



Strål
säkerhets
myndigheten

Swedish Radiation Safety Authority

Redaktörer:

Ninos Garis
Johan Ljung
Lennart Agrenius

Forskning

2009:25

APRI-6 Accident Phenomena
of Risk Importance

Titel: APRI-6 Accident Phenomena of Risk Importance.

Rapportnummer: 2009:25

Redaktörer: Ninos Garis¹, Johan Ljung¹ och Lennart Agrenius²

Bidragit till olika avsnitt: Wiktor Frid¹, Ninos Garis¹, Jan-Olov Liljenzin³, Bal Raj Sehgal⁴, Truc-Nam Dinh⁴, Weimin Ma⁴, Pavel Kudinov⁴, Aram Karbojian⁴, Chi-Thanh Tran⁴, Roberta Hansson⁴, Christian Ekberg⁵, Joachim Holm⁵, Henrik Glänneskog⁵, Stellan Holgersson⁵.

¹SSM, ²Agrenius Ingenjörbyrå AB, ³Liljenzins data o kemikonsult, ⁴KTH, ⁵Chalmers

Datum: Juni 2009

Denna rapport har tagits fram på uppdrag av Strålsäkerhetsmyndigheten (SSM) och svensk kärnkraftsindustri. De slutsatser och synpunkter som presenteras i rapporten är författarnas och överensstämmer inte nödvändigtvis med SSM:s.

Forskningsprojektet APRI-6 har genomförts i samarbete mellan följande organisationer:

- Statens kärnkraftinspektion¹ (SKI)
- Ringhals AB (RAB)
- OKG Aktiefbolag (OKG)
- Forsmarks Kraftgrupp AB (FKA)

Projektet har varit underställd en styrgrupp med representanter från SSM och kraftbolagen enligt följande:

Mauritz Gärdinge, OKG (ordförande)
Oddbjörn Sandervåg, SSM (t o m 2007)
Ninos Garis, SSM
Johan Ljung, SSM (f o m 2007)
Anders Hénoch, RAB
Erik Larsen, RAB (t o m 2007)
Henrik Glänneskog, RAB (f o m 2007)
Pär Lansåker, FKA (t o m 2006)
Margareta Tanse Larsson, FKA (f o m 2007)
Lennart Agrenius, Agrenius Ingenjörbyrå (projektledare)

Arbetet har genomförts i projektform med deltagande från parterna och andra svenska och utländska uppdragstagare och samarbetspartners.

Redaktörer:

Ninos Garis, SSM
Johan Ljung, SSM
Lennart Agrenius, Agrenius Ingenjörbyrå AB

Personer som har bidragit till olika avsnitt:

Wiktor Frid, SSM
Ninos Garis, SSM
Jan-Olov Liljenzin, Liljenzins data och kemikonsult
Bal Raj Sehgal, KTH
Truc-Nam Dinh, KTH
Weimin Ma, KTH
Pavel Kudinov, KTH
Aram Karbojian, KTH
Chi-Thanh Tran, KTH
Roberta Hansson, KTH
Christian Ekberg, Chalmers
Joachim Holm, Chalmers
Henrik Glänneskog, Chalmers
Stellan Holgersson, Chalmers

¹ Strålsäkerhetsmyndigheten (SSM) f o m 2008-07-01.

SAMMANFATTNING

Kunskap om de fenomen som kan uppträda vid svåra haverier i en kärnkraftanläggning är viktig förutsättning för att kunna förutse anläggningens beteende, för att kunna utforma rutiner och instruktioner för haverihantering, för beredskapsplaneringen samt för att få god kvalitet på haverianalyser och riskstudier.

Sedan början på 80-talet har kärnkraftföretagen i Sverige och Statens kärnkraftinspektion (SKI) samarbetat inom forskningsområdet svåra reaktorhaverier. Samarbetet i början var framför allt knutet till att förstärka skyddet mot omgivningskonsekvenser efter ett svårt reaktorhaveri genom att bl.a. ta fram system för filtrerad tryckavlastning av reaktorinneslutningen. Sedan början på 90-talet, har samarbetet delvis ändrat karaktär och inriktats mer på fenomenologiska frågor av riskdominerande betydelse.

Under åren 2006-2008 har samarbetet fortsatt inom forskningsprogrammet APRI-6. Syftet har varit att visa om de lösningar som har valts i den svenska strategin för haverihantering ger ett tillräckligt skydd för omgivningen. Detta sker genom att få fördjupad kunskap om dels viktiga fenomen vid härdsmälteförlopp, dels mängden radioaktivitet som kan släppas ut till omgivningen vid ett svårt haveri.

För att nå syftet har forskningsprogrammet omfattat dels uppföljning av den internationella forskningen inom svåra haverier och utvärdering av resultaten, dels fortsatt stöd till forskningen på KTH och Chalmers om svåra haverier.

Uppföljningen av den internationella forskningen har främjat utbyte av kunskap och erfarenheter samt har gett tillgång till en mängd information om olika fenomen av betydelse för händelseförlopp vid svåra haverier. Detta är viktigt för att erhålla en god bedömningsgrund av de utsläpps begränsande åtgärderna i svenska kärnkraftsreaktorer

Det fortsatta stödet till KTH har gett ökad kunskap om möjligheten att kyla den smälta härden in i reaktortanken och om processer i samband med kylbarheten i inneslutningen samt vid ångexplosioner. Analyser av smältans påverkan på reaktortanken i nedre plenum visar att ett kylflöde genom drivdonen kan ge möjlighet att fördröja tankgenomsmltning och därmed öka möjligheten att hålla härdsmältan kyld i reaktortanken. Detta bekräftar resultat från tidigare APRI-projekt. Analyser av smältans kylbarhet i inneslutningens kondensationsbassäng visar att porositeten hos den fragmenterade smältan är högre jämfört med vad man tidigare antagit. Porositeten förefaller också vara oberoende av smältans sammansättning och underkylning på bassängvattnet. En ökad porositet är gynnsam ur kylbarhetssynpunkt. Studier av enskilda smältdroppar i vatten har gett oss ökad detaljkunskap om förloppet vid en ångexplosion i samband med en härdsmälta.

Stödet till Chalmers har gett ökad kunskap om haverikemi, främst jods och ruteniums uppförande i inneslutningen efter ett haveri. Chalmers har studerat radiolytisk oxidation av jod för att få ökad förståelse av specieringen av de slutliga produkterna. Man har bl.a. fått fram att ozon som bildas vid radiolys av luft och ånga, kan oxidera jod och därmed kan retention av jod främjas. För rutenium är kemin

mer känd jämfört med jod. Det har klarställts att den enda flyktiga ruteniumspecie att behöva ta hänsyn till vid haveri är RuO_4 . Resultaten från experimenten visar att sorption eller deponering av RuO_4 är mycket trolig i en inneslutningsmiljö och att rutenium kommer att både deponeras på metallytor och absorberas i vattenfasen i inneslutningen. Därför kommer rutenium inte att höra till de dominerande radionukliderna vid utsläpp efter ett härdhaveri.

INNEHÅLLSFÖRTECKNING

1. Inledning	7
1.1 Kort historik	7
1.2 Projektets syfte	9
1.3 Organisation och arbetsformer	9
1.4 Erfarenhetsutbyte och seminarier.....	10
1.5 Ekonomi och rapportering.....	10
2. Internationell Forskning inom svåra haverier.....	11
2.1 CSARP – NRC:s Forskningsprogram.....	11
2.2 SARNET – Integration av EU:s forskning inom svåra haverier.....	16
2.3 PHEBUS – Experiment med härdsmältor.....	20
2.4 MASCA 2 – Experiment med härdsmältor i reaktortank	27
2.5 MCCI 2 – Växelverkan mellan härdsmälta och betong	29
2.6 SERENA – Ångexplosioner i reaktorinneslutningen.....	33
2.7 BIP – Jodkemi i reaktorinneslutningen	37
3. KTH:s forskning inom svåra haverier	39
3.1 Research Goals, Approach, Activities and Achievements	39
3.2 In-Vessel Coolability (INCO).....	41
3.3 Ex-Vessel Coolability (EXCO)	48
3.4 Steam Explosion Energetics (SEE).....	64
3.5 Severe Accident Information Distillation (SAID)	76
3.6 Outlook.....	81
3.7 Referenser	82
4. Chalmers forskning inom svåra haverier.....	85
4.1 Översiktlig beskrivning av jodkemi vid svåra haverier.....	85
4.2 Radiolytisk oxidation av jod	86
4.3 Konkurrerande klorreaktioner som kan påverka jods beteende i vattenfasen	90
4.4 Egenskaper hos metyljodid.....	93
4.5 Översiktlig beskrivning av ruteniumkemi vid svåra haverier	99
4.6 Ruteniums beteende i inneslutningen vid svåra haverier.....	101
4.7 Deltagande i SARNET	108
4.8 Referenser	108
5. Slutsatser och rekommendationer	111
5.1 Sammanfattning av projektet.....	111
5.2 Slutsatser	114
5.3 Rekommendationer.....	114
6. Förkortningslista	115

1. INLEDNING

Kunskap om de fenomen som kan uppträda vid svåra haverier i en kärnkraftanläggning är viktig förutsättning för att kunna förutse anläggningens beteende, för att kunna utforma rutiner och instruktioner för haverihantering, för beredskapsplaneringen samt för att få god kvalitet på haverianalyser och riskstudier.

De svenska parterna, SKI och kraftföretagen i Sverige har under en följd av år samarbetat inom forskningsområdet svåra reaktorhaverier. Detta har skett inom projekten FILTRA, RAMA, RAMA II, RAMA III, HAFOS, APRI, APRI 2, APRI 3, APRI 4 och APRI 5. TVO har deltagit i projekten APRI, APRI 3 och APRI 4.

FILTRA- och RAMA-projekten var knutna till processen att utforma, genomföra och verifiera de haveriförebyggande och konsekvenslindrande åtgärder som nu genomförts vid samtliga kärnkraftverk.

I projekten HAFOS, APRI, APRI 2, APRI 3, APRI 4 och APRI 5 var en viktig uppgift att följa internationell forskning rörande svåra härdhaverier. En annan uppgift var att stödja eget arbete inom Sverige där forskningen på härdsmälteförlopp genomförts vid KTH och kemiska förhållanden i inneslutningen har undersökts vid Chalmers.

APRI 6-projektet har i stora drag haft samma inriktning som tidigare APRI.

1.1 Kort historik

Sedan början på 80-talet har kärnkraftföretagen i Sverige och SKI samarbetat inom forskningsområdet svåra reaktorhaverier. Samarbetet i början var framför allt knutet till att förstärka skyddet mot omgivningskonsekvenser efter ett svårt reaktorhaveri genom att bl.a. ta fram system för filtrerad tryckavlastning av reaktorinneslutningen. Sedan början på 90-talet, har samarbetet delvis ändrat karaktär och inriktats mer på fenomenologiska frågor av riskdominerande betydelse.

I början av 1986 beslutade regeringen att som villkor för fortsatt drift skulle utsläpps begränsande åtgärder vidtas vid reaktorerna i Forsmark, Oskarshamn och Ringhals. Åtgärderna skulle vara genomförda senast vid utgången av 1988. I anslutning till dessa regeringsbeslut uppdrog² regeringen åt SKI att utöver redovisning av beslut som SKI fattat med anledning av regeringens nya driftvillkor även redovisa en bedömning av behovet av fortsatta insatser inom området svåra haveriförlopp.

Efter SKI:s granskning av de åtgärder som vidtagits vid berörda anläggningar konstaterades i ett beslut³ av den 19 december 1988 att de mål som regeringen angivit som villkor för fortsatt drift hade uppfyllts. I SKI:s beslut pekades emellertid också på att tillståndshavarna även fortsättningsvis behövde följa de forsk-

² Regeringsbeslut 14 "Uppdrag att redovisa det fortsatta arbetet att begränsa utsläpp vid svåra reaktorhaverier". Industridepartementet 1986-02-27.

³ SKI-beslut "Utsläpps begränsande åtgärder vid kärnkraftverken i Forsmark, Oskarshamn och Ringhals". SKI 1988-12-19.

nings- och utvecklingsinsatser som bedrevs och dra slutsatser om vilka ytterligare säkerhetshöjande åtgärder som bör komma ifråga vid de egna anläggningarna.

I slutet av 1990-talet förtydligades SKI:s allmänna krav på utsläpps begränsande åtgärder genom föreskrifterna (SKIFS 2004:1) om säkerhet i kärntekniska anläggningar. I föreskrifterna ställdes krav på att radiologiska olyckor skall förebyggas genom en för varje anläggning anpassad grundkonstruktion med flera barriärer och ett anpassat djupförsvar. Bestämmelserna om djupförsvar innehåller bl.a. krav på att utsläpp av radioaktiva ämnen till omgivningen skall förhindras och begränsas genom anordningar och förberedda åtgärder. I SKIFS 2004:1 infördes även krav på att säkerheten vid en anläggning fortlöpande skall analyseras och bedömas på ett systematiskt sätt, och i allmänna råd pekade SKI på att bl.a. forskningsresultat särskilt bör beaktas vid sådan fortlöpande analys och bedömning.

Genom föreskrifterna (SKIFS 2004:2) om konstruktion och utförande av kärnkraftsreaktorer har SKI sedan ytterligare förtydligat och skärpt kraven i vissa avseenden. Även svåra haverier med större härdsador skall beaktas när det gäller konstruktionen av inneslutningsfunktionen, instrumentering för övervakning av anläggningens tillstånd, samt för att kunna uppnå ett stabilt sluttillstånd med reaktorn så att den inte utgör ett hot mot omgivningen på lång sikt. I konsekvensutredningen⁴ av föreskrifterna konstaterades att dessa krav, som inte fanns då reaktorerna konstruerades, tillkom i viss omfattning genom regeringsbeslutet om utsläpps begränsande åtgärder 1986.

Den svenska strategin för haverihantering innebär att inneslutningarna försetts med förstärkt inneslutningskylning, tryckavlastning och filtrering av utsläpp. Den svenska strategin för att hantera en härdsälta - att låta en härdsälta falla i djupt vatten i inneslutningen – har visat sig vara ganska speciell. Endast i ett fåtal andra reaktorer i världen tillämpas denna strategi aktivt.

Eftersom den svenska strategin är speciell, finns det mycket lite internationell forskning som direkt belyser denna. Dock bedrivs internationell forskning om fenomen som även kan inträffa under ett svårt haveri i ett svenskt verk.

Det finns kvarvarande osäkerheter förknippade med den svenska strategin som behöver belysas ytterligare genom forskning. Genom den svenska strategin undviks troligen en stor inledande interaktion mellan betong och smälta. Å andra sidan kan ångexplosioner inträffa när smältan faller i djupt vatten. Forskningen på svåra haverier inriktas nu på att visa om de lösningar som har valts ger ett tillräckligt skydd för omgivningen, vilket vi idag håller för troligt med vissa osäkerheter som nämnts ovan.

Utgående från regeringens och SKI:s beslut i slutet av 1980-talet har SKI (numera SSM) och tillståndshavarna tillsammans fortsatt att bedriva forskning om svåra haverier samt följa upp internationell forskning.

⁴ Konsekvensutredning av Statens kärnkraftinspektions förslag till föreskrifter (SKIFS 2004:2) om konstruktion och utförande av kärnkraftsreaktorer, Statens kärnkraftinspektion 2004-10-07.

1.2 Projektets syfte

Projektet syftar till att visa om de lösningar som har valts i den svenska strategin för haverihantering ger ett tillräckligt skydd för omgivningen. Detta sker genom att få fördjupad kunskap om dels viktiga fenomen vid härdsälteförlopp, dels mängden radioaktivitet som kan släppas ut till omgivningen vid ett svårt haveri.

För att nå syftet och i enlighet med rekommendationerna från APRI-5 (SKI rapport 2006:28) har projektet arbetat med följande uppgifter:

- att följa den internationella forskningen inom svåra haverier och utvärdera resultaten för att erhålla en god bedömningsgrund av de utsläpps begränsande åtgärderna i svenska kärnkraftsreaktorer.
- att fortsätta att stödja forskningen på KTH och Chalmers om svåra haverier.
- att speciellt studera vissa fenomen som t ex smältans kylbarhet i reaktortanken och i reaktorinneslutningen samt haverikemi.

1.3 Organisation och arbetsformer

Projektet har bedrivits under åren 2006 - 2008 med en total kostnadsram på 20 MSEK. SSM och kraftföretagen har bidragit med ungefär hälften var till denna budget. Arbetet inom projektet har varit uppdelat i 10 delprojekt med var sin delprojektledare.

1.3.1. Deltagande i CSARP - NRC:s forskningsprogram

Delprojektledare har varit Wiktor Frid, SSM. En redogörelse för denna verksamhet ges i avsnitt 2.1

1.3.2. Deltagande i SARNET – Integration av EU:s forskning inom svåra haverier

Delprojektledare har varit Ninos Garis, SSM. En redogörelse för denna verksamhet ges i avsnitt 2.2

1.3.3. Deltagande i PHEBUS – Experiment med härdsälte

Delprojektledare har varit Prof. Jan-Olov Liljenzin, Chalmers. En redogörelse för denna verksamhet ges i avsnitt 2.3.

1.3.4. Deltagande i MASCA 2 – Experiment med härdsälte i reaktortank

Delprojektledare har varit Prof. Raj Sehgal. En redogörelse för denna verksamhet ges i avsnitt 2.4.

1.3.5. Deltagande i MCC1 2 – Växelverkan mellan härdsälte och betong

Delprojektledare har varit Prof. Raj Sehgal. En redogörelse för denna verksamhet ges i avsnitt 2.5.

1.3.6. Deltagande i SERENA – Ångexplosioner i reaktorinneslutningen

Delprojektledare har varit Wiktor Frid, SSM. En redogörelse för denna verksamhet ges i avsnitt 2.6.

1.3.7. Deltagande i BIP – Jodkemi i reaktorinneslutningen

Delprojektledare har varit Prof. Christian Ekberg. En redogörelse för denna verksamhet ges i avsnitt 2.7.

1.3.8. KTH:s forskning inom svåra haverier

Forskningen vid KTH beskrivs i kap. 3 och följs upp av styrgruppen genom två möten per år. Verksamheten är uppdelat i fyra delar: a) smältans kylbarhet i reaktortanken beskrivs i avsnitt 3.2, smältans kylbarhet i reaktorinneslutningen beskrivs i avsnitt 3.3, ångexplosioner beskrivs i avsnitt 3.4 och värderingen av forskningen inom SARNET beskrivs i avsnitt 3.5.

1.3.9. Chalmers forskning inom svåra haverier

Forskningen vid Chalmers beskrivs i kap. 4 och följs upp av styrgruppen genom ett möte per år. Verksamheten är uppdelat i fyra delar: a) jodkemi vid svåra haverier – en genomgång av kunskapsläget beskrivs i avsnitt 4.1, jods beteende i inneslutningen beskrivs i avsnitt 4.2, ruteniumkemi vid svåra haverier – en genomgång av kunskapsläget beskrivs i avsnitt 4.3, ruteniums beteende i inneslutningen vid svåra haverier beskrivs i avsnitt 4.4 och värderingen av forskningen inom SARNET beskrivs i avsnitt 4.5.

1.3.10. Handbok i haverikemi

Arbetet med handboken i haverikemi har tagits över av en projektgrupp då delprojektledaren på grund av sjukdom inte kunde fullfölja projektet. Det koncept som tagits fram tidigare har distribuerats till projektgruppen. Innehållsförteckningen har gått igenom och uppgifter att ansvara för de olika avsnitten har delegerats till projektgruppens medlemmar. Planen är att slutföra huvuddelen av arbetet under 2009 med sikte på att ge ut handboken vid halvårsskiftet 2010.

1.4 Erfarenhetsutbyte och seminarier

Ett slutseminarium arrangerades i APRI:s regi den 22-23 januari 2009 på Lejonsdals slott, Stockholm. Seminariets syfte var att presentera det arbete som utförts och de resultat som erhållits inom projektet APRI-6. Ett annat syfte med seminariet var också att ge möjlighet till diskussioner mellan representanter för kraftverken och de som deltagit i APRI:s arbete.

1.5 Ekonomi och rapportering

Ekonomiskt har en viss omfördelning skett mellan olika delprojekt och några nya delprojekt har tillkommit men den totala budgetramen har innehållits.

De olika delprojekten har genererat publicerade artiklar, reserapporter och dylikt vilket framgår av referenslistan i varje kapitel.

2. INTERNATIONELL FORSKNING INOM SVÅRA HAVERIER

2.1 CSARP – NRC:s Forskningsprogram

CSARP står för ”Cooperative Severe Accident Research Programme” och var från början den amerikanska kärnsäkerhetsmyndigheten NRC:s (Nuclear Regulatory Commissions) forskningsprogram om svåra haverier. Numera deltar de flesta kärnkraftsländer, inklusive Sverige och Finland, i CSARP-programmet där man utbyter forskningsresultat och erfarenheter samt gemensamt diskuterar inriktning och prioriteringar av fortsatt forskning inom området svåra haverier. CSARP-möten hålls årligen i september månad i USA.

En tendens inom CSARP är att USA på senare år haft betydligt färre bidrag på det experimentella området än övriga länder, där både Västeuropa (främst Frankrike och Tyskland) och fjärran östern (Japan och Korea) varit dominerande. En tydlig tendens finns mot mera internationellt samarbete när det gäller större och kostsamma experimentprogram. Detta ger inte bara rent ekonomiska fördelar utan är också av betydelse för att få ett ökat utbyte av erfarenheter och resultat.

I direktanslutning till ett CSARP-möte hålls ett MCAP-möte (MELCOR Cooperative Assessment Program) om applikationer av MELCOR-koden. MELCOR har blivit ett väletablerat verktyg för analys av svåra haverier och antalet användare värden över växer. MELCOR används mer och mer för beräkningar på nya reaktorkoncept och för haveriscenarier som ligger inom design.

Den forskning som har redovisats under CSARP-möten under åren 2006-2008 handlar till stor del om de internationella projekt som pågår inom området, som OECD MASCA 2, OECD MCCI 2, OECD SERENA, OECD BIP, Phebus-FP och Phebus ISTP. Dessa projekt beskrivs i andra delar av rapporten.

I detta avsnitt sammanfattas kort den övriga forskning som är av intresse för Sverige. Redovisningen är uppdelad enligt följande:

- kylbarhet i reaktortanken (”in-vessel coolability”)
- kylbarhet i reaktorinneslutningen, (”ex-vessel coolability”)
- ångexplosioner
- fissionsprodukter och källterm
- kodutveckling
- övrigt

2.1.1. Kylbarhet i reaktortanken

Inom detta område har läget för experimentprogrammen QUENCH, LIVE, PEARL och OECD-projektet MASCA 2 presenterats. MASCA 2 beskrivs i avsnitt 2.4.

QUENCH och LIVE pågår vid FzK (Forschungszentrum Karlsruhe) i Tyskland. Övergripande syfte med QUENCH-programmet är att få fram underlag för att förbättra modellering av återflödning av överhettat bränsle. Den dominerande frågan är kapslingsoxidation med samtidig vätgasbildning. Även kemiska aspekter

av växelverkan mellan olika material studeras. Integrala tester i QUENCH stöds av ”separate-effects tests (SET)” och analyser. Försöksuppställningen består av ett bränsleknippe med 21 stavar, ca 2.5 m långa varav ungefär 1 m uppvärms elektriskt till temperaturer runt 2000°C.

I test QUENCH-10 undersöktes hur inneslutningsluften som strömmar in i reaktortanken (s.k. ”air ingress”) innan återflödningen startas, påverkar haveriförloppet. Påverkan på kapslingen var betydligt större jämfört med ånga, på grund av kraftigare oxidation och sämre kylning, vilket resulterade i att degraderingen av bränsleknippet efter återflödningen var omfattande. Kompletterande tester (SET) har genomförts för att närmare studera den komplexa oxidationskinetiken.

För att kunna studera konsekvenser av återflödning vid låga massflöden i QUENCH-11, har QUENCH-faciliteten modifierats. Återflödningen i QUENCH-11 startades efter friläggning av testknippet när bränsletemperaturen var ca 2040 K. Återflödningen har resulterat i hög vätgasproduktion. Detta experiment, som i viss mån har simulerat ett komplett scenario, dvs. härdfriläggning och återflödning, har analyserats inom ett SARNET-benchmark med flera haverikoder. Även resultat av QUENCH-13 (med en PWR-styrstav) och QUENCH-14 (med M5-kapsling) har rapporterats men bara i form av rådata. Nya tester planeras, till exempel för LOCA-scenarier och Generation IV reaktorer.

Inom forskningsprogrammet LIVE (”Late In-Vessel Phase Experiments”) studeras hur en smältöl bildas i härdregionen och hur smältan omfördelas från härdregionen till nedre plenum samt smältans beteende i nedre plenum. LIVE-faciliteten är en väl instrumenterad modell av nedre plenum i skala 1:5. Insikter från LIVE kommer att användas för att validera haverikoder samt för att förbättra haverihanteringsstrategier. Tester kommer också att bidra till validering av CFD-modeller för smältans beteende i nedre plenum. I LIVE-testerna används icke-prototypiska smältor, liknande de som har använts i KTH:s tester, och en jämförelse med tidigare liknande experiment, som SIMECO, ACOPO och BALI, kommer att genomföras. En viktig del av LIVE är undersökningar av egenskaper hos krustan som bildas på reaktortankbotten.

PEARL (Programme on degraded core reflooding) är ett forskningsprojekt, experimentellt och analytiskt, vid IRSN för studier av återflödning av skadad härd. Syftet med PEARL är att bidra dels till att optimera haverihanteringsstrategier för franska PWR, dels till förbättrad modellering av återflödning i PSA. Bakgrunden till PEARL-projektet är att IRSN anser att effekten av återflödning för att stoppa härddegradering inte är tillräckligt kartlagt för alla haveriscenarier. En annan ”klassisk” fråga är vätgasproduktionen vid återflödning, som behöver beaktas i utvärdering av inneslutningsbelastningar. Den analytiska delen av projektet omfattar sammanställning och utvärdering av alla relevanta experimentella data och data från TMI-2. Den experimentella delen omfattar undersökningar av kylning av en grusbädd (”debris bed”) med vattentillförsel underifrån. Bädden, som är 60 cm i diameter och 50 cm hög och smältbädden består av en blandning av små (1-2 mm) och stora (5-7 mm) partiklar, kommer att omges av en perifer zon för att simulera intakt bränsle. PEARL liknar tidigare experiment, som STYX vid VTT, POMEKO vid KTH och DEBRIS vid IKE. En väsentlig skillnad är att dessa tidigare experiment var 1-D medan man i PEARL kommer man att kunna studera 2-D och 3-D effekter tack vare större och mer realistisk geometri. PEARL startades

2007 och kommer att avslutas 2012. Den experimentella delen av PEARL kommer att påbörjas först 2011. Tiden fram till dess ägnas åt olika förberedande tester och konstruktionen av testfaciliteten.

Kylbarheten i reaktortanken adresseras också i KAERI:s forskningsprogram. I det här fallet handlar det om att visa att man kan behålla smältan i tanken genom att kyla tanken på utsidan. För att visa detta krävs också studier av smältans beteende i tankbotten. Denna haverihanteringsstrategi, som kallas ”in-vessel retention” (IVR), är aktuell för nya PWR-reaktorer, som APR-1400 och OPR (Optimized Power Reactor) -1000.

2.1.2. Kylbarhet i reaktorinneslutningen

Smältans kylbarhet efter tankgenomsmältning är, trots att omfattande och kostsamma forskningsprogram genomförts, en fråga där stora osäkerheter kvarstår. Under CSARP-möten har resultat från OECD-projektet MCCI 2 (Melt Coolability and Concrete Interaction) presenterats, se avsnitt 2.5. Forskning och kodutveckling i flera länder om kylbarhet i inneslutningen är i stor utsträckning fokuserad kring MCCI 2 där ett brett spektrum av relevanta frågor studeras. Insikter från MCCI används för att utveckla eller anpassa reaktorspecifika strategier för kylbarhet i reaktorinneslutningen.

KAERI har presenterat ett ambitiöst program för kylbarhet i inneslutningen. Man planerar för en lösning med kärdfångare (”core-catcher”), liknande den som används i EPR. Smältbädden skulle kylas underifrån med en blandning av vatten och gas. Tillsatsen av gas motiveras med att man kan förhindra ångexplosioner på detta sätt. Ett experiment planeras för att testa konceptet.

Vid FzK studeras långtidsaspekter av 2-D smälta-betong-växelverkan i COMET-L3 experiment. Även effekten på betongavverkningen och smältans kylbarhet av att tillföra vatten ovanifrån, kommer att undersökas. Kiselbetong kommer att användas och smältpölen blir skiktad i flera lager. Förloppet kommer att studeras under ca 5 timmar. Data från COMET-L3 har använts i ett SARNET-kodbenchmark. Smältmängden är 636 kg varav 425 kg är metallisk och 211 oxidisk. Informationen om COMET-L3 som har presenterats vid CSARP-möten har varit begränsad.

2.1.3. Ångexplosioner

Forskningen om ångexplosioner pågår i huvudsak i anknytning till SERENA-projektet, som presenteras i avsnitt 2.6. Även KTH:s forskning om ångexplosioner, som ger en viktig input till integrala SERENA-experiment, har presenterats under CSARP-mötena.

Det är huvudsakligen KAERI som under senare år har haft separata presentationer av sin nationella forskning om ångexplosioner. Denna forskning bedrivs vid TROI-faciliteten, som även används i pågående Fas 2 av OECD SERENA-programmet. I en serie av tester har effekten av smältans kemiska sammansättning på ångexplosioner undersökts, se avsnitt 2.5. KAERI utvecklar en metod, baserad på elektrisk tomografi, för mätning av 3-D voidfördelning under ”pre-mixing”

fasen av en ångexplosion. Vidare utvecklas olika metoder för att förbättra karakteriseringen av fysikaliska och kemiska egenskaper hos explosionsprodukter.

2.1.4. Fissionsprodukter och källterm

NRC:s aktiviteter inom detta område är kopplade till MELCOR-analyser. Ett exempel är projektet SOARCA (State-of-the-Art Reactor Consequence Analyses) vars syfte är att genomföra realistiska analyser av haveriförloppet, källtermen och omgivningskonsekvenser. Analyserna skall beakta moderniseringar av reaktorer, senaste forskningsresultat och strategier för att förhindra eller fördröja en härdsmälta. Vidare kommer beredskapsåtgärder att beaktas vid analyserna. SOARCA kommer på detta sätt att ge en mer korrekt bild av omgivningskonsekvenser för dagens reaktorer. Ett annat syfte är att identifiera områden där fortsatt forskning behövs. Flera typer av dagens reaktorer kommer att studeras. Studien kommer att omfatta externa händelser och osäkerhetsanalys. Projektet startade 2006 och kommer att pågå under flera år.

NRC har också påbörjat en revidering av den så kallade alternativa källtermen, som definieras i NUREG-1465. Även i det här fallet är det MELCOR som är arbetshästen. Senaste kunskap om haveriförloppet, till exempel återflödning av skadad härd, jodkemi i primärsystemet och påverkan på härddegradering av inneslutningsluften som tränger in i reaktortanken, används vid analyserna. Vidare görs beräkningar för olika bränsletyper och utbränningar. Analyserna har visat att utsläppet av aktivitet till omgivningen pågår under längre tid men att utsläppet påbörjas ca en timme senare. Om man beaktar hur stor andel av härdinventariet som släpps ut till omgivningen så har det visat sig att ovan nämnda skillnader jämfört med NUREG-1465 är större än dem som orsakas av högre utbränning eller MOX-bränsle.

Parallellt med ovan nämnda projekt, har NRC startat en aktivitet där man tittar på källtermen för nya reaktorer, som ESBWR, HTGR och VHTR. Syftet är att definiera en källterm, som i NUREG-1465. Man har tagit fram en PIRT där relevanta fenomen har identifierats och rangordnats. För analyser av HTGR behövs vissa modifikationer i MELCOR och dessa har påbörjats. Vidare kommer man att titta på om det behövs nya experimentella data för dessa tillämpningar.

Den experimentella verksamheten inom området har varit relativt blygsam. Det är bara Frankrike som har rapporterat om experimentella undersökningar relaterade till fissionsprodukter, utöver presentationer som handlar om PHEBUS-projektet, som beskrivs i avsnitt 2.3. Under 2005 startade IRSN, med stöd från CEA, EDF, US NRC, AECL och PSI ett forskningsprogram som man betraktar som en fortsättning på PHEBUS FP projektet där man har identifierat frågor som kräver fortsatta studier. Programmet benämns International Source Term Programme (ISTP) och innehåller både experiment och modellering. Se även avsnitt 2.3.

ARTIST (Aerosol Trapping in Steam Generators) är ett internationellt projekt där avskiljning av fissionsprodukter i ånggeneratorer studeras. Experimenten utförs vid PSI (Paul Scherrer Institute) i Schweiz. Projektet startade under 2003 och under 2007 avslutades dess första fas. Ringhals AB och SKI har deltagit i projektet. I september 2008 startades fas 2 av ARTIST, utan svenskt deltagande. Resultat av ARTIST fas 1 har rapporterats tidigare. I utvärderingen av resultat från ARTIST

har CFD-metoder använts för att kunna studera deponering av aerosoler i ett tubknippe. MELCOR-koden har begränsningar i detta avseende. Man har rapporterat ganska bra överensstämmelse mellan experiment och CFD-analyserna med FLUENT-koden, bland annat att partiklar större än ca 6 µm fastnar på rörväggar med en böjning större än 45 grader.

2.1.5. Kodutveckling

CSARP-möten har två sessioner som adresserar kodutveckling, kodvalidering och tillämpning, där det sist nämnda presenteras under ett separat möte i direkt anslutning till CSARP, nämligen MELCOR Cooperative Assessment Program (MCAP)-möte. Eftersom MELCOR är koden som prioriteras av NRC och eftersom koden har fått en stor internationell spridning så dominerar den CSARP-presentationer. Utöver utveckling och validering av MELCOR för dagens lättvattenreaktorer, pågår en utveckling av koden för nya reaktorer och nya bränsletyper och för användning i beredskapssammanhang.

Ny kunskap från experiment används för utveckling av modeller i MELCOR. Denna verksamhet, som även omfattar valideringar mot TMI-2, är omfattande och berör de flesta MELCOR-modeller.

Ett viktigt steg i utvecklingen av MELCOR har varit konvertering till programmeringsspråket Fortran-95, modifiering av kodstrukturen till modern, objektorienterad arkitektur och framtagning av ett grafiskt användargränssnitt. Detta arbete har genomförts av Institutet för Reaktorsäkerhet vid den ryska vetenskapsakademien (IBRAE) i samarbete med Sandia National Laboratories (SNL). Den nya koden benämndes MELCOR 2.0. Denna kodversion har sedermera vidareutvecklats där bland annat dubbel precision har införts. Den senaste versionen heter MELCOR 2.1.

NRC har initierat utveckling av en MELCOR-version som ska kunna användas som ett stödverktyg för beredskapsorganisationer. Detta innebär att betydande modifieringar av MELCOR-koden behöver göras, bland annat för att uppfylla kravet att beräkningar ska gå fortare än realtid.

Utveckling av MELCOR 3.0 har påbörjats. Bland nyheter som kan nämnas är bättre kompatibilitet med CONTAIN, förbättrad modellering av vissa säkerhetssystem, förbättrad modellering av avgivning av fissionsprodukter i inneslutningen, etc.

Utvecklingen av den europeiska haverianalyskoden ASTEC (Accident Source Term Evaluation Code) har också presenterats. Detta program, som innehåller modeller som beskriver haveriförloppet på ungefär samma nivå som MELCOR, används av IRSN för PSA nivå 2 av franska PWR med 1300 MWe. ASTEC har varit en referenskod inom SARNET där man har identifierat områden som påkallar förbättringar av ASTEC. IRSN och GRS har påbörjat arbete med en ny version av koden, ASTEC V2. Den nya koden kommer att kunna hantera andra drifttillstånd än normaldrift, nya reaktortyper (på sikt även Generation IV) samt kylning av reaktortanken från utsidan (s.k. "ex-vessel cooling" för att uppnå "in-vessel retention"). Man inför också förbättrade modeller avseende bl.a. återflödning av

en överhettad härd, den sena fasen av härddegardering och kemiska förlopp hos fissionsprodukterna.

2.1.6. Övrigt

Ett viktigt experimentellt program är THAI som genomförs i Eschborn i Tyskland. THAI startade 2000 och kan ses som en fortsättning på tidigare experiment i BMC (Battelle Model Containment) och HDR (Heißdampfreaktor). THAI-faciliteten består av en testbehållare ("inneslutningen") med en volym på 60 m³ och en höjd på 9 m. I THAI studeras ett brett spektrum av inneslutningsfrågor, som termohydrauliken, distribution och stratifiering av vätgas samt transport och deponering av fissionsprodukter. Resultaten från THAI används för validering av systemkoder och även CFD-koder tack vare att THAI är väl instrumenterad.

Vid Japan Nuclear Energy Safety Organization (JNES) används CFD-metoder för att förbättra modellering av vissa fenomen i MELCOR. Man har konstaterat att detta är nödvändigt för att minska osäkerheter i PSA nivå 2 och vid utvärdering av haverihanteringsstrategier. Experimentella data från ARTIST och inneslutningstester i OECD SETH och NUPEC utnyttjas också.

I Belgien genomförs en omfattande validering av haverihanteringsinstruktioner (SAMGs – Severe Accident Management Guidelines). Belgiska SAMGs bygger på Westinghouse Owner Group SAMG, som nu valideras för reaktorspecifika tillämpningar. Analyserna genomförs med MELCOR-koden.

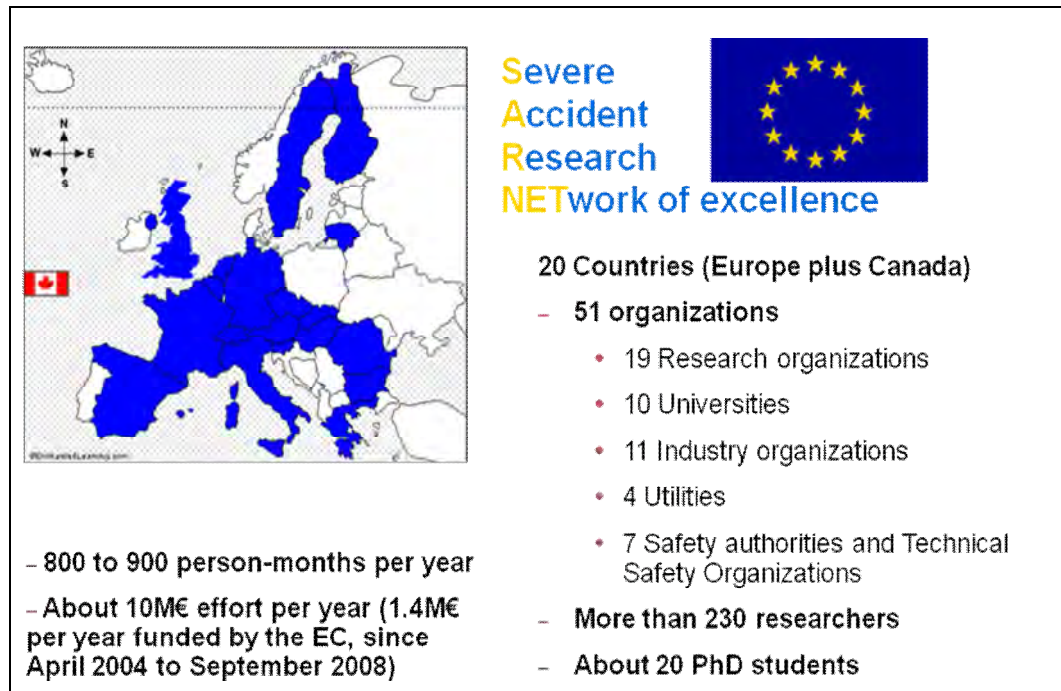
Vid Sandia National Laboratories studeras hur degradering av inneslutningsfunktionen (genom framförallt korrosionsskador på tätplåten) påverkar omgivningskonsekvenser. Man kombinerar strukturmekaniska inneslutningsberäkningar med MELCOR- och omgivningskonsekvensanalyser. Preliminära resultat visar att bilden är ganska komplicerad. Konsekvenser av skador på tätplåten beror på en kombination av flera faktorer, som storleken på skada, skadans läge och haveriscenariot. Resultaten av studien kommer att publiceras i en NUREG-rapport under 2009.

2.2 SARNET – Integration av EU:s forskning inom svåra haverier

Nätverket SARNET (Severe Accident Research – NETwork of excellence) som delvis varit finansierat av EU inom det 6:e ramprogrammet syftade till att bl.a. samordna forskningen inom svåra haverier i Europa, se figur 2.2.1 nedan.

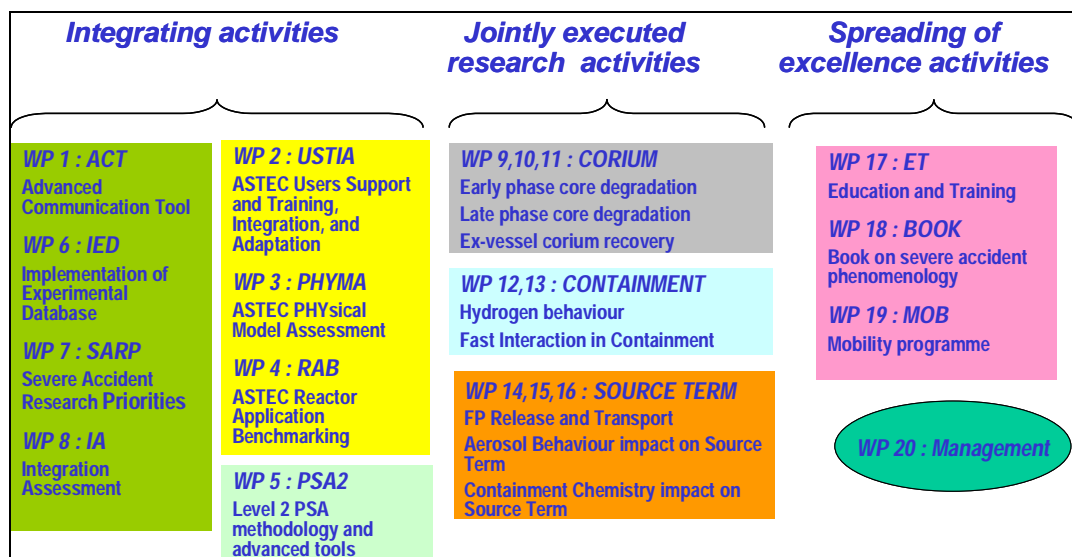
I nätverket deltog 51 organisationer från 20 länder varav tre från Sverige (KTH, Chalmers och SwedPower). Nätverket startade den 1 april 2004 och pågick till sista mars 2008.

Syftet med SARNET har varit a) att förbättra koordineringen av forskningen om svåra haverier inom EU och lösa återstående frågor, b) att bygga in ny kunskap i beräkningsprogrammet ASTEC, för användning av kraftföretag och myndigheter för haverianalyser och c) att sprida kunskap om svåra haverier för att bevara kompetens inom området, speciellt bland yngre medarbetare (genom utbildningsprogram och stipendier).



Figur 2.2.1: Allmänt om nätverket SARNET som pågick under åren 2004-2008.

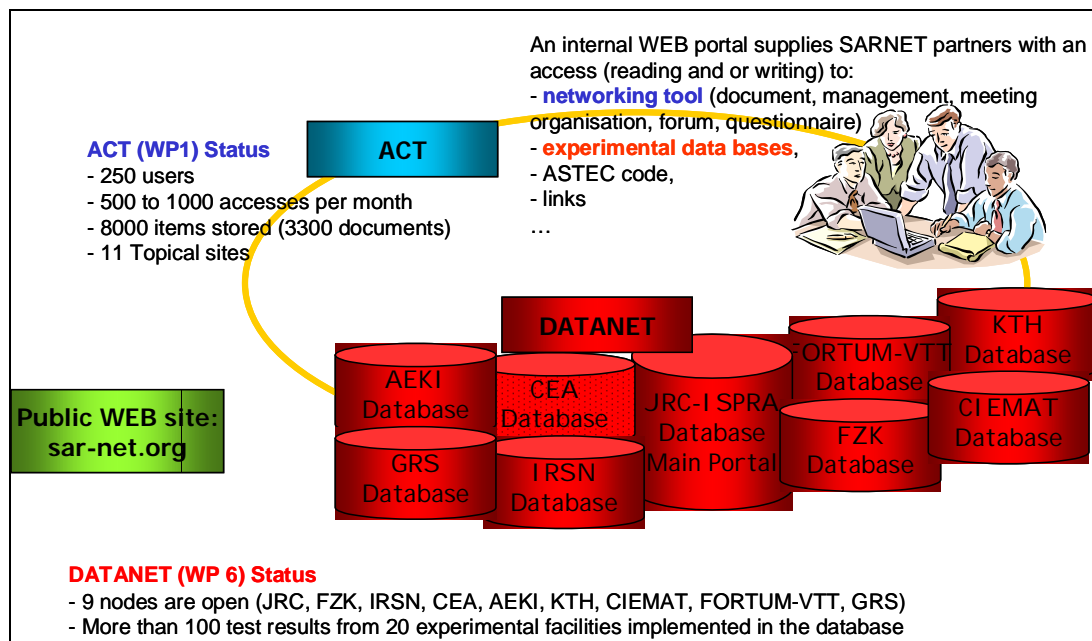
Aktiviteterna inom SARNET har varit uppdelade i tre huvudområden, se figur 2.2.2. Dessa var a) integrerande aktiviteter, b) forskningsprogram som genomfördes gemensamt samt c) spridning av kunskap.



Figur 2.2.2: Aktiviteterna inom SARNET

2.2.1. Huvudsakliga resultat som har uppnåtts

För att underlätta samarbetet inom SARNET har dels ett kommunikationsverktyg ACT (Advanced Communication Tool) utvecklats, dels databaser med experimentell data som är tillgängliga för alla som är med i SARNET byggts upp, se figur 2.2.3.



Figur 2.2.3: Kommunikationsverktyget ACT och databaserna med experimentell data för att underlätta samarbetet inom SARNET.

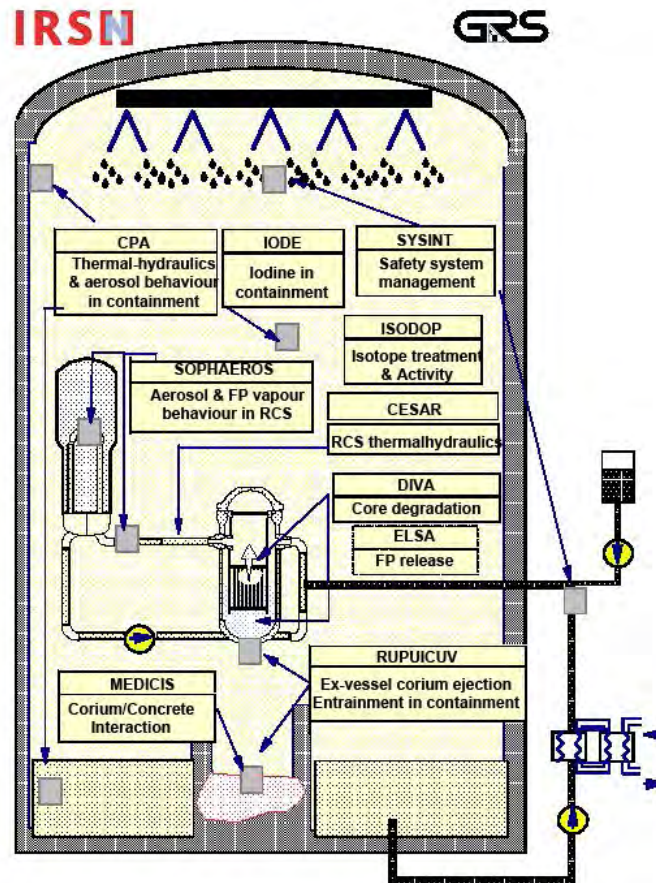
Inom SARNET har utvecklingen av beräkningsprogrammet ASTEC (Accident Source Term Evaluation Code) spelat en central roll. Avsikten har varit att ny kunskap, som kommer fram i EU-samarbetet, används för att ta fram förbättrade modeller som sedan implementeras i ASTEC. Programmet har samma användningsområde som MAAP och MELCOR, d.v.s. simulering av haveriförlopp från inledande händelse till utsläpp till omgivningen.

Över ett 30-tal användare har varit med i utvecklingen av koden ASTEC. Koden har hittills kunnat tillämpas för PWR och VVER. Det finns planer på att utveckla koden även för tillämpning på BWR och CANDU.

Inom SARNET har även försök till harmonisering av PSA nivå 2 studier pågått där 17 organisationer har deltagit. Från Sverige deltog SwedPower och Relcon på uppdrag av SKI och kärnkraftsindustrin. Ett omfattande utbyte av information har ägt rum om metoder och hantering av osäkerheter mellan deltagarna i PSA nivå 2.

Inom SARNET har man dessutom arbetat med att identifiera, prioritera och bearbeta återstående frågor som är olösta inom svåra haverier. Arbetet har uppdelats i tre forskningsprogram: haverifenomen i reaktortanken ("Corium"), haverifenomen i reaktorinneslutningen ("Containment") och källterm ("Source term"). KTH deltog i de två första och Chalmers i det tredje. De resultat som har uppnåtts och som är relevanta för svenska förhållanden redovisas i avsnitten 3.5 och 4.7.

De haverifenomen i reaktortanken som har prioriterats inom SARNET var bl.a. vätgasproduktion vid återflödning av överhettat bränsle, smältans kylbarhet i reaktortanken/inneslutningen, tankgenomsmltning, smältans växelverkan med betong, etc.



Figur 2.2.4: Huvudkomponenterna i beräkningskoden ASTEC.

De haverifenomen i reaktorinneslutningen som prioriterats inom SARNET var vätgasbrand, ångexplosioner och ”Direct Containment Heating ” (DCH).

Inom området källterm behandlades a) fissionsprodukters frigörelse och transport, b) aerosolers inverkan på källtermen och c) inneslutningskemins inverkan på källtermen.

Vad gäller spridning av kunskap om svåra haverier har kurser för doktorander och yngre forskare hållits under perioden. En textbok om svåra haverier har tagits fram och enligt planen kommer den att ges ut under 2009. Tre seminarier (ERMSAR = European Review Meetings on Severe Accident Research) har arrangerats i Frankrike, Tyskland och Bulgarien.

2.2.2. Fortsättningen av SARNET

Fortsättningen av SARNET har diskuterats under senare tid och hittills har 41 organisationer (8 universitet, 23 forskningsorganisationer, 5 kraftföretag och 5 myndigheter) från 21 länder (18 europeiska plus USA, Kanada och Korea) anmält intresse. Projektet är planerat att pågå under åren 2009 – 2013 och syftet är ungefär som tidigare med målet att etablera ett självgående nätverk. Innehållet i förslaget till fortsättning framgår av tabell 2.2.1 nedan.

Inför fortsättningen har man identifierat och prioriterat nya frågor. De frågor som fick hög prioritet är följande:

- Härdens kylbarhet under återflödning och grusbäddens kylning
- Smältans konfiguration vid växelverkan med betong och smältans kylbarhet genom flödning ovanifrån
- Smältans relokering i vatten och vid ångexplosioner
- Vätgas blandning och förbränning i reaktorinneslutningen
- Oxideringens inverkan på källterm
- Jodkemin i primärsystemet och reaktorinneslutning

För ytterligare information om SARNET, hänvisas till nätverkets hemsida: <http://www.sar-net.org/>.

Tabell 2.2.1: Innehållet i förslag till fortsättning av SARNET som planeras att pågå under åren 2009-2011.

WPs	Sub WPs	Full titles	Short titles	Leader	Country
WP1		Management	MANAG	IRSN (T. Albiol)	France
	WP1-1	COORdination, Administration and Budget	COOR	IRSN (T. Albiol)	France
	WP1-2	Integration Assessment	IA	IRSN (T. Albiol)	France
	WP1-3	Severe Accident Research Priorities	SARP	GRS (B. Schwinges)	Germany
WP2		Spreading of Excellence	SE	KTH (B. R. Sehgal)	Sweden
	WP2-1	Education and Training	ET	UNIPI (S. Paci)	Italy
	WP2-2	ERMSAR conferences	ERMSAR	Hosting Partners	
	WP2-3	MOBility programme	MOB	KTH (B. R. Sehgal)	Sweden
WP3		Information Systems	IS	GRS (D. Beraha)	Germany
	WP3-1	WEB site	WEB	GRS (D. Beraha)	Germany
	WP3-2	Advanced Communication Tool	ACT	GRS (D. Beraha)	Germany
	WP3-3	Experimental Database	ED	JRC/IE (to be confirmed)	Netherlands ?
WP4		ASTEC	ASTEC	IRSN (J.-P. Van Dorsseleere)	France
	WP4-1	Users' Support, Training and Integration	USTI	IRSN (J.-P. Van Dorsseleere)	France
	WP4-2	ASTEC Code ASsessment	ACAS	IRSN (J.-P. Van Dorsseleere)	France
	WP4-3	ASTEC Model EXtension	AMEX	GRS (W. Luther)	Germany
WP5		Corium and debris COOLability	COOL	FZK (W. Tromm)	Germany
	WP5-1	Reflooding and Coolability of a degraded core	RefCool	PSI (J. Birchley)	Switzerland
	WP5-2	Remelting of debris, Melt Pool Formation and coolability	MPF	KTH (W. Ma)	Sweden
	WP5-3	EX-vessel debris formation and COOLability	EXCOOL	USTUTT-IKE (M. Bürger)	Germany
	WP5-4	bringing research results into Reactor Application	COOL-RA	IVS (P. Matejovic)	Slovakia
WP6		Molten Corium Concrete Interaction	MCCI	CEA (C. Journeau)	France
	WP6-1	effect of the concrete nature on 2D Ablation Profiles	AbProf	IRSN (M. Cranga)	France
	WP6-2	role of Metallic Layer on the MCCI	MetLay	FZK (J. Foit)	Germany
	WP6-3	efficiency of Late Water Cooling	LWC	KTH (W. Ma)	Sweden
	WP6-4	bringing research results into Reactor Application	MCCI-RA	INRNE (P. Groudev)	Bulgaria
WP7		CONTainment	CONT	JSI (I. Klienak)	Slovenia
	WP7-1	ex-vessel Fuel Coolant Interaction	FCI	IRSN (R. Meignen)	France
	WP7-2	Hydrogen mixing and combustion in containment	H2	GRS (H.-J. Allelein)	Germany
	WP7-3	bringing research results into Reactor Application	CONT-RA	Jülich (E.-A. Reinecke)	Germany
WP8		Source Term	ST	PSI (T. Haste)	Switzerland
	WP8-1	OXidizing impact on source term	OX	VTT (A. Auvinen)	Finland
	WP8-2	IODine chemistry in RCS and in containment	IOD	IRSN (N. Girault)	France
	WP8-3	bringing research results into Reactor Application	ST-RA	CIEMAT (L. Herranz)	Spain

2.3 PHEBUS – Experiment med härdsmältor

Vid ett svårt reaktorhaveri avges gaser, ångor och gasburna partiklar (aerosoler). En liten del av dessa ämnen är radioaktiva och har stor betydelse för de radiologiska konsekvenserna vid ett eventuellt utsläpp till omgivningen. PHEBUS-FP är ett experimentprogram där man studerar dels härdsmältans beteende vid ett antaget reaktorhaveri, dels hur fissionsprodukter frigörs från en överhettad reaktorhärd och deponeras i reaktorns primärsystem och dess inneslutning. Avsikten var ursprungligen att utföra sex försök med härdsmältning i en nedskalad (ca 1:5000),

men komplett, tryckvattenreaktor försedd med prototypiskt kärnbränsle. Experimenten skulle utföras på sådant sätt att man skulle kunna använda resultaten för att verifiera olika beräkningskoder samt undersöka om tidigare okända (eller försummade) fenomen uppträder i ett komplett system.

Programmet leds av franska IRSN (Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire) och experimenten har genomförts i PHEBUS-reaktorn i Cadarache. Den största finansiären var ursprungligen EDF (Electricité de France), som bidrog med ca 60% av budgeten. Inom EU finns ett omfattande stödprogram för projektet där ett flertal forskningscentra är engagerade. Dessa organisationer deltar även med utvärdering av forskningsresultat. Programmet stöds även av USA, Japan, Kanada, Korea och Schweiz. År 2000 hoppade tyvärr EDF av programmet, vilket medfört en långvarig ekonomisk kris.

När PHEBUS-programmet startade fick Sverige erbjudande om att vara med till en kostnad av ca 6 miljoner FF/år, men tackade nej av ekonomiska skäl. I och med medlemskapet i EU, har Sverige kunnat medverka och får (liksom alla andra EU-länder) full tillgång till resultaten.

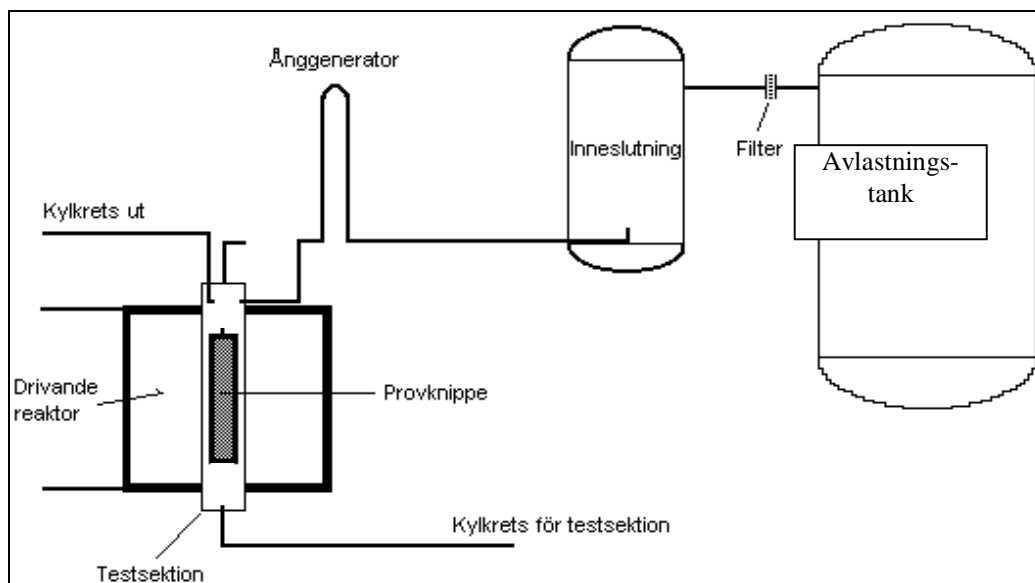
Programmet omfattade ursprungligen sex experiment vilka betecknas FPT0-5, (FPT = Fission Product Test), se tabell 2.3.1. FPT0, FPT1, FPT4, FPT2 och FPT3 genomfördes under åren 1993, 1996, 1999, 2000 och 2004, medan det 5:e experimentet ströks. Ursprungligen planerade man att utföra ett experiment per år. Det visade sig dock snart att nedmontering och dekontaminering efter varje experiment, samt uppsättning av utrustningen för nästa experiment, var svårare och mer tidskrävande än man antagit. Kraven på säkerhet, arbetsmiljö och strålskydd har dessutom höjts från år till år. Kostnaderna för de fem experiment som utförts uppskattas till drygt 2 miljarder kronor. Frankrike står för 60 procent och EU för 25 procent. Resten fördelas mellan de andra deltagande länderna. För att orientera läsaren om programmet i sin helhet sammanfattas testmatrisen i följande tabell.

Tabell 2.3.1: Aktuell testmatris för utförda PHEBUS-experiment.

Experiment	Typ av bränsle	Bränsle	Primärkrets	Inneslutning
FPT0 År 1993	Färskt bränsle i oxiderande miljö	Smältning <20% Bränsledegradering	FP retention i primärkrets. ÅG med het sekundärsida.	Aerosolfenomen Jodkemi vid pH 5
FPT1 År 1996	Använt bränsle i oxiderande miljö	Som FPT-0	Som FPT0	Som FPT0
FPT4 År 1999	"Debris bed"	Total nedsmältning	Ingen (filter)	Ingen
FPT2 År 2000	Använt bränsle i reducerande miljö	Som FPT-0 In-sprutning av borsyra	Som FPT0	Som FPT0 men med pH 9
FPT3 År 2004	Använt bränsle med styrestavs-material av B ₄ C	Max ca 1 kg relokerat bränsle	Som FPT0	Som FPT0 men med pH 9 och rekombinatorer

2.3.1. Experimentuppställning

En förenklad skiss av PHEBUS-uppställningen visas i figur 2.3.1. Anläggningen består i huvudsak av en drivande kärnreaktor, en testsektion, en anslutande yttre krets, en inneslutningstank, samt en avlastningstank. Den drivande reaktorn används först för att återskapa kortlivade klyvningsprodukter i bränslet under normal kylning vid full effekt, samt därefter för att upphetta den nu okylta testsektionen tills dess att bränslet i den relokera och smälter. Testsektionen består av ett bränsleknippe omgivet av ett keramiskt säkerhetsölje av toriumdioxid (innerst) och zirkoniumdioxid (ytterst). Ett typiskt bränsleknippe består av ca 18 bränslestavar och en central styrvstav i en axiellt rotationssymmetrisk geometri. Den yttre kretsen skall simulera en del av primärkretsen hos en PWR med varma benet och ånggenerator, samt reaktorinneslutning.



Figur 2.3.1. En förenklad skiss av PHEBUS-anläggningen med drivande reaktor, testsektion och en simulerad PWR-krets med ånggenerator och inneslutning (anläggningen nedskalad 1:5000).

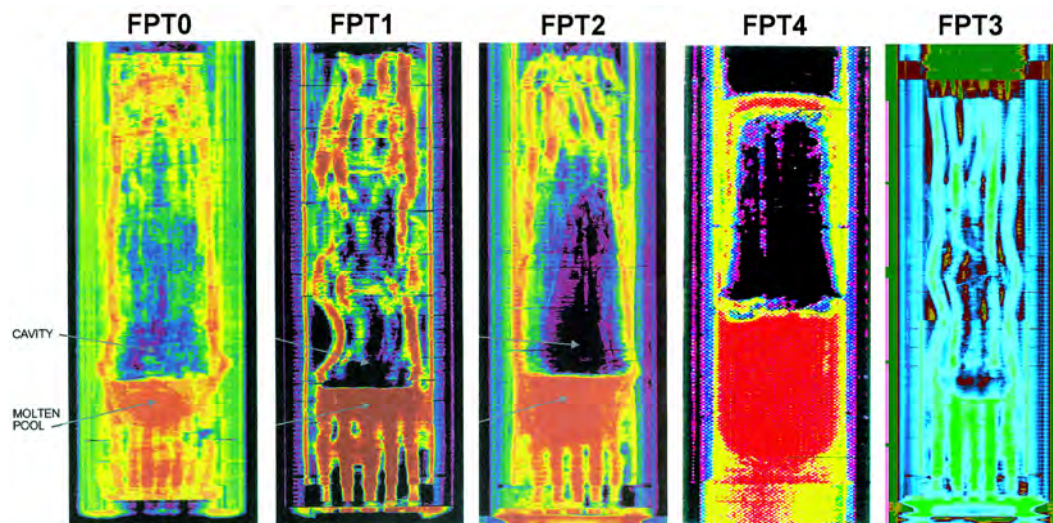
Ett experiment börjar med att det kylda testknippet bestrålas med högt neutronflöde under några veckor för att uppnå jämviktshalter av mera kortlivade radionuklider. Det egentliga experimentet startas sedan genom att det utgående kylflödet från testkanalen omlänkas till den simulerade PWR-kretsen, ingående kylflöde stryps samtidigt som reaktoreffekten sänks kraftigt. Reaktoreffekten ökas sedan åter i steg tills provknippet börjar relokera eller smälta. Experimentet stoppas genom att reaktorn slås av och knippet kyls med inert gas. Detta görs av både praktiska och säkerhetsmässiga skäl eftersom provet kan förstöras vid återflödning med vatten. Man vill vidare inte ha för mycket smälta eftersom detta skulle kunna leda till en reaktion mellan smälta och skyddshölje eller ett dränage av smälta till den nedersta delen av testsektionen.

Möjligheten att följa experiment under själva utförandet med direkta observationer och mätningar är ytterst begränsad. Temperaturen i bränsleknippet blir så hög att stora delar av instrumenteringen i detta smälter, förångas eller reagerar kemiskt med närvarande gaser. Eftersom skyddshöljet är termiskt kopplat till bränsleknippet, kan man genom att mäta temperaturen på olika ställen i höljet få

indirekt information om temperaturen i knippet. Genom tvådimensionella beräkningar fastställs i förväg vilka uppmätta temperaturer på olika platser i skyddshöljet som motsvarar önskade temperaturer i bränsleknippet och vilka mätvärden som skall leda till reaktoravstängning. Dessutom finns speciella mätton i skyddshöljet som skall reagera på eventuell smältning av höljets inre del och utlösa omedelbar reaktoravstängning.

I anslutning till vissa ställen på provkretsen utanför reaktorn finns gammadetektorer monterade som ser ett litet område av kretsen genom långa kollimatorer. Analys av det gammaspektrum som registreras av respektive detektor ger information om hur mängden radioaktiva ämnen varierar i det område som detektorn "ser". Normalt bildar man även differenser mellan mätningar där väggar med eventuellt deponerat material ingår i olika utsträckning. Ur dessa skillnader kan dels mängden deponerat på väggen och dels mängden i den av väggarna inneslutna volymen uppskattas.

Förutom temperaturmätningar och gammaspektroskopi erhålls de flesta resultaten från experimenten genom analys av tagna stickprover och genom olika typer av undersökningar som görs i efterhand. Ultraljudtermometrar med mätkroppar av sintrad toriumoxid (smältpunkt ca 3220⁰C) monterade i bränslet har använts i de senare experimenten för att utöka mätområdet. Speciellt studeras tagna gas- och aerosolprov, deponering av material på olika ytor, sammansättning av vattenlösningen i sumpen och återstoden av bränsleknippet, se figur 2.3.2.



Figur 2.3.2. Tomografiskt tvärsnitt genombränslekanalen efter de olika experimenten. Tätheterna har åskådliggjorts med hjälp av en färgskala, som tyvärr ändrats för FPT3. I samtliga fall ser man hur en betydande mängd bränsle relokaterat till bränslekanalens botten vilket lett till bildning av överliggande hålrum.

Experimenten motsvarar närmast haverier med utebliven reaktoravstängning eftersom kortlivade fissionsprodukter nybildas i stigande fart under hela förloppet fram till reaktorstopp. Under t.ex. FPT3 ökades effekten hos den drivande reaktorn från ca 0.38 MW, när de första kapslingsbrotten observerades, upp till ca 4.6 MW vid experimentets slut. I stora drag följer n-flödet genom bränsleknippet denna effekt och därigenom stiger även fissionraten kraftigt. Detta bör man ha i

åtanke vid jämförelse av resultaten från PHEBUS med verkliga tänkbara reaktorhaverier. I de flesta tänkbara haverifall är det ju resteffekten som leder till uppvärmning medan fissionsraten är låg.

I samtliga fall har utförliga beräkningar genomförts med olika koder för att i förväg prediktera de kommande resultaten. Efter genomförda försök har avvikelserna mellan beräknade och erhållna data analyserats. Dessutom har ett antal nya beräkningar genomförts efter experimenten, där de exakta försöksbetingelserna använts som ingångsdata. Observerade avvikelser mellan data från experimenten och beräkningarna har i stor utsträckning använts för att utveckla bättre modeller eller för att finna bättre värden på justerbara parametrar i modellerna. Uppenbarligen har PHEBUS haft en stor betydelse för förbättring av beräkningsmetoderna och för belysning av olika koders styrkor och svagheter. I och med detta finns tyvärr nu en viss osäkerhet om koderna, samt deras modeller och parametervärden, trimmats för kraftigt med hänsyn till specifika fenomen i PHEBUS-anläggningen. Detta skulle kunna medföra att de inte ger lika goda beräkningsresultat vid tillämpning på verkliga svåra haverier.

2.3.2. Experiment FPT3

Under hösten 2004 genomfördes det sista stora experimentet, FPT3. Ett betydande antal observatörer inbjöds som kunde följa genomförandet via bildskärmar i ett stort tält som rests nära PHEBUS-anläggningen.

Syftet med FPT3 var huvudsakligen att studera hur källtermen påverkas av borkarbid (B_4C) i den simulerade styrstaven. Kvoten rostfritt/ B_4C har valts till ca 3 vilket är representativt för franska PWR med B_4 -stavar men mindre representativt för BWR.

Man har tidigare observerat bildning av koloxid, koldioxid och metan, vilket kan medföra en ökad bildning av organiska jodider (t.ex. metyljodid). Av denna anledning valde man att ha ett högt pH i sumpens vatten så att halten elementär jod i inneslutningens atmosfär skulle hållas relativt låg. Gasformig jod i inneslutningen förväntades då vara dominerad av organiska jodider, vilket ansågs underlätta analyserna.

Tyvärrr misslyckades ingjutningen av bränsleåterstoden i Woods metall eftersom denna stelnade för snabbt och därigenom blockerade vidare tillförsel. Härigenom uteslöts det normala förfarandet där ingjuten bränsleåterstod snittas till skivor för vidare undersökning. För att ändå erhålla så bra information som möjligt om återstoden flyttades provkanalen med innehåll från PHEBUS-anläggningen till en het cell vid CEA:s anläggningar i Caradache. Där har nu kanalen snittats på ett antal ställen. Tyvärr har innehållet relokaterats i betydande omfattning genom oundvikliga lägesändringar och vibrationer under transporten varför ursprunglig position för uttagna prov är osäker. Då aktuell het cell vid ITU⁵ är under renovering kan dessa prov troligen undersökas i detalj först under år 2012.

⁵ ITU (Institute for TransUranium elements) är ett europiskt forskningscentrum. För ytterligare information hänvisas till <http://itu.jrc.cec.eu.int>.

I övrigt har nästan all mätutrustning fungerat som avsett under och efter FPT3. Mätdata visar att transporten av jod från bränslet till inneslutningen var mycket större än under motsvarande experiment med silver/indium/kadmium-legering (AgInCd) i styrstaven, FPT2. Orsaken till detta är ännu ej helt klarlagd. Trots den större mängden inströmmande jod sjönk jodhalten i inneslutningen efter reaktorstopp snabbt till ett lågt värde, som är av samma storleksordning som det som observerats i FPT2. Möjliga förklaringar till detta beteende söks vid de experiment som nu genomförs inom ISTP-projektet, se avsnitt 2.3.4 nedan.

2.3.3. Slutsatser av PHEBUS-programmet

PHEBUS-projektet adresserar flera frågeställningar som också är aktuella från svenskt håll. Man bör förstå att inget PHEBUS-experiment är en exakt kopia av något haveri i en verklig anläggning. Data från dessa experiment bör därför i första hand användas för utveckling och validering av olika modeller och koder.

Det är mycket troligt att ytterligare undersökningar och experiment kommer att erfordras för att slutligen kunna dra definitiva och konkreta slutsatser från försöken inom PHEBUS-projektet.

När det gäller sluttillståndet hos det nedsmälta bränsleknippet så uppvisar försöken relativt stora likheter. Bränsleknippets uppträdande, inklusive vätagasbildningen, är kanske det som idag kan modelleras bäst. FPT3-knippets sluttillstånd avviker dock en hel del från predikterad konfiguration, vilket tolkas som en effekt av närvarande borkarbid. En jämförelse mellan materialfördelningarna i återstoden av knippena visas i figur 2.3.2. Observera att knippet från FPT3 uppvisar två separata hålrum ovanför varandra, vilket inte framgår helt tydligt av figuren. Preliminärt tolkas detta som en effekt av borkarbiden.

Redan de första experimenten pekade på den stora betydelsen av kemiska processer och förlopp, som även är relevanta för svenska verk. Vi står här inför ett paradigmskifte. I fallet jod och cesium kan man dra den försiktiga slutsatsen att deras kemiska form påverkas av bränslets medelutbränning och av typen av styrstavar. En betydande del av cesiet verkar bindas till någon annan klyvningsprodukt – en gissning är att det är molybden. Härigenom minskas möjligheten att bilda cesiumjodid. Styrstavar med AgInCd-legering tycks leda till att huvuddelen av jod binds som silverjodid – både i aerosolform och i sumpvattnet. I samtliga experiment där totalhalten av jod mätts i inneslutningens atmosfär har denna hela tiden varit låg – typiskt under 0.3 % av härdinventariet. Tyvärr saknas ännu data på jods uppträdande i inneslutningen vid ett experiment utan silver. FPT4 saknade visserligen silver men saknade också inneslutning. När alla analyserna från FPT3 – som ju hade inneslutning, men saknade silverhaltiga styrstavar – är klara om några år kan man kanske dra mer generella slutsatser.

Framtagande och publicering av rapporter med tolkning av resultaten från de olika experimenten har varit förenat med stora fördröjningar. Framtagande av den första, och hittills enda färdiga, tolkningsrapporten (för FPT0) tog omkring 10 år.

Samtliga koder har haft påtagliga svårigheter när det gäller att förutsäga jodspecieringen och jodhalten i inneslutningens atmosfär som funktion av tiden. De är dessutom mycket dåliga på att modellera effekten av styrstavar och deras degra-

dering. Särskilt skillnaden i jodtransport mellan FPT2 (låg transport, 0.6 % av IBI⁶) och FPT3 (mer än 100x större transport, 85 % av IBI) genom systemet till inneslutningen saknar en fullständig förklaring. I fallet BWR är detta extra viktigt att förstå. De olika beräkningsverktyg som används för svenska verk bör därför i möjligaste mån valideras mot resultaten från experimenten i PHEBUS och mot nya data från ISTP, se avsnitt 2.3.4. Här behövs troligen också en vidareutveckling av de koder som används i Sverige, t.ex. MAAP. Det är därför viktigt att man även i fortsättningen medverkar i analysarbetet från svenskt håll.

2.3.4. Det internationella källtermsprojektet

Då man ännu inte nått en fullgod förståelse av alla orsakerna till observerade fenomen i PHEBUS-experimenten och för att försöka behålla kritisk kompetens efter projektets avslutande, beslutades att starta ett uppföljande projekt, ISTP (International Source Term Project), ibland även kallat ”Source Term Separate Effects Programme”

Detta program beräknas minst löpa mellan 2005 och 2010 med en total budget på ca 30 miljoner euro. Eftersom en mindre del av finansieringen kommer från EU kan Sverige ta del av resultaten medan programmet pågår. De möten inom ISTP där erhållna resultat presenteras samordnas tills vidare med fortsatta möten inom PHEBUS-projektet. Starten av ISTP har varit ganska långsam, med många förseningar, varför projektet med stor sannolikhet kommer att fortsätta ännu någon tid efter 2010. Det är uppenbart att materialet som presenteras vid ISTP:s möten kommer att öka med tiden medan motsatsen gäller för PHEBUS.

ISTP är nu i huvudsak uppdelat i följande fyra delprojekt.

1. Jods uppträdande i reaktorns kylsystem och inneslutning
2. Inverkan av borkarbid på utvecklingen av svåra haverier
3. Situationer med luftinflöde
4. Avgivning av klyvningsprodukter från bränslet

Inom delprojekt 1 pågår i huvudsak följande: a) jodkemi i kylsystemet (RCS), b) jodkemi i inneslutningen och c) jodkemi i inneslutningen. Delprojekt 2 ska behandla inverkan av B₄C på degradering av bränslepinnar. Inom delprojekt 3 sker följande: a) oxidering av kapsling i luft och b) frigörelse och transport av ruteniumoxider. Experimenten inom delprojekt 4 utförs ej vid IRSN:s anläggningar

De flesta delprojekten är ännu i sin linda eftersom tillverkning, installation och verifiering av ny utrustning fortfarande pågår till betydande del. I samtliga fall avser man att använda resultaten till modellutveckling och/eller verifiering av enskilda moduler i program för simulering av svåra haverier.

För att råda IRSN inför ISTP:s fortsättning bildades i början av 2008 en “Source Term Scientific Programme Committee” med äldre forskare genom personliga inbjudningar från IRSN. Gruppen har haft ett första sammanträde 21-22 oktober 2008. I gruppen ingår två representanter med svensk anknytning, B. R. Sehgal och

⁶ IBI = Initial Bundle Inventory, dvs totalt initialt innehåll i bränsleknippet.

J-O. Liljenzin. Ett dokument med gruppens gemensamma rekommendationer och slutsatser har avlämnats till IRSN.

2.4 MASCA 2 – Experiment med härdsmältor i reaktortank

2.4.1. Introduction

The OECD sponsored projects at their conclusion, traditionally hold a seminar, whose purpose is to disseminate the results obtained during the course of the Project. The MASCA-2 (MATERIAL SCALING phase 2) Project concluded in 2006 and the MASCA-2 Seminar was held on 11-12 October 2007.

The MASCA-2 Project is a successor of the MASCA-1 Project. The MASCA-1 Project also held a Seminar in 10-11 June 2004 to disseminate the results obtained in that Project, which were reported in the APRI-5 Seminar. The MASCA-2 Project was projected to be succeeded by another Project named CORTRAN (CORIUMTRANSIENT), which has not yet started due to financing problems.

The in-vessel retention methodology and experimental programs that were developed to design and qualify the in-vessel retention accident management strategy for the Loviisa, AP-600 and AP-1000 plants did not consider the chemical reactions that can occur between the various constituents of corium melt pool during its convection in the vessel lower head. The RASPLAV Project observed stratification of the melt pool, which could result in the re-distribution of the heat flux that would be incident from the melt pool on the vessel wall.

The MASCA-1 Project was initiated to provide data on the chemical reactions between the various constituents of the melt pool. It was found that the melt stratification observed in the RASPLAV experiment No.1 was due to the formation of Zirconium Carbide due to the presence of ~0.3% carbon in the melt pool. The MASCA-1 Project established that the addition of steel to the corium pool ($\text{UO}_2\text{-Zr O}_2\text{-Zr}$) could also lead to a stratification which could have large implications for the heat flux imposed on the vessel wall.

The MASCA-2 Project was started to obtain further data on the melt stratification due to the presence of steel in an inert atmosphere. It was observed that the addition of steel may result in the formation of an alloy formed with some of the steel with Uranium, which is extracted from UO_2 . This alloy being heavier than corium could settle at the bottom of the pool. Later experiments employed the prototypic atmosphere of steam. It was observed that the addition of the steam, however, reversed the bottom stratification of the steel-Uranium alloy, since the presence of oxygen formed UO_2 from Uranium and released the steel, which proceeded to move to the top of corium pool, since it is lighter than corium. The reversal of the bottom stratification took some time, since it depends upon the diffusion of oxygen from the steam atmosphere through the corium pool to the steel-uranium layer at the bottom.

The last experiments of MASCA-2 lead to a conclusion that the chemical reactions and the resultant pool stratification are time dependent processes and further experiments should be performed to determine the key elements of such transient

processes. A proposal for continuation of such investigations was drafted as the CORTRAN Project.

A projected scenario of the effect of the pool stratification may be as follows:

The addition of steel due to the melting of the structure in the lower head or that of the melting of the core plate may establish a thick enough steel layer on top of the corium melt pool so that the focussed head flux is lower than the critical heat flux (CHF) due to the cooling of the vessel with water-flooding of the BWR dry well or the PWR containment cavity. However, if some of the steel moves to the bottom making the upper steel layer thinner so that the focussed heat flux increases to values above the CHF, it may start the melting of the vessel wall in contact with the steel layer. If the reversal of the bottom stratification of the steel takes a long time, there is the hazard of the vessel melt-failure. However, if the reversal of stratification takes place quickly, the value of focussed heat flux would again be less than the CHF and the vessel integrity will be maintained.

The above scenario consideration was quantified by an analysis by the French contributors to the Seminar to point out the necessity of obtaining data with the CORTRAN Project. Clearly, the transient analysis methodology, which couples the thermal hydraulics of the pool with the chemistry between the corium constituents is needed. Work on the coupling has been started in IRSN and CEA in France. It would be very beneficial if such a methodology and code is completed and the CORTRAN experimental program started in order to obtain a validated analysis method for the behaviour of corium in the lower head during the in-vessel progression of the severe accident. The objective, of course, is to determine if the in-vessel retention accident management strategy can be successful when the vessel is cooled from outside.

2.4.2. Significance of the RASPLAV, MASCA and the CORTRAN Projects for Sweden

The RASPLAV and MASCA Projects are of direct interest to the PWR reactors installed in Sweden since they plan to employ cavity flooding, as prescribed by the Westinghouse Accident Management Guidelines. Although the cavity flooding is much too slow and the lower head contains several penetrations, thereby, in-vessel retention may not be possible for a full (bounding) core melt, however a partial core melt could be contained within the vessel if the vessel is cooled from outside.

The Swedish BWRs do not employ cooling of the vessel from outside, however, they have much steel due to the presence of the control rod guide tubes (CRGTs). They also contain carbon due to melting of the B₄C of the control rods. Thus, the behaviour of the corium in the lower head and the effects of the chemical interaction between the various constituents of the lower head are important to determine the pool configuration and the heat fluxes that can be imposed on the vessel wall and on the control rod guide tubes. The possibility of maintaining water flow in the CRGTs to cool the melt in situ also requires knowledge of the process of corium pool formation and its stratifications, therefore, of the chemical reactions that may occur between the constituents of the melt in the lower head.

2.5 MCCI 2 – Växelverkan mellan härdsmälta och betong

2.5.1. Background

Ex-vessel debris coolability is an important light water reactor (LWR) safety issue. For existing plants, resolution of this issue will confirm the technical basis for severe accident management guidelines. The current OECD- MCCI⁷ program is conducting reactor material experiments. Debris cooling mechanisms investigated in the current program include: i) water ingress through cracks/fissures in the core debris, ii) melt eruption caused by gas sparging (volcanic-type event), and iii) large-scale crust mechanical failure leading to renewed bulk cooling.

A total of seven Small-Scale Water Ingression and Crust Strength (SSWICS) tests, two large-scale 2-D Core-Concrete Interaction (CCI) tests, and one Melt Eruption Test (MET-1) have been carried out in the current program. The SSWICS tests have shown that water ingress can augment the debris cooling rate at the early stage of the core-concrete interaction, but the effectiveness of this cooling mechanism diminishes at the late stage. Post-test crust strength measurements in the SSWICS series as well as *in-situ* strength testing in the CCI series have shown that crusts formed at the melt-water interface are weak. Thus, a floating crust boundary condition is the expected state at plant. Furthermore, crust breach in the large-scale CCI tests has been found to cause a significant transient increase in the debris cooling rate thus augmenting long-term cooling.

The results to date provide an envelope (principally determined by the melt depth) for debris coolability. However, this envelope does not encompass the full range of melt depths that are calculated for some plant accident sequences. Cooling augmentation by additional means may be needed at the late stage to assure coolability for new reactor designs as well as for various accident sequences for existing reactors.

Finally, the results of two-dimensional CCI tests have shown that radial erosion is a key element of the overall cavity erosion process. However, the current program produced very limited data sets for code assessment. In light of significant differences in ablation behavior for different concrete types, additional data will be useful in reducing uncertainties and gaining confidence in code predictions.

The MCCI-2 Project is a continuation of the MCCI-1 Project and the objectives are the same, i.e. perform experiments to develop sufficient experimental information about the corium melt coolability processes so that mathematical models could be developed for each of the coolability processes. These models, on integration in a code could provide the means to assess whether a corium melt pool formed on the concrete basemat in the containment of a LWR can be cooled if it is flooded by water at its top surface.

The MCCI-1 Project performed several experiments in the SWICCS facility to understand, and get data on, the corium coolability process of water ingress in the melt pool. It was found that as more concrete is added into the corium (UO₂-Zr O₂), the water ingress rate decreases. A correlation was developed on the

⁷ MCCI – Melt Corium Concrete Interaction

effects of the addition of concrete products, from the experiments conducted and it has been incorporated in the model employed in the CORQUENCH Code.

The strength of the crust obtained in each of the water ingress tests was measured after the test was completed. In addition, the strength of the crust was measured at elevated temperatures (during the larger scale tests). These data were also correlated and a model for crust strength has been incorporated in the CORQUENCH code.

The MCCI-1 project also performed a number of tests on the corium concrete interaction. The intent here was to obtain data on the two-dimensional ablation of concrete. The two concretes employed were: (i) the lime stone common-sand (LCS) and (ii) the siliceous. It was found in the tests that the ablation rate of the lime stone common-sand concrete was quite uniform spatially, i.e. the radial ablation and the axial ablation rates were about equal. The radial ablation rate for the siliceous concrete, on the other hand, was found to be much greater (factor of 3) than the axial ablation rate. This latter observation was confirmed also in the tests conducted on siliceous concrete in the Vulcano facility in Cadarache.

The dry concrete ablation tests were flooded with water near when the allowed ablation depth was about to be reached, in order to observe whether the corium could be cooled. It was found that, in general, the corium melt could not be cooled and the concrete ablation continued, albeit, at a slow rate. In one case, the corium was cooled, which however, could not be explained. Perhaps, water came in through a large crack at the side boundary between corium melt and the concrete.

2.5.2. Work Scope for the MCCI-2 Project

The MCCI-2 Project is a continuation of the MCCI-1 Project, with tests, which explore the remaining components of the coolability modelling.

The MCCI-1 and -2 projects are a successor of several experimental projects at Argonne National Laboratory (ANL), which have been conducted since 1989. That the corium coolability issue is not an easy one to resolve is clear from the length of this sustained research effort. That the experimental research on coolability is still being funded by a consortium of countries testifies to the importance of the coolability issue for the public and regulatory aspects of LWR Safety. Without achieving the coolability of the corium discharged to the containment, in the event of a severe accident resulting in vessel failure, the plant operator can not assure the public that the severe accident has been stabilized and will be terminated soon with no potential for a large release of radioactivity to the environment. Thus, it is vitally important to assess whether the melt discharged to the containment in a large core-melt accident can be cooled or not.

Thus, the SWICCS-8 test was intended to obtain data on the water ingress in the presence of the gas flow, which is generated by the concrete ablation in the prototypic accident. There are tests scheduled to, (1) understand the reasons for the different ablation behaviour of the LCS and the siliceous concrete, (2) determine the ablation and the coolability with metal melt included in the oxide corium melt, (3) explore innovative ways to enhance the coolability of corium melt (4) explore ways to enhance the coolability in an integral manner in which all the

coolability mechanisms are active and (5) develop models for all the coolability processes in the CORQUENCH code and validate them against the data obtained in the various MCCI tests conducted over the years at ANL and at other laboratories, e.g. in France, USA, Germany, Russia, etc.

The various tests have been classified into 4 categories. Category 1 tests are the tests performed in the SWICCS for investigating water ingress in different situations. Category 2 tests are for exploration of innovative ways to enhance the coolability of corium melts. Category 3 tests are primarily for the investigation of dry corium-concrete interaction, except that near the end of the test water is added on top to determine if the melt can be cooled. This is also representative of a late accident management action of adding water. It also measures the long term slow ablation of concrete. The category 4 tests are of integral nature with early addition of water. One large scale test is planned and the objective is to obtain data to validate codes. Category 5 is the development of models for the corium concrete interaction processes and incorporating them in the MCCI codes, e.g. WECHSEL and CORCON (MELCOR) and the development of models for the various coolability mechanisms and incorporating them in the COREQUENCH code.

2.5.3. Tests Performed and Preliminary Results Obtained

The MCCI-2 Project is still in a preliminary state since some tests have been performed and some results have been obtained, however, no definitive conclusions have been reached.

Category 1 tests have been performed in the SWICCS facility. Ingots with large diameter/depth ratio were generated in the tests for strength testing. It was found that the data obtained on the strength was quite similar to that obtained for the ingots with smaller diameter/depth ratio. In both cases the crust strength is quite low, i.e. the crust could break with the loading of the water added from top.

The SWICCS-8 test modelled coolability of a melt pool in which gas (from concrete ablation) is added from the bottom. The objective is to measure the effect of gas injection on the rate of water ingress. The SWICCS-8 test showed that there was no effect of the gas injection on the rate of water ingress. This was a surprising result and it was determined from post-test examination that in the experiment the gas had bypassed the melt pool. Another test is being prepared with careful sealing so that the gas bypass does not occur.

Two corium concrete interaction (CCI) category 3 tests, the CCI-4 and CCI-5 have been performed. The CCI-4 contained more metal than earlier tests to represent a BWR corium melt. This test was flooded with water after the specified concrete ablation depth was reached. Coolability was not achieved as in the earlier tests performed in the MCCI-1 Project (except for one in which water came in from the side and cooled the melt). The CCI-5 test was designed as a large aspect ratio (span/depth) test. This test has just been performed and the data is being evaluated. It was not possible to add water at the end, since it was feared that the pressurization of the test section could be greater than its design pressure.

2.5.4. Test in Various Stages of Planning

The Category-2 Tests

Some category-2 tests are being planned. These tests are the controversial tests. The objective of these innovative tests is to enhance the coolability of melt pool by employing different coolability mechanisms. Clearly, just adding water on top of the melt pool has been unable to achieve melt coolability and the ablation of the concrete basemat continues.

A decision was made to conduct a SWICCS experiment with water injection at four different points at the bottom of the test section at different pressures. The minimum water pressure employed would be equal to the static head of the melt, the maximum would be that plus <0.2 bars.

The design of the EPR type category 2 experiment was presented. This is a 50 x 50 cm heated experiment with ~400 kg melt in a one dimensional test section (all inert walls) with a sacrificial concrete layer above the water cooled channels. Five parallel channels are proposed in the design. The power input in the melt is 80 kW. The water ingress should proceed, however, if it stops, then the input power is greater than the dry out power. The next procedure would be to decrease the power level in steps of 10 KW at ~15 minute intervals, until the power input starts to decrease at constant voltage. This would provide the dry out limit for the melt. Water ingress should restart at a power level below the dry-out power level. The test would be terminated if, and when, the melt temperature at the bottom reaches the water saturation temperature. This test is under preparation.

The Category-4 Test

The Category 4 tests were supposed to be integral tests to provide data to test the code predictions. The proposal from ANL is to perform one test at the scale of 75 x 75 cm in a 2-D concrete test section employing approximately 100 kg of melt. The melt height would be ~25 cm. The test would differ from the CCI tests in that there will be early immediate flooding of the melt with water as soon as the melt starts interacting with the 2D concrete basemat.

The proposed Category 4 test is like CCI tests, except that water is added immediately after the ablation starts. Most of the 2-D CCI tests did not cool down, when water was added after about 30 cm of concrete was ablated from the base and sidewalls.

2.5.5. Modelling Activities

The code CORQUENCH is being improved at ANL. The modelling of the water ingress process is being upgraded by adding the correlation developed in the MCCI-1 Project for the effect of concrete addition. The melt eruption modelling is being improved by adding first order phenomenological models. The crust strength model is being prepared and the anchoring model has been incorporated. The integrated analysis capability is being tested. Some other minor fixes have also been made.

University of Wisconsin, is incorporating two-phase flow effects in the modelling of melt eruptions. The difficulty in modelling is in determining the flow area in

the crust for the eruption flow and in determining the entrainment coefficient for the melt in the gas that is going through the cracks (holes) in the crust. The model development is proceeding.

2.6 SERENA – Ångexplosioner i reaktorinneslutningen

2.6.1. Bakgrund

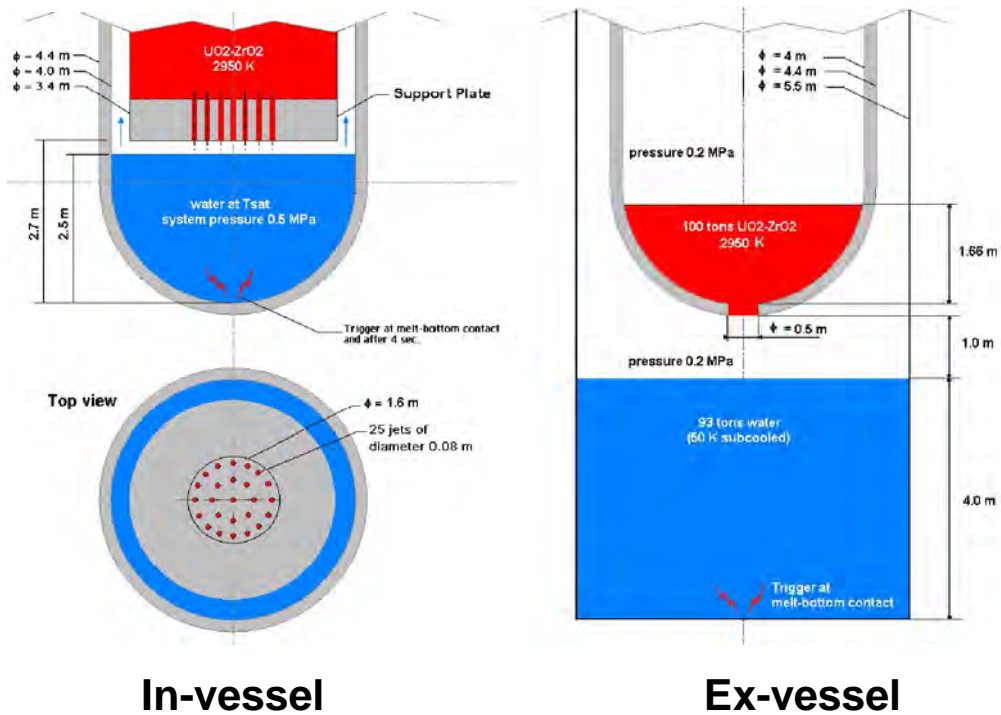
Under januari 2002 startades ett OECD/NEA-projekt kallat SERENA – Steam Explosion REsolution for Nuclear Applications. Sverige har inte deltagit i den första fasen av projektet. Anledning till detta var att projektets huvudsakliga syfte var att genomföra ångexplosionsberäkningar för olika reaktorsituationer och Sverige saknade beräkningsverktyg för detta ändamål.

Det övergripande målet med SERENA har varit att få en tillräckligt bra förståelse för ångexplosioner för att kunna göra riskbedömningar av reaktorinneslutningar. Projektet hade följande fyra specifika delmål:

- Att utvärdera förmågan hos ett flertal ångexplosionskoder att prediktera explosionsbelastningar för realistiska förhållanden i och utanför reaktortanken.
- Att identifiera viktiga ångexplosionsfenomen och uppskatta relaterade osäkerheter.
- Att föreslå fortsatt forskning med syfte att reducera dessa osäkerheter till en acceptabel nivå.

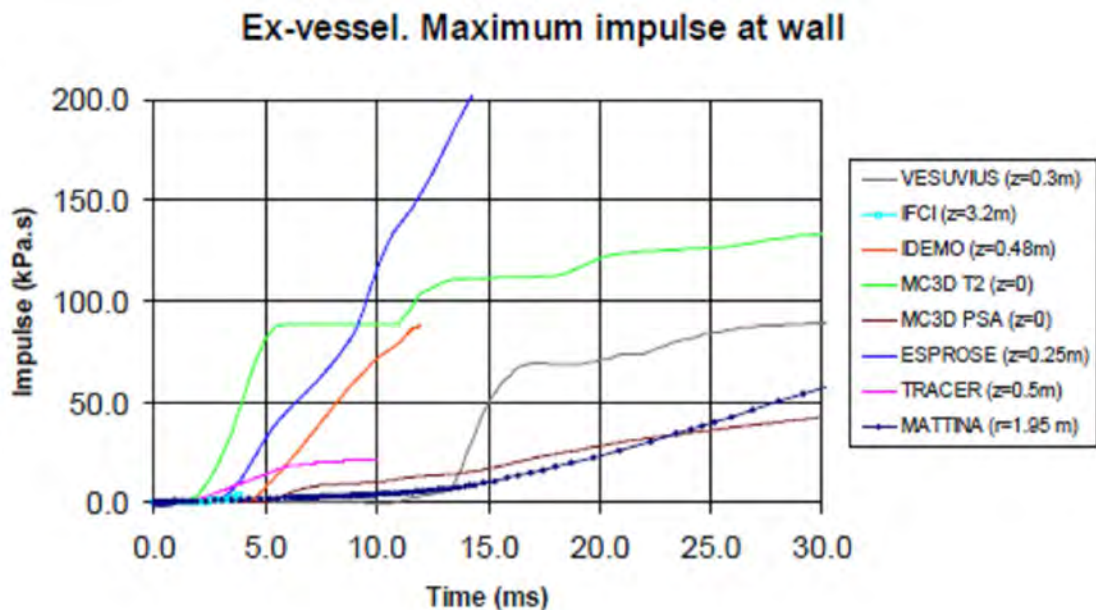
Dessa målsättningar uppnåddes huvudsakligen genom jämförande beräkningar av relevanta experiment och relevanta generiska haverisituationer i och utanför reaktortanken. I figur 3.6.1 visas förutsättningar för ”in-vessel” och ”ex-vessel” beräkningar.

När projektet avslutades i december 2005 kunde man konkludera dels att reaktortanken skulle motstå postulerade ”in-vessel” ångexplosioner, dels att ”in-vessel” ångexplosioner inte utgör något hot mot inneslutningens integritet. Dessa slutsatser kunde dras trots osäkerheter, framförallt vad gäller ånginnehållet under premixing, tack vare att beräknade impulser var tillräckligt små jämfört med reaktortankens hållfasthet. Beträffande ”ex-vessel” explosioner var slutsatsen inte lika positiv, dvs. det gick inte att utesluta att en ångexplosion skulle kunna hota inneslutningens integritet.



Figur 3.6.1. Förutsättningar för reaktorberäkningar i fas 1 av SERENA-projektet.

Ett annat problem var att olika datamodeller som beräknar förloppen vid ångexplosioner, gav stor spridning i resultaten. Detta kunde tyda på att det finns brister i förståelsen av fenomen relaterade till ångexplosioner i reaktorinneslutningen. Den förmodligen viktigaste frågan där kunskapen behöver förbättras är ånginnehållet (voiden) i blandningszonen strax innan explosionen. I figur 3.6.2 kan man se att beräknade impulser i utrymmet under reaktortanken (som motsvarar nedre drywell i svenska kokvattenreaktorer) kan bli höga och att det är en stor spridning mellan impulser beräknade med olika koder.



Figur 3.6.2. Högsta väggimpulser beräknade med olika koder.

Utvärderingen av resultaten från SERENA-projektet ledde till en rekommendation för fortsatt forskning med syfte att minska osäkerheter och därigenom uppnå större tillförlitlighet i beräkningar av säkerhetsmarginalerna, i synnerhet vad gäller inneslutningsbelastningar.

2.6.2. SERENA 2 – Fortsättningen av SERENA

Fas 2 av SERENA-projektet startade i oktober 2007 och 11 länder deltar. Delta-gande organisationer är:

- Tractabel Engineering, Belgien
- Atomic Energy of Canada Limited, Kanada
- VTT, Finland
- CEA and IRSN, Frankrike
- GRS, Tyskland
- Japan Nuclear Energy Safety Organisation, Japan
- KAERI and Korea Institute of Nuclear Safety, Sydkorea
- Jozef Stefan Institute, Slovenien
- Strålsäkerhetsmyndigheten, Sverige
- Paul Scherrer Institute, Schweiz
- US NRC, USA

Syftet med fas 2 av projektet är att bringa klarhet i ångexplosionsfenomen för prototypiska smältor genom att genomföra ett begränsat antal väl designade experiment med avancerad mätutrustning. Ett annat syfte är att tillhandahålla experimentella data för vidareutveckling och validering av ångexplosionskoder. Som stöd till den experimentella delen finns en grupp vars uppdrag är att genomföra för- och efterberäkningar med olika koder samt beräkningar för realistiska haveriscenarier.

Experimenten genomförs i den s.k. TROI-anläggningen som finns hos KAERI i Sydkorea samt i KROTOS-anläggningen som numera ligger i Cadarache i Frankrike. Projektet kommer att pågå till september 2011. Tidigare har tester genomförts i TROI med smältmängder upptill 30 kg. Materialet i smältan var en blandning av UO_2 och ZrO_2 samt i en del fall tillsatser av zirkonium eller stål. Generellt för dessa experiment var att överhettad smälta (i vissa tester var överhettningen betydande) växelverkar med underkylt vatten. Experimenten i TROI har bekräftat den betydelse som smältans sammansättning har för sannolikheten att en ångexplosion inträffar och för energiutbytet vid explosionen.

En serie med sex kompletterande tester vardera i TROI och KROTOS kommer att genomföras, dvs. totalt 12 tester. Grundförutsättningarna för dessa experiment visas i tabell 3.6.1. Effekten av smältans sammansättning på initiering och propagering av en explosion kommer att studeras genom att använda fyra olika smältkompositioner, se tabell 3.6.2.

Grundkompositionen är en eutektisk blandning av UO_2 och ZrO_2 , dvs. 70% UO_2 och 30% ZrO_2 , eftersom tidigare TROI-experiment visade att denna sammansättning kan ge spontana explosioner med större verkningsgrad än andra kompositio-

ner. Andra kompositioner kommer att bestämmas senare. För att garantera att en explosion kommer att inträffa, används en trigger i alla tester.

Tabell 3.6.1: Grundförutsättningar för KROTOS och TROI experiment.

Parameter	KROTOS	TROI
Smältans massa, kg	~ 5	~ 20
Vattenbassängens djup, m	≤ 1.1	0.7 – 1-3
Vattenbassängens diameter, m	0.2	0.6
Smältans fallhöjd, m	0.5	0.5 – 1.0

Tabell 3.6.2: Föreslagna sammansättningar på smältan.

Material	Composition	Situation / Related effect
Mat 1	70%UO ₂ -30%ZrO ₂	Reference material
Mat 2	80%UO ₂ -20%ZrO ₂	Standard material in FARO and KROTOS
Mat 3	70%UO ₂ -30%ZrO ₂ +steel +Zr	Metal content representative of a reactor situation (to specified after discussion with the partners) Focus on role of oxidation of metallic components
Mat 4	70%UO ₂ -30%ZrO ₂ +FP + iron oxide + absorber materials as appropriate	Other composition representative of a reactor situation (to be specified after discussion with the partners, considering also BWR specificities) Focus on role of large liquidus-solidus ΔT

I tabell 3.6.3 visas förslag till testmatris. Smältans temperatur kommer att ligga nära den temperatur som ges av realistiska bedömningar av haveriförloppet. Stark överhettning som i vissa tidigare TROI-experiment kommer att undvikas.

Det första testet i TROI, TS-1, genomfördes i september 2008. Smältstrålens diameter i vattnet var 5 cm och en explosion ägde rum. Smältans temperatur var ca 2600°C och smältmängden ca 15.4 kg. Explosionens verkningsgrad har uppskattats med hjälp av uppmätta impulser men det finns osäkerheter på grund av problem med bestämning av smältans temperatur. Resultaten visade att verkningsgraden inte överstiger ca 0.1 %. Medianen för partikelstorleken ligger på ca 0,5 mm.

I november 2008 genomfördes det andra testet i TROI, TS-2. Testparametrarna för TS-2 var samma som för TS-1 med undantag för vattnets underkyllning, som var lägre i TS-2 än i TS-1, nämligen 62°C mot 115°C, och att smältmängden var mindre, nämligen 12.5 kg. Denna skillnad berodde på lägre tryck och högre vattentemperatur. Resultaten från TS-1 och TS-2 är jämförbara men verkningsgraden var något högre i TS-1 än TS-2.

Tabell 3.6.3: Förslag till testmatris för KROTOS och TROI.

	KROTOS	TROI
Challenging conditions (to be finalised through discussion with the partners)	Standard geometrical conditions High melt superheat High system pressure (0.5 MPa)	High system pressure (0.5 MPa) Reduced free fall (Melt jet velocity) and thick melt jet
	Mat: to be decided	
Geometry effect Effect of geometry by comparison between KROTOS and TROI	Standard conditions: jet of diameter 3 cm	Large jet at penetration (5 cm)
	Mat 1: 70%UO ₂ -30%ZrO ₂	
Material effect Oxidic composition	Standard conditions	Large jet at penetration (5 cm)
	Mat 2: 80%UO ₂ -20%ZrO ₂	
Material effect Oxidation/composition	Standard conditions	Large jet at penetration (5 cm)
	Mat 3: 70%UO ₂ -30%ZrO ₂ +steel +Zr	
Material effect Large solidus/liquidus ΔT	Standard conditions. Effect of fission product: higher melt superheat	Large jet at penetration (5 cm). Failure at the bottom, considering layer inversion. (2-5 cm)
	Mat 4: 70%UO ₂ -30%ZrO ₂ +FP+iron oxide+absorber materials	
Reproducibility tests	Idem Test 3 or 4	Idem Test 3 or 4

Det första testet i KROTOS, KS-1, genomfördes i augusti 2008. Smältans temperatur var ca 2700 °C och smältmängden som deltog i explosionen var ca 2.6 kg. Verkningsgraden var något högre jämfört med TS-1 och TS-2. Detta skulle delvis kunna förklaras av 1-D geometrin i KROTOS. Partikelstorleken för fragmenterad smälta är ungefär samma som i TROI-testerna.

2.7 BIP – Jodkemi i reaktorinneslutningen

Under år 2006 föreslog AECL (Atomic Energy of Canada Limited) att OECD skulle starta projektet Behaviour of Iodine Project (BIP) för studier av jodkemin under sådana betingelser som förväntas under svåra reaktorhaverier. Ett första möte organiserades under september 2006 vid OECD-NEA:s högkvarter i Paris. Då ett tydligt intresse fanns bland representanterna för deltagande länder beslöts att OECD och AECL skulle gå vidare med aktuellt projektförslag. Detta medförde att ett kontrakt för OECD:s BIP-projekt upprättades och signerades under maj-juni 2007 och beräknas pågå under 3 år.

I projektet skall AECL genomföra en serie experiment med jodkemi under de betingelser som gemensamt överenskommit bland deltagarna. Vidare skall AECL överföra data, resultat och kunskap från utvalda tidigare genomförda experiment i AECL:s Radioiodine Test Facility (RTF) till deltagarna i BIP-projektet. BIP-projektet skall bedrivas under tre år samt styras och övervakas via en programgrupp (Program Review Group) med deltagare från alla de länder och organisationer som signerat BIP-projektets kontrakt. PRG skall sammanträda två gånger per år under projektets löptid.

Syftet med BIP-projektet är att tillhandagöra forskning inom 3 olika områden som sker och har skett vid AECL i Kanada.

De tre områdena är:

1. Analys av data från tidigare RTF-försök
2. I₂-adsorption på ytor
3. Produktion av organisk jod från ytor

Av dessa är den första i princip ett tillhandahållande av "gamla" redan genomförda försök av jodadsorption på olika färger vid olika temperaturer. En fortsättning på de redan gjorda försöken är del 2 ovan. Nu finns det möjlighet att undersöka relevanta faktorer i nya försök. Försöken har inte helt varit representativa för svenska förhållandena men intressanta resultat har ändå framkommit såsom att jodadsorptionen på färg beror starkt på den relativa luftfuktigheten.

I den tredje delen undersöks bildningen av organiska jodföreningar från olika färger av varierande ålder och vid olika temperatur. Här har man problem med identifiering av produkterna men det kommer att utvecklas under projektets gång.

Tre rapporter från de tidigare genomförda RTF-experimenten har getts ut i draftformat för kommentarer från programgruppen. En rapport som beskriver experimentutrustningen och två med redovisning av genomförda försöksomgångar.

Experimentella data från de sju första försöken med jodadsorption och organisk jodbildning samt data från två av RTF-försöken har gjorts tillgängliga för samtliga BIP-medlemmar genom BIP:s hemsida. Ett antal av BIP-medlemmarna har uttryckt att de kommer att använda dessa data för modelleringar.

Samtidigt med BIP-projektet har det i Sverige pågått nationellt och EU-finansierad forskning på jodkemi av intresse för analyser av konsekvenser från hypotetiska svåra reaktorhaverier i både PWR och BWR.

Det projekt som i huvudsak relaterar till Chalmers bidrag inom BIP är undersökning av jodadsorption på autentisk färg tagen från inneslutningen i Barsebäck. Detta är ett stort steg framåt då de färger som undersöks inom BIP antingen är nya eller har lagrats i laboratoriemiljö. Färgen från Barsebäck är mer än 30 år gammal och har utsatts för strålning under tiden vilket gör försöken mycket mer realistiska.

Även övriga jodförsök som genomförs på Chalmers eller i samarbetet mellan Chalmers och VTT i Finland har stor relevans för BIP då det rör sig om bland annat identifiering av jodoxider och andra specier. Denna speciering kommer att väsentligt påverka modelleringen av systemen.

3. KTH:S FORSKNING INOM SVÅRA HAVERIER

3.1 Research Goals, Approach, Activities and Achievements

The overall objectives of severe accident research at Kungliga Tekniska högskolan (KTH) are as shown in Figure 3.1, with the central aim of creating new knowledge (e.g., data, models, codes, methodologies and insights) on melt-structure-water-interaction (MSWI) phenomena that enables reducing uncertainty in quantification of severe accident risks in a light water reactor (LWR).

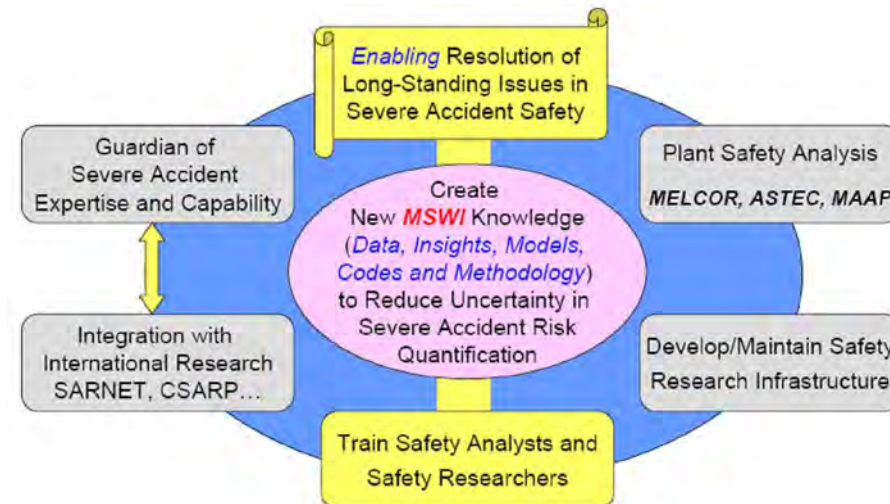


Figure 3.1: Objective of MSWI research.

Under the support of the APRI-6 program (2006-2008), the MSWI research at KTH has been directed to a new phase, which focuses on the assessment of ex-vessel melt risks in Swedish BWR plants with external cavity flooding. The research's ultimate goal is to enable resolution of two long-standing issues, namely ex-vessel steam explosion and debris coolability in the BWR severe accident scenarios. Guided by a risk-oriented approach (cf. Figure 3.2), the research selected the MSWI phenomena which are identified as having the largest impact and the significant uncertainties on the quantification of corium coolability and ex-vessel steam explosion.

Originally, the MSWI-APRI6 research was driven by the hypotheses that *i*) melt discharge from the BWR vessel is gradual, in dripping mode that largely eliminates the steam explosion risk and forms high-porosity beds, *ii*) water access to the porous bed in multi-dimensional arrangement ensures coolability of particulate beds, even for deep and stratified beds, and *iii*) non-eutectic binary melts render low conversion ratio in a steam explosion. Accordingly, the research activities were divided into three topical areas:

- **INCO** (IN-vessel debris COolability).
- **EXCO** (EX-vessel debris COolability), including two sub-topics:
 - DEFOR (DEbris bed FORmation).
 - POMEKO (POrous MEDIA COolability).

- **SEE** (Steam Explosion Energetics).

The MSWI-APRI6 activities capitalize on the existing knowledge base and leverages on international research programs, especially in synergetic collaboration with the SARNET project supported by EU, through a supportive activity named **SAID** (Severe Accident Information Distillation from the EU-SARNET).

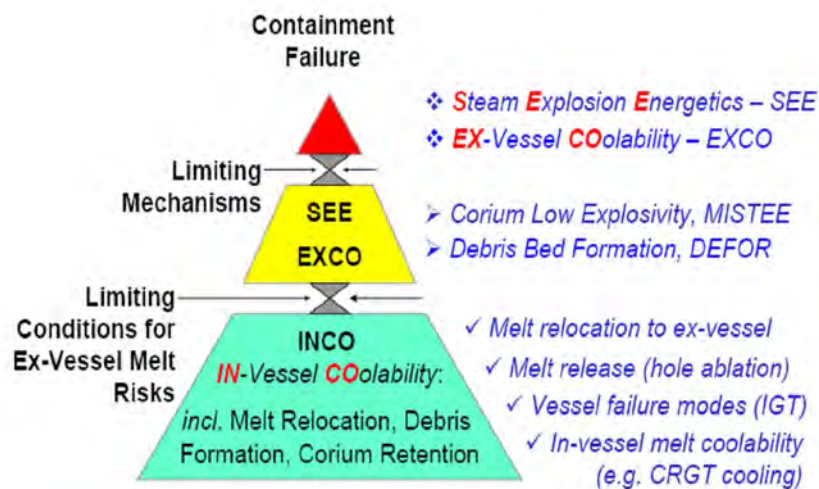


Figure 3.2: Risk-oriented approach for selection and integration of activities.

In summary, the MSWI-APRI6 research has generated additional evidences and knowledge to enhance confidence in the initial hypotheses. The key findings and messages from the research are confirming the initial hypotheses as follows.

- **INCO:** The advances and understanding achieved provide the basis to assess the in-vessel retention (IVR) by adoption of control rod guide tube cooling in BWRs. The developed methodologies are also instrumental to address the unlikelihood of the previously postulated bounding scenarios with large melt release rate.
- **EXCO:** There is a very high likelihood that the prototypic debris bed is coolable, when both the delay in melt relocation and self-organization in debris bed formation are accounted for.
- **SEE:** Given the high likelihood of dripping-mode discharge of the melt and growing evidences on corium to explosivity, the previously calculated risk of large-scale steam explosions in ex-vessel scenarios is diminishing.

Overall, the MSWI-APRI6 research has advanced knowledge of steam explosion and debris coolability toward reducing conservatism in quantification of ex-vessel melt risks in Swedish BWRs. We have developed a solid ground for understanding and validation of analysis tools (e.g., DEFORSIM, DECOSIM, PECM, WABE) that were unavailable a couple of years ago. The research is also instrumental to training of experts in severe accident risk assessment and management.

Two MSWI-based theses of Licentiate of Technology were completed and defended.

It is notable that the EU SARNET program is a useful platform for KTH, APRI and Sweden to leverage on international collaborations. The MSWI-APRI6 project had established an effective two-way street interaction and synergy with the SARNET, as well as other severe accident research programs within CSARP, OECD and ISTC.

In this report only the major achievements are summarized. More detailed description of research activities can be found in respective progress reports and publications.

3.2 In-Vessel Coolability (INCO)

3.2.1. Motivation

To prove the hypothesis of melt gradual discharge from the BWR vessel, we need to perform a systematic in-vessel coolability (INCO) analysis for accident scenarios with aim to find and quantify vulnerabilities and characteristics for melt release (e.g., the framework as in Figure 3.3).

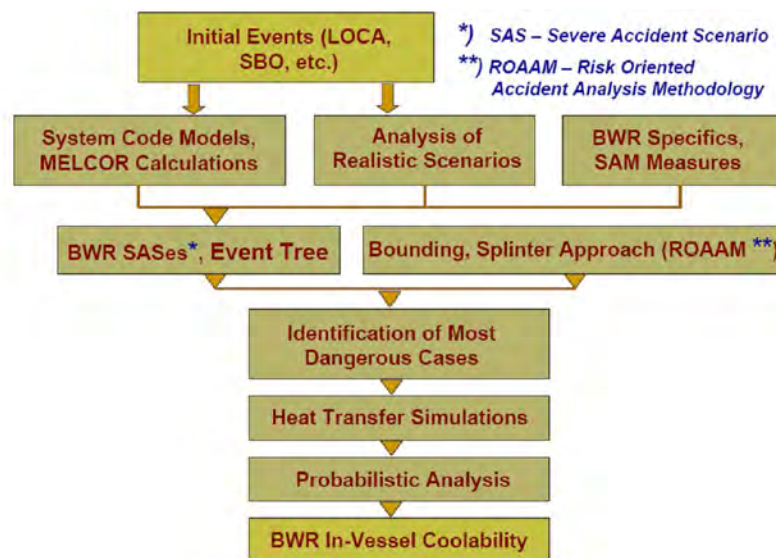


Figure 3.3: Systematic analysis of in-vessel severe accident scenarios.

However, due to manpower constraint and ex-vessel emphasis in MSWI-APRI6, the INCO activity was only focused on heat transfer simulations to understand core melt behavior in the BWR lower plenum (Figure 3.4). It is also our intention to examine the possibility of the in-vessel retention (IVR) by control rod guide tubes (CRGTs) cooling which may be adopted as a severe accident management measure. Toward the objective, a computational tool is needed.

The task to predict volumetrically-heated liquid melt pool behavior at reactor scales has been a challenge due to the corium pool's high Rayleigh number (10^{15} - 10^{17}), and the long duration of the accident progression. The difficulty is further increased in BWRs whose lower plenum includes a forest of vessel penetrations, i.e. instrument guide tubes (IGTs) and CRGTs, especially when the CRGTs is considered to aid Severe Accident Management (SAM) by providing a pathway of water supply to remove the heat from a melt pool through the CRGTs cooled surfaces. The presence of CRGTs significantly complicates the lower plenum heat transfer geometry and fluid flow patterns.

The objective of the present study is to develop a computationally effective method to describe the thermofluid dynamics of melt pool formation in the RPV (Reactor Pressure Vessel) lower head, so to enable high-fidelity predictions of thermal loads on the reactor vessel and internal structures. Empirical lumped parameter (analytical) models can be used as baseline for qualification of energy splitting in simple-configuration melt pools. The CFD method is used extensively as a supporting tool. Although computationally expensive, the CFD simulations are indispensable when it comes to complex flow geometry and complex fluid physics. The CFD method itself must be validated against relevant experimental data. In that way, the validated CFD method can then be used to perform “numerical experiments” which provide data for validation of other lower-fidelity models. The central part of the study is the Effective Convectivity Model (ECM) and Phase-change ECM (PECM) method, whose development and validation significantly leverage on the analytical model, the CFD results and the validation database. As illustration of the ECM method capability and effectiveness, hereafter we present a multi-dimensional mechanistic analysis of thermal processes in a BWR lower head under severe accident conditions.

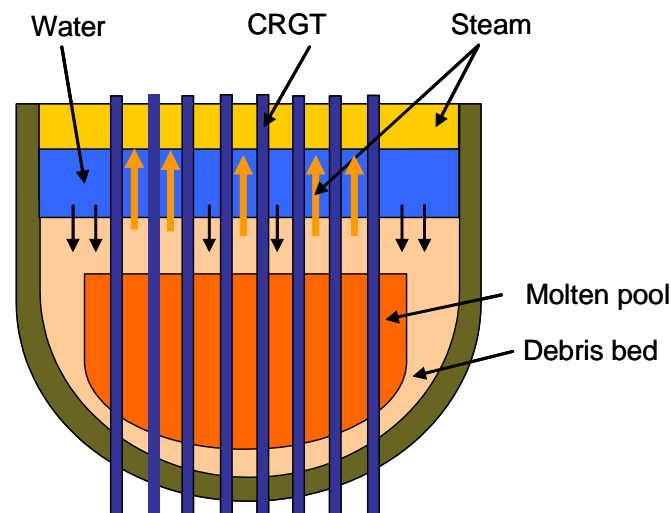


Figure 3.4: Material configuration in a late phase of accident progression in a BWR.

3.2.2. ECM/PECM Approach

Built on the concept of effective convectivity first introduced in the Effective Convectivity Conductivity Model (ECCM) by Bui and Dinh [3.1], and supported

by the findings obtained from the CFD study, the ECM is developed to enable effectively sufficiently-accurate simulations of melt pool heat transfer in a reactor lower plenum. The ECM method uses directional effective heat-convecting velocities, or simply named characteristic velocities U_x , U_y and U_z to effectively transfer the heat generated in the fluid volume toward the cooled boundary (wall) in an amount equal to the convective heat transport in the respective direction.

The use of effective convectivity helps eliminate the need to solve a complete set of Navier-Stokes and energy equations with instantaneous fluid velocities (u_x , u_y and u_z) – a computationally expensive exercise for a large natural convection liquid pool with high Rayleigh numbers (turbulent regime). Instead, the energy conservation equation is solved using the effective convective terms represented by the characteristic velocities [3.2]. To determine the characteristic velocities, clearly, the heat transfer coefficients upward, sideward and downward are needed. Therefore, the developed ECM method is a correlation-based method. For such a purpose, Steinberner-Reineke correlations are selected [3.3].

The ECM is implemented in a commercial Computational Fluid Dynamics (CFD) code, the Fluent code. The treatment of the modified source term is achieved by Fluent user defined functions. During each time step, the modified source term is determined for all computational cells, using temperature gradients available explicitly (from the previous time step). The use of Fluent also provides pre- and post-processing capabilities (e.g with Gambit/TGrid grid generator for 3D meshing).

To enable simulations of melt pool formation heat transfer, the ECM is extended to phase change problems, and the phase-change ECM is named PECM.

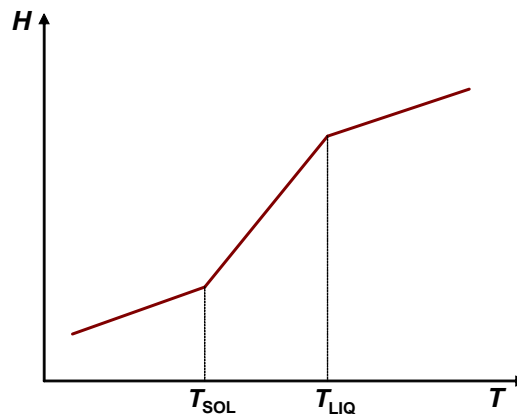


Figure 3.5: Relation between total enthalpy and temperature with phase-change temperature range (T_{SOL} and T_{LIQ} are solidus and liquidus temperatures).

In the PECM, the source-based method is used to model the solidification/melting process. The enthalpy formulation is based on the assumption of total enthalpy as a dependent variable, along with the temperature (Figure 3.5). According to the enthalpy formulation, the phase-change material is assumed to be mushy for temperature T in the range $T_{SOL} \leq T \leq T_{LIQ}$.

The main task of the PECM is treatment of heat transfer characteristic velocities in a mushy zone of non-eutectic binary mixture. The characteristic velocity in a mushy zone is modeled as a function of the liquid fraction F_L . In a mushy zone, liquid fraction defines the fluid velocity, in turn, the fluid velocity effects heat transfer characteristics of the mushy zone. In reality, liquid fraction is related to temperature of the binary mixture in a mushy zone by either linear, linear-eutectic, Scheil, or power-law relationship [3.3]. Thus using various types of liquid fraction dependency we are able to realize different models of the mushy-zone characteristic velocity in a mushy zone. To examine the effect of different models of the mushy-zone characteristic velocity, the linear, quadratic and n -order liquid fraction dependencies are implemented in the PECM, and simulation results are compared. It is found that the linear dependency is benchmarked against both the experiments and CFD generated data, and it can be accepted for description of mushy-zone convection heat transfer [3.3, 3.4]. The PECM with the linear model of mushy-zone characteristic velocity is applied for simulations of melt pool formation heat transfer in a BWR lower head.

3.2.3. Validation of ECM/PECM

Validation of the ECM/PECM is performed using a dual approach. This means that the ECM and PECM are benchmarked against key available experiments, as well as validated against CFD generated data.

The ECM is extensively validated against various experiments with different types of geometry. The reason is that, in the ECM, three separate directional heat transfer coefficients of Steinberner and Reineke are implemented [3.2]. For a curved surface, e.g. the lower plenum vessel, in the ECM the sideward and downward heat transfer coefficients harmonize together where temperature gradients are available for both directions (i.e. horizontal and downward). It is therefore important to check the resulting heat transfer coefficient along a curved surface, thus validation of the ECM with complex geometry is necessary.

For a fluid layer cooled from the top, Kulacki-Emara experiment is used for spatio-temporal validation of the ECM. The ECM well predicts transient temperature profiles of the fluid layer. The ECM is also validated against the Kulacki-Goldstein experiment, where a fluid layer is cooled from the top and bottom walls; Steinberner-Reineke experiment with Joule heated water in a rectangular cavity cooled from all walls. Results predicted by the ECM are qualitatively and quantitatively agreed with the experimental data. For complex geometry, the ECM is validated against experiments in different types of geometry: semicircular cavity geometry by Jahn and Reineke; COPO torospherical cavity by Kymalainen et al.; hemispherical pool by Asfia and Dhir. Good agreement between the ECM predicted results and experimental data was achieved [3.2].

To the second approach of validation, the ECM is used to predict energy splitting and pool's temperature of an internally heated fluid in a semicircular cavity and unit volume, for which the CFD simulations are also performed [3.2]. Results of the ECM and CFD simulations show that the predicted upward and sideward heat transfer coefficients are well agreed (in 15% range), and consistent with the Steinberner-Reineke correlations. The downward heat transfer coefficient predicted by the ECM slightly differs from that of the CFD, although it is still kept in

an acceptable range. The ECM predicted heat transfer coefficient profile along the CRGT shows a good correspondence with that of the CFD simulation (unit volume geometry).

It is important to note that although for both semicircular cavity and unit volume geometry, the ECM is capable to predict the pool's superheats, which differ from those of the CFD method by only few degrees, the ECM predicted temperature profile is not really reassembled with that of the CFD in the lower pool's region. The effect of turbulent mixing in the lower region is not captured in the ECM simulation. This effect is believed to be caused by impingement of the flows which have descended from the boundary layers along inclined surfaces, on the lower surface. This phenomenon was first predicted by Nourgaliev et al. [3.5] and attributed to the relatively low Prandtl number of the corium melt. The effect of the low fluid Prandtl number on heat transfer of a melt pool formed in the BWR lower plenum was examined and results are presented in [3.4].

To the melt pool formation heat transfer simulations, the PECM is used to simulate the SIMECO experiment (an eutectic test in a semicircular cavity, run SSEu-10) performed at KTH. Results of SIMECO simulation [3.3] show that the PECM is capable to predict energy splitting, melt pool temperature profiles, as well as the heat transfer coefficient profile along the vessel wall surface. The PECM performance is also benchmarked against another representative experiment, the LIVE-L1 experiment (a non-eutectic test in a hemispherical pool) performed at FZK, Germany. Crust thickness along the vessel cooled wall is well captured by the PECM tool [3.4].

It is worth noting that the ECM/PECM simulation allows using larger time steps and coarser meshes compared to those of the CFD simulation. More importantly, solving only the energy conservation equation without the need to follow instantaneous fluid motion, the ECM/PECM requires a much smaller number of iterations to achieve solution convergence in each time step. Consequently, the ECM/PECM runs are two orders of magnitude faster than the corresponding CFD run.

3.2.4. Application of ECM/PECM

The ECM and PECM methods are used to analyze a corium pool formed in a BWR lower plenum. First, we apply the ECM to an enveloped melt pool of 1.0 m depth representative of BWR 3D slice geometry [3.2]. The Rayleigh number in such a pool reaches 10^{15} . The following boundary conditions are applied: the left wall of the slice, front and back surfaces are symmetrical or adiabatic; the top, CRGT and vessel wall surfaces are isothermal. The ECM simulation results are presented in Figure 3.6. It can be seen that the heat flux distributions along the CRGTs are very close in both profile and value. The maximum value of CRGT heat flux profile is found to be close to 300kW/m^2 for the pool of 1.0 m depth. The superheat of the core melt is $\sim 78\text{K}$. Clearly, this relatively low superheat is due to good mixing that transports heat to large cooled areas, especially the CRGT surfaces. The analysis shows that the CRGT-cooled surface area may accommodate up to 75-80% of the decay heat. In fact, the CRGT wall heat flux is predicted to be higher than the vessel wall heat flux. The peak heat flux on CRGT is 1.7 times higher than the peak heat flux on the vessel wall. The ECM simulation per-

formed for the 1.4 m corium layer shows a slightly higher superheat ($\sim 93\text{K}$), and a reduced ratio of the peak heat flux between CRGT and vessel wall (~ 1.3). The wall inclination apparently has influenced the peak heat flux. A higher melt pool results in a higher peak heat flux on the vessel wall. The calculated peaking values of heat flux can be used to compare with the Critical Heat Flux (CHF) to determine the coolability, either inside the CRGTs or outside the vessel wall in case of external cooling [3.6].

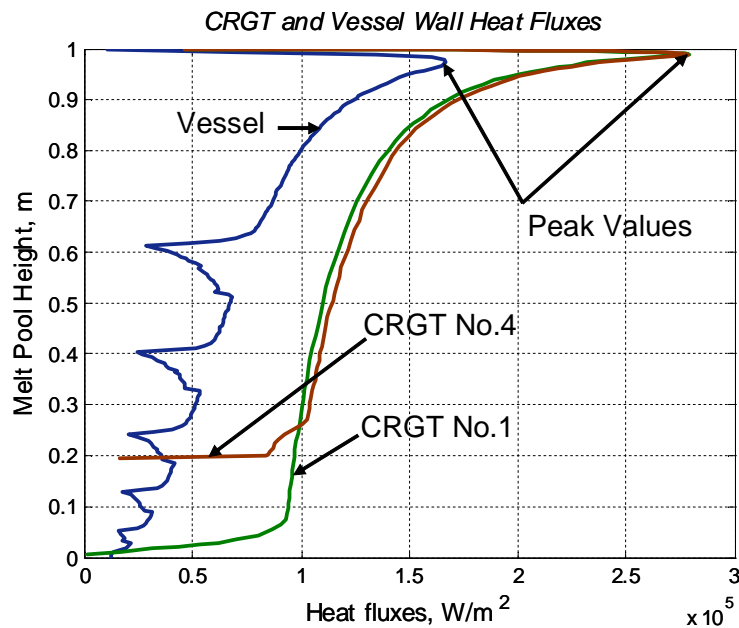


Figure 3.6: Heat flux distributions along CRGTs and vessel wall, $H = 1.0\text{ m}$.

In a next step, the PECM is used to simulate debris bed heatup and melting in the 1 m-deep slice. The simulation is performed with a computational domain including the vessel wall thick 182 mm, connecting to the debris bed from below. Figure 3.7 shows the progress of melt pool formation. The debris reheating is predicted to take 2.8 hours until the melting onset. Small melt pools are first formed in the midst of the CRGTs, afterward enlarged and connected together, forming a large melt pool in the lower plenum. The effect of natural convection is well captured in the simulation. Along the top surface and the CRGT surfaces, thick crusts are formed at the beginning. During melt pool expansion, natural convection results in higher upward and sideward heat fluxes [3.7]. As a result, the crusts become thinner in the upper regions of the pool. The pool superheat predicted by the PECM is 84K, slightly higher than the ECM result for the same geometry configuration, reflecting the effect of the pool's enveloping crust. The upward and sideward (to CRGT) heat fluxes reach a steady state at ~ 7 hours. The heat fluxes to the vessel wall and from the vessel wall to CRGTs remain transient, suggesting a continued heatup and melting for the vessel under deficient cooling from the vessel outer surface. If creep temperature is 1100 °C for vessel steel, the PECM simulation predicts that a creep failure may occur in the vessel region next to the debris uppermost corner at 5.6 hours into the transient heatup (Figure 3.8).

For thinner debris layers (0.7 m and less), the corium fills only the vessel area penetrated (and cooled) by the CRGTs. In such a case, the hot vessel wall is transferring the heat to the cooled CRGTs through radiation and conduction via the thin air gaps between the vessel wall and CRGTs. The PECM calculation shows the vessel external surface temperature below 1100 °C, no sign of vessel ablation and reached the steady state at ten hours into the transient (Figure 3.8).

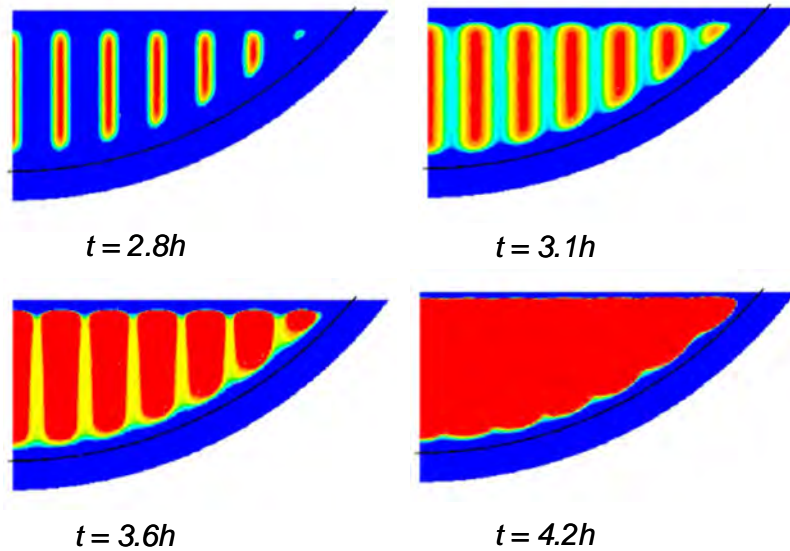


Figure 3.7: Melt pool formation in a BWR lower plenum (slice simulation, $H = 1m$).

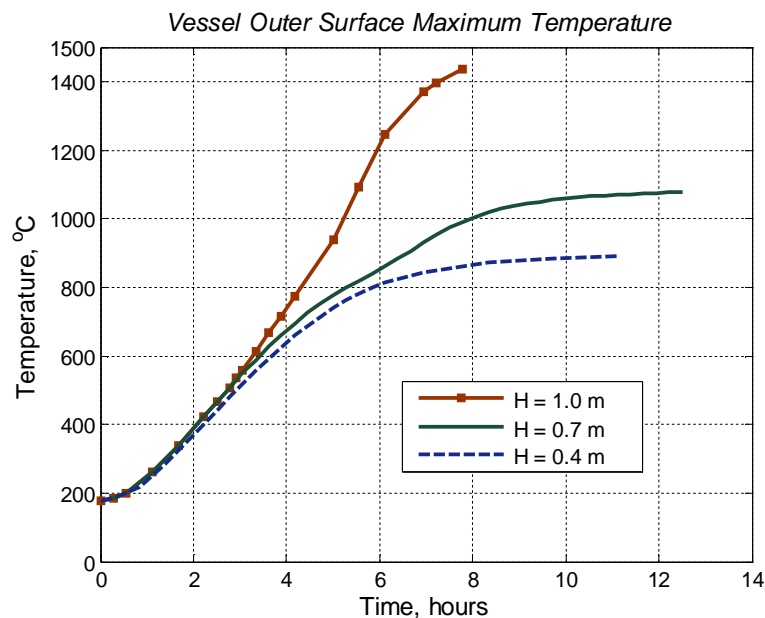


Figure 3.8: Evolution of vessel wall maximum temperature for different pool depths.

This result suggests that the CRGTs cooling offers an avenue to remove the heat from the bed and the melt pool, keeping the vessel wall temperature below the

material creep temperature when the debris layer is less than 0.7 m thick. It is noted that the SAM scheme also calls for continued supply of water from other sources into the containment, bringing the ex-vessel water level above the core level in a later phase of the accident progression. Consequently, the external vessel cooling would alleviate the likelihood of the vessel failure due to the delayed overheating and creep of the reactor pressure vessel predicted for the in-vessel debris beds of 0.7 m and higher. Thus, CRGT cooling can serve as an effective heat removal measure in the case of melt pool formation in the lower plenum, reducing the probability of vessel failure due to corium thermal attacks.

3.2.5. Concluding remarks

Toward quantification of melt discharge from the BWR vessel, a computational tool (ECM/PECM) was developed and validated to be able to analyze core melt behavior in the BWR plenum with complex geometries. It is shown that the ECM/PECM is an effective tool for computing melt pool formation and evaluation of thermal loads on the reactor pressure vessel wall and internal structures in severe accident scenarios. In particular, the ECM/PECM simulations indicate a high potential of using CRGT cooling to delay the vessel failure and increase the likelihood of in-vessel core melt retention in BWRs.

Further development of the simulation tool includes the coupling of ECM/PECM with structural mechanics code, which can be used to estimate the vessel failure under thermal and mechanical attack. Towards a proof of the hypothesis that melt discharge from the BWR vessel is gradual in dripping mode, a comprehensive framework is needed to quantify the vessel failure mode and timing by taking into account accident scenarios and reactor specifics. This should be emphasized in follow-up study, since the insights from MSWI-APRI6 research has pointed out the weakest links, among which the expertise and capability in INCO activity are far more critical for the issue resolution than it was initially envisioned.

3.3 Ex-Vessel Coolability (EXCO)

3.3.1. Motivation

In the past, coolability study was focused on homogeneous debris beds in top-flooding scenarios, which manifest the situations when side and bottom coolant feeding is negligible or absent, for example when corium debris was assumed to spread evenly over the cavity floor. Moreover, a porosity of 0.3~0.4 was used in coolability analysis. For a uniform debris bed packed by regular particles, the dry-out heat flux (DHF) can be determined by a 1D counter-current flow limit (CCFL) and predicted, with a fair accuracy, by analytical models, see e.g. [3.8-9].

Given reactor accident scenarios with formation of a deep bed or a fine bed with either small particles or low porosity, the existing models predict that the top-flooding is insufficient to remove decay heat released in such debris beds. This perception has motivated further search for additional means to enhance the debris bed coolability, eventually benefitting reactor safety performance.

The ex-vessel coolability (EXCO) study was motivated by our belief that the debris bed formed in fuel coolant interactions (FCI) is heterogeneous with potential

porosity more than 0.4, and the coolability of a debris bed formed in the flooded cavity during a severe accident scenario is determined by the bed's characteristics such as bed porosity, fragment (debris) size distribution and geometrical configuration. However, until very recently the characteristics of a prototypical debris bed were an omitted gap between the study of molten fuel-coolant interactions (FCI) and evaluation of debris bed coolability. Very little data and scattered evidences from FCI studies suggested that FCI particles are not spherical and the prototypic beds may feature a much higher porosity [3.10].

The EXCO study consists of the DEFOR (DEbris bed FORmation) activity and the POMECO (POrous MEdia COolability) activity. The DEFOR aims to fill the contemporary knowledge gap on debris bed characteristics. The activity includes experimental, analytical and computational components [3.11-16]. The objective of the DEFOR experimental campaign (using corium simulant materials) is to provide separate effect investigations of the debris formation and debris packing phenomena. Extrapolation of the DEFOR experimental findings to the reactor conditions is supported by the development, validation and application of a multi-scale simulation approach.

The POMECO (POrous MEdia COolability) activity is oriented to assess the coolability of a debris bed with prototypical characteristics discovered in DEFOR, or with retrofit measures such as a downcomer. The research includes both analytical and experimental work. The focus has been placed on analysis so far, and experiment is under development after the needs appeared from the analysis.

3.3.2. Debris Bed Formation

The phenomenology of debris bed formation can be seen in Figure 3.9. We emphasize complex interactions and feedbacks between distinct phenomena, namely premixing, debris bed thermal-hydraulics and debris bed formation [3.12].

For investigation of the debris bed formation during long transients of melt release to the reactor cavity, it is evident that complete numerical simulations of the debris bed formation are neither practical nor even necessary, given intrinsic uncertainties of accident scenario and precursory processes (e.g. FCIs). We therefore adopted an integrated experimental/computational approach. Our objective is to maximize the benefits of both experiments and simulations in developing capability to predict debris bed formation in reactor accidents with a high confidence.

A summary of the approach for the debris bed formation is presented in Figure 3.10. The first stage is decomposition of a complex problem into a number of separate-effect problems. Particularly we decompose the process of the debris bed formation in three sub-processes: (i) generation and dynamics of debris particles in FCIs; (ii) sedimentation and spreading of particles in the water pool; (iii) settlement and packing of the debris particles into a bed. For each sub-process we develop a separate effect experimental study, and supplement it with analytical/computational study.

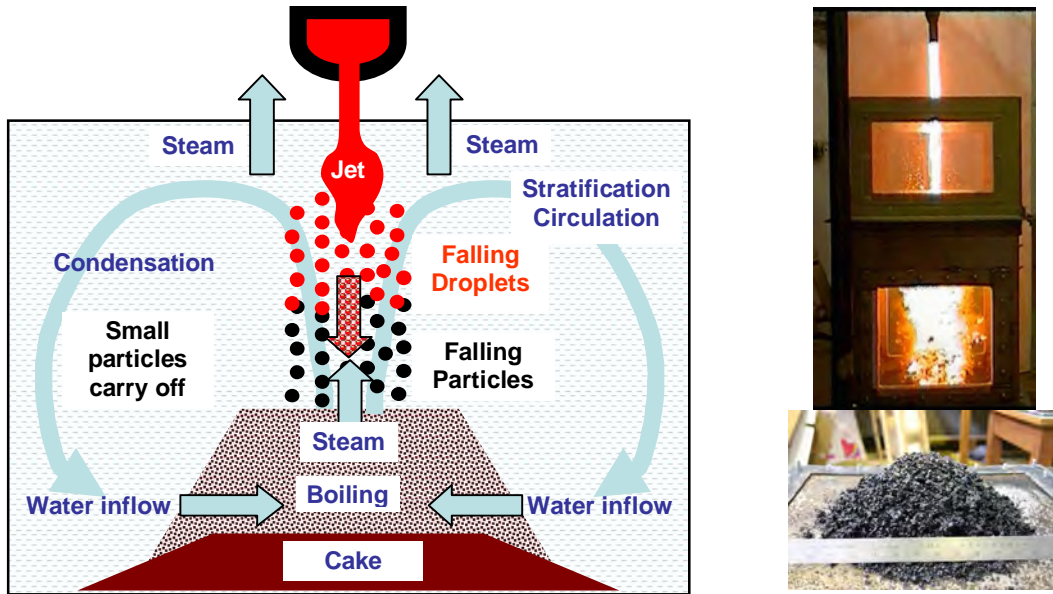


Figure 3.9: Phenomena that govern the debris formation.

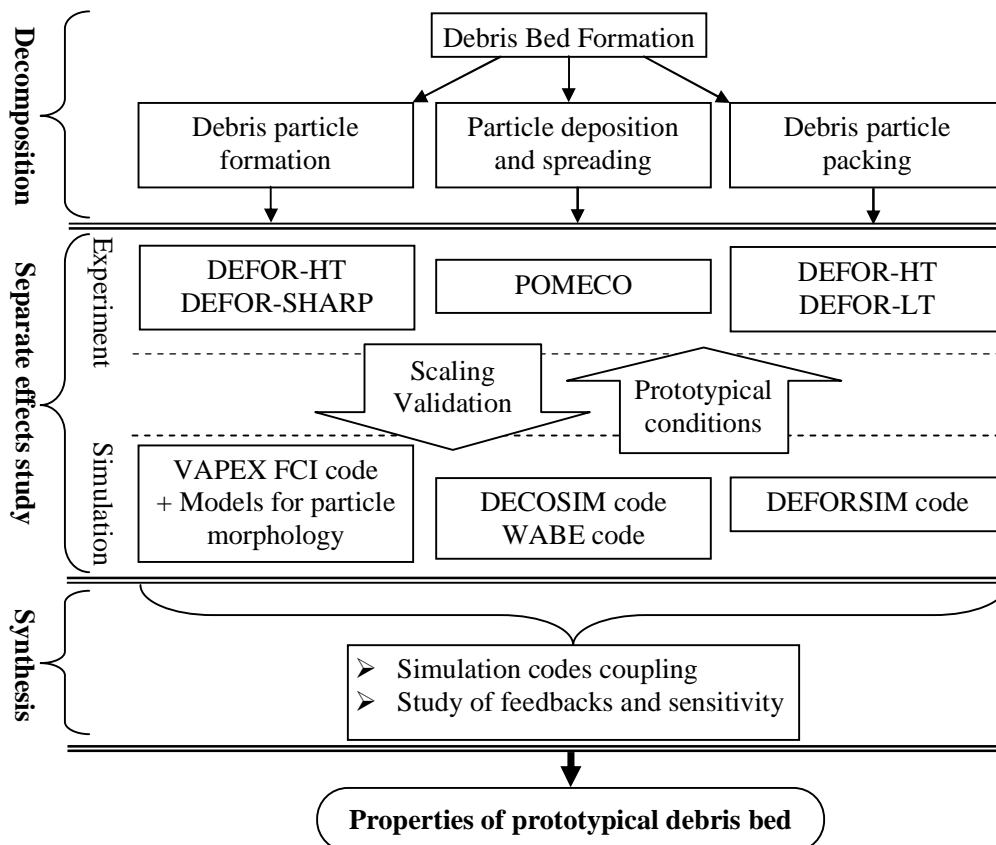


Figure 3.10: Approach and components of the debris bed formation study.

Apparently, the complexity and multi-faceted nature of the debris bed formation necessitate the use of several tools, each one needing its own validation database. Synergy between calculations and experiments is provided by two way informa-

tion exchange. Experiments provide observation of physical phenomena and data for validation of numerical tools and scaling of the empirical closures. In turn, numerical simulations for reactor processes help forecast reactor prototypical behaviors and determine relevant scalable conditions for experiments (Figure 3.10).

For the experimental study of the debris particle formation we employ DEFOR-HT (High Temperature) tests [3.11-13]. For better understanding of single particle formation phenomena we plan to use SHARP facility [3.17] initially developed for steam explosion study. Simulation approach for particle formation and pre-deposition state is based on the FCI code VAPEX and recently developed enhanced models for heat transfer and particle formation [3.18].

The DECOSIM code [3.16] is used to predict particle deposition and spreading by taking into account two-phase flow inside the decay-heated debris bed and in the drywell pool. It is shown that global flow circulation has strong influence on particle deposition and spreading over the pool bottom area. Debris particle packing and bed formation are studied in two experimental settings DEFOR-HT and DEFOR-LT (Low Temperature), and computationally with the DEFORSIM code [3.14-15]. The DEFOR-LT experiments aim to quantify the influence of particle shape and coolant flow characteristics on the debris bed properties such as porosity and non-homogeneity. The DEFORSIM (Debris Formation Simulator) code is a multiscale code for prediction of long transient processes of the debris packing and bed formation.

The combined experimental and numerical approach to DEFOR study helps us to reveal important physical mechanisms which are responsible for the formation of high-porosity debris bed.

Experimental Results

The schematic view of DEFOR experimental facility is presented in Figure 3.11. The DEFOR facility is composed of a 45kW medium-frequency (up to 30 kHz) Induction Furnace (IF) for melt generation, a melt delivery funnel, and a coolant tank with glass windows for visual imaging of transient melt-coolant mixing, particle formation, sedimentation and packing. The simulant-material melt is generated in a SiC crucible. The liquid melt is delivered to the funnel by tilting the crucible, using a remote control. The delivery funnel is conical with a replaceable discharge nozzle 12, 16, and 20 mm in diameter. For DEFOR-S tests S1~S8 the test facility (Figure 3.11) is as the same as in the DEFOR-E tests E1~E7 [3.11]. In DEFOR-S tests S9~S13 [3.13], the test section was extended for a deeper pool (up to 1.5m depth).

The exploratory DEFOR-E [3.11] test campaign provided a first-cut examination of the effect of various non-prototypic factors (e.g., simulant melt materials) and test conditions (e.g., melt temperature and discharge velocity, coolant pool depth and temperature) on debris bed formation. The results of DEFOR-E scoping tests showed strong dependence of the resulting debris bed characteristics on water subcooling and pool depth (Table 1). However, these scoping tests were of transient nature because coolant conditions were significantly altered by the heat transferred from the debris bed during relatively long melt delivery. Also in the DEFOR-E tests significant differences were observed between low density glass-

like and high density ceramic type material melt simulants in the fragmentation and debris packing behavior. While it is not possible to extrapolate the DEFOR-E results to the reactor prototypic debris bed formation, the lessons learned from the DEFOR-E observations led to the formulation of the DEFOR-S test campaign [3.12], whose experiments are described in [3.13].

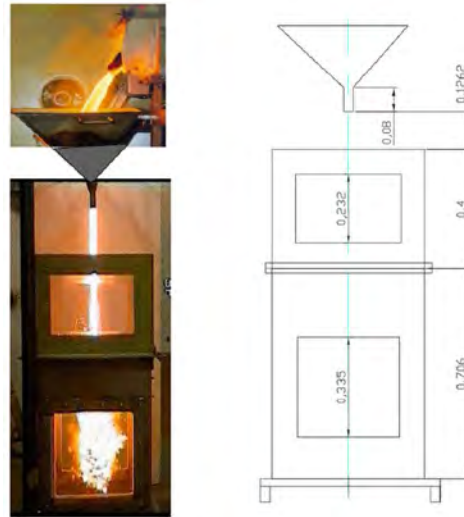


Figure 3.11: Schematic view of the DEFOR facility's test section.

Table 3.1: DEFOR-E experimental conditions and main results [3.11].

Experiment	E1	E2	E3	E4	E5	E6	E7
Melt volume, liter	3.5	7.0	3.5	3.5	3.5	3.5	2.5
Melt initial temp, °C	1200	1300	1350	1350	1200	1250	1280
Coolant volume, liter	163	163	163	100	100	163	163
Coolant initial temp, °C	13	11	85	15	83	88	7
Water pool depth, cm	65	65	65	40	40	65	65
Measured porosity, %	60	77	74	56	50	68	65

The DEFOR-S experiments aims to characterize debris formation under well-defined coolant conditions. For this purpose the amount of melt used in DEFOR-S test was reduced to ~1 liter to minimize the coolant condition variability, most notably, the coolant temperature during melt discharge and bed formation. On the base of the DEFOR-E results analysis it was decided to use a deep water pool to prevent debris cake formation. Several DEFOR-S tests as well as several material tests with small amount of melt were performed to identify the best material for experiments. The mixture Bi₂O₃-WO₃ is favored because of its high density and exhibition of a broad range of fragmentation behaviors reported in the previous FCI experiments with ceramic melts including corium. In addition, this material is

easy to work with over a wide range of chemical compositions for which the melting temperature remains accessible by the inductive heating technology and SiC crucible used in the DEFOR facility.

The first 13 tests (S1~S13) of DEFOR-S was devoted to the study of the influence of melt composition and water subcooling on the bed's averaged porosity and morphology of the particles. Test matrix, including test conditions, along with the measured values of the resulting bed's averaged porosity, is given in Table 2 and Figure 3.12.

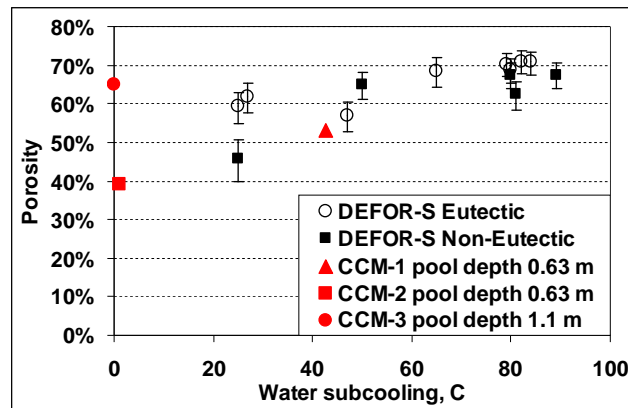


Figure 3.12: Averaged porosity of debris beds as function of water subcooling and melt composition in DEFOR-S simulant-melt experiments and CCM tests with prototypic corium melt [3.13].

Table 3.2: The DEFOR-S test matrix and measured data of the debris beds.

N	Experiment Parameter	Experiment												
		S1	S2	S3	S4	S5	S6	S7	S8	S9	S10	S11	S12	S13
1	Component 1	MnO	MnO	Bi ₂ O ₃	WO ₃	Bi ₂ O ₃	Bi ₂ O ₃	Bi ₂ O ₃	Bi ₂ O ₃	Bi ₂ O ₃	Bi ₂ O ₃	Bi ₂ O ₃	Bi ₂ O ₃	Bi ₂ O ₃
2	Component 2	TiO ₂	TiO ₂	WO ₃	TiO ₂	WO ₃	WO ₃	WO ₃	WO ₃	WO ₃	WO ₃	WO ₃	WO ₃	WO ₃
3	Molar fraction 1, %	37%	37%	29%	64%	29%	50%	23%	23%	22%	27%	27%	22%	27%
4	Molar fraction 2, %	63%	63%	71%	36%	71%	50%	77%	77%	78%	73%	73%	78%	73%
5	Eutectic mixture	yes	yes	yes	yes	yes	no	no	no	no	yes	yes	no	yes
6	Mixture density, kg/m ³	4562	4562	7852	6436	7852	8235	7727	7727	7705	7811	7811	7705	7811
7	Melt volume, liter	0.942	0.986	0.85	0.85	1.0	1.0	0.882	0.882	0.917	1.0	1.0	1.0	1.0
8	Liquidus temperature, °C	1369	1369	880	1233	880	1080	994	994	1025	870	870	1025	870
9	Temperature of melt, °C	1450	1400	950	1400	980	1060	1020	1020	1070	1080	1070	1150	1100
10	Water temperature, °C	16	18	21	20	75	20	19	75	11	73	53	50	35
11	Water pool depth, cm	65	65	65	65	65	65	65	65	110	100	110	110	110
12	Jet free fall height, cm	20	60	60	60	60	60	60	60	60	70	60	60	60
13	Nozzle diameter, mm	20	20	20	20	16	16	12	12	12	12	12	12	12
14	Measured porosity, %	71%	71%	70%	69%	59%	68%	62%	46%	68%	62%	57%	65%	68%
15	Mass of agglomerates, %	0%	0%	0%	0%	20%	0%-	0%	90%	0%	8%	0%	0%	0%

Main observations and findings from the first DEFOR-S campaign can be summarized as follows.

- The measured averaged porosity is higher than the typical porosity of 40% postulated in all previous studies of the debris bed coolability (Table 2).
- Averaged porosity of the debris bed is largely insensitive to the melt composition (Figure 3.12).

- Under high subcooling (S1~S4, S6, S7, S9, S13 tests) the averaged porosity is high ~62–70%, and slightly decreases with the decrease of water subcooling.
- While averaged porosity is high (~57-65%) in experiments with middle and low subcooling of water (S5, S8, S10~S12), there is considerable fraction of defective porosity due to particles with fully or partially encapsulated cavity.
- The DEFOR-S data are in a good agreement with data of CCM-3 corium test [3.10].
- Relatively low porosity (46%) measured for the test S8 with lower water subcooling is consistent with a cake formation. Also, a noticeable particle agglomeration was observed in S5 and S10 tests under low water subcooling.

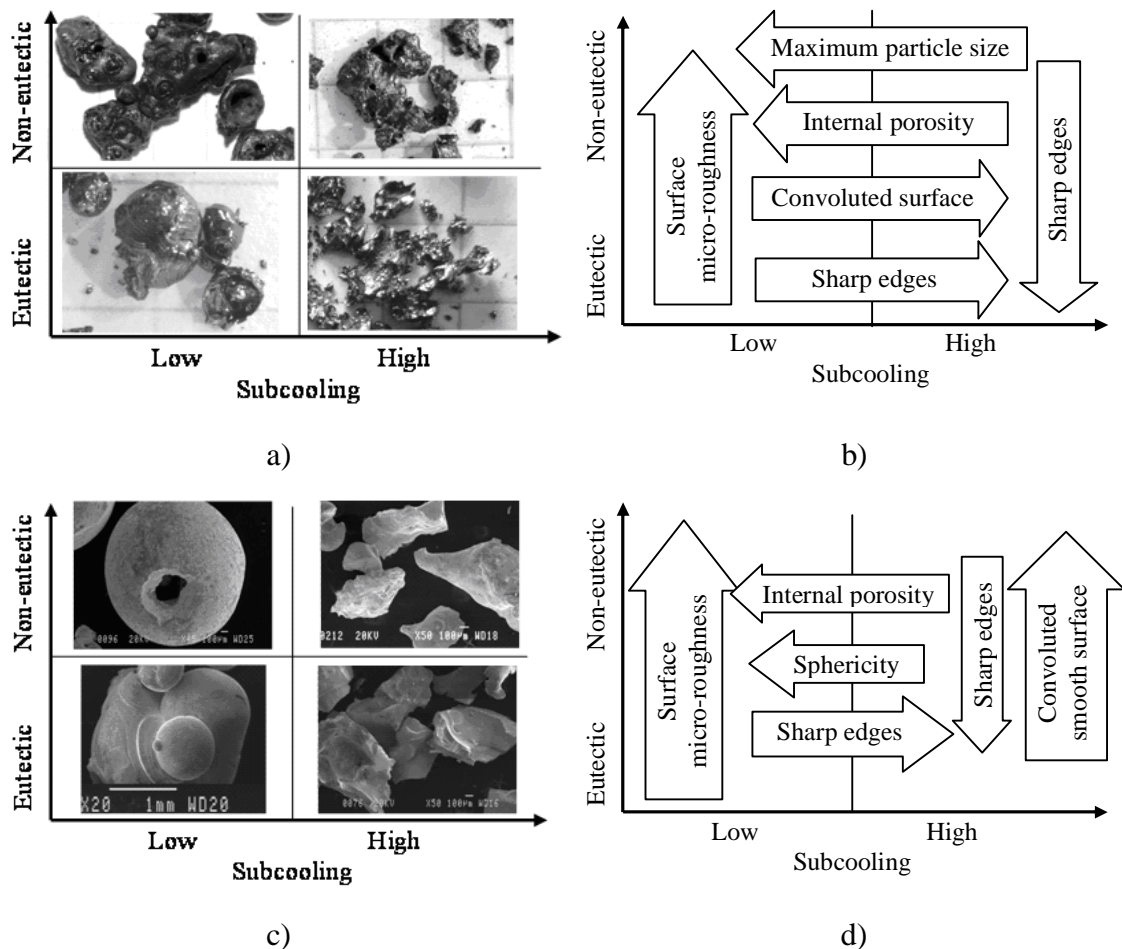


Figure 3.13: Maps and trends in particle morphology dependency on water subcooling and melt composition: a,b) large particles (>1mm); c,d) small particles (<1mm).

Apparently, the combination of low water subcooling, relatively shallow pool (0.65 m in S5 and S8) and high melt superheat (210°C in S10) impeded the debris fragments from complete solidification prior to settlement. This observation is in a good agreement with the debris agglomeration and porosity measurements in corium tests CCM-1 and CCM-27 conducted in shallow water pool (0.63 m) under low to intermediate subcooling (Figure 3.12). Even in bed with agglomerated par-

ticles (59% in S5) or cake (46% in DEFOR-S8) the porosity is still higher than typical values of porosity in sphere packing (~30–40%) used in coolability assessment.

Particle morphology is known to exert a significant influence on the porosity of the particulate beds. Morphology of debris fragments generated in DEFOR-S experiments conducted at different “snapshot” conditions varies from smooth surface particles (arbitrary shape big particles, filaments-like middle size particles, and near spherical shape small particles, all with considerable internal porosity), to rock-like particles with sharp edges and no internal porosity. Figure 3.13 summarizes the DEFOR-S observations of particle morphology and its dependency on water subcooling and melt composition. Despite a similar trend in morphology of small (<1 mm) and big (>1 mm) particles, they are considered separately. The main reason for such a separation is apparent difference in fragmentation behavior in these two classes. For example, the smooth and spherical shape characteristic of small particles at low subcooling (Figure 3.13 (c)) manifests the dominance of surface tension, whereas the shape of large particles (Figure 3.13 (a)) is neither spherical nor smooth.

The arrows on Figure 3.13 (b) and (d) depict the trend of increased significance (frequency of occurrence) of the observation. For example, we observe an increasing fraction of debris fragments with sharp edges with the increase of water subcooling for both small and large particles; Figure 3.13 (a) and (c). Certain behavior is observed only under high or low subcooling. For example, increase of the surface micro-roughness with melt composition shifted from eutectic is evident only under low subcooling. Non sphericity of particles, such as sharp edges and convoluted surfaces observed in tests with high water subcooling is consistent with the increased porosity. At low and medium subcooling, high porosity is partially due to the internal porosity.

In summary, given the limited information available from the past FCI experiments on debris morphology and bed characteristics, the DEFOR-S experiments provide the first systematic database on fragment morphology and debris formation. Keeping the debris coolability as safety goal in perspective, it is noteworthy that while the bed’s higher “macroscopic” porosity (60-70%) is potentially coolability-friendly, there remain large uncertainties in “microscopic” factors, such as the internal porosity; particle and pore size distribution, particle morphology and surface roughness. These factors may be counteractive with respect to two-phase flow permeability and passability in the bed’s porous media. Understanding and characterization of both the prototypic debris bed’s microscopic characteristics and their impact on corium coolability are subjects of the continued study in the DEFOR research.

Analytical Results

The DEFORSIM multiscale code is developed on the basis of Discrete Element Method (DEM) and employed for the study of the debris packing phenomena [3.14-15]. We use an effective representation of the particle roughness by increasing of the sliding and rolling friction coefficients in the expression for the tangential forces.

It was shown [3.14] that DEM simulation indicates higher porosity of the bed in case of increased inter-particle friction. Also we found an effect of uniform and non-uniform coolant flow on resulting averaged porosity and formation of low porosity channels in the bed [3.15].

Figure 3.14 shows the DEM simulation result for non-uniform upward coolant flow with a jet-like region in the center of the domain. As the coolant flow velocity increases, the resultant porous media are predicted to feature local inhomogeneities, such as pockets and channels, concentrated along the region of coolant jet (Figure 3.14 (b)). Also to stress on importance of inter-particle friction we show the case with high velocity of the jet and low inter-particle friction (Figure 3.14 (c)). No channel formation can be observed and the bed's averaged porosity is significantly reduced.

Remarkably, the predicted heterogeneous configurations in Figure 3.14 correspond to the microscopic inhomogeneities observed both in the DEFOR-HT experiments and in the DEFOR-LT experiments. Due to vapor production, flow pattern of two-phase flow in and above a heated bed are highly complex and characteristically non-uniform. Therefore, we expect that the structural heterogeneity is similar to all debris beds formed under prototypic FCI conditions.

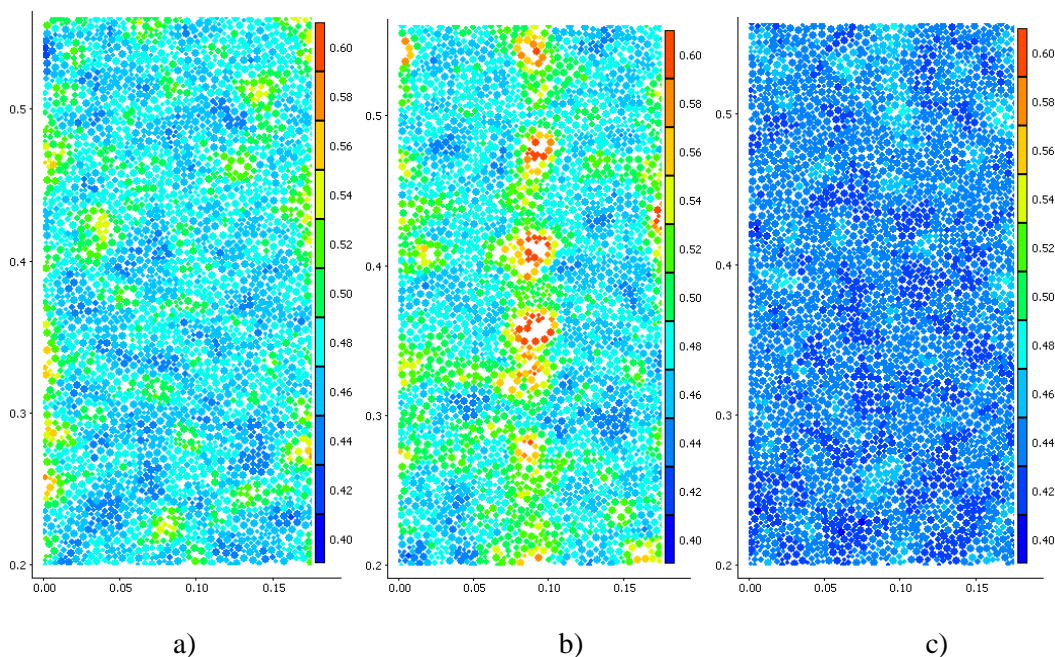


Figure 3.14: Debris bed porosity in case of narrow upward jet flow of coolant: a) $V_y=0.3$ m/s; b) $V_y=0.5$ m/s, c) $V_y=0.5$ m/s, low inter-particle friction.

It is instructive to note that direct simulation with DEM of the whole debris bed formation in case of long transient of reactor accident will be very computationally expensive if at all possible. On the other hand we don't need to know the history of each particle (micro properties) in the debris bed. What we need is averaged (macro) properties of the bed like porosity etc. Thus we develop multiscale numerical methods to enhance computational performance of calculations [3.14]. The idea of the methods is based on the so called "Gap-Tooth" scheme. It was suggested [3.14] that by performing simulations with DEM method only in a fi-

nite number of small DEM “windows” and by using extrapolation in time and interpolation in space for calculation of averaged debris bed properties we can significantly reduce computational costs (up to 10^4 times) in comparison with direct DEM simulation.

The DEFORSIM code [3.16] is developed for study of large scale circulation flow in the pool and its influence on the debris sedimentation, resulting geometrical configuration of the debris bed, and its coolability. Figure 3.15 demonstrates the influence of the large scale circulation flow in the water pool on sedimentation of corium droplets.

Intensive circulation results in more pronounced spreading of settled particles over the pool bottom, especially for fine particles. Such spreading is an effective self-organization mechanism against formation of a tall, non-coolable debris bed.

The numerical results obtained by the DECOSIM code clearly indicate that natural convection plays a very important role in heat and mass transfer between the debris bed and coolant as well as in the formation of the debris bed spatial configuration. Further research will be concentrated on the prediction (together with DEFORSIM code) of the growing debris bed properties (spatial configuration, porosity, local particle size distribution) with taking into account natural convection driven flows.

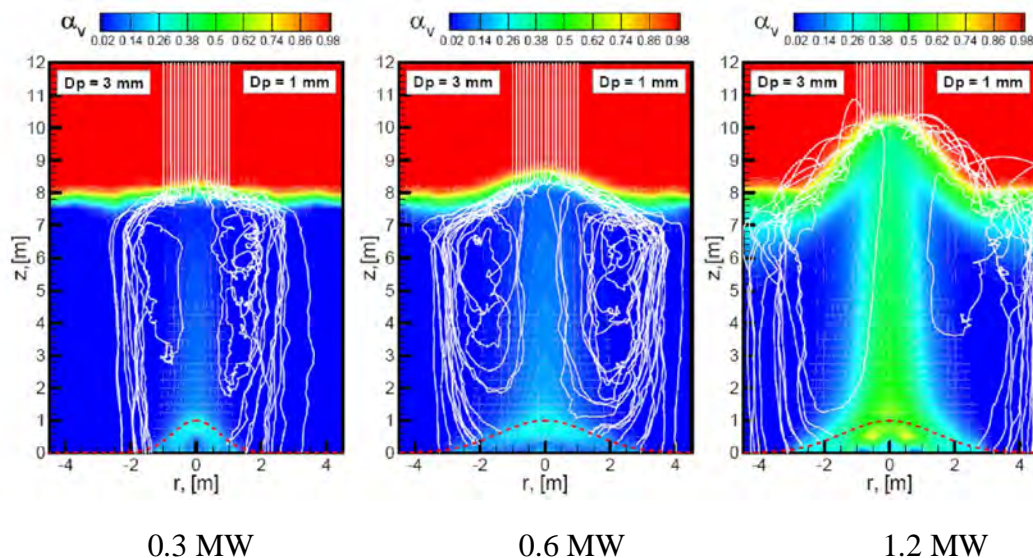


Figure 3.15: Trajectories of particles in a pool with the debris bed at different heat total power of decay heat.

Debris agglomeration and non-porous “cake” bed formation may significantly reduce bed coolability limits. Reliable prediction of conditions for onset of the debris agglomeration and cake bed formation is a must for reduction of uncertainty in ex-vessel corium coolability analysis. The VAPEX-P code [3.18] is used for prediction of debris agglomeration. A preliminary agglomeration mode map was obtained with the help of VAPEX-P code and conservative consideration of the jet breakup influence on pre-deposited state of the debris. More work is ongoing in this direction.

3.3.3. Assessment of Debris Bed Coolability

As shown in the DEFOR study, for a debris bed formed under prototypical fuel-coolant-interaction (FCI) conditions, one may expect the configuration and characteristics of the bed to be distinct from the homogeneous beds that are packed under cold conditions and employed in the past studies on debris coolability. It is the distinction of debris bed formation that determines the bed's prototypicality which is contrary to the non-prototypical configuration and characteristics of an experimental bed.

While it is the primary goal for DEFOR activity to discover such prototypicality of debris bed characteristics, here we focused on the coolability assessment with taking into account the specific aspects of the prototypicality, in term of coolant supply scheme, porosity range, multi-dimensionality, inhomogeneity, particle morphology, and heat generation (e.g. volumetric heating vs. local heaters). We believe the five aspects have a potentially large impact on coolability. The main features of these prototypical aspects are listed in Table 3, in comparison with a one-dimensional homogeneous top-flooding bed [3.19].

Table 3.3: Identification of characteristics of a debris bed formed under FCI.

	<i>Bed Configuration</i>	<i>Bed inhomogeneity</i>	<i>Bed porosity</i>	<i>Particle morphology</i>	<i>Heat generation</i>
Experimental	1D	Homogeneous	From particle packing theory ($\epsilon \sim 0.4$)	Solid particles, regular shapes and smooth surface	Electric heaters (local heating)
Prototypical	2D/3D	Heterogeneous in micro level	Affected by intense boiling and particle morphology ($\epsilon \sim 0.6 \sim 0.7$)	Some hollow particles, irregular shapes, rough surface	Decay heat (volumetric and uniform heating)

More specially, this subsection presents the coolability effects of (i) coolant bottom-fed, (ii) bed inhomogeneity, (iii) porosity range, (iv) particle morphology, and (v) heat generation (e.g. volumetric heating vs. local heaters).

For the coolability analysis (prediction of dryout heat flux), three approaches are used in the current analyses – a semi-analytical model for bottom-fed beds [3.20], the Reed's analytical model [3.9] for 1D top-flooding homogeneous beds and the WABE-2D code [3.21] for two-phase thermal-hydraulics in two-dimensional debris beds.

While we recognize the limitations of the existing tools (although the Reed's model and WABE-2D code are the state-of-the-art tools in the field), the objective of the present study is to provide the first-cut evaluation of the effects of the above-mentioned aspects in prototypicality so as to aid the quantification of uncertainty in ex-vessel melt risk safety assessment and guide future experiments.

Results and Analysis

Effect of Coolant Bottom-Fed

The debris beds formed from FCI are expected to have a heap-like shape, which allows coolant ingress from sides as well as top, and therefore improves coolability of the peripheral region. In preferable cases, the coolability is believed to be further enhanced if a bottom-fed configuration (see Figure 3.16) is obtained by natural formation of a decay-heat-free bottom layer (e.g. earlier ejection of stainless steel) or retrofit of the reactor cavity with a porous layer on the floor (e.g. core catcher). Several experimental investigations have been performed for the bottom-fed configurations as shown in Figure 3.17, including bottom forced injection and downcomer installation.

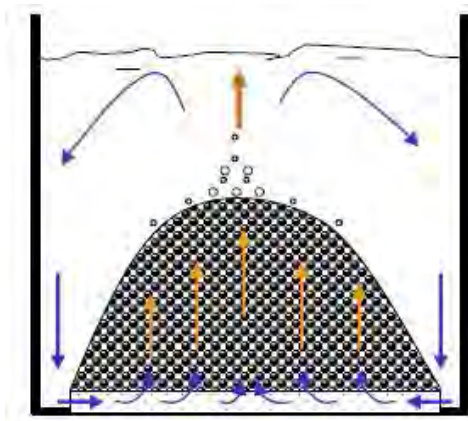


Figure 3.16: Debris bed with coolant side ingress and bottom-fed

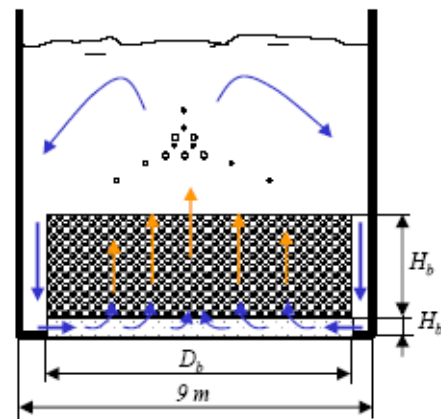


Figure 3.17: Schematic of a simplified ex-vessel debris bed with bottom-fed.

Our study here was to develop the semi-analytical model for two-phase flow in bottom-fed beds, which was then applied to the coolability analysis of ex-vessel debris beds formed in hypothetical severe accident scenarios of a boiling BWR which has thermal power of 2500 MW and the cavity diameter of 9 m (cf. Figure 3.17). It is assumed that the maximum mass of an ex-vessel corium debris bed is about 180 tons.

We focused on a simplified configuration as shown in Figure 3.17. In such a situation, the coolant in the bed will heat-up and boil due to the heat transfer from the decay-heated debris. The porous bed is therefore filled with two-phase mixture, whose density is significantly lower than the water density. Consequently, a gravity head difference between the liquid outside the bed and the two-phase mixture inside the bed will drive the coolant into the bed interior, forming a natural circulation loop (see Figure 3.17). This cooling scheme is called Natural Circulation Driven Coolability (NCDC).

The calculated cases [3.20] showed that the coolability is enhanced by a factor from 60% to 160% in comparison with that in a top-flooding bed predicted by Lipinski model [3.17].

Effect of Bed Inhomogeneity

In this work, we focus on the potential impact of bed inhomogeneity on debris coolability, namely the effect of bed's micro and macro heterogeneity (in term of particle size and pore distributions in space) is examined. The bed inhomogeneity is represented by a channel or a high-porosity zone in the base bed, as illustrated in Figure 3.18. The basic configuration is composed of particles of 1 mm diameter, and has porosity of 0.36.

Example debris beds [3.22] investigated are as shown in Table 4, where two types of unit volume and respective macro and micro inhomogeneity are represented: *i*) so-called macro bed with 350 mm diameter that incorporates either a channel (Case 1) or a surrounding high porosity ring (Case 2); *ii*) so-called mini bed with 50 mm diameter that incorporates a high-porosity column in the bed's middle (Case 3 ~ Case 6). The prototypical debris bed may consist of many such macro and mini beds. In all cases, we call the channel and high-porosity zones as 'downcomer', since they provide a similar function of downcomer in a traditional natural circulation loop.

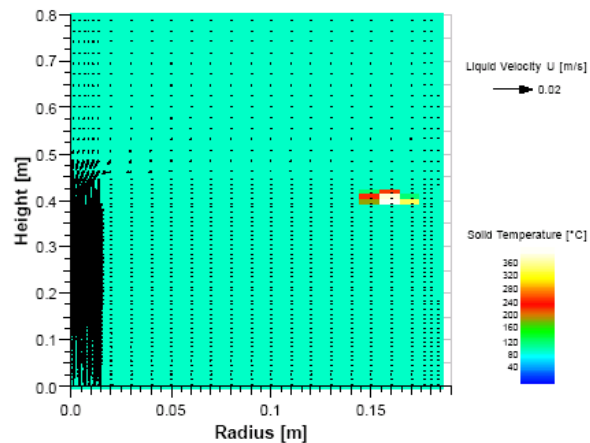
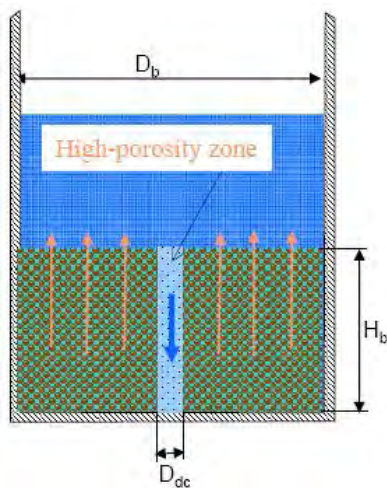


Figure 3.18: Debris bed with inhomogeneity in porosity and particle size.

Figure 3.19: Post-dryout of a top-flooding bed in Case 1 (heat load = 345 kW/m^2).

The values and gain percentage of dryout heat flux for all 6 Cases are listed in Table 4. Figure 3.19 shows the temperature profile and velocity field after dryout of Case 1. The analysis result suggests existence of a threshold for the downcomer size, porosity and particle size. If the downcomer diameter is less than 6 mm for a bed in Case 4, for instance, the increase in dryout heat flux becomes insignificant. The decrease in porosity and particle size in the downcomer also lead to reduced Dryout Heat Flux (DHF). The lower the resistance in the downcomer is, the higher the dryout heat flux is. After the resistance in the downcomer becomes negligible in comparison with the bed's resistance, the dryout heat flux no longer increases.

The implications of the above findings on debris bed coolability are straightforward. Both macro-inhomogeneity and micro-inhomogeneity serve as potential avenues for enhancing debris bed coolability in prototypic reactor situation. Notably, the prototypical debris bed in a severe accident can be viewed as an assembly of unit volumes considered in preceding sections. A macro bed may be composed

of a group of mini beds. Although the downcomer (channels or high-porosity zones) only occupies a relatively small fraction (say, 4%) of the total volume of the whole bed, their contribution to dryout heat flux is significant. Remarkably, such coolability enhancement could not be predicted by the treatment of uniform bed with mean porosity and particle size.

Table 3.4: Calculation matrix.

Case	Bed				Downcomer				DHF kW/m ²	DHF / DHF _{top} [*] %
	d_p (mm)	ε (/)	D_b (mm)	H_b (mm)	d_p (mm)	ε (/)	D_{dc} (mm)	heating		
1	1.0	0.36	350	450	100	0.8	30	No	328	44
2	1	0.36	250	450	3	0.4	250-350	Yes	325	43
3	1.0	0.36	50	450	3	0.6	10	Yes	338	48
4	1.0	0.36	50	450	1	0.6	6	Yes	242	6
5	1.0	0.36	50	450	2	0.72	6	Yes	276	21
6	1.0	0.36	50	450	1	0.6	10	Yes	276	21

- * DHF_{top} is 228 kW/m² for the top-flooding bed.

Effect of Debris Bed Porosity

From particle packing theory, we know that the porosity of a bed packed by regular particles ranges from 26% to 46%, and the average porosity with size distribution is around 40% [3.22]. This therefore became the reference porosity for debris beds used for coolability studies in the past.

However, in the experiments of DEFOR [3.9, 3.11] and CCM [3.8], it was found that the porosity of the debris beds varied from 50% to 70%, with most of them having porosity of more than 60%. This implies that the porosity of a prototypical debris bed may be much higher than that predicted by the particle packing theory.

The high porosity will significantly increase the debris coolability. For instance, if the particle size is 3 mm and the porosity is 70% in a top-flooding bed, the DHF is 3.37 MW/m² predicted by Reed’s model, which is 3.7 times of that of the reference bed with 3 mm particles and 40% porosity. If the particle size was reduced to half of that of the reference bed while keeping 70% porosity, the DHF is 2.28 MW/m² which is still 2.53 times of that of the reference bed. The results depict a significant, and yet quite expected effect of the bed’s high porosity on its coolability.

Effect of Particle Morphology

In the past, the particulate debris beds were assumed to comprise of solid particles with regular shapes and macroscopically smooth surfaces. There are only few studies which pay attention on the morphology of prototypical debris, and the effect of particle shape and size distributions. The DEFOR experiments indicated that the particle surface is generally roughened (see the previous subsections). More importantly, in some tests the debris fragments are found to have encapsulated cavities or pores on the surfaces. Such cavities (or internal pores), irregular shape and roughness were also observed in debris fragments collected in the tests on prototypic corium melt-water interactions [3.23].

The internal pores were not separately counted for when the porosity of the debris bed was determined in post-test measurements. Figure 3.20 is an estimation of the effect of such internal pores on coolability [3.19], where we assume that the debris bed is composed of spheres with some of them hollowed. Under this situation, the effective porosity ε_e equals to the nominal porosity ε minus the internal porosity ε_i . Comparing Bed 2 with Bed 3 packed by 3mm particles, we can see that the dryout heat flux was reduced by 33% (from 3.37 MW/m² to 2.26 MW/m²) due to the internal porosity in the Bed 2. This implies the importance of determining the particle morphology and pore distribution in a prototypical bed.

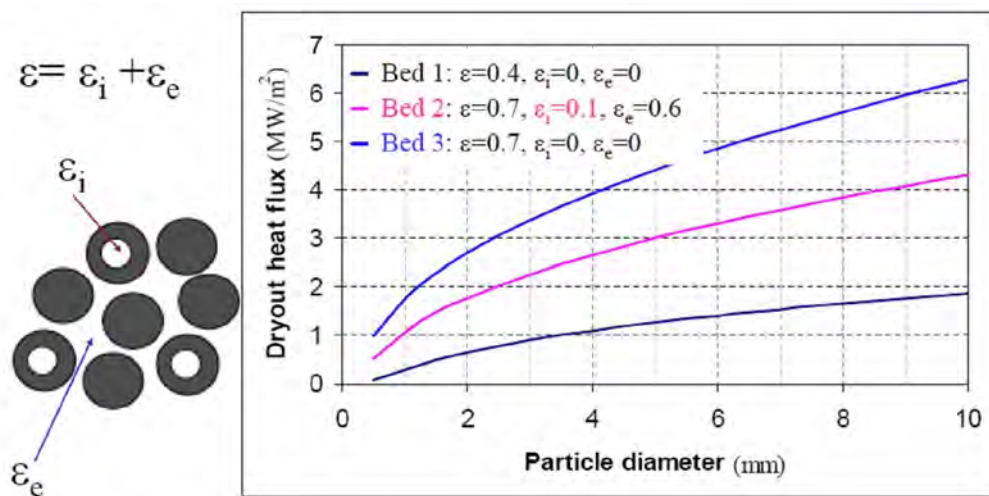


Figure 3.20: Dryout heat flux for debris beds with hollow and solid debris.

Effect of Heat Generation

The decay heat in a prototypic corium debris bed provides volumetric heating, which has been postulated to be uniform in all the previous coolability assessment. But some debris coolability experiments applied Ohmic heating of electric heaters (resistance wires embedded in the experimental debris beds). Naturally, such simulation of decay heating introduces additional non-prototypicality which has to be taken into account when one intends to apply the data obtained in such experiments to reactor safety analysis.

Our analysis [3.19] indicated that the dryout heat flux of debris beds using local heaters is lower than that of a volumetrically heated bed. This reveals the conservatism of experimentally measured DHF. Furthermore, the wire heated surface and debris non-heated surfaces can have different wettability, rendering possibly different two-phase flow patterns in microchannels, and therefore different flow friction.

3.3.4. Concluding Remarks

In general, the EXCO research performed is confirming the initial hypothesis for debris coolability stated in the MSWI-APRI6 proposal. The main findings and achievements of the DEFOR research are as follows.

- Averaged porosity of the debris bed obtained in DEFOR experiments is high (up to 60-70%) and insensitive to melt composition and water sub-cooling. An increasing fraction of encapsulated porosity was detected with the decrease of water subcooling.
- Qualitative maps of particle morphology were developed on the base of DEFOR-S experimental results. It was shown that particles are mostly non-spherical with rough surface which induce higher inter-particle friction.
- Results of the DEFORSIM code calculations indicate a significant influence of micro-scale parameters (e.g., particle morphology, particle surface roughness, inter-particle friction) on large scale dynamics (e.g., debris bed porosity and thus coolability). Coolant flow also promotes increase of the averaged porosity and formation of channels, whose presence is favorable for the bed coolability.
- To capture the effect of micro-scale physics in reactor accident predictions, a simulation framework is developed. Central to this framework is the multiscale “gap-tooth” computational approach which enables using the micro-solver to predict safety-significant macro-scale parameters.
- Results of the DECOSIM code simulation show that natural circulation in the pool induced by the decay heated debris bed presents a potentially important self-organization mechanism that prevents formation of a tall, non-coolable debris bed.
- The VAPEX-P code is used for identification and conservative estimation of conditions for onset of massive particle agglomeration and cake formation, which are negative for coolability of the bed.

For assessment of debris bed coolability, a semi-analytical model was developed, validated and used to investigate Natural-Circulation-Driven-Coolability (NCDC) of debris beds with coolant bottom-feeding. In general, the coolability was predicted to increase by 80% to 160% due to NCDC, depending on bed configuration and characteristics.

The bed’s inhomogeneity, represented by a downcomer-like macro channel in a macro bed (macro-heterogeneity) or a small-scale high-porosity zone in a micro bed (micro-heterogeneity), was predicted to enhance coolability by more than 40% in the cases chosen, compared with a top-flooding uniform bed.

Analysis is also performed to investigate the potential effect of bed characteristics found in DEFOR experiments on coolability, in terms of porosity range and particle morphology. For high average porosity (up to 70%) obtained in DEFOR tests with high subcooled water, the analysis results indicate availability of substantial coolability margins, compared to the previous assessments based on models and experiments using a bed assumed porosity of approximately 40%. On the other hand, the particle morphology obtained in FCI reveals that there very probably exist internal (encapsulated) pores which are inaccessible by coolant. Such internal porosity has to be excluded from the average porosity, and therefore does not contribute to coolability.

The local heating of electric heaters embedded in a debris bed was predicted to reduce the dryout heat flux, in comparison with a uniformly and volumetrically heated bed, but the simulation suggests that the non-prototypical effect can be reduced by using fine wire-heaters distributed more uniformly in the bed's radial direction.

3.4 Steam Explosion Energetics (SEE)

3.4.1. Motivation and Approach

The ultimate goal of the steam explosion energetics (SEE) study at KTH is to quantify the ex-vessel steam explosion risk in Swedish BWRs which employ cavity flooding as a severe accident management strategy. However we recognize the substantial uncertainty that remains in this field after 30 years of intensive research worldwide. Our research approach therefore includes both systematic and opportunistic efforts.

The systematic effort is directed towards a basic understanding of micro-interactions of molten droplet(s) and coolant, with a hope to identify mechanisms which may limit the explosivity of molten corium in a prototypic severe accident scenario with fuel-coolant interactions (FCI), and examine the hypothesis that binary, non-eutectic melts are largely non-energetic. The efforts include MISTEE (micro interactions of steam explosion energetics) experiments, analytical work, and information distillation from international activities. Main achievements in this respect are presented in the following subsections.

The opportunistic approach is directed to the limiting conditions of melt release from the vessel failure. If we can demonstrate that the melt discharge is gradual in a dripping mode, a limited steam explosion energetics is expectable with high confidence. Although the original objective of the INCO study is to prove the hypothesis, more efforts are needed for evidences of such a favorable conclusion.

3.4.2. Micro Interactions of Steam Explosion Experiment (MISTEE)

SHARP Approach

In contrast to the large scale experiments that provide an integrated picture of all phases of a steam explosion, the MISTEE study concerns small-scale, single-droplet FCI experiments which aim to characterize the steam explosion at its mi-

crosscale interaction level, namely the fragmentation of individual melt droplets in coolant. In addition to the basic understanding of steam explosion mechanisms, the obtained data is also useful for verification or development of models for steam explosion.

The SHARP (Simultaneous High-speed Acquisition of x-ray Radiography and Photography) system was developed to synchronously characterize the dynamic evolution of both vapor bubble and melt during the explosion period in the MISTEE experiments. The SHARP-based experiment has dual objectives. Firstly, we aim to obtain high-quality experimental data in well-controlled test conditions. Such data are necessary for the development and validation of steam explosion mechanistic models. Secondly, the data are processed to gain new insights into the physics of the microscale interactions. The image processing methodology and an image synchronization procedure is detailed in [3.17].

By using SHARP system, we were capable of delivering new and valuable information on the micro-interaction dynamics and revealing the underpinning mechanisms of steam explosion phenomena; see below and more details in [3.24].

Preconditioning for an Energetic Interaction

The qualitative analysis based on the coordinated radiographic and photographic images, depicts an interrelated progression of the bubble and the molten material, granting information on the phenomenological micro-interaction of the triggering of the steam explosion process, as represented in Figure 3.21.

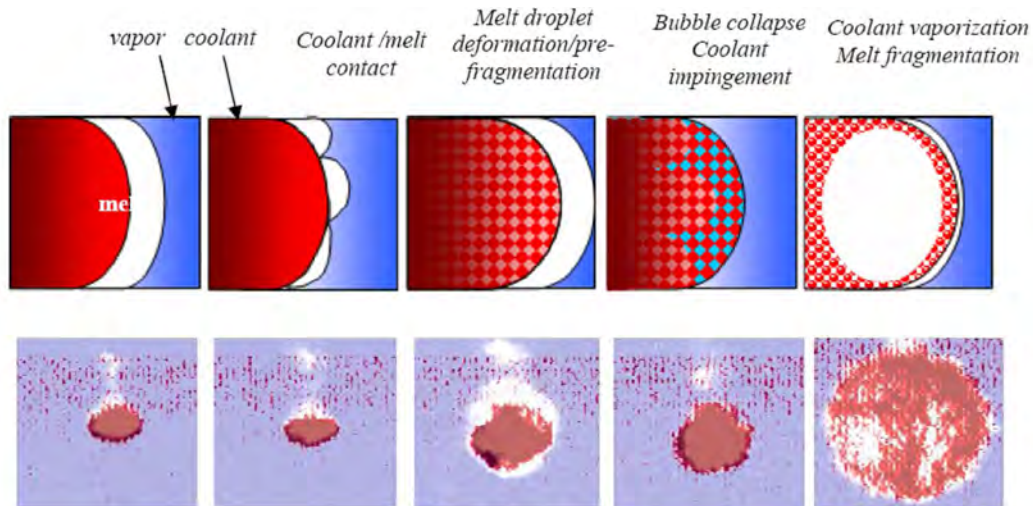


Figure 3.21: Phenomenology of droplet explosion. Top: schematic. Bottom: SHARP images.

The analysis of the data obtained by the SHARP system and the image processing procedure developed shows a deficiency in using the bubble dynamics alone to provide a consistent explanation of the energetic behavior. There is to say that the data on vapor bubble dynamics show a favorable initial condition for an energetic interaction (large impact velocity of the collapsing bubble, i.e. water hammer) is established during the bubble’s 1st cycle in low subcooling tests – a notion that

contradicts the results obtained in the bubble's 2nd cycle and the conventional wisdom where lower conversion ratios are expected in low-subcooling cases.

Since the bubble dynamics alone fails to provide a consistent explanation of the effect of coolant subcooling on steam explosion energetics, characterization of the melt droplet dynamics proves even more crucial. The evolution of the melt mass distribution obtained by the X-ray radiography intensity images point to coolant entrainment into the droplet surface as the mechanism for direct contact/mixing ultimately responsible for energetic interactions. Most importantly, the MISTEE data reveals an inverse correlation between the coolant temperature, which characterizes the dynamics of the first cycle in bubble dynamics, and the molten droplet deformation/prefragmentation.

As shown in Figure 3.22, after the external pressure disturbance, the molten droplet successively undergoes deformation/pre-fragmentation during the first cycle. Recalling the relation between the image gray level, ΔG , i.e. intensity, and the density/thickness of the molten material, one can qualitatively represent such a deformation by taking a horizontal line segment, i.e. transverse profile, through the droplet's center. The red and black lines show the profile 'thickness' distribution of the molten droplet prior to the interaction and by the end of the first cycle expansion, respectively. It is apparent that the droplet is deformed in the radial direction, i.e. enlargement of the projected area, and becomes less compact, analogous to a porous element.

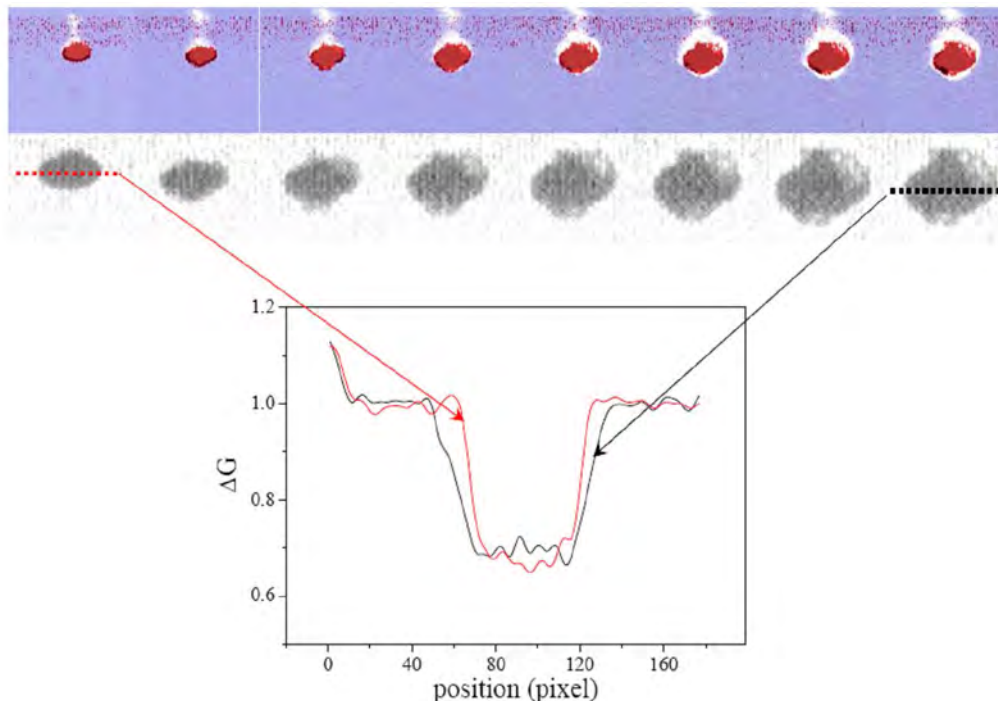


Figure 3.22: Melt deformation/prefragmentation in the first cycle. ΔG is the image gray level, i.e. intensity.

The finding provides a basis to suggest that the so-called melt droplet pre-conditioning, i.e. deformation/ pre-fragmentation of a hot melt droplet immediately following the pressure trigger, is instrumental to the subsequent coolant entrainment, evaporation and energetics of the resulting steam explosion. Hence,

melt preconditioning is found to be directly proportional to the steam explosion conversion ratio.

The new insight about the role of melt droplet dynamics suggests that a mechanistic treatment of the droplet preconditioning is instrumental to a basic understanding and quantification of how melt physical properties influence steam explosion's triggerability and energetics.

Effect of Non-Condensable Gases on Steam Explosion

The non-condensable gases (NCG) entrapped in the vapor film that envelops the melt droplet add another dimension to the already complicated steam explosion phenomenology. Past works suggested that the NCGs influence motion of vapor-liquid interfaces suppressing the vapor film collapse and direct liquid-liquid contact. The NCG are therefore thought to reduce steam explosion triggerability and energetics. The effect thus offers a way to test the contribution of various mechanisms involved.

A number of MISTEE tests were conducted using a molten tin drop in different water temperatures. The MISTEE-NCG test series was selected among the MISTEE runs in which a considerable amount of air was entrapped with the melt drop during its plunging through the water's free surface. The entrapped air forms a rear bubble, which varies in size and interacts with the main bubble (vapor film around the drop). The amount of air confined in the vapor film can be translated into the bubble morphology, e.g. aspect ratio (width/ height).

MISTEE-NCG observations indicate, however, that the NCGs tend to accumulate in the rear region of the rising film. Such asymmetry leads to complex pressure dynamics governing the bubbles internal flows and jet formation on the interface. The resulting forces and interactions are sufficient to disturb the droplet surface, facilitating its amenability (preconditionability) for the coolant ingress and fine fragmentation, e.g. triggerability. Conversely, the presence of NCGs in the interaction zone hinders the direct melt-coolant contact lowering the resulting energetics, where the upper limit for an energetic steam explosion is found to be for an aspect ratio less than 0.6.

The MISTEE data on bubble behavior, including the well-characterized dynamics of NCG rear bubble, can be useful to the analysis of preconditioning and its effect on the subsequent energetics. In particular, advanced methods in computational multi-fluid dynamics (with interface tracking) can be used together with the measured data to determine the evolution of pressure and flow fields in the bubbles, which helps to relate the flow effect on droplet stability, deformation and pre-fragmentation, which are characterized by the X-ray imaging.

Scoping Experiments Using Binary Oxide Mixture

To reduce the material gap between simulant and corium, the MISTEE facility was modified to perform droplet steam explosion using oxides. The chosen binary oxide candidate was $\text{WO}_3\text{-Bi}_2\text{O}_3$, as it is the same material used in DEFOR experiments. Table 3.5 presents the test matrix and results of the interaction, where SSE and TSE stand for spontaneous and triggered steam explosions respectively.

Table 3.5: Scoping tests using a WO_3 - Bi_2O_3 mixture. SSE and TSE stand for spontaneous and triggered steam explosions, respectively. NCG stands for non-condensable gas.

Composition	Mass (g)	T_{coolant} (°C)	T_{melt} (°C)	Steam Ex- plosion
eutectic	5	20	1300	SSE
eutectic	8	20	1300	SSE
eutectic	5	40	1300	TSE
eutectic	5	80	1300	TSE
eutectic	2,81	80	1300	TSE
Non-eutectic	1,18	72	?	TSE
Non- eutectic	2	20	1300	TSE
Non- eutectic	2	20	1300	- NCG
Non- eutectic	2	40	1150	- NCG
Non- eutectic	4	35	1300	TSE
Non- eutectic	4	32	1300	TSE
Non- eutectic	2.5	55	1300	TSE

Since this particular oxidic mixture leaves a trail of fine fragments, similar to a thin powder, when falling into the water tank, bubble dynamics were unable to be resolved. Thus, the energetics were evaluated from the pressure history recorded from the pressure transducer flush-mounted into the test section.

All the runs involving an eutectic mixture of WO_3 - Bi_2O_3 resulted in a steam explosion. Furthermore, for high water subcooling the interaction took place before the trigger arrival, Figure 3.23 (a), i.e. spontaneous, while triggered energetic explosions, Figure 3.23 (b), were observed in the low subcooling runs. Consequently, fine fragmentation of the molten material was observed in both cases.

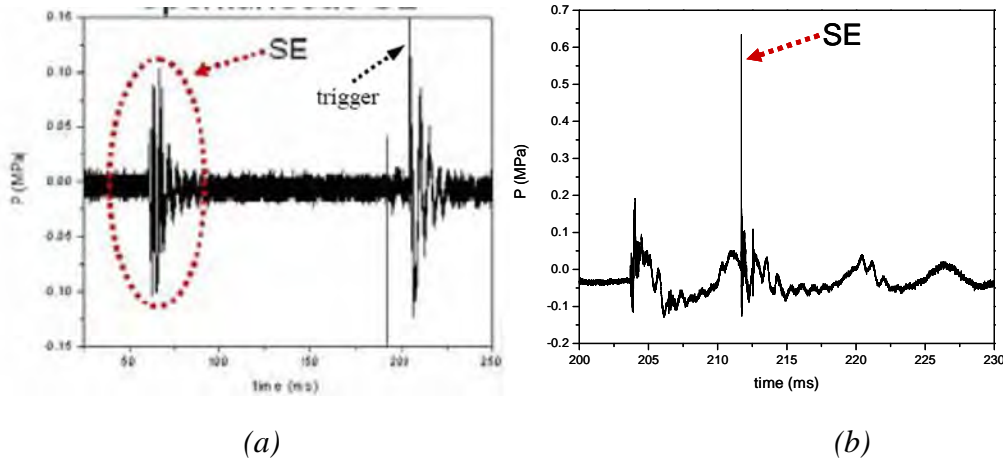


Fig. 3.23: Pressure history of WO_3 - Bi_2O_3 eutectic mixture undergoing (a) spontaneous (high subcooling) and (b) triggered (low subcooling) steam explosion.

The tests performed with a non-eutectic mixture of WO_3 - Bi_2O_3 also resulted in a steam explosion. However, the water subcooling effect was apparent. While in high water subcooling, mild steam explosions were observed; in low subcooling cases energetic steam explosions took place. Accordingly, the modes of molten material fragmentation varied with the water subcooling: a coarse ‘shell-like’ fragmentation is observed in high subcooled cases while fine fragmentation was observed in low subcooled cases.

That can be explained by the crust formation hindrance on the low subcooled cases. In other words, low subcooling leads to a thicker vapor film that enfolds the molten droplets. This thick vapor film will work as an isolation blanket which will prevent the droplet from quenching. Moreover, it will lower the approach thickness during film collapse, thus lowering the droplet interface cooling and delaying the crust formation.

Conversely, on the high subcooled cases, a thin crust will be formed leaving less material to participate on the interaction. In Figure 3.24 one can observe slices of the crust being dispersed into the coolant after the steam explosion.

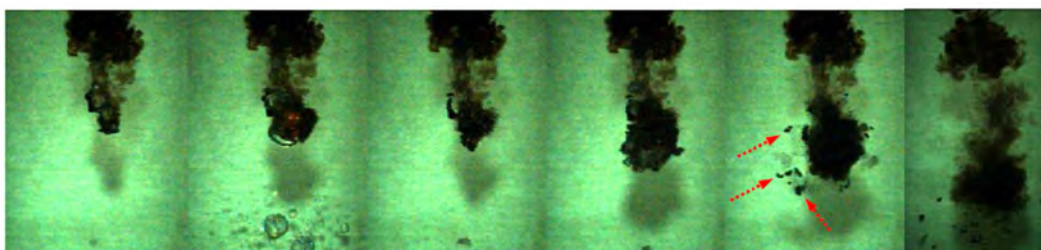


Figure 3.24: WO_3 - Bi_2O_3 non-eutectic mixture undergoing an energetic steam explosion and coarse fragmentation of the molten material.

These observations, Figure 3.25, differ from the large scale experiments, e.g. TROI, where generally non-eutectic corium would result in mild steam explosions. Further investigations, using a different simulant, are necessary before any conclusion can be drawn.

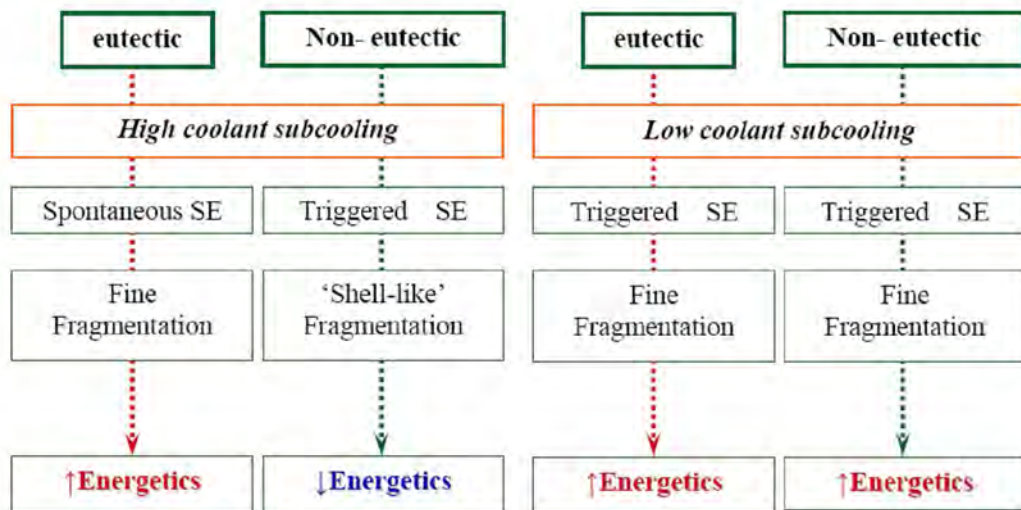


Figure 3.25: Steam explosion energetics of WO_3 - Bi_2O_3 eutectic and non-eutectic mixtures for different water temperatures.

3.4.3. Material Property Effect in Steam Explosion Energetics

This is a revisit study of the previous work [3.26]. Complete and detailed discussion of the new insights can be found in [3.27].

Role of Corium Properties in Steam Explosion

Questions about corium low explosivity have been imminent and asked repeatedly in the past, largely motivated by observations in the KROTOS experiments where the alumina (Al_2O_3) melts exploded spontaneously and energetically whereas the oxidic corium melts (UO_2 - ZrO_2) were found resilient to explosion. However, a lack of mechanistic understanding of the underpinning physics did not allow one to explicitly take credits of the potential effect in reactor predictions and risk assessment. In fact, as we look back on the evolution of the views on steam explosion energetics, it remains unclear how the planned experiments and analyses help unveil the long-standing puzzle about the corium low explosivity.

Dinh et al. [3.26] submitted a view that the low explosivity of corium melt is multi-faceted and yet decomposable and mechanistically explainable. Notably, the study associated the effect of melt physical properties with the processes in the pre-mixing phase in terms of

- (1) corium's higher temperatures (high void and stable film boiling, rapid cooling),
- (2) corium's higher density (causing fragmentation to small drops),
- (3) eutectic-versus-non-eutectic (mushy) composition (fast stiff shell formation, solidification)
- (4) oxidic material low conductivity (surface cooling and crust formation)

being central to the different explosivity in binary oxidic corium vs. alumina melts.

Items #1, #2 and #4 are rather straightforward and consistent with analytical evaluation (for items #1 and #4) and experimental evidences (in KROTOS tests for item #2). The corium's high temperature (item #1) and high emissivity lead to high radiative heat flux which facilitates rapid cooling and solidification. This radiative cooling effect on corium particle solidification, together with small sizes of corium particles (item #2) and low conductivity (item #4) played a central role in the Dinh et al treatment [3.26]. The effects can be “measured” by conversion ratio (CR), as shown in Figure 3.26. In a recent study, Dombrovski and Dinh [3.28] made further qualification of heat transfer in melt particles, reinforcing the notion that the intense radiative cooling during the premixing process limits the explosive potential by reducing the amount of molten materials (in FCI experiments). Noteworthy, the formation of a crust of the same relative thickness occurs much faster in corium than in alumina.

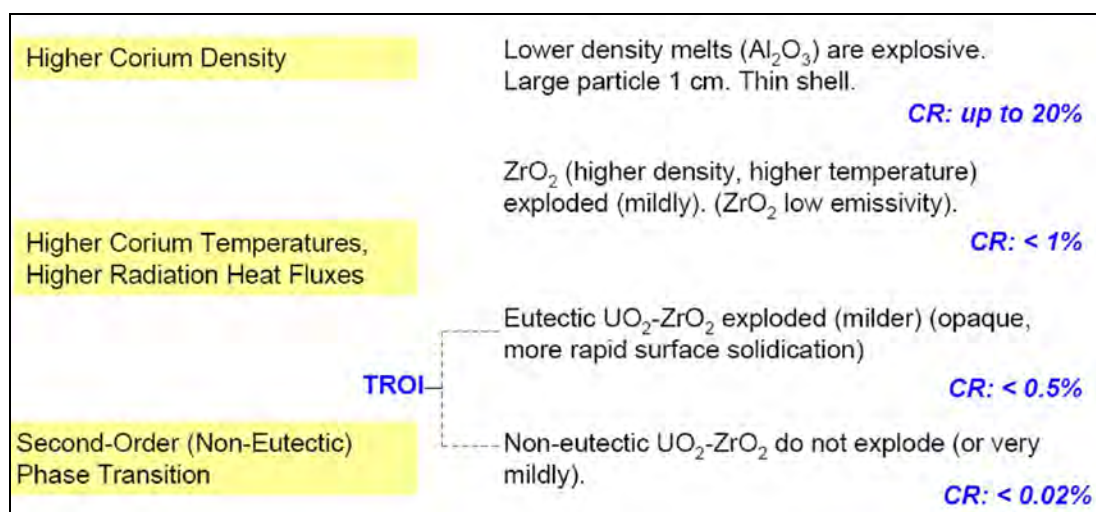


Figure 3.26: Conversion ratio (CR) decreases in three steps, indicating the suppression effect of different properties and factors.

Ideally, the effect of individual properties can be characterized by conducting FCI tests with a well-defined difference in the selected material property while maintaining similarity of all other properties and conditions. However, such an ideal “separation” of the effects is not easily achievable in a FCI testing. Therefore, only a qualitative characterization of the effects is possible through the measured conversion ratio as shown in Figure 3.26.

Thus, one may rightfully suggest that the CR reduction from 20% to the level of 0.5%...1% (cf. Figure 3.26) is associated with pre-mixing, and therefore computable with an appropriate mechanistic treatment of governing processes, namely (i) jet fragmentation, (ii) radiative heat transfer in multiphase (water/steam/melt) media, and (iii) cooling and solidification of the melt particle. In fact, CFD-based computer codes such as PM-ALPHA [3.29] provide the platform for implementation of such models. It is instructive to note that items (ii) and (iii) were treated mechanistically, and item (i) was treated parametrically (using particle size characteristic of the size distribution obtained from FCI tests with a prototypic corium) in the PM-ALPHA code. In other words, the predictions of reactor accident scenarios using the PM-ALPHA code had already accounted for a major effect of melt properties on the FCI premixing.

Item #3 was argued that the mushy zone effect is active in the premixing phase and associated with early formation of a surface layer that becomes stiff enough to resist external forces. This notion of the “mushy” effect on micro-interactions presents a major deviation from the previous argument [3.26].

Material Property Effect on Micro-Interactions

The following conceptual picture of micro-interaction is considered here. Upon the passage of a pressure wave, the vapor film around the melt droplet is collapsed to allow liquid-liquid (melt/coolant) contact. Instantaneous contact with hot melt causes the water to heat up, forming a layer of width δ_w beyond homogeneous nucleation temperature T_{HN} . The δ_w -layer will evaporate explosively, forming a growing bubble around the melt drop. Another concurrent, always active mechanism for heat transfer is radiation from the melt surface. Such radiative heat transfer evolves with the interfacial area evolution that depends on breakup regime and has a characteristic time of drop breakup t_{BR} (T_{BR}). A fraction of the radiative heat flux is absorbed in a subcooled water pool, while the rest causes evaporation at the bubble wall or any liquid coolant within the micro-interaction zone. The interaction scheme is illustrated on Figure 3.27. Within the described physical picture, the following remarks can be made.

- (i) If the premixing zone is highly voided, the pressure wave would cause collapse of vapor film around melt drop as well as other bubbles in the vicinity. Such a collective collapse would effectively reduce velocity of the coolant impact onto melt drop.
- (ii) As the coolant interfaces approach and contact the melt drop interface, a contact temperature, T_{IN} , which is established in-between the melt temperature and the coolant temperature. Given an ideal, instantaneous contact, a solution for two semi-infinite bodies applies.

In the prototypic reactor accident scenario, however, the ideal contact is not realized. Furthermore, due to the high temperature of corium melt, the vapor sublayer adjacent to the melt drop is highly superheated. Consequently, even in the wake of a shock wave, the local vapor enthalpy remains higher than saturation enthalpy for local pressure, leaving a thin, compressed layer of vapor between the melt drop and the collapsing bubble wall; see insert [A] of Figure 3.27.

- (iii) If the surface temperature, T_{IN} , is sufficiently low, the contact leads to formation of a layer of width δ_M with the temperature lower than the drop's melting point T_{MP} , causing a rapid crystallization in the δ_M layer. Given no interfacial instabilities and breakups, the evaporation is limited to homogeneous nucleation in δ_w -layer and radiation heat transfer from the drop's original (but now cooled to T_{IN}) surface. Such a limited evaporation would not suffice to create an explosion and sustain a detonation wave.
- (iv) Following the liquid-liquid contact, the melt surface becomes undercooled, well below its freezing point. Thermodynamically, the undercooled melts are metastable, creating conditions for nucleation and formation of various metastable solids.

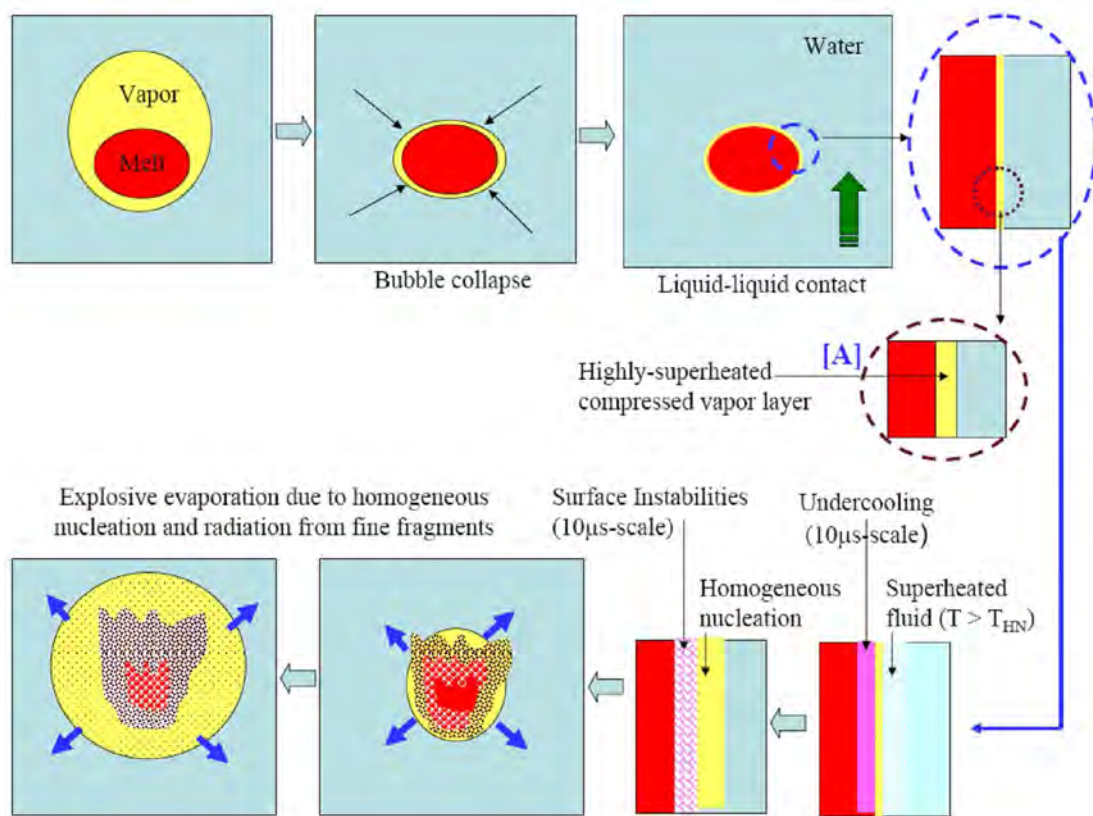


Figure 3.27: Mechanisms active in micro-interactions that followed a shock wave passage.

The above remarks lead us to suggest that steam explosion energetics being driven by fine fragmentation is governed by three rate processes: surface undercooling, recalescence (nucleation and growth of solid phase with release of latent heat), and interfacial instability and breakup. Time-wise, it can be seen from the estimates (10-100 μ s) given in this section that these processes are competitive.

The driving hypothesis for the effect of melt composition on micro-interactions is that during solidification of the undercooled binary melt recalescence occurs earlier and propagates faster in non-eutectic melts than in eutectic ones. The basis and rationale for the above hypothesis can be seen from Figure 3.28 for non-equilibrium solidification, in combination with equilibrium phase diagram.

Thermodynamically, one expects the eutectic composition be more stable under unstable undercooled conditions than non-eutectic ones. If solidification prevails over instability, the drop surface forms a solid crust or a stiff, highly-viscous mushy layer, suppressing evolution of short-wavelength instabilities. Consequently, hydrodynamic interactions lead only to coarse fragmentation, creating large fragments with a relatively lower surface-to-volume ratio, and correspondingly lower radiative heat flux. If the interfacial instability prevails, a large interfacial area is generated for radiative heat transfer.

The above brief description summarizes avenues by which various physical properties of melt influence the competing processes that ultimately govern fine fragmentation. More detailed description is presented in [3.27].

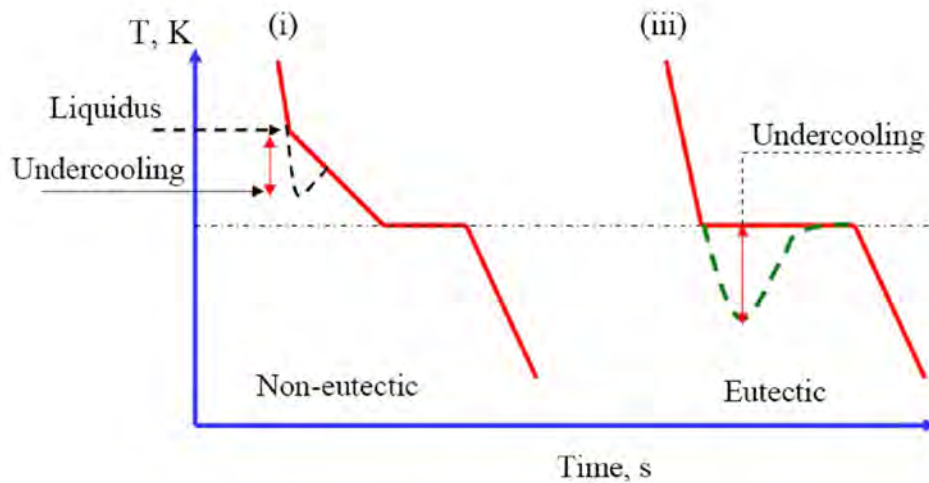


Figure 3.28: Schematic illustration of undercooling driven by rapid cooling (e.g. on the drop surface) for two melt compositions.

The preceding discussion is focused on hydrodynamic fragmentation expected to dominate the explosion phase when a strong shock wave escalates and propagates through the premixture. During the explosion's triggering and early escalation, melt drops are subject to a weak pressure wave (trigger), leading to a collapse of vapor film around the melt drop, and subsequent bubble cycles; see [3.24] for new visualization of drop explosion in this regime (dubbed thermal fragmentation). It is possible that hydrodynamic interactions can cause vapor film collapse locally, leading to a bubble dynamics as in the case of triggered interaction. Energetic coolant/melt interaction is then observed to occur at the end of the first bubble cycle.

The physics and the effect of melt properties discussed for hydrodynamic fragmentation generally apply to thermal fragmentation as well. Undercooling of the melt drop surface and subsequent rapid formation of the mushy layer govern the low explosivity of non-eutectic oxidic melts. The main difference between the hydrodynamic and thermal fragmentation regimes lies in time scale: in the thermal fragmentation case, the first bubble cycle (a couple of ms) is available for dendrite growth if the melt is undercooled. Due to such long duration, binary oxidic melts, including both high-temperature corium and medium-temperature simulant materials, have been observed to be highly resilient against spontaneous or (weak) triggered explosion.

In general, a premixture of low explosivity (combining coolant and melt conditions, and melt properties) is closely correlated with its low triggerability. The opposite may however not hold. A strong trigger can overcome the low triggerability in thermal fragmentation mode. Strong trigger can occur in some prototypic reactor scenarios. For example, if a water pool depth is shorter than the melt jet breakup length, molten materials may spread on the cavity floor, trapping a sizable amount of water under the melt layer. Rapid evaporation of the entrapped

water can lead to an energetic trigger for the upper premixture. Such a situation pertains to in-vessel FCIs but not characteristic of ex-vessel FCIs of interest, which involves a deep, subcooled water pool present in the drywell cavity.

3.4.4. Concluding Remarks

The MISTEE study aims to develop a mechanistic understanding of the thermal-hydraulic processes in steam explosion by performing well-controlled, externally triggered, single-droplet experiments, using a high-speed visualization SHARP system.

The analysis of the data obtained by the SHARP system and the image processing procedure developed shows a deficiency in using the bubble dynamics alone to provide a consistent explanation of the energetic behavior. The images point to coolant entrainment into the droplet surface as the mechanism for direct contact/mixing ultimately responsible for energetic interactions. Most importantly, the MISTEE data reveals an inverse correlation between the coolant temperature and the molten droplet deformation/prefragmentation. The finding provides a basis to suggest that the so-called melt droplet pre-conditioning, i.e. deformation/pre-fragmentation of a hot melt droplet immediately following the pressure trigger, is instrumental to the subsequent coolant entrainment, evaporation and energetics of the resulting vapor explosion.

Regarding the effect of non-condensable-gases (NCGs) on steam explosion, the observations of MISTEE indicated that the NCGs tend to accumulate in the rear region of the rising film, which invalidate the previous assumption of vapor/air film symmetry. Such asymmetry leads to complex pressure dynamics governing the bubbles internal flows and jet formation on the interface. The resulting forces and interactions are sufficient to disturb the droplet surface, facilitating its amenability (preconditionability) for the coolant ingress and fine fragmentation, e.g. triggerability. The presence of NCGs in the interaction zone hinders the direct melt-coolant contact lowering the resulting energetics, where the upper limit for an energetic vapor explosion is found to be for an aspect ratio less than 0.6.

For extension of the new insights to reactor applications, scoping experiments were also performed in MISTEE using binary oxides, in order to reduce the material property gap between corium and simulant. The eutectic and non-eutectic mixtures of $\text{WO}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ (same simulant used in the DEFOR tests) were used as to investigate the eutectic versus non-eutectic mixture effect on the steam explosion triggability and energetics. The preliminary observations are i) for eutectic mixture, all tests lead to energetic steam explosion (spontaneous at high subcooling and triggered at low subcooling); ii) for non-eutectic mixture, all tests lead to steam explosion at trigger, but with different fragmentation modes and energetics depending on water subcooling; high energetics and fine fragmentation at low subcooling.

Regarding material property effect on steam explosion, the SEE study proposed nucleation-driven solidification behavior upon rapid undercooling of melt drop surface due to liquid-liquid contact being responsible for the efficacy of fine fragmentation, and ultimately steam explosion triggerability and energetics [3.27].

For a given set of FCI initial conditions (pool depth, water temperature, etc.) and boundary conditions (melt superheat, jet diameter, etc.), there are complex processes of macro-interactions (during premixing) and micro-interactions (during explosion) by which melt material properties govern steam explosion energetics. Most importantly, solidification (on the melt side) and boiling (on the water side) serve to limit the efficacy of subsequent direct liquid-liquid contact. Low conversion ratios measured in small-scale corium experiments (few kg of corium, trigger after melt release completed) are indicative of corium higher resilience to explosion, which however should perhaps be interpreted first as evidence of low triggerability rather than low energetics. Furthermore, due to multiple time scales present in premixing (melt supply duration, particle solidification, trigger time), extrapolation of the measured behavior to reactor situations (involving continuous delivery of many tons of molten corium) is not straightforward.

Given the large phenomenological uncertainties in steam explosion, we believe that reducing the uncertainties associated with parameters of the melt's first-release appears a "cost-effective" avenue in quantification of ex-vessel steam explosions. In fact, the melt first-release parameters (being boundary conditions to FCI) are subjected to in-vessel coolability, and manifested on (i) vessel failure modes and timing, (ii) amount, composition and superheat of molten materials available for discharge to ex-vessel space, and (iii) vessel hole ablation and relocation path of melt to water pool in a reactor cavity. Examination of these aspects has to be strengthened in the follow-up study.

3.5 Severe Accident Information Distillation (SAID)

This activity is fulfilled by KTH participation in SARNET (Severe Accident Research NETwork of Excellence). We provided information from MSWI-APRI6 into SARNET and took useful information from SARNET for Swedish nuclear power plants. KTH is involved in most work packages except WP1, WP8 and WP14~WP16. The main achievements of SARNET with KTH involvement can be summarized as follows.

3.5.1. ASTEC code (WP2~WP4)

The ASTEC code, jointly developed by IRSN and GRS, is the main integrating component and contributes efficiently to the dissemination of SA knowledge. Furthermore, most of the "Joint Research Activities" are linked to ASTEC, as one of their ultimate goals is to provide physical models to be integrated in ASTEC.

Total 28 organizations have collaborated with IRSN and GRS on the code development and assessment. The code is intensively used by IRSN for Level 2 PSAs for 900 and 1300 MWe PWRs and by GRS for their PSA2 consolidation study for Konvoi 1300 MWe reactors. Besides, more and more partners use it for complete accident scenario calculations. Three ASTEC Users' Club meetings, the latest being held in April 2008, allowed fruitful direct discussion between users and developers.

Three main code versions were released to the partners: V1.1 mid-04, V1.2 mid-05 and V1.3 end of 2006 (the latest V1.3 rev2 update being released in Dec.07). By taking into account all users' requirements on ASTEC evolution, the first ver-

sion of the new series of ASTEC V2 versions to be released in March 2009, will be applicable to the EPR, in particular its core-catcher, and will include the ICARE2 (IRSN code for core degradation) mechanistic models.

An extensive code validation was carried out by the partners on 65 experiments (often OECD International Standard Problems). The results are generally good for circuit thermal-hydraulics, core degradation and fission products and aerosol behaviour. Many applications were performed on various NPPs (French PWR, Konvoi 1300, Westinghouse AP 1000, VVER-440, VVER-1000 and RBMK) and various SA scenarios, including benchmarks with other codes. The agreement was good with the integral codes MELCOR and MAAP4 on the trends and orders of magnitude of the main sequence results, and very good with detailed results of mechanistic codes such as CATHARE for circuit thermal-hydraulics and as ATHLET-CD and ICARE/CATHARE for core degradation

Model improvements were performed by CEA on corium behaviour in lower head and on vessel external cooling, including validation on LIVE, SULTAN and ULPU experiments. The model adaptations to BWR and CANDU were specified and ranked, along with promising scoping calculations with the present code versions. KTH submitted a report on identification of BWR specifics in view of SA modeling, and ASTEC-BWR adaptation will be one of the priority activities in SARNET2 (2009-2012).

3.5.2. Level 2 PSA (WP5)

Harmonization of Level-2 PSA methodology and development of advanced tools is also an integrating activity in SARNET. So far a feasibility study has been performed for harmonisation of Level 2 PSA approaches and treatments, based on 4 issues - on specific issues as hydrogen combustion, iodine chemistry, melt corium concrete interaction (MCCI), large early releases, reactor safe state definitions and methods for level 1 and 2 PSA interface. It is proven that the total harmonisation of Level-2 PSA practices is difficult and challenging, but a certain level of harmonization for level 2 PSA was possible through a direct comparison and the analysis of Partners already existing methodology. For many issues regarding Level 2 PSA, questionnaires have been set up and the answers have been analyzed in order to define next steps of harmonization. A State Of the Art Report (SOAR) on dynamic reliability methods has been produced and the limitations of classical methods which could be exceeded using these reliability methods were identified. Examination of the benefit of one of the possible methods (Monte Carlo Dynamic Event Tree) has been achieved for the station blackout situation. Large efforts were dedicated to a benchmark exercise (quantification of the risk of containment failure induced by the activation of safety systems during the vessel core degradation phase). This benchmark allowed the comparison of dynamic reliability methods with classical ones. The harmonization of Level-2 PSA guidelines will be finished in project ASAMPSA2 project (2008-2010) which is a follow-up of the activity initiated in SARNET, with a close interaction with the End-Users Community of L2 PSA (e.g., Safety Authority, TSO, Utility, Designers, Vendors).

3.5.3. CORIUM (WP9~WP11).

The activities of Corium topic range from early phase of core degradation to late phase core degradation and ex-vessel corium stabilization. An effort is also underway to develop and improve the corium thermodynamic and material physical property databases. The joint activities were deployed in 22 SARNET organizations, such as the contribution to the definition and the interpretation of tests, with benchmark exercises and associated model improvements: OECD-CCI tests in MCCI programme; QUENCH-10 test on air ingress in bundle geometry; QUENCH-11 test on boil-down and quench; QUENCH-12 test with VVER bundle; COMET-L1 and L2 tests to study MCCI in 2D geometry; LIVE or VULCANO-COMET tests. Similar activities were carried out for ongoing and new projects from the International Science and Technology Centre (ISTC): PARAMETER project on core top flooding models, METCOR on the impact of thermo-mechanical interaction on the vessel behaviour, CORPHAD on the corium thermodynamic (improvement of the NUCLEA database). Among the main achievements on the corium activities, we can quote as examples:

- The understanding of the oxidation phenomena in steam and in air has progressed and oxidation correlations have been validated. The importance of material composition has been demonstrated. Further research is required on new cladding materials, especially in relation to the hydrogen and fission product source term issues.
- To investigate corium behaviour in the lower plenum, experiments have been performed in the LIVE large-scale test facility which consists of 1:5 scaled RPV lower head of a typical pressurised water reactor (PWR), and the data are useful for a new series of modelling and analytical work on in-vessel melt pool behaviour. KTH implemented ECM model into FLUENT to provide an affordable tool calculating melt pool convection in a complex geometry. The LIVE L1 experiment was calculated by the ECM approach with a good agreement.
- The different models of vessel failure by creep rupture have been compared and a common understanding of the OECD OLHF-1 test has been achieved. The data from FOREVER experiments were provided by KTH for vessel creep rupture. Modelling of the crack evolution is in progress.
- The KTH-initiated 2D debris bed coolability analyses for inhomogeneous bed structures showed an increased coolability compared to earlier 1D particle beds. This launches a new interest in this issue both experimentally and numerically including a pursuit of the debris bed formation and its characteristics of coolability importance.
- Likewise, the 2D MCCI test gave unexpected results with a marked ablation anisotropy for silica-rich materials. Interpretation and modelling of this behaviour must be pursued.
- Core catcher concepts based on spreading (EPR) and bottom flooding (COMET, down-comers) are being studied and progress has been achieved in modelling.
- The validation of the chemical thermodynamics database NUCLEA has been extended thanks to the analysis of EC-funded experiments and a

round-robin exercise has qualified the uncertainties of energy dispersive X-ray spectrometry (EDX) analyses.

- The KTH simplified model for melt spreading were under evaluation for possible inclusion in ASTEC.

3.5.4. CONTAINMENT (WP12~WP13)

The research efforts concerns energetic phenomena (e.g., H₂ combustion, FCI and DCH) that could potentially threaten containment integrity concern hydrogen behaviour and fast interactions in the containment.

Experimental programs on hydrogen combustion with concentration gradients (ENACCEF, IRSN) and recombiner kinetics (REKO-3, FZJ) have been performed and/or are ongoing. ENACCEF experimental results have been used in a benchmark using 3 different 3D Computational Fluid Dynamic (CFD) codes (FLUENT, TONUS-3D and REACFLOW). The results revealed some weaknesses of the combustion models used when simulating combustion with negative hydrogen gradient. For containment atmosphere mixing, the focus has shifted to study influence of accident mitigation systems on containment atmosphere. The major achievement is the simulation of containment spray experiments that were performed in small scale (TOSQAN, IRSN) and large scale (MISTRA, CEA) facilities, using CFD and lumped parameter codes. The calculated results demonstrated the feasibility of such simulations, which could also be applied to actual containments, provided that sufficient computing capacities are available. Apart from that, CFD simulations of the operation of Passive Autocatalytic Recombiners (PAR) in simplified 2D containment models represent a first significant step towards comprehensive simulations of PAR-atmosphere interaction in real plants. There is one dispute for PAR usage: the H₂ recombiners might limit the explosion loads, but could also cause ignition (self ignition in PAR).

The work on FCI (Fuel Coolant Interactions) in SARNET was closely linked to the OECD/SERENA programme, which had the objective of evaluating the capabilities of the current generation of FCI computer codes to predict steam explosion loading of the reactor structures and reaching consensus on the understanding of important FCI phenomena relevant to reactor situations. Mainly, MC3D and IKEMIX/IDEMO have been used for this purpose. In addition, a number of experiments were performed in MISTEE and DEFOR (KTH), and KROTOS at CEA-Cadarache after moving from JRC-Ispra, with the aim to complement understanding of fragmentation and explosion behaviour of corium melts. The main accomplishment was a consensus that in-vessel steam explosion would not induce failure of the vessel, thus closing the in-vessel steam explosion issue from the risk perspective, and that ex-vessel steam explosions could induce some damage to the cavity. However, the level of loads in the latter could not be predicted due to a large scatter of the results. Major reasons of this scattering were found to be the uncertainties on void distribution in the pre-mixing region, inducing large discrepancies on the initial conditions of the explosion, and on explosion behaviour of corium melts, inducing more or less arbitrary tuning of the explosion parameters. These uncertainties will be addressed experimentally and analytically in the OECD SERENA-II programme and EU SARNET2 project.

The consequences of Direct Containment Heating (DCH) are essentially related to cavity geometry; therefore a database has been established for the plant types EPR, French PWR-1300, VVER-1000 and the German Konvoi by an experimental programme performed in the DISCO-facilities (FZK). For EPR and VVER1000 plants the DCH issue can be considered as closed, due to their cavity design. The efforts to improve the predictive capabilities of the CFD code MC3D on the one hand and the system codes COCOSYS and ASTEC on the other hand were initiated and will be continued. Benchmark exercises have revealed severe deficiencies in the current modelling: debris dispersion correlations need to be better adapted to the respective cavity geometries and oxidation and hydrogen combustion models are needed as they are the really challenging phenomena as regards containment integrity (experimental results showed that direct thermal effects alone should not endanger the containment integrity). Based on available experimental data from separate effect tests in DISCO, the scaling of combustion of hydrogen jets in an air-steam-hydrogen atmosphere must be established by applying dedicated combustion codes (COM3D, REACFLOW), then the modelling parameters must be transferred to codes with DCH models (CFD codes or COCOSYS) and finally adapted to ASTEC.

3.5.5. SARP (WP7)

The Severe Accident Research Priority (SARP) work-package allowed to identify research priorities with the aim of re-orientating progressively the existing national programmes and of contributing to launch new ones in a coordinated way, eliminating duplications and developing complementarities. This activity was performed in close collaboration with participants, representing TSOs, industry and utilities. As in the Phenomena Identification and Ranking Table (PIRT) carried out in EURSAFE, the whole spectrum of SA situations, extending from core uncovering to long term corium stabilization, long term containment integrity, and fission product release to the environment was considered. Special attention was brought to a risk oriented approach in order to really focus on the most relevant pending issues. As a result, a consensus was reached and 18 main issues were ranked into four categories, among which 6 issues are regarded to be investigated further with **high priority**:

- Core coolability during reflood and debris cooling, corium coolability in lower head
- Ex-vessel melt pool configuration during MCCI and ex-vessel corium coolability by top flooding.
- Melt relocation into water, ex-vessel Fuel Coolant Interactions (FCI).
- H₂ mixing and combustion (flame acceleration) in containment.
- Oxidising impact (Ru oxidising conditions/air ingress for HBU and MOX fuel elements) on source term.
- Iodine chemistry in Reactor Cooling System (RCS) and in containment.

3.5.6. Spreading of Excellence Activities (WP17~19)

An educational course on SA phenomenology addressing PhD students and young researchers, was given in January 2006 over 5 days. A training course on “Accident progression (data, analysis and uncertainties)”, addressing instead more experienced nuclear safety specialists, was given in March 2007 over 5 days. Finally, a third course was organized in Budapest in April 2008 covering both phenomenology and severe accident scenario codes. From 40 to 100 persons attended to each of these courses. Professor Sehgal gave lectures in all three courses and 3 students from KTH attended the courses.

A textbook on SA phenomenology is being written. It is now practically completed and will be edited in 2009. This covers historical aspects of Light Water Reactor safety and principles, phenomena concerning in-vessel accident progression, both early and late containment failure, fission product release and transport; it contains a description of analysis tools or codes, of management and termination of SA, as well as environmental management. It also gives elements on Generation 3 Reactors. Professor Sehgal is the principal editor of the textbook.

A mobility programme, under which students and researchers can go into different laboratories of SARNET for training, complements these spreading of excellence activities. 33 mobilities, with an average duration of 3 months, have been funded by SARNET. Notably, KTH hosted 4 mobilities for young students from 4 EU countries.

Three conferences (European Review Meetings on Severe Accident Research – ERMSAR) have been organized in France, Germany and Bulgaria as a forum to the Severe Accident community. They are becoming one of the major events in the world on this topic. So far, around 300 papers in various Conferences and/or Journals can be counted under the SARNET co-support.

3.6 Outlook

Besides what we learnt above, the MSWI-APRI6 research brought surprises and new understanding of priorities in uncertainty reduction and risk quantification:

- The expertise and capability gained in INCO activity have proven to be far more critical for issue resolution than it was initially envisioned. We see that in-vessel stage of severe accident is the key for reduction of uncertainty in ex-vessel stage to the level when safety issues can be tackled by risk quantification approach.
- Methodologically, the INCO work strongly suggests the need to incorporate timing of the events as one of the most important limiting mechanisms in treatment of severe accident risks.
- The DEFOR tests opened up a new uncertainty with coolability prediction in realistic debris beds. This requires the new POMECCO study to quantify effect of the newly found uncertainty in prototypical characteristics of a debris bed on two-phase flow and heat transfer in the bed.

Analysis of findings and new understanding of priorities gained in the process of MSWI-APRI6 allowed us to delineate the following outlook for the next steps which have to be accomplished in order to create firm basis for the risk informed severe accident issues resolution.

MSWI-APRI6 findings show that further reduction of epistemic uncertainties in physical phenomena of steam explosion and coolability will be necessary, but not sufficient to bring the issues down by risk quantification. The reason is that ex-vessel coolability and steam explosion are very sensitive to in-vessel accident progression and RPV failure modes and timing, and the containment integrity can not be ensured in the case of a bounding scenario of massive melt release (~200 tons). Realization of the fact that containment failure is physically possible brings safety analysis to the risk domain where one should demonstrate low probability of the bounding scenario.

On the other hand, high sensitivity of the ex-vessel stage of accident to the melt ejection characteristics creates a good potential for the issues resolution. Namely to solve the issues we only need to demonstrate that the probability of massive melt release with respect to the other modes of RPV failure is small enough. The definition of “massive melt release” comes from hazard load vs. system capacity analysis. Although the MSWI-APRI6 study created growing evidences that the load is smaller than what we thought before, the establishment of quantitative relations between load and capacity with taking into account remaining uncertainty is still required for risk quantification in support of SAM decision making.

Internationally, the SA research focus at KTH goes very well with the research priorities identified in Severe Accident Research Priority (SARP) activity of SARNET and to be emphasized in SARNET2 (2009-2012). KTH with its MSWI project will continue to be a lead player in the SARNET2 program, with the national support of APRI7.

3.7 Referenser

- [3.1] Bui V.A. and Dinh T.N., Modeling of Heat Transfer in Heated-Generating Liquid Pools by an Effective Diffusivity-Convectivity Approach, *Proc. of 2nd European Thermal-Sciences Conference*, pp.1365-1372, Rome, Italy, 1996.
- [3.2] Tran C.T., and Dinh T.N., An Effective Convectivity Model for Simulation of In-Vessel Core Melt Progression in Boiling Water Reactor. *2007 International Congress on Advances in Nuclear Power Plants (ICAPP 2007)*, Nice Acropolis, France, May 13-18, 2007.
- [3.3] Tran C.T., and Dinh T.N., Simulation of Core Melt Pool Formation in a Reactor Pressure Vessel Lower Head Using an Effective Convectivity Model, *Proc. of International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-12)*, Pittsburgh, Pennsylvania, USA, Sept. 30 – Oct. 04, 2007.
- [3.4] Tran, C.T., Kudinov, P., and Dinh, T.N., An Approach to Numerical Simulation and Analysis of Molten Corium Coolability in a BWR Lower Head,

Proc. of Experiments and CFD Applications to Nuclear Reactor Safety Workshop (XCFD4NRS), Grenoble, France, September 10-12, 2008.

- [3.5] Nourgaliev R.R., Dinh T.N. and Sehgal B.R., Effect of Fluid Prandtl Number on Heat Transfer Characteristics in Internally Heated Liquid Pools with Rayleigh Numbers up to 10^{12} , *Nuclear Engineering and Design*, **169**, pp.165-184, 1997.
- [3.6] Tran, C.T., and Dinh, T.N., Analysis of Melt Pool Heat Transfer in a BWR Lower Head, *Transactions of ANS Winter Meeting*, Albuquerque, NM, USA, November 12-18, Vol. 95, pp. 629-631, 2006.
- [3.7] Tran, C.T., and Dinh, T.N., Applications of the Phase-change Effective Convectivity Model to Analysis of Core Melt Pool Formation and Heat Transfer in a BWR Lower Head, *Transactions of ANS 2008 Annual Meeting*, Anaheim, California, USA, June 8-12, 2008.
- [3.8] Lipinski R.J., A Coolability Model for Post Accident Nuclear Reactor Debris, *Nuclear Technology*, **65**, pp.53-66. 1984.
- [3.9] Reed A.W., The Effect of Channeling on the Dryout of Heated Particulate Beds Immersed in a Liquid Pool, *PhD thesis of Massachusetts Institute of Technology*, Feb. 1982.
- [3.10] Spencer B.W., Wang K., Blomquist C.A., McUmbler L.M. and Schneider J.P., Fragmentation and quench behaviour of corium melt streams in water, NUREG/CR-6133, ANL-93/32, Argonne National Laboratory. 1994.
- [3.11] Karbojian A., Ma W. M., Kudinov P., Davydov M. and Dinh T. N., A Scoping Study of Debris Formation in DEFOR Experimental Facility, *Proc. of the 15th Int. Conference on Nuclear Engineering*, Nagoya, Japan, April 22-26, 2007.
- [3.12] Kudinov P, Karbojian A., Ma W.M., Davydov M. and Dinh T.N., A Study of Ex-Vessel Debris Formation in a LWR Severe Accident, *Proceedings of ICAPP 2007*, Nice, France, May 13-18, 2007.
- [3.13] Kudinov P, Karbojian A., Ma W.M. and Dinh T.N., An Experimental Study on Debris Formation with Corium Stimulant Materials, *Proc. ICAPP'08*, Anaheim, CA USA, June 8–12, 2008.
- [3.14] Kudinov P. and Dinh T.N. Dinh, An Analytical Study of Mechanisms That Govern Debris Packaging in a LWR Severe Accident, *Proc. of 12th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics*, Pittsburgh, Pennsylvania, USA, Sept.30-Oct.4, 2007.
- [3.15] Kudinov P. and Dinh T.N., A Computational Study of Debris Bed Formation, *Proc. ANS'08*, Anaheim, CA, USA, June 8-12, N 193463, 2008.
- [3.16] Yakush, S., Kudinov, P., and Dinh, T.N., Modeling of Two-Phase Natural Convection Flows in a Water Pool with a Decay-Heated Debris Bed, *Proc. ICAPP 2008*, Anaheim, CA, USA, June 8-12, N 8409, 2008.
- [3.17] Hansson R.C., Park H.S. and Dinh T.N., Simultaneous High Speed Digital Cinematographic and X-ray Radiographic Imaging of a Multi-Fluid Interaction with Rapid Phase Changes, *6th International Conference on Multiphase Flow*, Leipzig, Germany, 2007.

- [3.18] Dombrovsky L.A., Davydov M.V. and Kudinov P., Thermal Radiation Modeling in Numerical Simulation of Melt-Coolant Interaction, Proc. ICHMT-08, May 11-16, N 155, 2008.
- [3.19] Ma W.M. and Dinh T.N., A Study on Effects of Debris bed Prototypicality on Coolability, *Proc. of 12th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics*, Pittsburgh, Pennsylvania, USA, Sept. 30-Oct. 4, 2007.
- [3.20] Ma W.M. and Dinh T.N., Coolability Analysis of Bottom-fed Debris Beds in Severe Accidents, *Proc. Of The 15th International Conference on Nuclear Engineering*, ICONE15-10472, Nagoya, Japan, April 22-26, 2007.
- [3.21] Schmidt, W., Influence of Multidimensionality and Interfacial Friction on the Coolability of Fragmented Corium, *Ph. D thesis of University of Stuttgart*, May 2004.
- [3.22] Ma W.M., Buck M., Bürger M. and Dinh T.N., Analysis of Inhomogeneity Effect on Debris Bed Coolability, *Proc. of the 15th International Conference on Nuclear Engineering*, ICONE15-10472, Nagoya, Japan, April 22-26, 2007.
- [3.23] Song, J.H., Kima, J.H., Honga, S.W., Mina, B.T., and Kima, H.D., The Effect of Corium Composition and Interaction Vessel Geometry on the Prototypic Steam Explosion, *Annals of Nuclear Energy*, **33**: 1437-1451, 2006.
- [3.24] Hansson R.C., Dinh T.N. and Park, H.S., Dynamics and Preconditioning in a Single Drop Vapor Explosion, *Proc. of International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-12)*, Pittsburgh, Pennsylvania, USA, Sept. 30 – Oct. 04, 2007.
- [3.25] Hansson R.C., Triggering and Energetics of a Single Drop Vapor Explosion: The Role of Entrapped Non-Condensable Gases, *7th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics, Operation and Safety, NUTHOS-7*, Seoul, Korea, October 5-9, 2008.
- [3.26] Dinh T.N., Dinh A.T., Green J.A. and Sehgal B.R., An Assessment of Steam Explosion Potential in Molten-Fuel-Coolant Interaction Experiments, *Proc. of the 6th International Conference on Nuclear Engineering*, San Diego, USA, May 1998.
- [3.27] Dinh T.N., Material Property Effect in Steam Explosion Energetic: Revisited, *Proc. of 12th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH12)*, Pittsburgh, Pennsylvania, USA, Sept. 30-Oct. 4, 2007.
- [3.28] Dombrovsky L. and Dinh T.N., The Effect of Thermal Radiation on the Solidification Dynamics of Metal Oxide Melt Droplets”, *Nuclear Engineering and Design*, **238(6)**, pp.1421-1429, 2008.
- [3.29] Theofanous, T.G., Yuen, W.W., and Angelini, S., The Verification Basis of the PM-ALPHA Code, *Nuclear Engineering & Design*, **189**: pp.59-102, 1999.

4. CHALMERS FORSKNING INOM SVÅRA HAVEREIR

4.1 Översiktlig beskrivning av jodkemi vid svåra haverier

Jod är en av de mest hälsoskadliga fissionsprodukter som kan frigöras vid ett svårt haveri i en kärnreaktor. Flyktiga radioaktiva jodföreningar, oorganiska och organiska, som läcker ut ur reaktorinneslutningen koncentreras till sköldkörteln i människokroppen och kan där orsaka akuta eller långsiktiga strålskador vilket kan ge upphov till cancer. En ökad förståelse för jods uppträdnad i inneslutningen är därför av största vikt för att på ett tillförlitligt sätt kunna bestämma källtermen av jod, vilket behövs för att avgöra vilka förebyggande åtgärder som är lämpliga för att kunna skydda befolkningen i närliggande områden till kärnkraftverket.

I början av 1980-talet var kunskapen om frigörelsen av jod från smält bränsle begränsad, då inga försök gjordes med bränslet upphettat till över 1800°C. Under senare delen av 1990-talet gjordes försök med temperaturer på bränslet vid eller nära dess smälttemperatur och dessa försök har visat att nära 100 % av härdens jod innehåll kommer att frigöras vid en eventuell härdsmälta [4.1].

Efter studier av olyckan i TMI-2 var den allmänna uppfattningen att jod spreds framförallt i form av aerosoler av cesiumjodid i primärsystemet. Resultat från PHEBUS-FP har visat att CsI inte är den enda jodspecien som sprids, särskilt i reaktorer med AgInCd-styrstavar. Jod sprids även som CdI₂, AgI, InI_x samt RbI. PHEBUS-testerna visade också att en mycket stor mängd av gasformig jod uppenbarade sig i inneslutningen i början av experimenten. Tre förklaringar till fenomenet finns beskrivet i OECDs ”state of the art”-rapport om jodkemi [4.1]: a) Flyktig jod kan bildas genom tidiga produktionsmekanismer i inneslutningen, b) Gasformig jod frigörs direkt från primärsystemet vid temperaturer så låga som 150°C, c) En kombination av de 2 första förklaringarna.

I SARNET har undersökningar av jodkemin i inneslutningen de senaste åren koncentrerats till två specifika områden, nämligen påverkan av strålningen på jodkemin i både vatten- och gasfas samt massöverföring av jod mellan vatten och gasfas. Jämförelse mellan beräkningar och resultat av EPICUR- och CAIMAN-experimenten visar på god förståelse av vätskefas-kemin, men vissa områden är fortfarande oklara. Jodreaktioner i vätskefasen i inneslutningen är tillsammans med den initiala frigörelsen av jod från primärsystemet också den största källan till gasformig jod i inneslutningen.

Resultat från PHEBUS-FPT2 där en gasfas innehållande fuktig luft och jod bestrålades, har visat att strålningsinducerad omvandling av molekylär jod (I₂) till jodpartiklar (I_xO_y) kan vara orsaken till att gasformig jod utarmas i ett långtidsperspektiv. Dessa försök har utförts med en relativt hög koncentration av I₂ och visade att omvandlingen av jod till jodoxider sker med nollte ordningens kinetik, dvs. att reaktionshastigheten ej beror på koncentrationen av de olika specierna [4.1]. Om samma kinetiska beteende skulle gälla vid låga koncentrationer av jod skulle detta leda till mycket kort kemisk halveringstid för I₂ i gasfasen. I PARIS-programmet [4.1] har nya experiment med låga jodkoncentrationer (10⁻⁹-10⁻⁶ mol/dm³) utförts. Även om resultaten pekade mot höga sönderfallshastigheter även vid låga jodkoncentrationer, så var inte helheten av resultaten förenliga med

reaktioner av nollte ordningen som man tidigare har trott. Oxidationshastigheten var mycket långsammare än resultat baserade på modellberäkningar och orsaken är fortfarande inte klarlagd.

Ett relativt nytt område som har undersökts är hur vätgasrekombinatorerna (PAR – Passive Autocatalytic Recoiners) i inneslutningen påverkar jodkemin, vilket har föranletts av kunskapen om den svaga termiska stabiliteten av metalljodider i en blandning av luft och vattenånga. Både beräkningar och experiment har visat att produktionen av gasformig jod, I_2 , är markant vid arbetstemperaturer högre än 500°C för rekombinatorerna. Omvandlingen till gasformig jod gäller även för de mest stabila metalloxiderna, som CsI.

Kunskapsläget om hur jod ansamlas i gasform i inneslutningen kan sammanfattas på följande vis:

- En betydande mängd gasformig jod sprids från primärsystemet i den inledande fasen av haveriet.
- Adsorption och desorption av gasformig jod på målade ytor som kan leda till bildande av flyktiga organiska jodider.
- Interaktioner mellan gasformig jod och radiolysprodukter av jod, vilket kan leda till olika oxidationsspecier.
- Radiolysinducerat bildande i inneslutningsvattnet av flyktiga jodspecier, vilka sedan kan frigöras till inneslutningens atmosfär via massöverföring.

4.2 Radiolytisk oxidation av jod

Specierna som bildas av bestrålning av luft och ånga kan reagera med gasformig jod under ett svårt haveri. Den viktigaste specien som bildas vid radiolys av luft och ånga är ozon. Ozon kan oxidera jod och därmed bildas jodoxider (I_xO_y).

Hastigheten av I_2 -oxidation i gasfasen har tidigare studerats experimentellt [4.2]. Vid relativt höga I_2 -halter är reaktionen mycket snabb och följer nollte ordningens kinetik. Vid låga halter, vilka är mer representativa för de förväntade halterna i inneslutningen, följer reaktionen inte fullt ut nollte ordningens kinetik. Orsaken är ännu inte klarlagd och de modeller som finns ger icke tillförlitliga resultat vid låga jodkoncentrationer. Därmed förstärks osäkerheten om vilka jodoxider som bildas och hur de beter sig i en reaktorinneslutning.

NROI (Nordic Research on Radiolytic Oxidation of Iodine) är ett samarbete mellan Chalmers och VTT, Helsingfors, Finland. Målet med projektet är att få en ökad förståelse av specieringen av de slutgiltiga produkterna vid den radiolytiska oxidationen av jod, och dessutom undersöka påverkan av olika gasfaskomponenter (torrt eller fuktigt, kvävgas eller luft, olika jod- och ozonkoncentrationer) på slutprodukterna.

4.2.1. Experiment

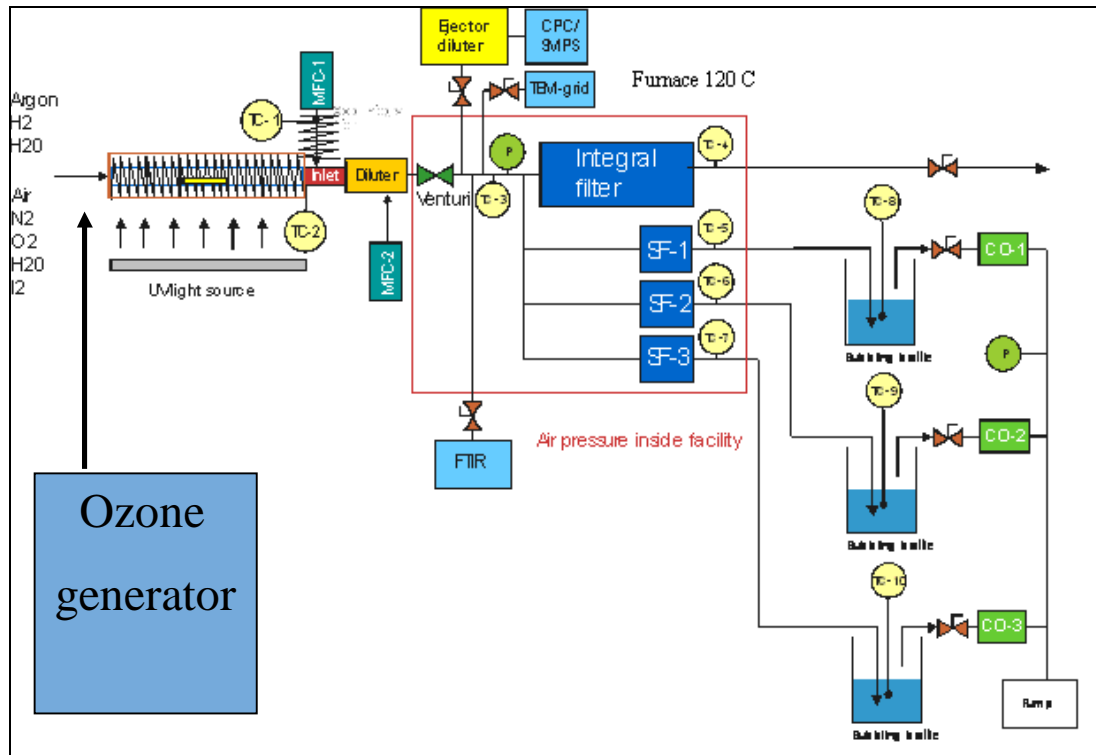
För undersökningarna i projektet användes experimentuppställning EXSI (Facility for experimental study on iodine chemistry), som visas i figur 4.1. Gasformig jod produceras i ett glaskärl, som är anslutet via glasrör till en UV-ugn. Före ugnen möter flödet av jod, som är blandat med kväve eller luft, ett större flöde av kväve

eller luft innehållande mellan 0.5 och 500 ppm ozon. I UV-ugnen sker reaktionen mellan jod och ozon vid en temperatur på 120°C. I vissa experiment utsätts gasblandningen för UV-ljus av typ UV-C, som skall verka som ett komplement till gammastrålning. Gasblandningen transporteras genom UV-ugnen i ett glasrör, som omges av ett termoelement. Därefter transporteras gasblandningen till huvudugnen, där den delas upp i olika ledningar för vidare transport till flertalet analysinstrument för online-mätningar av gasblandningen och eventuellt bildade partiklar. Gasblandningen transporteras i stålrör belagda med Sulfinert®, som är ett ytmaterial som skall minska sorptionen av olika gaser på ytorna. Temperaturen i huvudugnen är samma som i UV-ugnen, dvs. 120°C.

De analysinstrument som används är FTIR (Fourier Transform Infrared Spectroscopy), CPC (Condensation Particle Counter), SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer), TEM (Transmission Electron Microscopy), SEM (Scanning Electron Spectroscopy) och ICP-MS (Inductively Coupled Plasma – Mass Spectroscopy). FTIR används framförallt för att analysera hur halten ozon varierar genom experimentet, men även för att undersöka gasformiga jodspecier och vilka gasformiga strålningsprodukter som bildas på grund av UV-strålningen. CPC används för att mäta halten av aerosoler, dvs. halten av jodpartiklar (-oxider). SMPS används för att bestämma storleken på partiklarna.

Prov från gasfasen samlas upp på speciella provplattor av koppar och grafit för att kunna analysera specieringen av jodoxiderna med TEM och SEM. Halten av gasformig jod i systemet bestäms genom att I₂ samlas upp i gasfällor: två stycken 2 liters gasbubblingsflaskor i serie fyllda med 100 ml 0.05 M NaOH. När systemet är i jämvikt startas infångningen av jod i gasfällorna och infångningen varar under 20 min. NaOH-lösningarnas jodinhåll analyseras sedan med ICP-MS. Partikelformig jod som bildas i systemet fångas upp med speciella pappersfilter, placerade i huvudugnen, som sedan läggs i 50 ml 0.05 M NaOH.

Totalt utfördes åtta olika försök med varierande syrgas-, kvävgas-, ozon- och jodhalt, samt med eller utan UV-strålning. Experimentmatrisen över försöken kan ses i tabell 4.1. Inom varje experiment kunde tre olika förhållanden analyseras, tack vare de tre separata ledningarna med gasfällor.



Figur 4.1: En skiss av EXSI-uppställningen.

Tabell 4.1: En experimentmatrix över de åtta experiment som utfördes. NA står för okänd jodhalt och beror på opålitliga ICP-MS-mätningar av NaOH-lösningarna från gasfällorna. Uppehållstiden i systemet betecknas med t.

Exp.	O2 [%]	O3 [ppm]	I2 [ppm]	t [s]	UVC
1A	50	0	93	6.8	
1C	50	16	3.5	6.8	
2A	50	200	NA	6.8	
2B	50	350	0.02	6.8	
2C	50	43	0.11	6.8	
2D	50	414	0.06	6.8	ON
3A	21	0.36	NA	6.8	ON
3B	21	0.34	0.09	6.8	ON
3C	21	0.31	0.09	6.8	ON
3D	21	0	0.45	6.8	
4A	21	140	0.87	6.8	
4B	21	130	0.36	3.4	
4C	21	130	0.75	1.7	
5A	21	242	5.6	6.8	
5B	21	130	4.4	6.8	
5C	21	132	NA	3.4	
5D	21	0	12.5	6.8	
6A	2	110	1.2	6.8	
6B	2	103	1.2	6.8	
6C	2	20	0.86	6.8	
7A	2	87	NA	6.8	
7B	2	8.9	0.59	3.4	
7C	2	103	0.31	3.4	
8A	2	0.03	0.02	6.8	ON
8B	2	0.04	2.4	6.8	ON
8C	2	0.04	4.9	3.4	ON

4.2.2. Resultat och slutsatser

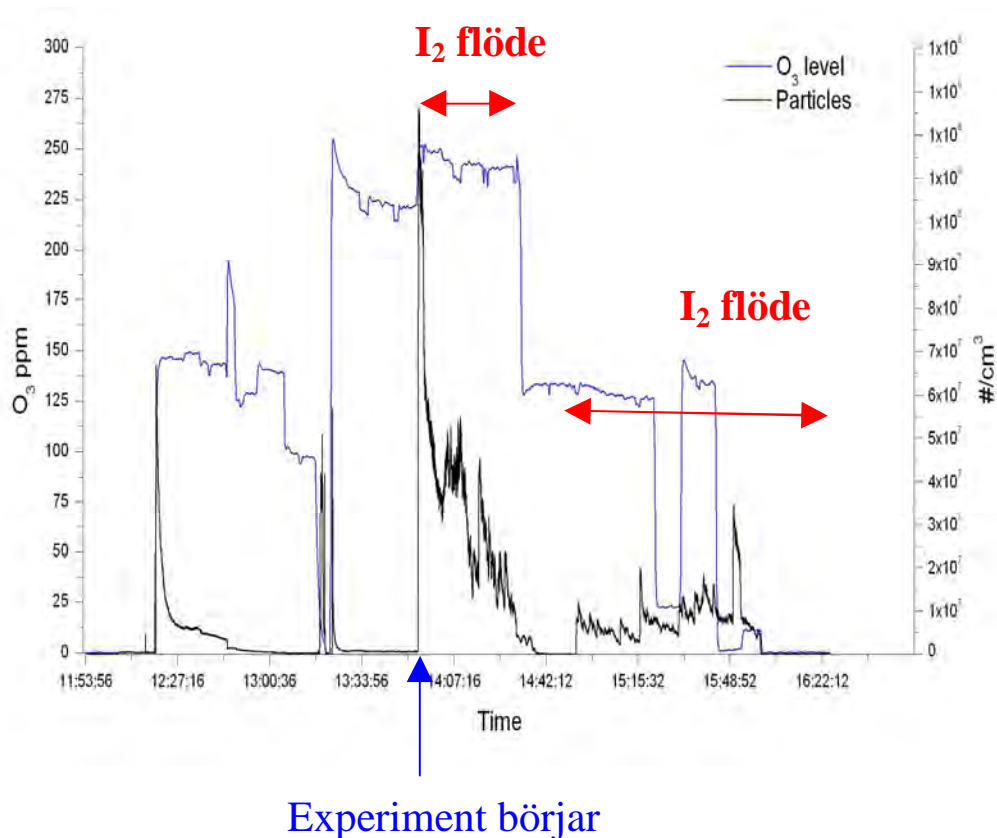
Partiklar bildades mycket snabbt trots den låga koncentrationen av jod, som varierade mellan 0.5 och 100 ppm genom experimentserien. Jodpartiklar (jodoxider) bildades omgående då både ozon och jod var närvarande i systemet, vilket framgår av figur 4.2, men en betydande och kontinuerlig mängd partiklar bildas endast då både ozon och jod är närvarande. Partikelkoncentrationen minskade snabbare än ozonkoncentrationen, vilket kan tyda på att reaktionen jod och ozon inte är den dominerade reaktionen. Dock är frigörelsen av jod från produktionskärlet inte stabil till en början, vilket gör att partikelkoncentration till en början beror främst på mängden jod som kommer in i systemet. Mängden ozon som kommer in till systemet är relativt stabilt. Att just ozon reagerar med I_2 kan ses i figur 4.2 på den svaga men tydliga minskningen av ozon då jod introduceras i systemet. Att koncentrationsminskningen av ozon var svag beror på att O_3/I_2 -förhållandet i systemet var åtminstone en faktor 25 i det aktuella försöket.

För att jodpartiklar skulle bildas var en ozonkoncentration på ett par ppm tillräcklig, dvs. ett O_3/I_2 -förhållande omkring 1. Då enbart jod eller enbart ozon var närvarande i systemet bildades inte partiklar i någon nämnvärd omfattning. Enbart UV-strålning och ingen ozon närvarande i systemet var alltså inte tillräckligt för att bilda jodpartiklar. Ozon producerad från UV-strålningen orsakade dock att partikelagglomering kunde inträffa.

Storleken på de bildade jodpartiklarna var ~ 10 nm (diameter) vid kärnbildningen, men ökade genom agglomering av partiklar och genom yreaktioner till en slutlig diameter på ~ 100 nm. Storleken på jodpartiklarna ökade då uppehållstiden i systemet för partiklarna ökade, vilket visar att agglomering av partiklar i gasfas ägt rum i systemet.

En viktig upptäckt för reaktorsäkerheten var att retention av jod i systemet främjades av att ozon var närvarande. Det beror på att kondensationen av jodpartiklar på ståltyorna är snabbare än depositionen av gasformig I_2 .

De bildade jodpartiklarna på grafit- och kopparrutnäten visade sig vara svåra att speciera på grund av att oväntad förångning av partiklarna uppträdde då elektronkanonen riktades mot proven under SEM- och TEM-analyserna. Resultaten från analyserna är därför mycket osäkra. Analyserna visar trots allt att någon form av jodoxider har bildats på ytorna, och då är I_2O_4 eller I_2O_5 troligast. SEM- och TEM-analyserna av jodpartiklarna har visat att dessa analysmetoder inte är de optimala för att bestämma specieringen av jodoxiderna. I framtida undersökningar bör andra metoder som t.ex. RAMAN-spektroskopi användas.



Figur 4.2: Partikelkoncentrationens variation under experimentet. När flödet av jod startas ökar partikelkoncentrationen i systemet dramatiskt.

4.3 Konkurrerande klorreaktioner som kan påverka jods beteende i vattenfasen

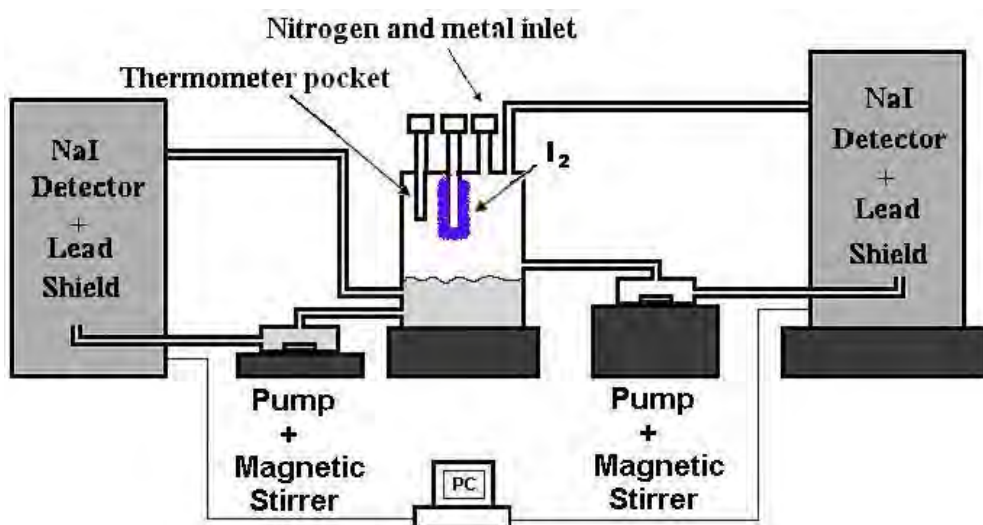
Vid pyrolys av kablage efter ett haveri i en kokvattenreaktor frigörs HCl. HCl kommer efter frigörelsen från kabelmaterialet att så småningom hamna i vattnet där sönderdelning till H^+ och Cl^- sker (en reaktion som sänker pH-värdet i vattnet). I en haverisituation kommer det i inneslutningens vatten också att finnas jodidjoner (I^-) som härstammar från det jod som frigörs vid degradering av kapsling och bränsle. I [4.4] och [4.5] visas att Cl^- tillsammans med hydroxylradikaler ($OH\cdot$) som produceras av den joniserande strålningen i vattnet, kommer att producera Cl_2 som sedan kan nå skrubbern. Kombinationen I^- och Cl^- tillsammans med ($OH\cdot$) kan också resultera i att I^- oxideras till I_2 vilket ger ett ökat bidrag av flyktig jod till inneslutningsatmosfären. I tryckavlastningsfiltret (skrubbern) konkurrerar sedan Cl_2 och I_2 om att reagera med natriumtiosulfat vilken är tillsatt just för att kvarhålla jod i skrubberns vattenfas. Mängden natriumtiosulfat är dimensionerad för att kunna kvarhålla den förväntade mängden utsläppt jod, men inte för ett samtidigt tillskott av Cl_2 .

Målet för projektet var att studera kloridjoners påverkan på fördelningen av jod mellan gas- och vattenfas, för att sedan använda data för att undersöka interaktioner med metaller i klor-jod-systemet.

4.3.1. Experiment

Chalmers har undersökt klor-jod-systemet genom online-mätningar i experimentutrustningen i figur 4.3, som har använts i tidigare jodprojekt inom APRI på Chalmers [4.6]. Utrustningen har dock modifierats och moderniserats då bland annat en ny detekteringsutrustning använts. Experimentuppställningen består av ett reaktionskär i glas på 700 cm³ med avtagbart lock. Från kärlet går två glaslooppar ut, en för vätskefas och en för gasfas. Förhållandet mellan gas- och vätskefasen är samma som förhållandet mellan gas- och vätskefasen i en reaktorinneslutning. De två looparna går runt två stycken NaI-detektorer, som används för att kunna mäta radioaktiviteten av ¹³¹I i systemet online. Detektorerna är kopplade till en dator, via en scintiSPEC™-analysator och en USB-port. Runt de två detektorerna är blyskydd placerade för att minska bidraget från bakgrundsstrålningen. Två speciella pumpar av impellertyp, med glastäckta magneter, styr cirkulationen och transporten i både vattenfasen och gasfasen. Temperaturen i systemet regleras med en värmeplatta placerad under reaktionskärlet och med värmeband som är virade runt kärlet och glaströerna i de två looparna.

Experiment har utförts vid tre olika temperaturer (20°C, 50°C och 70°C) och med tre olika klor/jod-förhållanden (1:1, 10:1 och 1000:1). Med klor/jod-förhållande menas halten kloridjoner dividerat med total mängd jod. Som kloridbärare har HCl och NaCl använts, vilket gör att pH-beroendet på fördelningen av I₂ i klor-jod-systemet också har beaktats.



Figur 4.3: Experimentuppställningen för fördelningsförsöken med RuO₄.

Ett experiment startas genom att 290 cm³ vatten tillsätts i systemet och sedan flushas systemet med kvävgas under en timme, för att höja kvävgashalten och minska syrgashalten i systemet. Flödet på vätske- och gassidan ställdes in på 6.3 cm³/s respektive 4.8 cm³/s. Radioaktivt spikat ¹³¹I₂ tillsätts systemet i form av kristaller som sedan låtes sublimeras och vaporiseras, och jämvikt för fördelningen av jod inväntas. När jämvikt i systemet har nåtts tillsätts kloridjoner i form av HCl eller NaCl, och fördelningen av jod studeras på nytt. pH kontrolleras i vattenfasen efter både introduktionen av jod och kloridjonerna.

4.3.2. Resultat

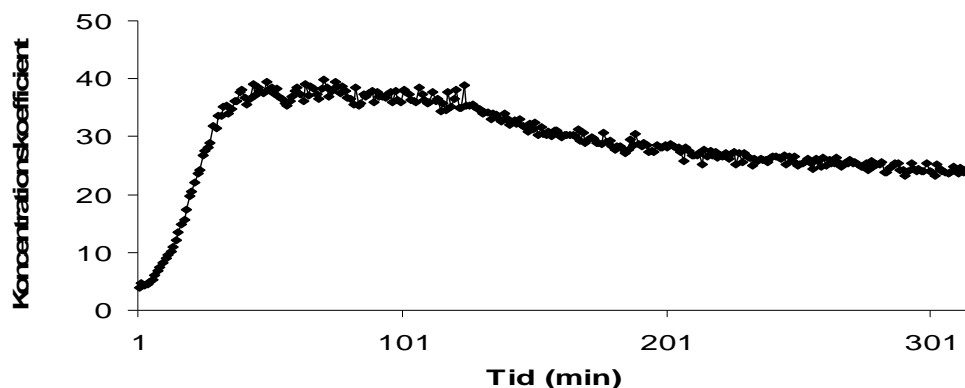
Vid låga klor/jod-förhållanden (1:1) ändrades inte fördelningen av jod mellan vatten- och gasfasen alls, oavsett systemets temperatur och oavsett om kloridjoner introducerats i systemet som HCl eller NaCl.

Vid ett klor/jod-förhållande på 10:1 ändrades fördelningen av jod tydligt, vilket kan ses i figur 4.4, då kloridjoner i form av HCl introducerades i systemet. Totalkoncentration av jod i gasfasen ökade medan totalkoncentrationen av jod i vätskefasen minskade. I experimenten med tillsats av NaCl och ett klor/jod-förhållande på 10:1, ändrades inte fördelningen av jod alls när kloridjonerna tillsattes i systemet. Fenomenen uppträdde i alla experimenten med klor/jod-förhållandet 10:1, oavsett temperatur i systemet. Skillnaden mellan experimenten berodde på skillnaden i pH. Vid ett surt pH som i fallet med tillsats av HCl förskjutes jämvikten av hydrolysen av jod (1) åt vänster, dvs. mot I₂.

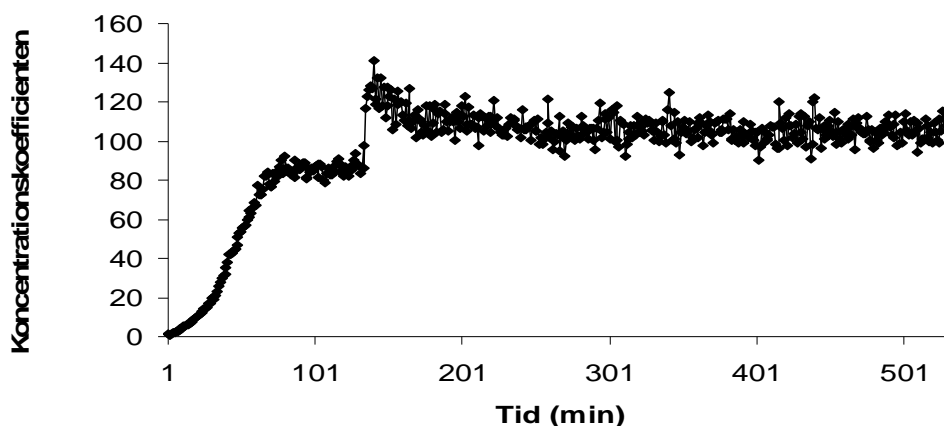


Vid tillsats av HCl och ett klor/jod-förhållande på 1000:1 ökar koncentrationskoefficienten, dvs. totalkoncentrationen av jod ökar i vätskefasen (figur 4.4 och figur 4.5). Oavsett temperatur i systemet erhöles likartade resultat. Resultaten var oväntade då tillsatsen av HCl till ett klor/jod-förhållande på 1000:1, medförde ett pH < 1 i vattenfasen. Vid ett så lågt pH borde jämviktsreaktionen (1) av hydrolysen av I₂ vara starkt förskjuten åt vänster, dvs. mot I₂. En förhöjd halt av I₂ i vätskefasen borde leda till en förhöjd halt av gasformig I₂. Därför verkar höga halter av kloridjoner i vattenfasen förhindra bildandet av gasformig I₂. I experimenten med tillsats av NaCl och ett klor/jod-förhållande på 1000:1 ändrades inte fördelningen av jod mellan faserna efter tillsatsen av kloridjoner. Däremot när relativt höga halter av salpetersyra tillsattes till vätskefasen, efter tillsatsen av NaCl, ökade koncentrationskoefficienten för jod. En slutsats som därmed kan dras är att höga halter av kloridjoner relativt halten av jod i vätskefasen ökar koncentrationskoefficienten för jod vid låga pH. En förklaring kan vara att så kallade polyhalider (I_xCl_y) bildas i vattenfasen. Dessa relativt okända föreningar kan bildas då I₂ reagerar med Cl⁻, vilket gör att jämvikten I_{2,gas} ⇌ I_{2,aq} kommer att förskjutas åt höger (mer I_{2,aq} kommer att lösas i vattenfasen). Inga polyhalider har dock identifierats i vattenfasen.

Resultaten är osäkra, särskilt då kunskapen om vad som bildats i vattenfasen efter tillsatsen av kloridjoner är otillräcklig. Fler undersökningar av klor-jod-systemet bör utföras.



Figur 4.4: Koncentrationskoefficienten för jod i försöket vid 50°C och klor/jod-förhållandet 10:1. HCl tillsattes efter 120 min. Koncentrationskoefficienten definieras som $L_c = (\text{totalkoncentrationen av jod i vätskefas}) / (\text{totalkoncentrationen av jod i gasfas})$.



Figur 4.5: Koncentrationskoefficienten för jod i försöket vid 50°C och klor/jod-förhållandet 1000:1. HCl tillsattes till vätskefasen efter 110 min.

4.4 Egenskaper hos metyljodid

Metyljodid, CH_3I , är den jodspecie som vållar störst bekymmer vad gäller omgivningskonsekvenser vid en radiologisk olycka, då dess retention i lösningar och på ytor i inneslutningen till skillnad från oorganiska jodspecier är mycket liten. I säkerhetsanalyser behandlas metyljodid på samma sätt som en ädelgas och någon avskiljning i de konsekvenslindrande skrubbersystemen krediteras därför inte. I verkligheten lyder dock metyljodid allmängiltiga kemiska jämviktslagar och kommer att fördela sig mellan vatten och gas i skrubbern.

Haverikoder som t.ex. MAAP använder ett empiriskt framtaget samband för hur fördelningen av metyljodid mellan vatten- och gasfas varierar med temperaturen vid olyckstillfället. Allmänt beskrivs fördelningskoefficienten, $D_{\text{CH}_3\text{I}}$, enligt:

$$D_{CH_3I} = \frac{CH_3I_{aq}}{CH_3I_g} \quad (1)$$

där CH_3I_{aq} är metyljodidkoncentrationen i vattnet och CH_3I_g är metyljodidkoncentrationen i gasfasen. Fördelningskoefficientens variation med temperaturen är i MAAP beskriven med sambandet:

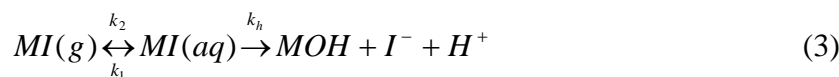
$$D_{CH_3I} = \exp\left(-6.97 + \frac{2641}{T}\right) \quad (2)$$

där T är vattnets och gasens temperatur i Kelvin. Detta samband togs fram av Ronald Borkowski och presenterades i hans doktorsavhandling vid Universitat Karlsruhe, Tyskland, fran 1985 [4.7]. Sambandet har sedan implementerats i flertalet haverikoder, bl.a. ovan namnda MAAP. En narmare granskning av MAAP-koden med avseende pa dess beskrivning av jodkemin skedde i SKI Rapport 2005:14 [4.8] och vid denna granskning framkom att Borkowskis uttryck var framtaget ur felaktiga data.

Chalmers har gjort en utredning kring fordelningen av metyljodid mellan vatten och gas for att kunna definiera ett korrekt samband. Utredningen antog till att borja med att Borkowskis misstag enbart berodde pa ett numeriskt fel i en berakning. Under arbetets gang visade det sig dock att den teori som Borkowski lade fram angaende hydrolys av metyljodid i vatten var bristfallig och utredningen lade darfor stort fokus pa att reda ut dessa oklarheter och presentera en fullstandig bild av hur systemet metyljodid-vatten-gas beter sig vid olika temperaturer.

4.4.1. Teori

Hydrolys av metyljodid, hadanefter benamnt MI , antas ske enligt foljande reaktioner:



Har avser k_1 framatreaktionen och k_2 bakatreaktionen. $MI(aq)$ skrivs fortsattningsvis som MI . Reaktionshastigheterna for alla jodsprecier ar da:

$$-\frac{dMI(g)}{dt} = k_1 \cdot MI(g) - k_2 \cdot MI \quad (4)$$

$$-\frac{dMI}{dt} = (k_2 + k_h) \cdot MI - k_1 \cdot MI(g) \quad (5)$$

$$\frac{dI}{dt} = k_h \cdot MI \quad (6)$$

dar k_h ar hydrolyskonstant. $k_h + k_2$ skrivs fortsattningsvis som k_b . Genom Laplace-transformering och losning av det resulterande linjara ekvationssystemet kan analytiskt och efter vissa forenklingar visas att:

$$MI(g) = \frac{MI(g)_0}{a-b} \cdot (k_b - b) \cdot e^{-bt} \quad (7)$$

$$MI = \frac{k_1 \cdot MI(g)_0}{a-b} \cdot e^{-bt} \quad (8)$$

$$I = MI(g)_0 \cdot \left(1 - \frac{a}{a-b} \cdot e^{-bt} \right) \quad (9)$$

$$\text{där} \quad a = \left(\frac{(k_1 + k_b)}{2} + \sqrt{\frac{(k_1 + k_b)^2}{4} - k_1 \cdot (k_b - k_2)} \right) \quad (10)$$

$$b = \left(\frac{(k_1 + k_b)}{2} - \sqrt{\frac{(k_1 + k_b)^2}{4} - k_1 \cdot (k_b - k_2)} \right) \quad (11)$$

Ekvationerna (7)-(9) gäller efter en viss tid, då fördelningsjämvikt inställt sig.

Fördelningskonstanten D (mol/mol) blir då (jfr ekvation (1)):

$$D = \frac{MI}{MI(g)} = \frac{k_1}{k_b - b} \quad (12)$$

Två förenklingar har gjorts i härledningen av ekvationerna (7)-(9) ovan:

1. Det antas att $MI_{(t=0)} = 0$ och $I_{(t=0)} = 0$, vilket är fallet i experiment där man introducerar $MI(g)$ till ett system innehållande en vattenfas
2. I den fullständiga beräkningen, som är giltig också för korta tider, ingår även uttryck med e^{-at} i (7)-(9). Eftersom $a > b$ går e^{-at} snabbare mot noll än e^{-bt} , och efter en viss tid kan uttrycken med e^{-at} således försummas.

Observera då att (7) och (8) är linjära för $\ln(MI(g))$ respektive $\ln(MI)$ och att de har samma lutning men olika intercept. I detta tidsområde har fördelningsjämvikten för MI mellan gas och vatten ställt in sig.

4.4.2. Borkowskis modell

I Borkowskis modell anges först att:

$$N = N_f + N_g \quad (13)$$

där

$$N = MI_{tot}, \quad N_f = MI, \quad N_g = MI(g)$$

Därefter presenteras följande samband:

$$\frac{dN}{dt} = -k_1 \cdot N_f \quad (14)$$

För att kunna integrera (14) med avseende på N används

$$N_f = N \cdot A \cdot V_f \quad (15)$$

där V_f är volym vattenfas och

$$A = \frac{D}{D \cdot V_f + V_g} \quad (16)$$

där V_g är volym gasfas och D (M/M) är fördelningskonstanten uttryckt som en kvot av koncentrationer (i ekvation (12) är D (mol/mol) = D (M/M) · V_f / V_g).

Uppenbarligen kan ekvation (14) endast gälla när fördelningsjämvikt råder. Integration av ekvation (14) ger då

$$N = N_0 \cdot e^{-k_1 \cdot A \cdot V_f \cdot t} \quad (17)$$

I härledningen anges att N_0 är

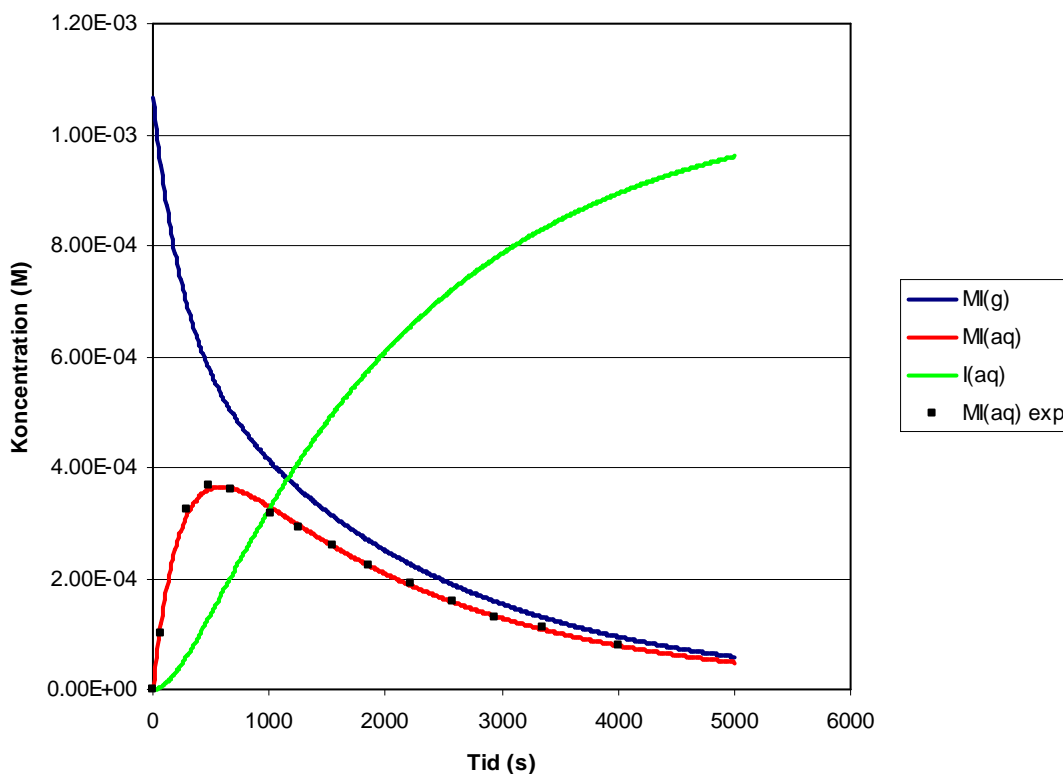
$$N_0 = N_f + N_g + N_i \quad (18)$$

Där N_i är mol jodid vilket nu plötsligt ingår i massbalansen (jfr med ekvation (13) ovan). Detta N_0 är alltså *total mängd metyljodid som tillsatts i försöket*. Det är inte rimligt att N skulle vara $N(t)$ vid en senare tid och N_0 vara $N(0)$. Med en sådan definition skulle $N(t)$ inte ändras alls. Det är alltså omöjligt att det N_0 som genereras av ekvationerna (13) - (17) är lika med det N_0 som anges i ekvation (18).

Man kan konstatera att ekvation (14) inte kan integreras utan att ta hänsyn till att N är en sammansatt variabel som består av både N_f och N_g . Denna hänsyn har dock tagits i Chalmers modell som visats ovan.

4.4.3. Räkneexempel

Experimentella data på inväxt och avklingning av MI från $MI(g)$ tas från Borkowskis försök med avläsning i figur 21 i referens [4.7] och redovisas i tabell 4.2 nedan. Med hjälp av Chalmers analytiska modell har värden på k_1 , k_2 , k_b och k_h anpassats för att ge så god överensstämmelse med data i tabell 4.2 som möjligt, se figur 4.6. Vid denna anpassning har den fullständiga analytiska modellen använts, inte de förenklade ekvationer (7), (8) och (9) som redovisas ovan.



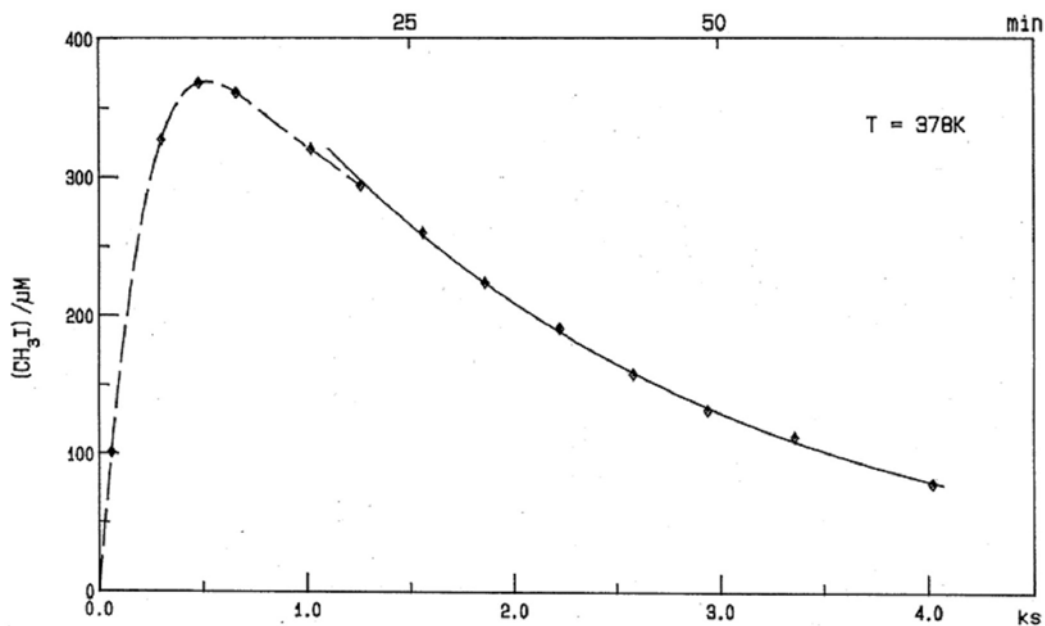
Figur 4.6. Koncentrationer av $MI(g)$, $MI(aq)$ och $I(aq)$ mot tiden framtagna med Chalmers modell samt experimentdata från Borkowski [4.7]. Borkowskis datapunkter är inlagda som svarta fyrkanter.

Kurvorna i figur 4.6 representerar anpassning till Borkowskis experiment vid 378 K och ger $k_1 = 2.86 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, $k_2 = 8.94 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, $k_h = 6.71 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ och $k_b = 1.57 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. Fördelningskonstanten D (M/M) beräknas ur detta till 1.67. Borkowski ger i sin avhandling $k_h = 7.76 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ och D (M/M) = 1.01.

Tabell 4.2. Experimentdata avlästa från figur 21 i referens [4.7].

t (s)	CH_3I (M)
0.0	0.0E+00
66.1	1.0E-04
296.2	3.3E-04
478.5	3.7E-04
663.0	3.6E-04
1013.9	3.2E-04
1253.2	2.9E-04
1549.4	2.6E-04
1857.0	2.2E-04
2214.7	1.9E-04
2574.7	1.6E-04
2934.7	1.3E-04
3349.4	1.1E-04
4012.4	7.9E-05

Eftersom Borkowskis modell enbart gäller när fördelningsjämvikt har nåtts för systemet var han tvungen att anta vid vilken tidpunkt detta inträffar. En linje anpassades sedan till de experimentvärden som uppmätts efter denna antagna tidpunkt och ur linjens lutning erhöles via beräkningar konstanten k_1 , se figur 4.7. Med hjälp av k_1 kunde sedan D bestämmas. Den analytiska modell som tagits fram av Chalmers kan ta hänsyn till alla experimentella datapunkter vare sig de är uppmätta före eller efter det att fördelningsjämvikt ställt in sig. Det här ger möjlighet till bättre feluppskattning av framtagna hastighetskonstanter och fördelningskonstanter jämfört med Borkowskis metod.



Figur 4.7. Metyljodidkoncentrationen i vatten som funktion av tid hämtad från Borkowskis avhandling (figur 21 i referens [4.7]). För att beräkna ett värde på konstanten k_1 anpassas den heldragna linjen i figuren till de experimentdata som uppmätts när fördelningsjämvikt antas ha uppnåtts. Data före denna tidpunkt ignoreras. (punkter med streckad linje).

4.4.4. Kvarvarande experiment

Det unika med Borkowskis experiment var att de genomfördes vid temperaturer upp till 150°C och att de därmed täckte in det temperaturintervall som blir intressant för kemin i inneslutningen efter ett haveri. I ett examensarbete planerade Chalmers att upprepa Borkowskis experimentella studier av fördelningen av metyljodid i neutrala vattenlösningar vid temperaturer mellan 25 och 140°C. Målet med examensarbetet var att för ett antal olika temperaturer experimentellt följa metyljodidkoncentrationen i en vattenlösning som funktion av tiden. Metyljodid tänktes då introduceras till systemet i gasform varefter gasen skulle börja lösa sig i vattnet och en jämvikt ställa in sig. Hydrolysen som beskrivs i ekvation (3) ovan sönderdelar efter hand metyljodid i vattenfasen och experimentkurvan får ett utseende liknande det i figur 4.7. Tyvärr nådde examensarbetet inte sitt mål och vi har idag inte några experimentella data att anpassa den ovan redovisade modellen

emot. Nedan redovisas ändå det tillvägagångssätt som ska följas när experimenten genomförts och experimentella data är registrerade.

Hastighetskonstanterna k_1 och k_2 är temperaturberoende liksom hydrolyskonstanten k_h . För den senare finns även ett empiriskt samband framtaget [4.9]:

$$k_h = 10^{\left(93,485 - \frac{9661,274}{T} - 27,42937 \cdot \log T\right)} \quad (19)$$

För k_1 och k_2 gäller $k_1(T)$ och $k_2(T)$. För D gäller $D(k_1, k_2, k_h) = D(T)$ enligt ekvation (12) ovan samt med villkoret att $k_h + k_2 = k_b$.

För att kunna bestämma fördelningskonstantens temperaturberoende behöver man därför för ett antal olika temperaturer anpassa k_1 och k_2 till experimentella data på det sätt som visats i räkneexemplet ovan. Det finns här två tillvägagångssätt att anpassa fram dessa parametrar:

1. Experimentella data + anpassning av modell $\Rightarrow k_1, k_2, k_h \Rightarrow D$
2. Experimentella data + $k_h(T)$ från litteraturen (referens [4.9]) + anpassning av modell $\Rightarrow D$

Det kan vara värt att fundera över hur stor skillnaden mellan 1 och 2 blir. Båda tillvägagångssätten förutsätter att det finns experimentella data tillgängliga för hydrolysen av metyljodid i vatten. Detta är inte fallet idag men Chalmers målsättning är att ta fram sådana i en nära framtid.

4.4.5. Slutsats

En analytisk modell för hydrolys av metyljodid i vatten har tagits fram på Chalmers. Modellen är mycket grundligt genomarbetad och har åtgärdat de oklarheter som identifierats i Borkowskis motsvarande modell. Med modellens hjälp är det möjligt att ta fram temperaturberoende hastighetskonstanter som tillsammans ger oss ett uttryck för fördelningen av metyljodid mellan vatten och gas vid olika temperaturer. I dagsläget saknas experimentella data att utvärdera modellen emot, men sådana experiment är under planering.

4.5 Översiktlig beskrivning av ruteniumkemi vid svåra haverier

En speciell klass av svåra haverier som har uppmärksammats under de senaste årtiondena är så kallade "air-ingress accidents", dvs. då luft tränger in i reaktortanken och kommer i kontakt med bränslet. Vid en sådan haverisituation skulle oxidation av bränslet vara möjlig. Denna bränslepåverkan skulle kunna leda till frigörelse av fissionsprodukter som vid ett "normalt" haveri med ren ång-vätgas-atmosfär inte skulle frigöras. Av de fissionsprodukter som under sådana förutsättningar kan frigöras från bränslet, är rutenium den som utgör det största radiologiska hotet. Rutenium kan förstöra de röda blodkropparna och utlösa blodcancer. Halveringstiden är ett år.

Relativt stora mängder av rutenium bildas vid fission av uran, under normal drift av en kärnreaktor. Beräkningar gjorda av Wright [4.16] visar att 330 kg rutenium har bildats i en kokvattenreaktor och 150 kg i en tryckvattenreaktor i slutet av bränslecykeln. Dessa värden kan jämföras med mängderna av jod och cesium: ungefär 30 kg respektive 430 kg i en kokvattenreaktor och ungefär 20 kg respektive 210 kg i en tryckvattenreaktor. Mängden rutenium i bränslet ökar med utbränningsgraden och ^{235}U -anrikningen. Radiotoxiciteten härstammar främst från två isotoper med olika halveringstider, ^{103}Ru ($t_{1/2} = 40$ d) och ^{106}Ru ($t_{1/2} = 1$ år), vilket gör att rutenium utgör ett radiologiskt hot i både ett kort och ett långt perspektiv.

Vid reducerande eller något oxiderande förhållanden i reaktortanken kommer mindre än 5 % av härdens ruteniuminnehåll att frigöras, vilket har visats i bland annat VERCORS-experimenten [4.10]. Försök har utförts av ett flertal medlemmar inom SARNET som däremot visar på snabb och fullständig frigörelse av rutenium från bränslet under "air-ingress"-förhållanden [4.11, 4.12, 4.13]. Uppföljande försök har visat att rutenium, i oxiderad form, kommer att kunna transporteras i primärsystemet och sålunda nå reaktorinneslutningen i gasform (huvudsakligen som RuO_4) och sedan eventuellt spridas därifrån. De flyktiga ruteniumoxiderna är relativt stabila även när de passerar lågtempererade områden i primärsystemet.

Experiment på transport av rutenium i primärsystemet har bland annat utförts på VTT [4.14]. Ett antal slutsatser kan dras från dessa experiment. Vid torr atmosfär deponerar och sönderdelas gasformigt rutenium på stålytor, medan i fuktig atmosfär (vilket är fallet under ett svårt haveri) gynnas transporten av gasformigt rutenium. Den största andelen rutenium transporteras som gas. Man bör dock notera att vid temperaturer över 1500 K sker transporten av rutenium främst i form av aerosolpartiklar. Gasformigt rutenium består till största delen av RuO_4 och RuO_3 , med en ökande halt av RuO_3 vid ökande temperatur. Aerosolpartiklarna består till största delen av RuO_2 . Försöken på VTT visar att ackumuleringen av RuO_4 i systemet var mer effektiv på oxiderande än på metalliska ytor, vid högre temperaturer än 1000 K. Då $\text{RuO}_4(\text{g})$ deponeras på metallytorna bildas fasta partiklar av RuO_2 . Redan bildade RuO_2 -partiklar förhöjde depositionen av $\text{RuO}_4(\text{g})$ på de oxiderande ytorna, medan partiklarna förhindrade depositionen på de metalliska ytorna. Vid lägre temperaturer, 100-150°C, är depositionen av gasformigt rutenium effektivast på de metalliska ytorna.

Eftersom RuO_4 är den enda gasformiga ruteniumspecien som är stabil vid lägre temperatur, omkring 100°C, utförs i princip all forskning på interaktionerna mellan RuO_4 och olika befintliga ytor i en reaktorinneslutning. På senare tid utförda experiment av Mun et al. [4.15] har visat att sönderdelningen av $\text{RuO}_4(\text{g})$ i ånga och vid 90°C, vilket kan representera de förhållanden som råder i inneslutningen under ett svårt haveri, är betydligt långsammare än man tidigare trott. Författarna har visat att man måste anta en kemisk halveringstid för RuO_4 på åtminstone 5 timmar.

Mun et al. [4.15] har också visat att deponering på olika ytor vid realistiska inneslutningstemperaturer accelereras av ånga och redan deponerade ruteniumoxider på ytan. Kinetiken för $\text{RuO}_4(\text{g})$ -interaktioner med olika ytor påverkas inte av vilken typ av substratyta det är, dvs. deponeringshastigheten av rutenium påverkas

inte av om deponeringsytan är t.ex. stål eller epoxy-målad stályta. Författarna har också visat att specieringen av deponerat rutenium inte heller påverkas av vilken typ av yta deponeringen sker på. Dessutom har inga bindningar mellan rutenium och substratyten kunnat påvisas, dvs. inga kemiska reaktioner mellan substratet och RuO_4 har ägt rum på ytan. Ytanalyser av deponerat rutenium med hjälp av ESCA (Electron Spectroscopy for Chemical Analysis) visade att hydroxyliserad Ru(IV) fanns på ytorna, dvs. $\text{RuO}(\text{OH})_2$.

Kunskapen om ruteniums beteende under svåra haverier har utvecklats väsentligt de senaste åren. Detta gäller både frigörelsen från bränslet och hur rutenium transporteras vidare i primärsystemet samt hur rutenium samverkar med olika ytor i inneslutningen. Men många olika frågor finns kvar att besvara inom området. Bland annat hur hög utbränning, MOX-bränsle och återförångning av deponerat rutenium påverkar källtermen av rutenium.

4.6 Ruteniums beteende i inneslutningen vid svåra haverier

Flyktiga ruteniumoxider kan som redan nämnts bildas under ett svårt haveri med ”air-ingress” [4.17]. Händelser som leder till ”air-ingress” sker under den sena fasen av ett svårt haveri och kan orsakas genom:

- Härdgenomsmältning, luft från inneslutningen tränger in i reaktortanken
- Olycka under en avställningssekvens med öppet tanklock.
- Kombination av 1 och 2.

I en kokvattenreaktor kan ett ”air-ingress”-haveri troligast inträffa när tanklocket är avtaget, t.ex. vid en revision. Normalt är inneslutningen i en kokvattenreaktor fylld med kvävgas och därmed kan ingen tillräckligt stor mängd syrgas tränga in till bränslet under drift.

Temperaturen i en inneslutning kommer att vara relativt låg, under 150°C , vid ett svårt haveri. Under dessa förhållande är endast $\text{RuO}_4(\text{g})$ av de gasformiga ruteniumoxiderna ($\text{RuO}(\text{g})$, $\text{RuO}_2(\text{g})$, $\text{RuO}_3(\text{g})$ och $\text{RuO}_4(\text{g})$) termodynamiskt stabil. Därför kommer rutenium i gasform att nå inneslutningen endast i form av RuO_4 . Vid Chalmers har därför arbetet koncentrerats på att undersöka beteendet av gasformig RuO_4 i inneslutningsmiljön och speciellt inriktat på kokvattenreaktorer. Ruteniumforskningen på Chalmers har startats upp under APRI-6 och det som studerats är fördelningen av RuO_4 mellan en vattenfas och en gasfas i temperaturintervallet $20\text{-}70^\circ\text{C}$ samt interaktioner mellan $\text{RuO}_4(\text{g})$ och aluminium, koppar och zink.

4.6.1. Experiment – Fördelning av RuO_4 mellan vatten- och gasfas

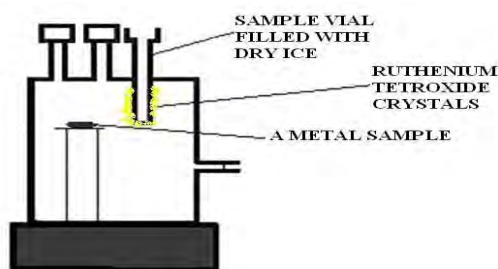
Experimentuppställningen i figur 4.3 har använts för att studera fördelningen av RuO_4 mellan vatten och gasfas.

Ett experiment startas genom att vatten och kvävgas tillsätts till systemet, samt att rätt flöden ställs in. Därefter tillsätts via locket i reaktorkärlet RuO_4 -kristaller, på en provrörsyta, som sedan får förångas. Jämvikt på fördelningen av RuO_4 mellan vatten- och gasfasen inväntas sedan och studeras.

4.6.2. Experiment – Interaktioner mellan RuO₄ och metaller

Syftet här var att undersöka deponeringen av RuO₄ på aluminium, koppar och zink, både kvalitativt och kvantitativt. Metallytorna skulle efter RuO₄-interaktionen analyseras med ESCA (Electron Spectroscopy, Chemical Analysis), XRD (X-Ray Diffraction) och SEM (Scanning Electron Microscopy). Mängden deponerat rutenium på ytorna skulle bestämmas, efter upplösning av ruteniumutfällningen, med hjälp av ICP-MS (Inductively Coupled Plasma – Mass Spectroscopy).

I dessa experiment användes en enkel försöksuppställning i glas, se figur 4.8. I glaskärlet fanns en eller tre stycken, beroende på vilket experiment, enkla provhållare för metallerna placerade. Ett experiment startades genom att en eller tre metallbitar placerades på provhållarna i reaktionskärlet. Sedan fylldes atmosfären i glaskärlet med kvävgas, luft eller fuktig kvävgas. RuO₄ introducerades i systemet på samma sätt som i fördelningsexperimenten, dvs. i form av kristaller som fick sublimeras och förångas. Gasformig RuO₄ reagerade sedan med metallytorna. Temperaturen i systemet var rumstemperatur (25°C).



Figur 4.8: En skiss över experimentuppställningen för specieringsbestämning av deponerat rutenium.

I försöken 1-9 undersöktes atmosfärens (kväve, luft och fuktig kväve) påverkan på specieringen av deponerat rutenium på aluminium-, koppar- och zinkytorna, se tabell 4.6. I dessa experiment var endast en metall närvarande i systemet. I experimenten T1-T3 undersöktes de olika metallernas förmåga att deponera rutenium. I dessa experiment var tre av metallerna samtidigt närvarande i systemet, för att se vilken metall som kunde ackumulera störst mängd rutenium. I försök T4 undersöktes deponeringen av RuO₄ på mässing (65 % koppar och 35 % zink) kontra deponeringen på koppar- och zinkytor, eftersom de inledande försöken visade synliga tecken på mer sorption av RuO₄ på koppar- och zinkproven än på aluminiumproven.

4.6.3. Resultat

Fördelning av RuO₄ mellan vatten- och gasfas

Intentionen var att bestämma fördelningsfaktorn för RuO₄ mellan en vatten- och en gasfas i temperaturintervallet 20–70°C. Fördelningsfaktorn definieras enligt:

$$K_d = [\text{RuO}_4]_{\text{aq}}/[\text{RuO}_4]_{\text{g}} \quad (1)$$

Problem uppstod dock redan vid experimenten vid 20°C då aktiviteten av ^{103}Ru i gasfasen minskade till nära bakgrunds-nivån 5 min efter introduktionen av RuO_4 i systemet. All RuO_4 löste sig alltså i vattenfasen i princip omgående. Även aktiviteten av ^{103}Ru på vätskesidan minskade med 25 % på 2 timmar efter ”jämvikt” av RuO_4 mellan de båda faserna. Detta tyder på att rutenium, i någon form, ackumulerades på vätskesidan och då förmodligen på glasytorna. Depositionen av rutenium på glasytorna bekräftades också efter radioaktivitetsmätningar av de olika glasdelarna med hjälp av en separat HPGe-detektorer (High Purity Germanium Detector) då analyserna visade på betydande mängd ^{103}Ru på glasytorna i båda faserna. Sorptionen av rutenium på ytorna var synlig genom de svartfläckiga glasytorna. I figur 4.9 visas reaktionskärlet, som användes i experimentuppställningen, där svarta fläckar av rutenium tydligt syns.



Figur 4.9: En bild av reaktionskärlet med betydande mängd svarta fläckar av deponerat rutenium.

Liknande observationer gjordes vid de högre temperaturerna 50°C och 70°C. Dock var aktiviteten av ^{103}Ru i gasfasen denna gång över bakgrunds-nivån i 15 min. Depositionen av rutenium på glasytorna på vätskesidan var inte lika kraftig som i experimenten vid 20°C.

Flera försök att minska depositionen av rutenium på glasytorna testades för att om möjligt kunna nå verklig jämvikt. Kvävgasatmosfären byttes ut mot luft i vissa experiment, alla glasytor tvättades med dikromatsvavelsyra för att minska eventuell organisk kontamination på ytorna, ett robustare flöde åstadkoms med elektriska pumpar med pumphus tillverkat av eloxiderat aluminium och vätskesidan utslöts helt i några experiment. Men ändringarna av experimentuppställningen minskade inte nämnvärt depositionen av rutenium på ytorna.

På grund av den betydande depositionen av rutenium på glasytorna undersöktes hastigheten på deposition av ruteniumtetraoxid på glasytor. I tabell 4.3 visas några uppskattade värden på depositionshastigheten av rutenium på glasytorna i de båda faserna i några av experimenten. Resultaten är dock mycket osäkra.

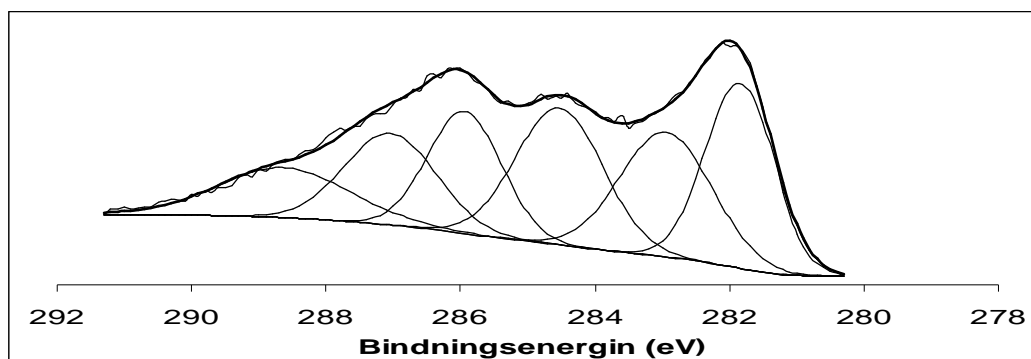
Tabell 4.3: Uppskattade värden på depositions hastigheten k_D av rutenium på glasytorna.

Temperatur (°C)	Närvarande faser	Pumptyp	Uppskattad k_D ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) gasfas	Uppskattad k_D ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) vätskefas
20	vatten, gas	glas	-	0.0013 ± 0.0018
20	vatten, gas	aluminium	0.11 ± 0.085	0.0013 ± 0.0014
50	vatten, gas	glas	0.12 ± 0.085	$5.0 \cdot 10^{-4} \pm 4.9 \cdot 10^{-4}$
50	gas	glas	0.0062 ± 0.0053	-

Interaktioner mellan RuO_4 och metaller

ESCA-mätningar

Ett godtyckligt ESCA-spektrum från mätningarna av metallproven kan ses i figur 4.10, som är en förstoring av de två huvudtopparna för rutenium Ru 3d5/2 och Ru 3d3/2 vid bindningsenergierna 281.8 eV respektive 286.0 eV. Topparna vid bindningsenergierna på 284.5 eV och 289 eV beror på den i princip oundvikliga kolkontaminationen på proverna som sker efter interaktionen mellan metallproven och $\text{RuO}_4(\text{g})$. Topparna på 283 eV och 287 eV är svårare att förklara och flera tolkningar har presenterats i litteraturen [4.18, 4.19, 4.20], men de beror förmodligen på elektron-orbital-skärmningseffekter.



Figur 4.10: Ett förstorat ESCA-spektrum, som visar de två huvudtopparna för rutenium (Ru 3d5/2 och Ru 3d3/2).

Bindningsenergin på huvudtoppen för rutenium, Ru 3d5/2, från de olika metallproven kan ses i tabell 4.4. Resultaten visar att varken vilken metall eller vilken atmosfär som var närvarande i systemet påverkar specieringen av deponerat rutenium eftersom bindningsenergin för Ru 3d5/2 är 281.8 ± 0.3 eV i de olika försöken. Positionen på Ru 3d5/2-toppen, 281.8 eV, kan jämföras med ett antal litteraturvärden på olika ruteniumföreningar, se tabell 4.5. Från dessa litteraturvärden kan slutsatsen dras att efter interaktion mellan $\text{RuO}_4(\text{g})$ och metallerna bildas $\text{RuO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$, dvs. hydratiserad ruteniumdioxid.

På grund av den kraftiga ackumuleringen av rutenium på glasytorna i de båda experimentuppställningarna (figur 4.9), bestämdes även specieringen av deponerat

rutenium på ytorna med hjälp av ESCA. Dessa ESCA-analyser visade att RuO₂ bildades även på glasytorna när dessa utsattes för ångor av RuO₄.

Tabell 4.4: Bindningsenergierna (eV) för huvudtoppen Ru 3d5/2 för deponerat rutenium på de olika metallytorna.

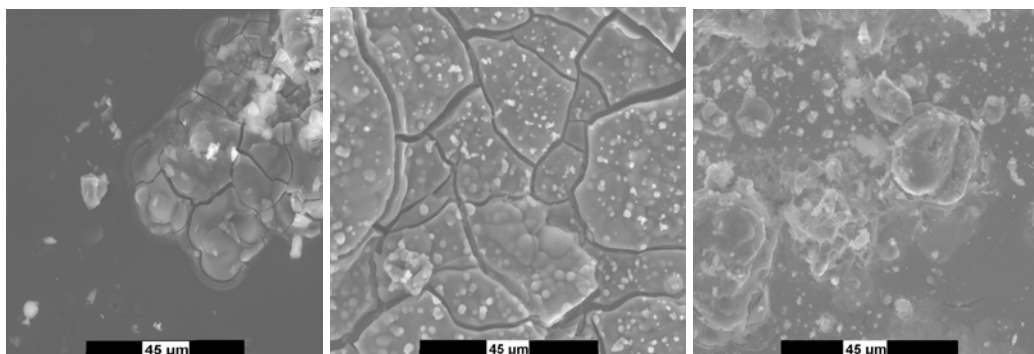
Metall	Kväve	Luft	Fuktig Kväve	Medel	±
Al	281.7	281.5	281.6	281.6	0.1
Cu	281.8	281.9	282.0	281.9	0.1
Zn	282.0	282.1	281.8	282.0	0.2

Tabell 4.5: Litteraturvärden på bindningsenergin för Ru 3d5/2-toppen för olika ruteniumspecier.

Referens	[4.21]	[4.19]	[4.22]	[4.23]	[4.18]
Ru 3d5/2					
Ru	280.0	280.0	279.9	280.3	
RuO ₂	280.7	280.8	282.1	281.0	281.3
RuO ₂ · H ₂ O	281.4	282.3			
RuO ₃	282.5			282.6	
RuO ₄	283.3			283.3	

SEM-analyser

Några godtyckligt utvalda metallprov analyserades med SEM. Figur 4.11 visar SEM-bilder av prov från respektive metall från försöken med tre metaller närvarande i systemet (aluminium, koppar och zink). Bilderna visar på mindre mängd deponerat rutenium på aluminiumytorna än på koppar- och zinkytorna, vilket också observerades med vanliga fotografier (figur 4.12). Koppar- och zinkytorna visar tydliga tecken på deponerat rutenium då dessa ytor är i princip helt täckta av en svart ruteniumfilm. Aluminiumytorna var endast fläckvis täckta med rutenium.

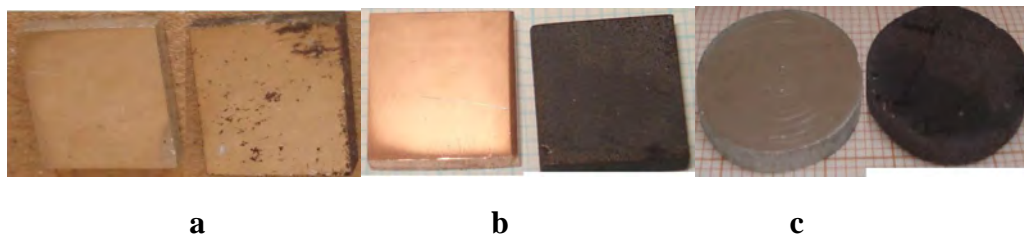


a

b

c

Figur 4.11: SEM-bilder av ett (a) aluminiumprov, (b) kopparprov och (c) ett zinkprov utsatta för ångor av RuO_4 .



Figur 4.12: Fotografier av (a) aluminium, (b) koppar och (c) zink före och efter deposition av rutenium.

XRD-analyser

Några godtyckligt utvalda prov av varje metall analyserades med XRD, men ingen ruteniumförening kunde hittas på aluminium-, mässing- eller zinkytorna. Då andra författare [4.24, 4.25] visat att problem uppstått när RuO_2 har analyserats med XRD, på grund av för stort vatteninnehåll eller för tunn film av RuO_2 , värmdes proverna i ugn i 300°C under 12 h för att reducera mängden vatten i $\text{RuO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ på provytorna. På de uppvärmda proven fanns sedan tydliga spår av RuO_2 . Den enda förklaringen till de förändrade resultaten är att vatteninnehållet i ruteniumfilmen tidigare störde XRD-analyserna.

På de utvalda kopparproverna hittades en ovanlig koppar-rutenium-förening, nämligen kopparruteniumoxidhydroxid ($\text{CuRuO}_2(\text{OH})_4$). Denna koppar(II)-rutenium(VI)-förening är en ortorombisk förening karakteriserad av Hansen [4.26]. Upptäckten av föreningen på kopparytan visar att en reaktion mellan kopparytan och RuO_4 verkligen har ägt rum. När kopparproven värmdes i ugn i 300°C under 12 h, kunde istället spår av RuO_2 hittas. Slutsatsen som kan dras är att $\text{CuRuO}_2(\text{OH})_4$ inte är stabil vid högre temperaturer utan omvandlas på kopparytan till koppar och RuO_2 .

ICP-MS-mätningar

Metallproven i experimentserien T1-T4 läts ligga i en natriumhydroxidlösning i en månad för att ruteniumdeponering skulle kunna lösas upp. Bestämning av ruteniumhalten i dessa lösningar gjordes med hjälp av ICP-MS. Dessa analyser bekräftade att rutenium deponerade huvudsakligen på koppar- och zinkytorna i försök T1-T3 och på mässingsytan i försök T4. I tabell 4.6 kan mängden rutenium på ytorna på varje metallprov i försöken T1 till T4 ses. Mängden rutenium på koppar- och zinkproven var åtminstone en faktor fem större än på aluminiumproven i försöken T1 till T3. I försök T4 var mängden rutenium en faktor 5 större på mässingsprovet än på koppar- och zinkprovet.

Tabell 4.6: Jämförelse av ruteniummängderna på de olika metallproverna i provserierna T1-T4.

Prov	Ruteniumkoncentration på	Del av totala mängden
	metallproven ($\mu\text{mol}/\text{cm}^2$)	deponerat rutenium i varje experiment (%)
T1 Al	0.6	3
T1 Cu	3.6	20
T1 Zn	14	77
T2 Al	0.1	3
T2 Cu	0.7	39
T2 Zn	1.0	58
T3 Al	0.1	1
T3 Cu	3.8	59
T3 Zn	2.6	40
T4 Mässing	10.9	15
T4 Cu	49.7	70
T4 Zn	11.0	15

4.6.4. Sammanfattning och slutsatser

På grund av problem med framförallt den snabba depositionen av rutenium på glasytorna i experimentuppställningen i figur 4.3 kunde fördelningsfaktorn för RuO_4 mellan vatten- och gasfas inte bestämmas. Ackumuleringen av rutenium i vattenfasen var dock snabb efter införandet av RuO_4 i systemet.

Resultaten av specieringsförsöken visar att rutenium kommer att deponeras i högre grad på koppar- och zinkytor än på ytor av aluminium vid interaktion med RuO_4 . Specieringen av deponerat rutenium kommer till största delen att vara RuO_2 , särskilt vid högre temperaturer. Specieringen av rutenium kommer inte att variera vare sig med atmosfären i inneslutningen eller med vilken typ av metallyta deponeringen sker på. Denna slutsats styrktes också av analyserna av glasskivor som exponerats med gasformig RuO_4 , där specieringen av deponerat rutenium var RuO_2 .

Resultaten från experimenten visar att sorption eller deponering av RuO_4 är mycket trolig i en inneslutningsmiljö och att rutenium kommer att både deponeras på metallytor och absorberas i vattenfasen i inneslutningen. Därför kommer rute-

rium inte att höra till de dominerande radionukliderna vid utsläpp efter ett hårdhaveri.

4.7 Deltagande i SARNET

Inom SARNET har Chalmers deltagit i "Source Term"-gruppen och medverkat aktivt i arbetsgrupperna WP14 och WP 16, se figur 2.2.2. Ruteniums beteende (frigörelse, transport och inneslutningsinteraktion) under ett svårt haveri har behandlats i WP14. I WP16 har kemin, främst jod och rutenium, i inneslutningen under svårt haveri behandlats.

Chalmers medverkande i SARNET har främst verkat som ett utbyte av kunskap och idéer, genom deltagande på möten och konferenser organiserade av SARNET. De större möten Chalmers deltagit i är: ERMSAR 2005, ERMSAR 2007, ERMSAR 2008, 3rd Annual Source Term Review 2007 och 4th Annual Source Term Review 2008.

Ett mer aktivt och konkret samarbete inom SARNET har tagits mellan Chalmers och VTT. Samarbetet har verkat inom två områden, transport och frigörelse av rutenium och gasformig jods beteende under svårt haveri. Inom ruteniumprojektet har främst ett utbyte av kunskap verkat, bland annat utbyte av nya reaktionsvägar att producera gasformig RuO_4 . Ett mer aktivt samarbete har tagits mellan Chalmers och VTT inom projektet NROI, som är beskrivet i avsnitt 4.2. Reaktionen mellan gasformig jod, I_2 , och ozon har undersökts vid 125°C samt vid olika halter av syre och kväve i systemets atmosfär. SARNET har bidragit med pengar för uppehåll av forskare på VTT, i Helsingfors.

4.8 Referenser

- [4.1] B. Clément, L. Cantrel, G. Ducros, F. Funke, L. Herranz, A. Rydl, G. Weber, C. Wren, State of the art report on iodine chemistry, OECD/NEA, NEA/CSNI/R(2007)1, 2007.
- [4.2] F. Funke, P. Zeh and S. Hellmann, Radiolytic Oxidation of Molecular Iodine in the Containment Atmosphere, Workshop on Iodine Aspects of Severe Accident Management, Vantaa, Finland, 18-20 May 1999, NEA/CSNI/R(99)7 (1999).
- [4.3] G. Langrock, Synthesis of the PARIS Results (Programme on Air Radiolysis, Iodine and Surfaces), IRSN Report ISTP/2006/011 (2006).
- [4.4] A. Auvinen, Chlorine Release From Hypalon Cable Insulation During Severe Nuclear Reactor Accidents, Nuclear Technology 149 (2005) 232-241
- [4.5] E. C. Beahm, Iodine Evolution and pH Control, NUREG/CR-5950 (ORNL/TM-12242), December 1992.
- [4.6] H. Glänneskog, Y. Albinsson, J.O. Linjenzin, G. Skarnemark, Apparatus for on-line measurements of iodine species concentration in aqueous and gaseous phases, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 498 (2003) 517-521.

- [4.7] R. Borkowski, Untersuchungen zum Chemischen Verhalten des Methyljodides bei schweren Störfällen in Druckwasserreaktoren, KfK 3968, 1985
- [4.8] J.-O. Liljenzin, Jodkemi under svåra haverier – En sammanställning och värdering av kunskapsläget inom området, APRI 5-rapport , SKI Rapport 2005:14
- [4.9] R. L. Heppolette, The Neutral Hydrolysis of the Methyl Halides, Proceedings of the Royal Society of London, Series A, Mathematical and Physical Sciences, **252** (1959) 273-285
- [4.10] Y. Pontillon, “Semi-Volatile FP Release from VERCORS Tests”, International VERCORS Seminar, Gréoux-les-Bains, France, September 2007.
- [4.11] R. D. Barrand, R. S. Dickson, Z. Liu and D.D. Semeniuk, “Release of Fission Products from CANDU Fuel in Air, Steam and Argon Atmospheres at 1500-1900°C: The HCE3 Experiment”, Proc. 6th Intl. Conf. on CANDU Fuel, pp. 271-280, 1999.
- [4.12] D. S. Cox, C. E. L Hunt, Z. Liu, N. A. Keller, R. D. Barrand, R. F. O'Connor and F.C. Iglesias, “Fission Product Releases from UO₂ in Air and Inert Conditions at 1700-2350 K: Analysis of the MCE-1 Experiment”, in Safety of Thermal Reactors, Amer. Nucl. Soc. Int. Topical Meeting (also published as report AECL-10438), 1991.
- [4.13] R. S. Dickson, Z. Liu, D. S. Cox, N. A. Keller, R. F. O'Connor and R. D. Barrand, “Cesium Release from CANDU Fuel in Argon, Steam and Air: The UCE12 Experiment”, Proc. 15th Annual Canad. Nucl. Soc. Conf. (also published as AECL-CONF-00085), 1994.
- [4.14] T. Kärkelä, U. Backman, A. Auvinen, R. Zilliacus, M. Lipponen, T. Kekki, U. Tapper and J. Jokiniemi, “Experiments on the Behaviour of Ruthenium in Air Ingress Accidents – Final Report”, VTT report VTT-R-01252-07, 2007.
- [4.15] C. Mun, L. Cantrel, C. Madic, Study of RuO₄ decomposition in dry and moist air, Radiochimica Acta, 95, 643-656, 2007.
- [4.16] A.L. Wright, Primary System Fission Product Release and Transport. Report NUREG/CR-6193, Oak Ridge National Laboratory, 1994.
- [4.17] D.A. Powers, L.N. Kmetyk, R.C. Schmidt, A Review of the Technical Issues of Air Ingression during Severe Reactor Accidents, Report NUREG/CR-6218, Sandia National Lab 1994.
- [4.18] D. Rochefort, P. Dabo, D. Guay, P.M.A. Sherwood, XPS investigations of thermally prepared RuO₂ electrodes in reductive conditions, Electrochimica Acta, 48 (2003) 4245-4252
- [4.19] C. Mun, L. Cantrel, C. Madic, XPS investigations of ruthenium deposited onto representative inner surfaces of nuclear reactor containment buildings, Applied Surface Science, 253 (2007) 7613-7621.
- [4.20] A. Iembo, F. Fuso, E. Arimondo, C. Ciofi, G. Pennelli, G.M. Curro, F. Neri, M. Allegrini, Pulsed laser deposition and characterization of conductive RuO₂ thin films, J. Material Research 12 (1997) 1433-1436.

- [4.21] K.S. Kim, N. Winograd, X-Ray Photoelectron Spectroscopic Studies of Ruthenium-Oxygen Surfaces *J. Catal.* 35 (1974) 66-72.
- [4.22] B. Folkesson, ESCA Studies on the Charge Distribution in Some Dinitrogen Complexes of Rhenium, Iridium, Ruthenium, and Osmium, *Acta Chemica Scandinavia*, 27 (1973) 287-302.
- [4.23] H.Y.H. Chan, C.G. Takoudis, M.J. Weaver, High-Pressure Oxidation of Ruthenium as Probed by Surface-Enhanced Raman and X-Ray Photoelectron Spectroscopies, *Journal of Catalysis*, 172 (1997) 336-345.
- [4.24] W. Sugimoto, J. Physical Chemistry, Proton and Electron Conductivity in Hydrated Ruthenium Oxides Evaluated by Electrochemical Impedance Spectroscopy: The origin of Large Capacitance, 109 (2005) 7330-7338.
- [4.25] C. Mun, L. Cantrel, C. Madic, Study of the Ruthenium Fission-product behaviour in the Containment of a Nuclear Reactor, in case of a Severe Accident Occurring in Oxidizing Conditions, *Nuclear Energy for New Europe 2005*, Bled, Slovenia, 2005.
- [4.26] T. Hansen, Copper(II)-Hydroxo-Oxoruthenate(VI): $\text{CuRuO}_2(\text{OH})_4$ - Ab Initio Structure Determination by X-Ray Powder Diffraction, *Materials Science Forum* 228-231 (1996) 723-728

5. SLUTSATSER OCH REKOMMENDATIONER

5.1 Sammanfattning av projektet

APRI 6 har följt den internationella forskningen och utvärderat resultaten. Det fortsatta stödet till KTH har gett ökad kunskap om möjligheten att kyla den smälta härden in reaktortanken och om processer i samband med kylbarheten i inneslutningen samt vid ångexplosioner. Stödet till Chalmers har gett ökad kunskap om haverikemi, främst jods och ruteniums uppförande i inneslutningen efter ett haveri.

5.1.1. Internationella forskningsprojekt

Deltagande i CSARP ger tillgång till en mängd information om olika fenomen av betydelse för händelseförlopp vid svåra haverier som kommer fram från internationell forskning. Informationsutbytet sker huvudsakligen vid en årlig konferens. Deltagandet ger också tillgång till beräkningskoder utfärdade av NRC, varav MELCOR används i flera projekt.

SARNET utgör en viktig plattform för forskningen inom svåra haverier och främjar utbyte av kunskap och erfarenheter. De forskningsprojekt som stöds av APRI ingår i SARNET. I gengäld får APRI och forskningsinstitutionerna tillgång till de forskningsresultat som genereras i de övriga deltagarländerna. I APRI 6-projektet har forskningsinstitutionerna KTH och Chalmers varit aktiva.

Vad gäller PHEBUS-projektet, krävs det ytterligare experiment och analysarbete för att slutligen kunna dra definitiva och konkreta slutsatser. Bränsleknippets uppträdande, inklusive vätgasbildningen, är det som kan modelleras bäst idag. I fallet jod och cesium kan man dra den försiktiga slutsatsen att deras kemiska form påverkas av bränslets medelutbränning och av typen av styrtavar. Samtliga koder har haft påtagliga svårigheter när det gäller att förutsäga jodspecieringen och jodhalten i inneslutningens atmosfär som funktion av tiden. De är dessutom mycket dåliga på att modellera effekten av styrtavar och deras degradering. De olika beräkningsverktyg som används för svenska verk behöver därför i möjligaste mån valideras mot resultaten från experimenten i PHEBUS och mot nya data från det uppföljande forskningsprogrammet ISTP (International Source Term Project). Det är därför viktigt att man även i fortsättningen medverkar i analysarbetet från svenskt håll.

Inom MASCA-projektet har smältans beteende studerats såsom separation av metaller i smältan som kan orsaka stratifiering och hur kemiska förhållande påverkar dessa separationsprocesser. Tidigare försök har visat att det sker en separation av metaller i smältan och att metallerna samlas i ett övre skikt. I MASCA 2 är resultaten att för helt oxiderad corium verkar det som separation av metaller inte sker, medan för ej helt oxiderad corium verkar det som om Zr och stål och en del uran reagerar och bildar en tung legering som sjunker och bildar ett skikt i botten av smältpölen. Resultaten visar även att de kemiska reaktionerna och stratifieringen i smältpölen är tidsberoende.

I MCCI 2 - programmet har härdsmltans kylbarhet studerats om vatten påförs ovanifrån, reaktion mellan smälta och betong och hållfasthet av den krusta som bildas vid kylning ovanifrån. Dessutom har försök gjorts att studera hur gasutveckling i smältan påverkar kylbarheten. Beträffande reaktioner mellan smälta och betong tycks det svårt att få konsistenta och reproducerbara resultat. Detta beror i hög grad på olika betongsammansättning och geometrier. Krustans hållfasthet förefaller vara låg och beräkningar i reaktorgeometrier visar att krustan kommer att brytas upp vilket medger vatteninträning och ökad kylbarhet.

5.1.2. Smältans kylbarhet i reaktortanken

Ett beräkningsverktyg, ECM/PECM, med syfte att analysera en härdsmlta i reaktortankens nedre plenum med CFD-teknik har utvecklats. Verktöget tar hänsyn till den komplexa geometrin i reaktortankbotten för BWR-reaktorer och olika haveriscenarier. Modellen har validerats.

Det har visats att verktyget ECM/PECM är ett effektivt redskap för att beräkna smältans påverkan på reaktortanken i nedre plenum. Beräkningarna tyder på att ett kylflöde genom drivdonen kan ge möjlighet att fördröja tankgenomsmltning och därmed öka möjligheten att hålla härdsmltan kyld i reaktortanken. Detta bekräftar resultat från tidigare APRI-projekt.

Beräkningsverktyget behöver utvecklas och kopplas ihop med en hållfasthetsmodul som ska utnyttjas för att beräkna hur och var tankgenomsmltning sker. Förloppet vid tankgenomsmltning har stor påverkan på det påföljande förloppet och på smältans kylbarhet utanför reaktortanken varför denna komplettering bedöms som viktig. Målet är att få fram mer realistiska händeslefförlopp i samband med härdsmlta.

5.1.3. Smältans kylbarhet i reaktorinneslutningen

Tidigare experiment och analyser har visat att smältans kylbarhet i inneslutningens kondensationsbassäng är beroende av vilken form grusbädden ("debris bed") har då den slutligen hamnar på bassänggolvet.

KTH:s DEFOR-experiment visar att porositeten hos den fragmenterade smältan är hög, upp till 60 – 70 % vilket är betydligt högre än 40 % som man tidigare antagit. Porositeten förefaller också vara oberoende av smältans sammansättning och underkylning på bassängvattnet. En ökad porositet är gynnsam ur kylbarhetssynpunkt. Experimenten visar också att partiklarna till största delen är icke-sfäriska med en grov yta.

Det har vidare beräkningsmässigt visats att geometrin av den grusbädd som bildas påverkas i hög grad av den vattencirkulation som uppkommer i bassängen pga. smältans resteffekt. Detta betyder bl.a. att konfigurationer med ett isolerande lager av fina partiklar ovanpå grusbädden är mindre sannolika. Dessutom bildas kanaler i grusbädden pga. vattencirkulationen vilket bidrar till ökad kylbarhet.

5.1.4. Ångexplosioner i reaktorinneslutningen

I MISTEE-experimenten studeras ångexplosionsförloppet genom studier av enskilda smältdroppar. Syftet är att få ökad förståelse av fysiken bakom ångexplo-

sioner för att kunna förklara varför olika material har olika benägenhet att explodera samt att kunna bestämma explosionens verkningsgrad.

Ett resultat av experimenten är att explosionsbenägenheten hos eutektiska⁸ material är högre än för icke-eutektiska material.

Effekten av att icke-kondenserbara gaser bildas runt smältdroppen har också studerats. Gasen påverkar explosionsförloppet då den påverkar smältdroppens yta och ökar benägenheten att explodera. Å andra sidan förhindrar gasen direkt kontakt mellan vattnet och droppen, vilket minskar benägenheten att detonera.

5.1.5. Jodkemi vid svåra haverier

Chalmers och VTT har i ett samarbete studerat radiolytisk oxidation av jod för att få ökad förståelse av specieringen av de slutliga produkterna. Man har bl.a. fått fram att ozon som bildas vid radiolys av luft och ånga, kan oxidera jod och därmed kan retention av jod främjas. Eftersom de bildade jodpartiklarna var svåra att speciera är resultaten osäkra och andra metoder bör användas.

Chalmers har även studerat hur konkurrerande klorreaktioner kan påverka jods beteende i vattenfasen. En oväntad observation som gjordes var att höga halter av kloridjoner relativt halten av jod i vätskefasen verkade öka koncentrationskoefficienten för jod vid låga pH. Även här är resultaten osäkra och fler undersökningar av klor-jod-systemet behöver genomföras.

5.1.6. Egenskaper hos metyljodid

Metyljodid som vållar störst bekymmer vad gäller omgivningskonsekvenser vid en radiologisk olycka, har studerats genom att utveckla teorin som Borkowski lade fram angående hydrolys av metyljodid i vatten.

En analytisk modell för hydrolys av metyljodid i vatten har tagits fram på Chalmers. Modellen är mycket grundligt genomarbetad och har åtgärdat sådana brister som identifierats i Borkowskis motsvarande modell. Med modellens hjälp är det möjligt att ta fram temperaturberoende hastighetskonstanter som tillsammans ger oss ett uttryck för fördelningen av metyljodid mellan vatten och gas vid olika temperaturer. I dagsläget saknas experimentella data att utvärdera modellen emot, men sådana experiment är under planering.

5.1.7. Ruteniumkemi vid svåra haverier

För rutenium är kemin mer känd jämfört med jod. Det har klarställts att den enda flyktiga ruteniumspecie att behöva ta hänsyn till vid haveri är RuO_4 . Resultaten från experimenten visar att sorption eller deponering av RuO_4 är mycket trolig i en inneslutningsmiljö och att rutenium kommer att både deponeras på metallytor och absorberas i vattenfasen i inneslutningen. Därför kommer rutenium inte att höra till de dominerande radionukliderna vid utsläpp efter ett hårdhaveri.

⁸ Eutektiskt material är ett material där blandningsförhållandet för de ingående ämnena är sådant att blandningen stelnar/smälter vid samma temperatur.

Forskningen kring ruteniums uppträdande i haverimiljö fortsätter framför allt i Frankrike och är värd att följas via SARNET.

5.2 Slutsatser

Från projektet APRI 6 kan följande slutsatser dras:

- Deltagande i CSARP har ökat kunskapen om svåra haverier genom utbyte av forskningsresultat och givit tillgång till haverianalyskoden MELCOR.
- Deltagande i SARNET är viktigt för att samordna forskning med andra länder och utnyttja andra forskningsresultat.
- I PHEBUS-projektet återstår analyser och utvärderingar, som kommer att ge intressant kunskap om bl.a. jods uppförande vid en härdsmläta.
- Genom ökad tillförsel av medel till KTH och Chalmers från SSM och industrin har kontinuiteten avseende forskning om svåra haverier kunnat säkras.
- Ett beräkningsverktyg har utvecklats för att analysera en härdsmläta i reaktortankens botten. Beräkningarna tyder på att ett kylflöde genom drivdonen kan ge möjlighet att fördröja tankgenomsmältning.
- Experiment och analyser visar att porositeten hos grusbädden är hög och att geometrier med ett isolerande lager av fina partiklar ovanpå en grusbädd är mindre sannolika. Båda resultaten visar på ökad kylbarhet jämfört med tidigare bedömningar.
- Genomförd forskning om ångexplosioner har gett oss ökad detaljkunskap men denna är ännu inte tillräcklig för att ge full förståelse av förloppet vid en ångexplosion i samband med en härdsmläta.
- Förståelsen av det grundläggande sambandet för fördelning av metyljodid mellan vatten och gasfas har ökat.
- Experiment på dels radiolytisk oxidation av jod, dels hur konkurrerande klorreaktioner kan påverka jods beteende i vattenfasen har gett ökad kunskap men resultaten är osäkra och ytterligare undersökningar behövs.
- Experiment och analyser om rutenium visar att denna inte kommer att höra till de dominerande radionukliderna vid utsläpp efter ett svårt haveri.

5.3 Rekommendationer

Följande rekommendationer lämnas inför fortsättningen av APRI-projektet:

- Fortsatt deltagande i internationella projekt: CSARP, SARNET, PHEBUS, MCCI, SERENA och BIP.
- Fortsatta studier av smältans kylbarhet i reaktortankens botten.
- Fortsatta studier av smältans kylbarhet i reaktorinneslutningen.
- Fortsatta studier av de mekanismer som styr ångexplosioner.
- Fortsatta studier av haverikemi i inneslutningen avseende jod.
- Slutföra handboken i haverikemi.

6. FÖRKORTNINGSLISTA

ACT	Advanced Communication Tool
AECL	Atomic Energy of Canada Limited
ANL	Argonne National Laboratory
APRI	accident phenomena of risk importance
ARTIST	Aerosol Trapping in Steam Generators
ASTEC	Accident Source Term Evaluation Code
BIP	Behaviour of Iodine
BWR	boiling water reactor
CCI	Core-Concrete Interaction
CFD	computational fluid dynamics
CHF	critical heat flux
CORTRAN	CORiumTRANsient
CPC	Condensation Particle Counter
CRGT	control rod guide tube
CSARP	Cooperative Severe Accident Research Program
DCH	Direct Containment Heating
DECOSIM	code for debris bed coolability simulation
DEFOR	debris bed formation
DEFORSIM	code for debris bed formation simulator
DEM	discrete element method
DHF	dryout heat flux
LIVE	Late In-Vessel Phase Experiments
LWR	light water reactor
EC	European Commission
ECCM	effective convectivity conductivity model
ECM	effective convectivity model
EDF	Electricité de France

ERMSAR	European Review Meetings on Severe Accident Research
ESCA	Electron Spectroscopy for Chemical Analysis
EVC	ex-vessel coolability
EVE	ex-vessel steam explosion
EXCO	ex-vessel coolability
FCI	fuel coolant interaction
FP	framework programme
FPT	Fission Product Test
FTIR	Fourier Transform Infrared Spectroscopy
HPGe	High Purity Germanium Detector
ICP-MS	Inductively Coupled Plasma – Mass Spectroscopy
IGT	instrumentation guide tube
INCO	in-vessel coolability
IRSN	Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire
ISTC	International Science & Technology Center
ISTP	International Source Term Project
IVR	in-vessel retention
KROTOS	a small-scale test facility for FCI (steam explosion) study at CEA
KTH	Royal Institute of Technology
LCS	Lime-stone common sand
LOCA	loss of coolant accident
LWR	Light Water Reactor
MASCA-2	MAterial SCAling phase 2
MCCI	Melt Corium Concrete Interaction
MET	Melt Eruption Test
MELCOR	code for integral simulation of severe accident developed by USNRC
MISTEE	micro interactions of steam explosion energetics

MSWI	melt structure water interactions
NCDC	natural circulation driven coolability
NCG	non-condensable gas
NPP	nuclear power plant
NRC	Nuclear Regulatory Commission
NROI	Nordic Research on Radiolytic Oxidation of Iodine
OECD	Organisation for Economic Co-operation and Development
PAR	Passive Autocatalytic Recombiner
PECM	phase-change ECM
PM-ALPHA	code for FCI simulation developed at UCSB
POMECO	porous media coolability
PSA	probabilistic safety analysis
PWR	pressurized water reactor
ROAAM	risk oriented accident analysis methodology
RPV	reactor pressure vessel
RTF	Radioiodine Test Facility
SAID	severe accident information distillation
SA	severe accident
SAM	severe accident management
SAMS	severe accident management strategy
SARNET	severe accident research network of excellence
SARP	severe accident research priorities
SAS	severe accident scenario
SBO	station blackout
SEE	steam explosion energetics
SEP	Scanning Electron Spectroscopy
SHARP	simultaneous high-speed acquisition of x-ray radiography and photography

SIMECO	simulation of melt coolability
SMPS	Scanning Mobility Particle Sizer
SOAR CA	State-of-the Art Reactor Consequence Analyses
SSWICS	Small-Scale Water Ingression and Crust Strength
TEM	Transmission Electron Microscopy
TROI	a medium-scale test facility for FCI (steam explosion) study at
XRD	X-Ray Diffraction
VAPEX	code for FCI simulation developed in Russia
WABE	code for 2D simulation of debris bed coolability



Strålsäkerhetsmyndigheten
Swedish Radiation Safety Authority

SE-171 16 Stockholm
Solna strandväg 96

Tel: +46 8 799 40 00
Fax: +46 8 799 40 10

E-post: registrator@ssm.se
Webb: stralsakerhetsmyndigheten.se