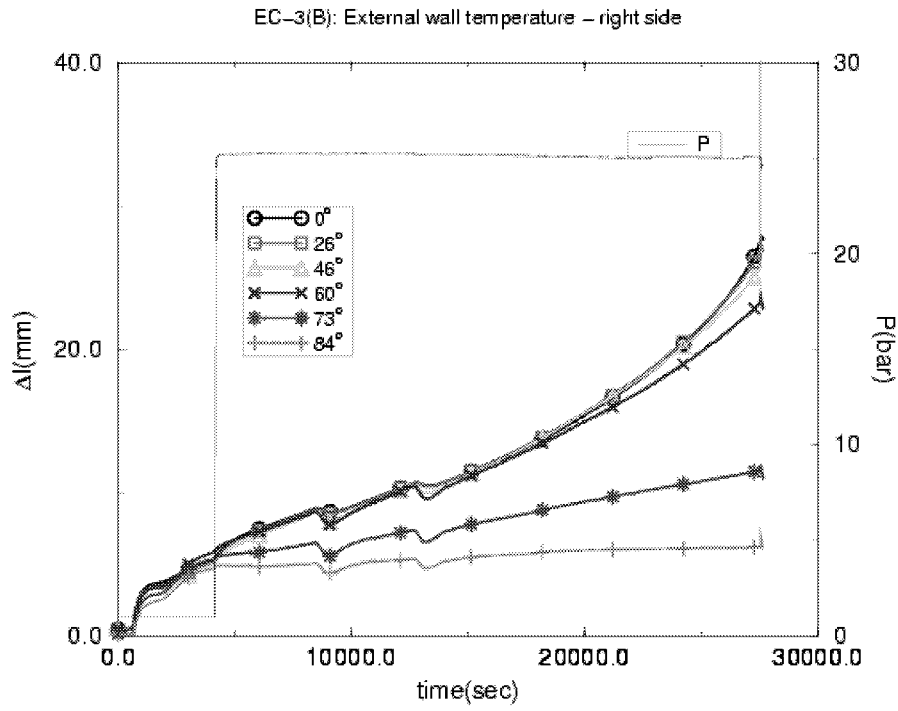


Figure: 14 The data from the right side LPTs and pressure.

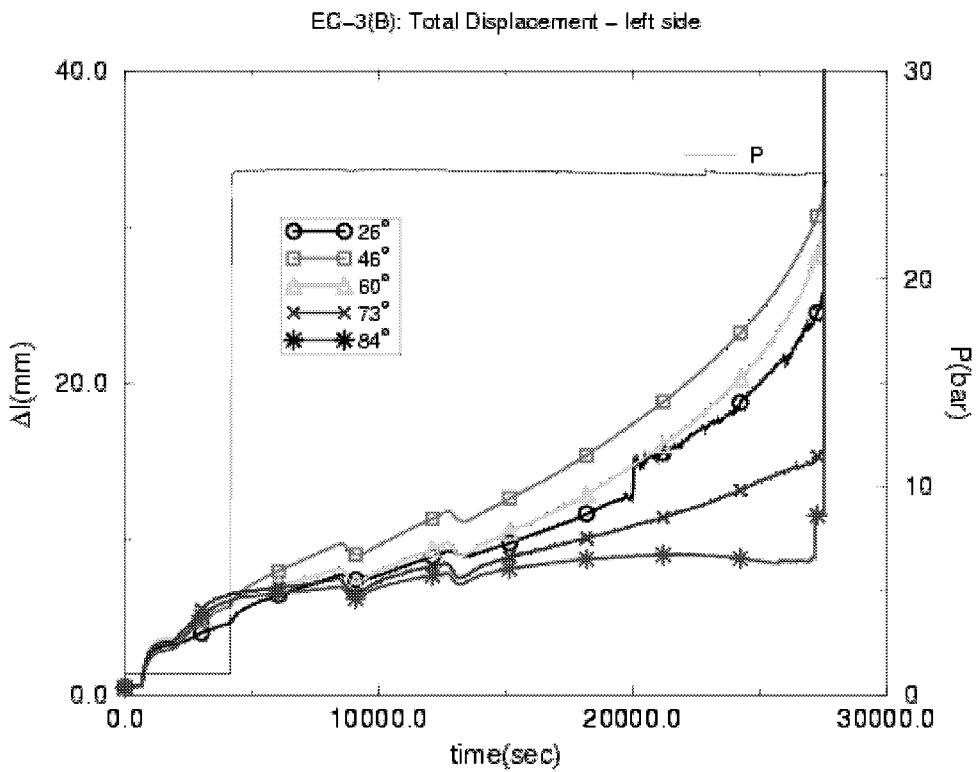


Figure 15 The data from the left side LPTs and pressure

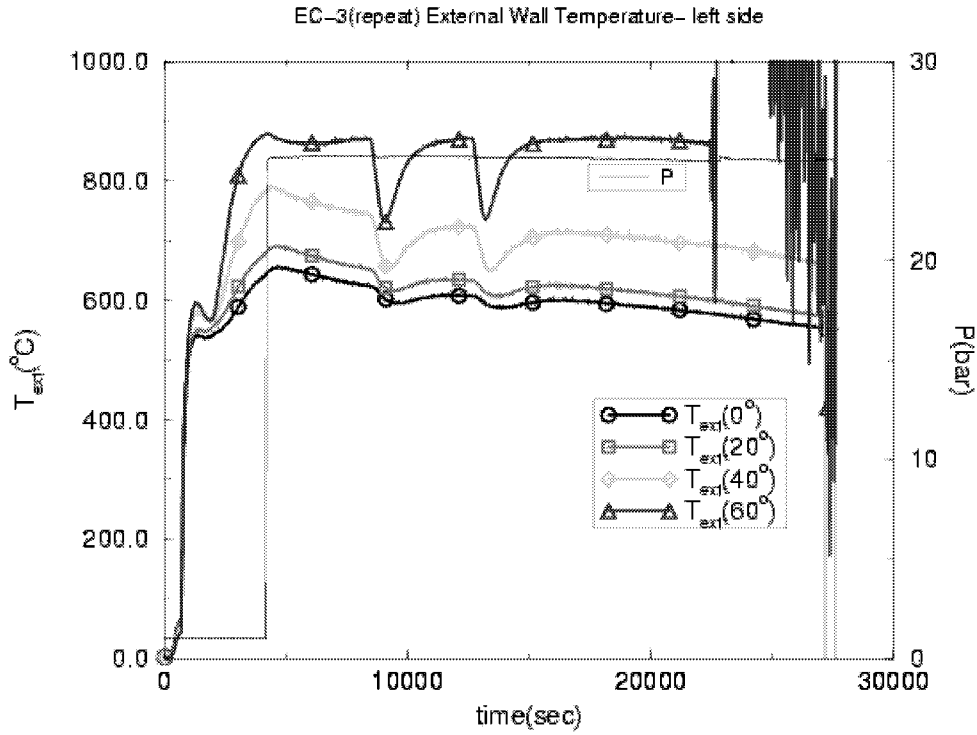


Figure 16 The time history of right side external thermocouples and Pressure.

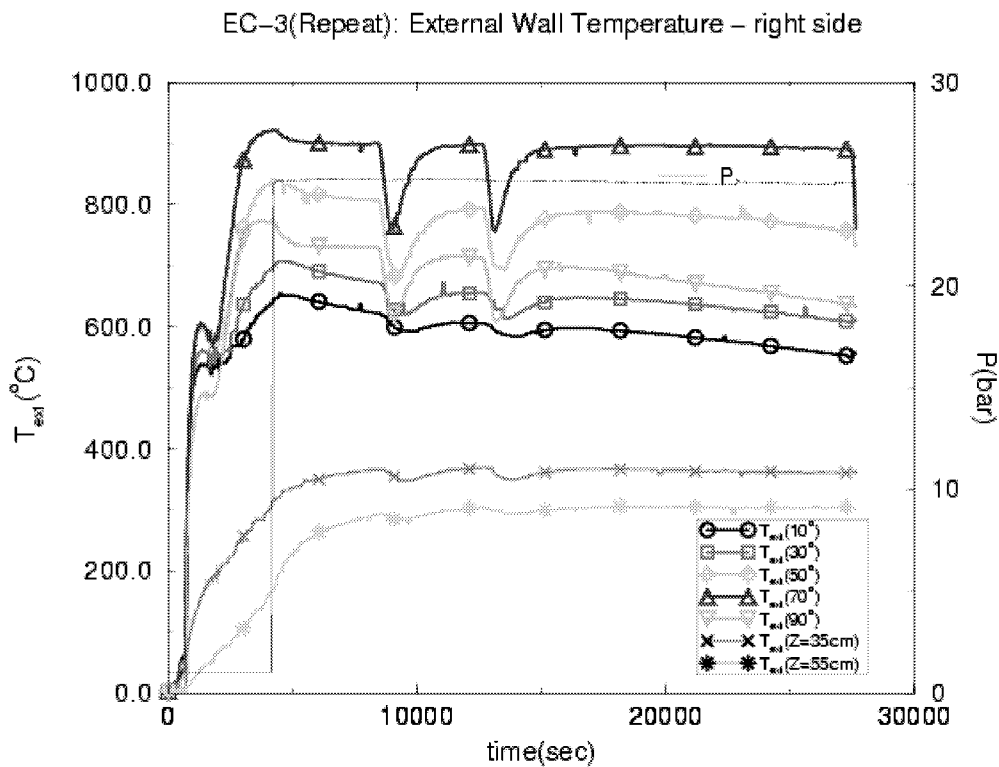


Figure: 17 The time history of left side external thermocouples and Pressure.

The Figs. 18 & 19 show the view of the vessel at room temperature and at failure. The failure occurred at an angle of around 70° , which lies in the region of maximum temperature and not in the region of maximum displacement. This is an important observation. The present observation is consistent with previous EC-tests. Further it may be pointed out that failure did not occur at any penetration which spans from 15 to 55° . This is a significant difference from the LHF and OLHF experiments performed at Sandia.

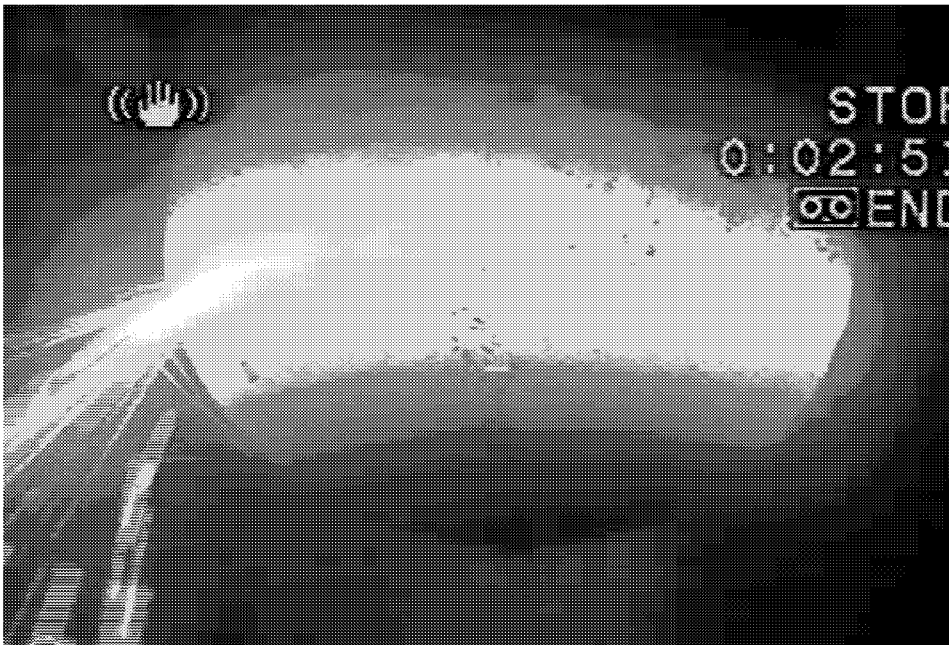


Figure: 18 Cold vessel, before melt pouring

Figure: 19 The vessel during failure

The vessel failure occurred about 6 hours after pressurisation (see Figs. 14 & 15). Comparing with the EC-3 test results, the failure occurred about 4 hours later. The fact that during the experiment power went off twice, we lost around 1 hour 30 minutes during the process to get back to the earlier conditions. Still failure time is much longer than the previous EC-3 experiment and also greater than that in EC-2 test. The opening at the failure site was like a fish-mouth (Fig. 20) as was the case of EC-2 test and this occurred at an angle of around 70° from the bottom of the vessel. So the failure did not occur at a penetration. It remains to be seen whether penetrations are the cause of delayed failure.

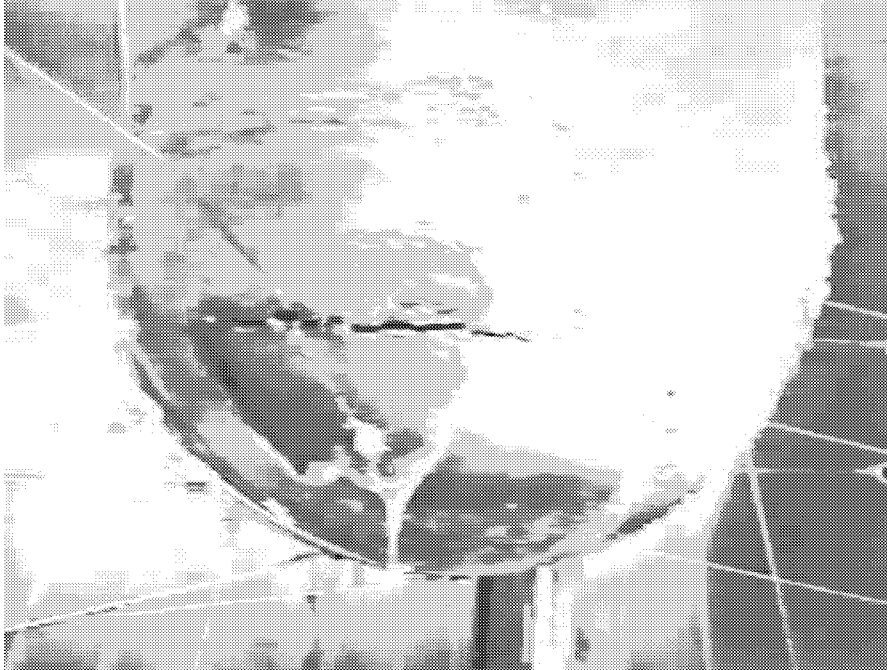


Figure: 20 The failure site and its shape

Perhaps, the most persistent observation from all of the EC-FOREVER tests is that the mode of vessel failure is a brittle failure of finite circumferential angle and relatively small opening (< 2 cm). This failure occurs in the hot zone of the vessel wall, i.e. where the temperatures are the highest. As soon as the pressure is relieved, the rupture crack propagation stops. Only a part (~ 40%) of the melt is discharged through the failure location, which is quite different from the currently assumed discharge of 100% of the melt pool in the vessel. These results are different from those found in the Sandia tests (USNRC Program LHF and the OECD Program OLHF), mainly because the Sandia tests do not provide melt pool convection and the resulting angular variation of vessel wall temperature.

Bewertung 2001 und Ausblick 2002

The research program has resulted in many peer-reviewed publications in the year 2001. We are presenting a selection (see "Referenzen") which provides, (i) description of the experimental program and results on melt droplet-water interaction, melt jet fragmentation, corium coolability, vessel creep; and (ii) description of the analysis models and results dealing with the thermal hydraulic behavior occurring during the melt-water interaction, debris bed coolability, and melt-vessel interaction processes.

We believe that significant technical advances have been achieved during the course of these studies at RIT/NPS during 2001. It was found that:

Single drop steam explosion:

The experimental facility for the single drop MFCI experiments was completed and is functioning. A number of scoping tests were successfully conducted. The facility is equipped with the remote control system and the time control system for entire experimental process and the needed instrumentation. It also includes a new induction furnace system to generate various high-temperature melt drops.

DECOBI Program:

For the case of high temperature oxide mixture which has high viscosity, the porosity was formed locally above the nozzles, in the form of branched-channels, spanning 2-3 cm. The melt quenched rapidly in this portion. In two experiments performed using near-saturated water the quenching of the melt did not occur. In all the experiments performed using low viscosity oxide melt, the porosity was uniformly distributed in the debris and quenching occurred in all parts of the melt.

A general conclusion that can be drawn out of the DECOBI experiments is that the cooling (solidification and quenching) of a melt pool by coolant bottom injection can be effective for a molten oxide pool. The porosity formed during the pool-coolant interaction allows continuous passage of coolant even after solidification so that the complete coolability of the melt can be achieved eventually.

POMECO quenching program:

In the tests with only top flooding the quenching process was faster when coolant temperature was higher. In the cases of quenching with downcomers, the quenching time was tremendously reduced. In the cases with a downcomer the quenching by lower temperature coolant was more intensive since more water per unit time could be delivered through the 'hot' downcomers. It was also observed that during, both, top and bottom addition of water, the bottom quenching dominates the quenching process.

FOREVER program:

The most persistent observation clear from the data obtained on the first four EC-FOREVER tests, is that the mode of vessel failure is a brittle failure of finite circumferential angle and relatively small opening (< 2 cm). The failure occurs in the hot zone of the vessel wall, i.e. where the temperatures are the highest. As soon as the pressure is relieved, the rupture crack propagation stops. Part (~ 40%) of the melt is discharged through the failure location, which is quite different from the currently assumed discharge of 100% of the melt pool in the vessel. These results are different from those found in the Sandia tests (USNRC Program LHF and the OECD Program OLHF), mainly because the Sandia tests do not provide melt pool convection and the resulting angular variation of vessel wall temperature.

These studies will be continued in the current research program at RIT/NPS sponsored by the Swedish Nuclear Power Inspectorate (SKI), Swiss Federal Nuclear Inspectorate (HSK), USNRC, the European Union, Swedish and Finnish power companies.

Referenzen

B.R. Sehgal, Nuclear Power safety in comparison with the safety of coal powered plants including all steps from extraction to waste disposal, Proceedings of the World Congress on safety of Modern Technical Systems, TuV Saarland Foundation, Saarbruechen, Germany, Sept. 12-14, 2001.

W. Steinwarz, et al. Ex-vessel core melt stabilization research (ECOSTAR), FISA-2001, Luxembourg, 12-14 November, 2001.

B.R. Sehgal, et al. Assessment of reactor vessel integrity (ARVI). FISA-2001, Luxembourg, 12-14 November, 2001.

J.M. Seiler, B.R. Sehgal, et al. European group for analysis of corium recovery concepts (EUROCORE). FISA-2001, Luxembourg, 12-14 November, 2001.

B.R. Sehgal, M.J. Konovalikhin, Z.L. Yang, I.V. Kazachkov, M. Amjad, G.J.Li, Investigations on porous media coolability, KTH report, 2001.

B.R. Sehgal, D. Paladino, A. Theerthan, I. Kazachkov, Phenomenological studies on melt coolability by bottom injection during severe accidents. KTH Report, 2001.

B.R. Sehgal, M.J. Konovalikhin, D. Paladino, A. Theerthan, Melt pool and debris coolability experiments and modeling, European Two-Phase Flow Meeting Aveiro, Portugal, June 18-20, 2001.

A.A.Gubaidullin, Jr. and B.R. Sehgal, "Numerical analysis of natural convection in a double-layer immiscible system", CD-ROM Proceedings of ICONE-9, Nice, France, April, 2001

H.O. Haraldsson, H.X. Li, Z.L. Yang, T.N. Dinh and B.R. Sehgal, Effect of solidification on drop fragmentation in liquid-liquid media, Heat and Mass Transfer 37 (2001) 417-426.

- M.J. Konovalikhin, M. Amjad and B.R. Sehgal, "Investigation of Volumetrically Heated Debris Bed Quenching", ICONE-9, Nice, France, 2001.
- M.J. Konovalikhin, I.V. Kazachkov and B.R. Sehgal, "Dryout Heat Flux in a Low Porosity Volumetrically Heated Particle Bed", 4th International Conference on Multiphase Flows (ICMF-4), New Orleans, LA, USA, May, 2001
- D. Paladino, A. Theerthan and B.R. Sehgal, Direct contact cooling of molten pool with bottom coolant injection with submerged nozzles, 4th International Conference on Multiphase Flow, New Orleans, Louisiana, U.S.A., June, 2001.
- D. Paladino, A. Theerthan and B.R. Sehgal, Analysis of experiments on ex-vessel debris coolability by bottom coolant injection, ICONE-9, France, 2001.
- Park, Hyun Sun, Kazachkov, Ivan, Sehgal B.R., Maruyama Yu, and Sugimoto Jun, "Analysis of Plunging Jet Penetration into Liquid Pool in Isothermal Conditions," ICMF 2001: Fourth International Conference on Multiphase Flow, New Orleans, Louisiana, U.S.A., May 27 - June 1, 2001
- S.A. Theerthan, G. Kolb and B.R. Sehgal, Double diffusive convection in a semicircular slice with internal heat generation in one or both layers, *Experimental Heat Transfer*, 14:283-297, 2001.
- S.A. Theerthan, A. Karbojian and B.R. Sehgal, "FOREVER experiments on thermal and mechanical behavior of reactor pressure vessel during a severe accident: EC-FOREVER-1 test. SMiRT-16, Washington DC, USA, Aug. 12-17, 2001
- Z.L. Yang, T.N. Dinh, R.R. Nourgaliev and B.R. Sehgal, "Numerical Investigation of Bubble Growth and Detachment by the Lattice-Boltzmann Method", *Int. J. Heat and Mass transfer*, Vol. 44, pp.195-206, 2001.
- Z.L. Yang, T.N. Dinh, R.R. Nourgaliev and B.R. Sehgal, "Numerical Investigation of Boiling Regime Transition Mechanism by a Lattice-Boltzmann Model", *Nuclear Engineering and Design*, Vol. 204, pp.143-153, 2001.
- Z.L. Yang and B.R. Sehgal, Cooling of an internal-heated porous debris bed with fine particles, ICONE-9, Nice, France, April, 2001
- Z.L. Yang, B. Palm and B.R. Sehgal, Numerical simulation on regime transition behavior of two-phase flow in a narrow channel. The fourth International Conference on Multiphase Flow, New Orleans, Louisiana, U.S.A., May 27 - June 1, 2001



Datum: 21. Februar 2002

Von: M. Zünd

PROJEKTBEGLEITERBEWERTUNG 2001 OECD HALDEN REACTOR PROJEKT

Einleitung, allgemeine Bemerkungen

Das **OECD Halden Reaktor-Projekt** ist das grösste Gemeinschaftsprojekt der *OECD* und bildet mit rund 100 Teilnehmern aus 20 Ländern ein wichtiges, internationales Netzwerk in den Bereichen Brennstoffe, Werkstoffe, Kraftwerkbetrieb sowie menschliche Faktoren. Das aktuelle Programm läuft Ende 2002 aus; der Programmvorschlag für die Jahre 2003 – 2005 wurde im Vernehmlassungsverfahren bereinigt und wird im Juni 2002 verabschiedet.

Wurden die Projektziele des Jahres 2001 erreicht?

Weil die Verfügbarkeit des Reaktors wegen eines Schadens an einem Brennelement zu Beginn des Jahres eingeschränkt war, erfuhren mehrere Experimente Verzögerungen. Das Budget 2001 konnte jedoch eingehalten werden.

[1] Fuels & Materials Research

Zum Brennstoff- und Materialverhalten wurden im Haldenreaktor im Jahr 2001 total 14 Experimente durchgeführt. Einige der wichtigsten Resultate sind die folgenden:

- Betriebsverhalten von Inertmatrix-Brennstoff (IMF): Untersuchung der Bestrahlungseigenschaften von stabilisiertem Zirkoniumoxyd, (Inertmatrix-Brennstoff, vom PSI hergestellt) das als Trägermaterial für Plutonium dient. Dadurch lässt sich Pu spalten ohne neues zu erzeugen, wie es bei MOX Brennstoff der Fall ist. Die Experimente sind sehr erfolgreich angelaufen. Nach der Leistungserhöhung des Testbrennstoffs konnte gezeigt werden, dass die Spaltgasfreisetzung früher eintritt als beim gleichzeitig bestrahlten Referenzbrennstoff (Standard MOX).
- Risswachstum in rostfreien Stählen: Neu wurde dieses Experiment unter Druckwasserreaktorbedingungen durchgeführt. Wie in früheren Experimenten unter Siedewasserreaktorbedingungen hat sich auch hier gezeigt, dass reduzierende Bedingungen bei hohen Neutronenfluenzen, wie in diesem Experiment vorhanden (10 bis 35 dpa, displacements per atom), ihren positiven Einfluss verlieren.
- Bestrahlung verschiedener Brennstoffe zur Erzeugung der sogenannten „Rimstruktur“ (Abbrandziel 100 MWd/kg): Die Messungen werden Rückschlüsse auf den Diffusionskoeffizienten in den verschiedenen Brennstoffen ermöglichen (UO₂ mit und ohne Zusätze zur Beeinflussung der Korngrösse, homogener und inhomogener MOX-Brennstoff).
- Kontrollierte Leistungserhöhung von MOX-Brennstoff (Abbrand 64 MWd/kg): Wie bereits bei ähnlichen Experimenten mit MOX-Brennstoff konnte festgestellt werden, dass Spaltgasfreisetzung bei Erreichen von etwa der gleichen Brennstofftemperatur beginnt wie bei UO₂ Brennstoff. Das Ziel dieser Versuche ist, die erforderlichen Betriebsdaten für die Lizenzierung des erhöhten Abbrands zu erarbeiten.
- Rückwirkung von hohem Stabinnendruck auf die Temperaturen im Brennstoff („rod overpressure / clad lift-off“): Mit Hilfe dieser Experimente soll eine Datenbank zur Verifizierung von Brennstabmodellen und zum Nachweis des Einhaltens von Genehmigungskriterien aufgebaut werden. Im aktuellen Experiment (UO₂ mit 59 MWd/kg Abbrand aus einem Druckwasserreaktor) zeigte sich, dass ein Stabinnendruck von etwa 300 bar, das heisst 145 bar über dem Systemdruck, erreicht werden kann, ehe eine Rückwirkung auf das Temperaturverhalten erfolgt.

[2] Man-Machine System Research

Die wichtigsten Arbeiten des Jahres 2001 sind die folgenden:

- Fertigstellung einer neuen Version von COPMA (computerised procedure manual) zur Erstellung und Instandhaltung von rechnergestützten Prozeduren: COPMA wird im ungarischen Kernkraftwerk Paks eingesetzt und auch im Zusammenhang mit dem HAMMLAB-Simulator HAMBO angewendet.
- Anwendung des Siedewasserreaktor-Simulators HAMBO: Etwa 20 rechnerbasierte Prozeduren wurden im Simulator implementiert um zu testen, ob rechnerbasierte Prozeduren den Operateur besser unterstützen als Papierausgaben.
- HAMMLAB-Experiment "Ausfall von Systemteilen für Kontrolle, Strategiewahl und Informationsdarstellung": Die Manipulation der Kontroll- und Präsentationssysteme führte zu Änderungen der Operateurleistung.
- Performance recovery: Identifikation der Mechanismen, die zur Wiederherstellung der Leistungsfähigkeit eines Systems beitragen. Es sind dies Faktoren wie "Verstehen der Situation", "Entwicklung des Prozessverlaufs", "Information durch Prozessanzeigen (Bildschirme)", und "Diskussion und Informationsaustausch mit den Teammitgliedern".
- Erprobung des Systems TEMPO (Thermal Performance Monitoring and Optimisation): Das System hat der Betriebsmannschaft des Forsmark Siedewasserreaktors bereits Hinweise zur Leistung des Reaktors gegeben, und Vorschläge zur Erweiterung des Systems sind vorgebracht worden. Anwendungen für Druckwasserreaktoren sind mit Dtn und Tecnatom in Spanien vereinbart.

Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?

Die Beteiligung am Halden Projekt erlaubt der HSK den Zugriff auf den aktuellsten Stand von Wissenschaft und Technik in den Bereichen der Brennstoffe, der Werkstoffe und der menschlichen Faktoren. Es liegt somit eine international abgesicherte wissenschaftliche Basis vor, aufgrund derer Kriterien und Richtlinien für den zukünftigen Einsatz der neuen Brennstoffe und Materialien und für verbesserte Sicherheitsbestimmungen abgeleitet werden können.

Durch das Projekt, bzw. durch das Schweizerische Halden Komitee und die beiden Fachgruppen, erfolgt zudem ein laufender Informationsaustausch und ein wertvoller Knowhow Transfer zwischen dem Halden Projekt, der HSK, dem PSI und den Betreibern.

Ausblick und Verbesserungsvorschläge

Im Bereich "Man-Machine-Systems" gewinnen die organisatorischen Aspekte zunehmend an Bedeutung. Um diesem Umstand Rechnung zu tragen, wurde dieser Bereich im Verlaufe des Jahres in "Man-Technology-Organisation (MTO)" umbenannt.

Die Möglichkeit "Secondees" nach Halden zu entsenden, wird von den Partnerländern zuwenig genutzt, wodurch der direkte Wissenstransfer leidet. Aufgrund der ausdrücklichen Aufforderung des Halden Programm Komitees, hat die Schweiz damit begonnen, einen geeigneten Schweizer Seconde-Kandidaten zu identifizieren.

Im Jahr 2002 werden für alle Bereiche des Halden Reaktor Projektes sogenannte "lessons learnt" Berichte erstellt werden, welche Rückschlüsse auf die Effektivität des Projektes zulassen werden.

Im neuen Programm 2003 – 2005 werden die meisten Experimente weitergeführt. Allerdings soll das Controlling verstärkt werden. Insbesondere soll die regelmässige Überprüfung der Ausrichtung der Forschungsarbeiten durch das Halden Board und Komitee intensiviert werden.

21.02.2002

Marianne Zünd

OECD Halden Reactor Project Nuclear Safety and Reliability & Man-Machine- Systems Research

Autor und Koautoren	W. Wiesenack, F. Øwre
beauftragte Institution	OECD Halden Reactor Project
Adresse	1750 Halden, Norwegen
Telefon, E-mail, Internetadresse	wolfgang.wiesenack@hrp.no, http://www.ife.no/hrp
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	2277
Dauer des Projekts	2000 - 2002

Zusammenfassung

Das OECD Halden Reactor Project ist eine Zusammenarbeit von 20 Ländern auf dem Gebiet der Forschung zur Reaktorsicherheit. Die Schweiz, federführend vertreten durch die HSK, nimmt am laufenden Drei-Jahresprogramm (2000 – 2002) teil. Schwerpunkte dieses Programms sind auf der einen Seite Untersuchungen zum Verhalten von Brennstoffen und Materialien unter normalen und transienten Bedingungen und auf der anderen Seite Untersuchungen mit dem Ziel, quantitative Kenntnisse bezüglich der Leistungsfähigkeit und der Grenzen von Menschen bei der Überwachung und Steuerung komplexer Systeme zu erlangen. Dabei werden als wichtigste Einrichtungen der Halden-Reaktor und das Halden Man-Machine-Laboratory (HAMMLAB) eingesetzt.

Im Halden-Reaktor waren im Berichtszeitraum 14 zum Gemeinschaftsprogramm gehörende Experimente installiert. In diesen Experimenten werden keramische Brennstoffe (UO₂, MOX, inert matrix) und Hüllrohrmaterialien bezüglich ihres Betriebsverhaltens untersucht, wobei typische Messgrößen die Brennstofftemperatur, die Spaltgasfreisetzung und Dimensionsänderungen von Brennstoff und Hüllrohr sind. Im inert Matrix Experiment, für das das Paul Scherrer Institut den Brennstoff (Pu in Yttria-stabilisiertem Zirkoniumoxyd) produziert hat, wurde eine Leistungserhöhung durchgeführt und die Spaltgasfreisetzung aus diesem innovativen Brennstoff gemessen. Weiterhin werden für Reaktorstrukturen verwendete rostfreie Stähle bezüglich Risswachstum unter Bestrahlung sowie strahlungsinduzierten Veränderungen der Eigenschaften untersucht. Hier wurden erstmals Erkenntnisse zum Risswachstum unter Druckwasserreaktorbedingungen für Stähle mit hohen Neutronenfluenzen gewonnen.

Im Bereich „man-machine systems research“ wurden das Halden Man-Machine-Laboratory benutzt für Untersuchungen zur Frage, wie ein teilweiser Ausfall von Systemen zur Informationsvermittlung das Verhalten und die Leistung der Operateure beeinflusst und welche Faktoren zur Wiedererlangungen der Leistungsfähigkeit wesentlich sind. Dabei konnten einige Hypothesen bestätigt werden, während andere eine stärkere Manipulation der Systeme verlangen, um zu einer qualifizierten Aussage zu kommen. Dieses ist in der Weiterführung vorgesehen. Weiterhin wurde ein verbessertes System zur rechnergestützten Darstellung und Wartung von Prozeduren bereitgestellt. Dieses System wird auch praktisch im HAMMLAB und im ungarischen Kernkraftwerk Paks eingesetzt, wobei gewonnene Erfahrungen in die weitere Entwicklung einfließen. Das System TEMPO (thermal performance monitoring and optimisation) wurde ebenfalls mit gutem Erfolg praktisch im schwedischen Siedewasserreaktor Forsmark erprobt. Die Anwendung in Druckwasserreaktoren ist mit Teilnehmern im Halden Reactor Project vereinbart.

1. Projektziele

Das OECD Halden Reactor Project ist eine internationale Zusammenarbeit mit dem Ziel, zur sicheren und wirtschaftlichen Nutzung der Kernenergie beizutragen. Experimentelle Arbeiten und Studien benutzen den Halden Reaktor (HBWR) und das Halden Mensch-Maschine Laboratorium (HAMMLAB) als wichtigste Einrichtungen.

Darauf aufbauend umfasst das Programm im Bereich der Untersuchungen zum Brennstoff- und Materialverhalten experimentelle Aktivitäten zum Verhalten verschiedener Brennstoffe im Normalbetrieb und bei Transienten mit Schwerpunkt auf Hochabbrand. Bei den Untersuchungen zu Fragen der Lebensdauer von Kernkomponenten steht das Spannungsrisskorrosionsverhalten von im Reaktorkern eingesetzten Strukturmaterialien im Vordergrund. Bezüglich dieser Untersuchungsbereiche waren im Jahr 2001 14 zum Gemeinschaftsprogramm gehörende Experimente im Halden Reaktor installiert. Dabei werden in starkem Masse vorbestrahlter, re-instrumentierter Brennstoff sowie Materialien mit hohen Neutronen-Fluenzen aus kommerziellen Leichtwasserreaktoren eingesetzt.

Die Sicherheitsforschung im Programmbereich „Man-Machine Systems Research“ hat zum Ziel, quantitative Kenntnisse bezüglich der Leistungsfähigkeit und der Grenzen von Menschen bei der Überwachung und Steuerung komplexer Systeme zu erlangen. Dazu werden Untersuchungen zum Verhalten von Operateuren in verschiedenen Situationen durchgeführt, wobei auch die Effizienz von rechnergestützten Hilfsmitteln und Arten der Informationsdarstellung beurteilt werden. Die Zuverlässigkeit automatisierter Systeme und sicherheitskritischer Software wird in diesem Zusammenhang ebenfalls untersucht und auch, wie Operateure mit dem Ausfall solcher Systeme zurechtkommen (human centered automation). Weiterhin werden Arbeiten zur Überwachung und Optimierung des Anlagenbetriebs durchgeführt.

Die geplanten Arbeiten sind allgemein im Rahmenprogramme für den Zeitraum 2000 – 2002 festgelegt und im einzelnen im detaillierten Programm für das Jahr 2001 /1/ beschrieben.

2. Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

2.1 Man-Machine-Systems Research

Im Bereich „man-machine systems research“ und speziell HAMMLAB wurden empirische Untersuchungen zum Zusammenspiel zwischen Operateuren und Kontroll- und Überwachungssystemen durchgeführt, um die Auswirkung von neuer Technologie, Betriebsprozeduren und Arbeitsmethoden auf die Sicherheit zu erfassen. Als wichtigste Arbeiten im Berichtszeitraum können genannt werden:

- Fertigstellung einer neuen Version von COPMA (computerised procedure manual), die die Erstellung und Instandhaltung von rechnergestützten Prozedursystemen erleichtert. Die neue Version benutzt XML/HTML, was die Behandlung unterschiedlicher Prozedurstrukturen und Darstellungsformate ermöglicht. COPMA wird im ungarischen Kernkraftwerk Paks eingesetzt und auch im Zusammenhang mit dem HAMMLAB-Siedewasserreaktor-Simulator HAMBO angewendet.
- Anwendung des Siedewasserreaktor-Simulators HAMBO nach Fertigstellung im Vorjahr. Etwa 20 rechnerbasierte Prozeduren wurden im Simulator implementiert mit dem Ziel zu testen, ob rechnerbasierte Prozeduren den Operateur besser unterstützen als Papierausgaben.
- Durchführung eines Experiments im HAMMLAB zur Fragestellung, wie der Ausfall von Teilen der Systeme für Kontrolle, Strategiewahl und Informationsdarstellung das Verhalten der Operateure beeinflusst. Hypothesen bezüglich der Änderung der Operateurleistung bei Manipulation der Kontroll- und Präsentationssysteme konnten bestätigt werden, während Hypothesen bezüglich psychologischer Faktoren (Einblick in die Situation, Vertrauen in das System, Selbstvertrauen, etc) durch die Studien nicht genügend unterstützt wurden. Aufbauend auf den Erfahrungen mit diesem Experiment wurde eine weitere Studie mit stärkerer Manipulation der Systemkomponenten, vor allem der Informationsdarstellung, geplant.
- Untersuchungen zur „performance recovery“. Ziel dieser Untersuchungen war es, die Mechanismen zu identifizieren, die zur Wiederherstellung der Leistungsfähigkeit eines Systems beitragen. Etwaige Konflikte zwischen Sicherheitszielen und Produktionszielen wurden dabei mit einbezogen. Die meist genannten Faktoren für performance recovery waren Verstehen der Situation, Entwicklung des Prozessverlaufs, Information von den Prozessanzeigen (Bildschirme), und Diskussion und Informationsaustausch mit den Teammitgliedern.

- Erprobung des Systems TEMPO (Thermal Performance Monitoring and Optimisation) im Forsmark Siedewasserreaktor. Das System hat der Betriebsmannschaft bereits wertvolle Hinweise zur Leistung des Reaktors gegeben, und Vorschläge zur Erweiterung des Systems sind vorgebracht worden. Anwendungen für Druckwasserreaktoren sind mit Dtn und Tecnomat in Spanien vereinbart.

2.2 Nuclear Safety and Reliability

Das Programm im Bereich der Untersuchungen zum Brennstoff- und Materialverhalten umfasste im Berichtsjahr insgesamt 14 Experimente im Haldenreaktor. Obwohl die Verfügbarkeit des Reaktors wegen eines umfassenden Schadens an einem Brennelement zu Beginn des Jahres eingeschränkt war, konnten trotzdem mehrere neue Experimente des internationalen Gemeinschaftsprogramms erstmals geladen werden. Ausserdem wurden für eine Reihe von Experimenten die Bestrahlungsbedingungen gemäss dem geplanten Programm variiert. Bei den meisten Experimenten werden dabei betriebsrelevante Grössen wie Brennstofftemperatur, Stabinnendruck, Längenänderungen und Risswachstum on-line erfasst und zur weiteren Auswertung bereitgestellt. Von der Vielzahl der so gewonnenen Ergebnisse sollen genannt werden:

- Untersuchungen zur Rückwirkung von hohem Stabinnendruck auf die Temperaturen im Brennstoff („rod overpressure / clad lift-off“). Ziel dieser Experimentserie ist der Aufbau einer Datenbasis zur Verifizierung von Brennstabmodellen und zum Nachweis des Einhaltens von Genehmigungskriterien zu diesem Problemkreis. Konkret zeigte sich im aktuellen Experiment aus dieser Serie (UO₂ mit 59 MWd/kg Abbrand aus einem Druckwasserreaktor), dass ein Stabinnendruck von etwa 300 bar, das heisst 145 bar über dem Systemdruck, erreicht werden kann, ehe eine Rückwirkung auf das Temperaturverhalten beobachtet werden kann.
- Kontrollierte Leistungserhöhung von MOX-Brennstoff (Abbrand 64 MWd/kg) bei gleichzeitiger Messung von Brennstoffzentraltemperatur und Stabinnendruck, um den Beginn signifikanter Spaltgasfreisetzung zu ermitteln. Beim aktuellen Brennstoff wurde vorher durch etwa zweijährige Weiterbestrahlung im Haldenreaktor eine Abbranderhöhung vorgenommen, um bei einem höheren Abbrand als in kommerziellen LWR standardmässig erreichbar testen zu können. Ziel ist letztendlich, die erforderlichen Betriebsdaten für die Lizenzierung des erhöhten Abbrands zu erlangen. Wie schon in bei ähnlichen Experimenten mit MOX-Brennstoff konnte festgestellt werden, dass Spaltgasfreisetzung bei Erreichen von etwa der gleichen Brennstofftemperatur beginnt wie bei UO₂ Brennstoff.
- Bestrahlung verschiedener Brennstoffe zur Erzeugung der sogenannten „Rimstruktur“ (Abbrandziel 100 MWd/kg). Dabei liegt der Brennstoff in Form von Scheiben vor, wobei durch die Anordnung zwischen Molybdänscheiben eine gleichmässige Temperatur erreicht wird. Das Experiment wurde in der zweiten Jahreshälfte begonnen. Beim ersten Anfahren wurden Messungen zur Freisetzung von radioaktiven Spaltgasen vorgenommen, wobei sowohl die Leistung als auch die Brennstofftemperatur unabhängig voneinander variiert wurden. Die Messungen erlauben Rückschlüsse auf den Diffusionskoeffizienten in den verschiedenen Brennstoffen (UO₂ mit und ohne Zusätze zur Beeinflussung der Korngrösse, homogener und inhomogener MOX-Brennstoff).
- Betriebsverhalten von Inertmatrix-Brennstoff. Hauptziel dieses Experiments ist die Untersuchung der Bestrahlungseigenschaften von stabilisiertem Zirkoniumoxyd, das als Trägermaterial für Plutonium dient. Dadurch lässt sich Pu spalten ohne neues zu erzeugen, wie es bei MOX Brennstoff der Fall ist. Dieser sogenannte Inertmatrix-Brennstoff (IMF) wurde von PSI hergestellt. Während der Bestrahlung werden die Brennstofftemperatur, das Dimensionsverhalten sowie der Stabinnendruck (Spaltgasfreisetzung) gemessen. In der zweiten Jahreshälfte wurde die Leistung des Testbrennstoffs nach Umplatzieren im Reaktorkern erhöht, um Spaltgasfreisetzung herbeizuführen. Es hat sich soweit gezeigt, dass diese Freisetzung früher eintritt als beim gleichzeitig bestrahlten Referenzbrennstoff (Standard MOX).
- Untersuchungen zum Risswachstum in rostfreien Stählen mit hohen Fluenzen. Neu in diesem Typ Experiment ist die Anwendung von Druckwasserreaktorbedingungen, während sonst unter Verhältnissen in Siedewasserreaktoren getestet wurde. Die Proben in der Form von „compact tension specimen“ können mit variablen Kräften (Spannungsintensität) beaufschlagt werden. Mit der angewandten Messmethode (potential drop method) wurde ein Risswachstum bis hinunter zu einem Mikrometer pro Tag gemessen. Wie in früheren Experimenten unter Siedewasserreaktorbedingungen hat sich auch hier gezeigt, dass reduzierende Bedingungen nur bis zu mittleren Fluenzen das Risswachstum verhindert oder vermindert. Bei hohen Fluenzen, wie bei den Materialien in diesem Experiment vorhanden (10 bis 35 dpa, displacements per atom), verlieren reduzierende Bedingungen ihren positiven Einfluss.

Die Ergebnisse aus dem Programm des Halden Reactor Project sind im Einzelnen in den halbjährlichen Statusreporten /2, 3/ beschrieben.

3. Nationale Zusammenarbeit

Auf nationaler Ebene ist vor allem die Zusammenarbeit des Halden Reactor Projects mit dem Paul Scherrer Institut zu erwähnen. Diese erstreckt sich nicht nur auf die besondere Betreuung und Auswertung des Inert Matrix Experiments, sondern umfasst auch unterstützende Rechnungen zur Planung zukünftiger Experimente. Weiterhin besteht eine gute Zusammenarbeit mit Schweizer Kernkraftwerken bezüglich der Bereitstellung von vorbestrahltem Brennstoff.

4. Internationale Zusammenarbeit

Das Halden Reactor Project ist selbst eine internationale Zusammenarbeit, an der 20 Nationen mit etwa 100 Organisationen teilnehmen. Dazu gehören Aufsichtsbehörden, Betreiber, Brennstoffhersteller und Forschungseinrichtungen.

5. Bewertung 2001 und Ausblick 2002

Der im Programm /1/ definierte Arbeitsumfang für 2001 ist weitgehend abgearbeitet worden. Einige Bestrahlungsexperimente sind jedoch durch den Stillstand des Haldenreaktors Anfang 2001 in der Gesamtausführung entsprechend verschoben.

Das Programm für 2002 ist entsprechend in /4/ definiert. Die wesentlichen Ergebnisse für den Zeitraum 2000 – 2002, für den die internationale Vereinbarung zur Durchführung des Halden Reactor Projects gilt, werden in einer eigenen Konferenz im September 2002 vorgetragen werden.

6. Referenzen

- [1] ***Halden Reactor Project Program Proposal 2001***, HP-1085
- [2] ***Status Report January – June 2001***, HP-1100
- [3] ***Status Report July – December 2001***, HP-1110
- [4] ***Halden Reactor Project Program Proposal 2002***, HP-1105