

Sensitivitätsanalysen zu Unfallablauf und Quellterm zu den Ereignissen in Fukushima, Blöcke 2 und 3 im Rahmen des OECD/NEA Projektes ARC-F



Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

Sensitivitätsanalysen zu Unfallablauf und Quellterm zu den Ereignissen in Fukushima, Blöcke 2 und 3 im Rahmen des OECD/NEA Projektes ARC-F

Abschlussbericht

Sebastian Band Sara Beck Johannes Martens Martin Sogalla Martin Sonnenkalb Karsten Spieker

Februar 2022

Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrunde liegende Eigenforschungsvorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministerium für Wirtschaft und Klimaschutz (BMWK) unter dem Förderkennzeichen RS1573 durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei der GRS.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der GRS wieder und muss nicht mit der Meinung des BMWK übereinstimmen.

Deskriptoren

AC², Ensemble-Simulationen, Fukushima Daiichi, OECD/NEA-Projekt, Optimierung, Quelltermanalyse, Quelltermrückrechnung, Sensitivitätsanalyse, Unfallanalysen

Kurzfassung

Zur wissenschaftlichen Unterstützung japanischer Organisationen beim langfristigen Rückbau der durch die Reaktorunfälle im März 2011 zerstörten Blöcke in Fukushima Daiichi wurde im Januar 2019 das OECD/NEA-Projekt ARC-F *Analysis of Information from Reactor Buildings and Containment Vessels of Fukushima Daiichi NPS* initiiert. Die deutsche Beteiligung am OECD/NEA-Projekt ARC-F erfolgte über das Vorhaben des BMWK RS1573. Die Arbeiten der GRS als deutsche Sachverständigenorganisation (TSO) in ARC-F (Januar 2019 – Dezember 2021) wurden in einem separaten Forschungsprojekt des BMWK durchgeführt, parallel zu Forschungsvorhaben RS1574 und RS1561 der Codeentwicklung von ATHLET-CD und COCOSYS.

Die wesentliche Zielsetzung des OECD/NEA-Projektes ARC-F war es, die Analysen zu den Unfallabläufen in den baugleichen Blöcken 2 und 3 am Standort Fukushima Daiichi mit AC² fortzusetzen und die Arbeiten zur Quantifizierung der Unsicherheiten und der punktuellen Verbesserung der entwickelten GRS-Methode zur Rückrechnung der Freisetzung von Spaltprodukten aus der Anlage (dem Quellterm) basierend auf radiologischen Messdaten weiterzuführen. Darüber hinaus war eine aktive Beteiligung an der Program Review Group (PRG) des OECD/NEA-Projektes ARC-F mit Beiträgen und Ergebnissen der laufenden Untersuchungen geplant.

Für die Analysen mit AC² wurden die neuen Modelle u. a. zum Spaltproduktverhalten im Reaktorkreislauf, zum RDB-Versagen und dem Schmelzeaustrag ins Containment eingesetzt und erprobt. Damit wurde auch ein Fortsetzen der Rechnungen über das Versagen des RDB hinaus möglich. Des Weiteren wurde mit den Analysen zur Freisetzung verschiedener Spaltprodukte wie Caesium und Iod aus dem Reaktor in das Containment sowie zur Rückhaltung von Spaltprodukten im Wasser in der Kondensationskammer, zur Ablagerung auf wesentlichen Strukturen und Komponenten im Reaktor, im Containment und im umgebenden Reaktorgebäude und letztlich zum Quellterm in die Umgebung begonnen. Dies war nach dem OECD/NEA-Projekt BSAF Phase II möglich, da umfassende Codeverbesserungen in der Rechenkette AC², insbesondere bzgl. des Spaltprodukttransports, welche in BSAF Phase II identifiziert wurden, vorgenommen wurden.

Des Weiteren wurde die im OECD/NEA-Projekt BSAF entwickelte GRS-Methode zur Rückrechnung des Quellterms basierend auf radiologischen Messdaten /SON 18/ auf Unsicherheiten analysiert, Fehlerbandbreiten wurden in den berechneten Quelltermen ausgewiesen und die Methode wurde generell verbessert. Von der Teilnahme am OECD/NEA-Projekt ARC-F profitierten auch die Vorhaben zur Weiterentwicklung und Validierung der genannten Rechenprogramme. Es wurden die neuen Erkenntnisse aus den Analysen zu den Unfallabläufen in Fukushima und zur Ermittlung des Quellterms und dessen Absicherung durch Ausbreitungsrechnungen von Spaltprodukten auf dem Anlagengelände berücksichtigt. Die Verfahren zur Evaluierung des Quellterms mittels Ausbreitungsrechnungen und dem Vergleich mit Messdaten sind darüber hinaus grundsätzlich auch zur Analyse anderer radiologischer Ereignisse sowie zur Quelltermabschätzung in Notfällen geeignet.

.

Abstract

In order to provide scientific support to Japanese organizations for the long-term dismantling of the units destroyed by the reactor accidents in March 2011 in Fukushima Daiichi, the OECD/NEA project ARC-F *Analysis of Information from Reactor Buildings and Containment Vessels of Fukushima Daiichi NPS* was initiated in January 2019. The German participation in the OECD/NEA ARC-F project took place via the BMWK project RS1573. The work of GRS as the German expert organization (TSO) in ARC-F (January 2019 – December 2021) was carried out in a separate research project of the BMWK, in parallel to research projects RS1574 and RS1561 for the code development of ATHLET-CD and COCOSYS.

The main objective of the OECD/NEA ARC-F project was to continue the analyses on the accident sequences in the identical units 2 and 3 at the Fukushima Daiichi site with AC² and to continue the work on the quantification of uncertainties and the selective improvement of the developed GRS method for the back-calculation of the release of fission products from the plant (the source term) based on radiological measurement data. Furthermore, an active participation in the Program Review Group (PRG) of the OECD/NEA project ARC-F with contributions and results of the ongoing investigations was planned.

For the analyses with AC², the new models were used and tested, among other things, for the fission product behavior in the reactor circuit, the RPV failure and the melt discharge into the containment. This also made it possible to continue the calculations beyond the RPV failure. Furthermore, analyses were started on the release of various fission products such as cesium and iodine from the reactor into the containment, as well as the retention of fission products in the water in the condensation chamber, the deposition on essential structures and components in the reactor, the containment and the surrounding reactor building, and finally the source term into the environment. This was possible after the OECD/project BSAF Phase II, because extensive code improvements were made in the computational chain AC², especially concerning the fission product transport, which were identified in BSAF Phase II.

Furthermore, the GRS method developed in the OECD/NEA project BSAF for the backcalculation of the source term based on radiological measurement data /SON 18/ was analyzed for uncertainties, error bands in the calculated source terms were identified and the method was generally improved. The participation in the OECD/NEA project ARC-F also benefited the projects for the further development and validation of the above-mentioned computational programs. The new findings from the analyses of the accident sequences in Fukushima and the determination of the source term and its validation by dispersion calculations of fission products on the plant site were taken into account. The procedures for evaluating the source term by means of dispersion calculations and comparison with measured data are also suitable in principle for analyzing other radiological events and for estimating the source term in emergencies.

Inhalt

	Kurzfassung	I	
	Abstract	111	
1	Wissensstand sowie bisherige Arbeiten vor Beginn des		
	Forschungsvorhabens	1	
1.1	Arbeiten aus dem OECD/NEA-Projekt BSAF II	1	
1.2	Stand der Entwicklung von ATHLET-CD und COCOSYS in AC ²	2	
2	Deterministische Unfallanalysen – eingesetzte Codes	5	
2.1	Charakteristika des Codes COCOSYS	8	
3	AP 1: Analytische Arbeiten im OECD/NEA Projekt ARC-F	11	
3.1	Verwendete Datensätze	11	
3.1.1	Der verwendete ATHLET-CD Datensatz	11	
3.1.2	Der verwendete COCOSYS-Datensatz	16	
3.1.3	Die Kopplung der Datensätze	25	
3.2	Ergebnisse	26	
3.2.1	Block 2	26	
3.2.2	Block 3	54	
4	AP 2: Arbeiten zur Rückrechnung des Quellterms im OECD/NEA		
	Projekt ARC-F	69	
4.1	Aufgabenstellung	69	
4.2	Daten und Methoden	71	
4.2.1	Überblick über verwendete Daten	71	
4.2.2	Messungen der Ortdosisleistung	73	
4.2.3	Wetterdaten	77	
4.2.4	Reaktorinventare	78	
4.3	Überblick über das Verfahren zur Quelltermrückrechnung in der		
	Grundversion	78	

4.4	Vereinfachte Version des Rückrechnungsverfahrens für	
	Sensitivitätsanalysen und Variationsrechnungen	83
4.5	Kriterium zum Vergleich von Ergebnissen der Quellterm-	
	Rückrechnung	84
4.6	Variationsverfahren zur Optimierung des Windantriebs	85
4.6.1	Variationsschema	87
4.6.2	Optimierungsverfahren	87
4.7	Ergänzung der Quelltermdaten für Phasen ohne Beobachtung	90
4.8	Berechnung und Bereitstellung eines Referenzquellterms	90
4.9	Vertiefte Analyse von Messungen der luftgetragenen	
	Aktivitätskonzentration	91
4.10	Ergebnisse	93
4.10.1	Vergleich des vereinfachten Berechnungsverfahrens mit der	00
	Originalmethode	
4.10.2	Sensitivitätsstudien	94
4.10.3	Einfluss von Windrichtung und Windgeschwindigkeit	97
4.10.4	Optimierung des Windantriebs	98
4.10.5	Ergänzung des Quellterms mittels WSPEEDI-Daten	102
4.10.6	Gesamt-Freisetzungsmengen und Bereitstellung des verbesserten Quellterms	105
4.10.7	Vertiefte Analyse von Messungen der luftgetragenen	
	Aktivitätskonzentration in Tokai-Mura	106
5	Zusammenfassung	115
	Literaturverzeichnis	121
	Abkürzungsverzeichnis	127
	Abbildungsverzeichnis	129
	Tabellenverzeichnis	133
Α	Rückrechnung von gemessenen Nuklidverhältnissen auf die	
	Emissionsverhältnisse am Freisetzungsort	135

1 Wissensstand sowie bisherige Arbeiten vor Beginn des Forschungsvorhabens

Mit Bezug zu den drei wesentlichen Arbeitspaketen des Vorhabens (AP 1 – AP 3) werden nachfolgend der Wissensstand zu Beginn des Forschungsvorhabens zu den Unfallabläufen in Fukushima Daiichi und den dazu durchgeführten Analysen basierend auf den Erkenntnissen aus dem OECD/NEA-Projekt BSAF, Phase II als auch die vorlaufenden Arbeiten der GRS zur Modellierung der Freisetzung radioaktiver Stoffe auf das Gelände einer Anlage und zu Rückschlüssen auf den Quellterm aus radiologischen Messdaten in der Umgebung der Anlagen in Fukushima Daiichi zusammengefasst.

1.1 Arbeiten aus dem OECD/NEA-Projekt BSAF II

Die Arbeiten in Phase II wurden in dem separaten Forschungsvorhaben RS1534 /BAN 18/ durchgeführt. Eine Zielsetzung der Arbeiten der GRS im OECD/NEA-Projekt BSAF betraf deterministische Unfallanalysen mit ATHLET-CD und COCOSYS für die baugleichen Blöcke 2 und 3 in Fukushima Daiichi; Analysen für den kleineren Block 1 wurden durch die GRS nicht durchgeführt. Die Unfallanalysen für beide Blöcke konnten für den Zeitbereich einiger Tage durchgeführt werden; die Berechnung des Spaltproduktverhaltens und der Nachzerfallsleistung im Reaktorkühlkreislauf erforderten Programmmodifikationen, die eine Fortsetzung der Analysen über einen längeren Zeitraum (hier 3 Wochen) erlauben. Die zweite Zielsetzung umfasste die Entwicklung einer Methode zur Rückrechnung des Quellterms bzw. des Verlaufes der Freisetzung radioaktiver Stoffe aus den Blöcken 1 bis 3 des KKW Fukushima Daiichi aus Messdaten zur radiologischen Situation in der Umgebung der Anlage sowie aus meteorologischen Daten. Mit den Ergebnissen wurde eine unabhängige Datenbasis für die Validierung, Korrektur und Präzisierung von deterministischen Unfallablauf- und Quelltermanalysen erzeugt und dem OECD/NEA-Projekt BSAF zur Verfügung gestellt. Die dritte Zielsetzung umfasste generell den Erkenntnisgewinn zu den Unfallabläufen und speziell dem Kernzerstörungsverlauf als Basis für die Weiterentwicklung der GRS Rechencodes.

Die analytischen Ergebnisse aus dem OECD/NEA-Projekt BSAF, Phase II /OECD 18/ sowie insbesondere die jüngsten Erkenntnisse aus Anlageninspektionen von TEPCO aus 2017 und 2018 /TEP 17/ – /TEP 17d/ ergaben weiter abgesicherte Erkenntnisse zum Unfallablauf, dem RDB-Versagen und dem Schmelzeaustrag ins Containment insbesondere in den durch die GRS analysierten Blöcken 2 und 3 und stellen einen besser

1

abgesicherten Startpunkt der weiteren Analysen dar. Das OECD/NEA-Projekt ARC-F schloss an das OECD/NEA-Projekt BSAF Phase 2 an.

Zur Modellierung der Ausbreitung radioaktiver Stoffe auf das Gelände einer Anlage (Nahbereich) werden Modelle unterschiedlicher Komplexität verwendet. Die einschlägigen Regelwerke in Deutschland sehen z. Zt. noch das Gauß-Fahnenmodell für die Analyse der radiologischen Ausbreitungen und ihrer Auswirkungen beim bestimmungsgemäßen Betrieb /AVV 12/ sowie bei Stör- und Unfällen /SSK 04/ in Genehmigungs- und Aufsichtsverfahren vor. Je nach Fragestellung ist auch die Anwendung komplexerer Modelle möglich. Hierzu zählt das Programmsystem Atmosphärisches Radionuklid-Transport-Modell (ARTM), das auf einem Lagrange-Partikelmodell beruht. Für den Notfallschutz hält das BfS (Bundesamt für Strahlenschutz) das Entscheidungshilfesystem RODOS (Real-time Online Decision Support System) bereit, das seit neuerem ebenfalls ein Lagrange-Partikelmodell als Ausbreitungsmodell verwendet.

Die GRS hat im Forschungsvorhaben RS1534 begleitend zum OECD/NEA-Projekt BSAF eine Methode zur Rückrechnung des Quellterms aus den drei havarierten Blöcken des KKW Fukushima Daiichi basierend auf verfügbaren radiologischen Messdaten auf dem Anlagengelände und in seiner näheren Umgebung entwickelt und erfolgreich auf die ersten zwei Wochen des Unfallablaufs angewendet. Für die Arbeiten wurden die anlagenspezifischen Wetterinformationen sowie weitere Messwerte genutzt, die im Vorhaben bereitgestellt wurden. Ausbreitungsvorgänge über den Wasserpfad ins Meer wurden von der GRS nicht betrachtet, da keine Messwerte vorlagen. Die Methode basiert auf der optimierten Anpassung der Nuklidzusammensetzung aus Messwerten und rechnerisch ermittelten Beiträgen kurzlebiger Nuklide und Edelgase an gemessene Verläufe der Ortsdosisleistung und anschließender Rückrechnung auf den Quellterm durch die Invertierung der Beziehungsgleichung zwischen Freisetzung, Ausbreitung und Gammasubmersion am jeweiligen Messort. Die hierfür erforderlichen Ausbreitungsparameter wurden mittels zahlreicher Modellsimulationen mit dem Modellsystem ARTM ermittelt. In die Rekonstruktion des Quellterms wurden erstmals auch die auf dem Anlagengelände gemessenen Verläufe der Ortsdosisleistung (ODL) einbezogen.

1.2 Stand der Entwicklung von ATHLET-CD und COCOSYS in AC²

ATHLET, ATHLET-CD /WEB 19/ und COCOSYS /SPE 21/ sind integraler Bestandteil der nuklearen Rechenkette der GRS zur Analyse von Transienten sowie des Stör- und Unfallverhaltens im Reaktorkühlkreislauf (RKL) und Containment von Leichtwasser-

reaktoren und unter dem Namen des Programmsystems AC² zusammengefasst /WIE 19/. Die aktuelle Version AC² 2021 wurde Ende 2021 veröffentlicht. ATHLET-CD enthält das Thermohydraulik-Programm ATHLET sowie weitere Modelle zur Berechnung der Kernzerstörungsprozesse. Die Ergebnisse von ATHLET-CD sind Randbedingungen für Unfallanalysen mit dem Containmentcode COCOSYS. Diese Daten beinhalten sowohl die für die Bewertung der Integrität des Containments relevanten Leckraten aus dem Kühlkreislauf als auch Wärmeeinträge, die Wasserstofferzeugung und den Spaltproduktquellterm bei der Kernzerstörung aus dem RKL. Mit Versagen des RDB werden auch der Schmelzeaustrag in die Reaktorgrube und das darin verbleibende Spaltproduktinventar berücksichtigt. COCOSYS berechnet dann u. a. die Zustände im Containment, die Betonerosion durch die Schmelze als auch die Gasfreisetzung und das Spaltproduktverhalten im Containment und den Quellterm in die Umgebung. Die direkte Kopplung beider Codes in AC² bietet wesentliche Vorteile gegenüber einem Datentransfer zwischen getrennten Programmen, da Rückkopplungen physikalischer Phänomene im Unfallablauf direkt berücksichtigt werden.

Das Rechenprogramm ATHLET-CD wurde konzipiert, um das thermohydraulische Verhalten des Reaktorkühlsystems und den Ablauf der Kernzerstörung, das Nuklidinventar sowie das Spaltprodukt- und Aerosolverhalten während eines Unfalls zu beschreiben. Die Entwicklung und Einbindung von Modellen in ATHLET-CD erfolgt in enger Zusammenarbeit mit dem Institut für Kernenergetik und Energiesysteme (IKE) der Universität Stuttgart. Die aktuelle Version von ATHLET-CD enthält das Modul SAFT (**S**imulation of **A**erosol and **F**ission Product **T**ransport) zur Berechnung des Spaltprodukt- und Aerosoltransports im Primärkreislauf, das auf dem des Aerosol- und Spaltprodukttransportcode SOPHAEROS, das von IRSN entwickelt wurde, basiert und eigenverantwortlich von der GRS weiterentwickelt wird.

Im Forschungsvorhaben RS1574 /LOV 19/ zur ATHLET-CD Codeentwicklung wird die Modellierung der Kernzerstörung weiter verbessert. Ein weiterer Schwerpunkt liegt in den Verbesserungen der Modelle für die Simulation der Spätphase von Unfallabläufen. ATHLET-CD bietet die Möglichkeit, die Spätphase mit Schmelze im unteren Plenum des Reaktordruckbehälters mit den zwei Modellen AIDA und LHEAD zu simulieren. Beide Modelle besitzen einen unterschiedlichen Detaillierungsgrad, was dem Anwender eine gewisse Flexibilität ermöglicht. Die Unfälle in Fukushima Daiichi sind Teil der Validierungsmatrix für ATHLET-CD /HOL 21/. Das Containment-Code-System COCOSYS /SPE 21/ wird von der GRS für die umfassende Simulation von Transienten, Stör- und Unfällen im Containment bzw. generell in Gebäuden von Leichtwasserreaktoren bzw. Gebäuden im Allgemeinen entwickelt (Vorhaben RS1598) und ist integraler Bestandteil des Programmsystems AC². Zielsetzung ist die Simulation wesentlicher Phänomene, Prozesse und Zustände im Sicherheitsbehälter bzw. Reaktorgebäude, die während solcher Ereignisabläufe auftreten können. Ein Schwerpunkt in COCOSYS ist neben der Verwendung möglichst mechanistischer Modelle eine weitgehende Berücksichtigung von Wechselwirkungen zwischen verschiedensten physikalischen Phänomenen, wie z. B. zwischen der Thermohydraulik, der Wasserstoffverbrennung und dem Aerosol- und Nuklidverhalten. COCOSYS hat bei der Anwendung im Rahmen von Unfallanalysen für deutsche und europäische Anlagentypen, wie z. B. DWR Konvoi, SWR, WWER 440 und 1000 aber auch bereits für fortschrittliche Reaktoren z. B. EPR, mittlerweile einen sehr guten Entwicklungsstand erreicht.

2 Deterministische Unfallanalysen – eingesetzte Codes

In dem Vorhaben wurde das in der GRS entwickelte Codepaket AC² (vgl. Abb. 2.1) verwendet. Dabei kamen zur Simulation des Reaktors sowie der Abschnitte der Frischdampfleitungen, die sich innerhalb des Sicherheitsbehälters (SHB) befinden, ATHLET(-CD) und für den eigentlichen Sicherheitsbehälter und das umgebende Reaktorgebäude COCOSYS zum Einsatz.



Abb. 2.1 Bestandteile des AC²-Code-Pakets

Charakteristika des Codes ATHLET-CD

Der von der GRS entwickelte Thermohydraulik-Code ATHLET (**A**nalyse der **TH**ermohydraulik von **LE**cks und **T**ransienten) wird zur Simulation des gesamten Spektrums von Kühlmittelverluststörfällen und Transienten in Leichtwasserreaktoren eingesetzt. ATHLET-CD (**C**ore **D**egradation) stellt die Erweiterung von ATHLET dar und gestattet die Simulation von Störfällen mit schweren Kernschäden (Unfällen) (Abb. 2.2).



Abb. 2.2 Struktur des Codes ATHLET-CD

In ATHLET werden die thermohydraulischen Vorgänge im Primärkreislauf sowie alle Regelungssysteme in 3 Modulen simuliert:

Thermofluiddynamik (Modul TFD),

Wärmeleitung und Wärmeübertragung (Modul HECU) und

Reaktorregelsystem (Modul GCSM).

Im Modul TFD wird der Reaktorkühlkreislauf modelliert. Grundlage der Definition der Anlagengeometrie sind Thermofluidobjekte (TFO), welche sich in die Einzelelemente Kontrollvolumina und Verbindungen untergliedern lassen. Die Lösung der Erhaltungsgleichungen basiert in ATHLET auf dem eindimensionalen Finite-Volumen-Verfahren und dem 5-Gleichungsmodell oder dem 6-Gleichungsmodell, bei dem auch die Impulsgleichungen separiert sind.

Im Modul HECU findet eine Beschreibung des Wärmeübergangs an feste Strukturen des Reaktorkühlkreislaufs und des Wärmetransports in diesen statt. Zur Berücksichtigung des Wärmeübergangs von den Thermofluidobjekten (TFO) zu den Wärmeleitobjekten (HCO) werden die Objekte miteinander gekoppelt. Die Wärmeabgabe der Strukturen an Räume im Containment, die mit COCOSYS simuliert werden, wird berechnet. Das Modul GCSM (General Control Simulation Model) dient der Simulation von Regelund Kontrollsystemen der Anlage sowie in der gekoppelten Version mit COCOSYS auch dem Übertrag von Daten an COCOSYS. In GCSM werden die relevanten Teile des Reaktorschutzes, die Steuerung von Einspeisesystemen (z. B. Nachspeisesystem RCIC, Hochdruckeinspeisesystem HPCI), das Öffnungsverhalten von Ventilen (Sicherheitsventile am Reaktor) und die Sprühsysteme im Containment modelliert. Über GCSM wird auch ein großer Teil der Kopplung mit COCOSYS realisiert, d. h. direkte Größen wie z. B. die Außentemperatur des RDB oder von Rohrleitungen werden ausgetauscht. Auch Hilfssysteme der Anlage, die nicht mit thermohydraulischen Volumen abgebildet sind, werden in GCSM simuliert, also z. B. die dampfbetriebenen Systeme RCIC und HPCI.

ATHLET-CD ist wie ATHLET auch strukturiert aufgebaut und die einzelnen Modelle dienen der Simulation unterschiedlicher Vorgänge:

Brennstabverhalten (Modul ECORE),

Verhalten in einem Schüttbett-/Schmelzesee (Modul MEWA),

Schmelzeverhalten im unteren Plenum (Modul AIDA),

Nuklidverhalten / Ausgangsinventar (Module OREST / FIPISO),

Spaltproduktfreisetzung (Modul FIPREM) und

Spaltprodukttransport (Modul SOPHAEROS).

Die Prozesse der Kernzerstörung, wie z. B. der Energieeintrag aus der Oxidation der Hüllrohre der Brennstäbe (BS), das Versagen der Hüllrohre als auch das Versagen der Steuerstäbe aufgrund eutektischer Reaktion oder das Schmelzen und die Verlagerung des geschmolzenen Brennstoffs, werden vom Modul ECORE gerechnet. Der Zeitpunkt einer Verlagerung von Kernschmelze aus dem Reaktorkern in das untere Plenum wird durch nutzerabhängige Kriterien simuliert, die über das Modul GCSM zu definieren sind. Voraussetzung ist dabei, dass sich genug keramische Schmelze im Kern gebildet hat. Ein Modell zum Versagen der unteren Kerngitterplatte existiert noch nicht.

Die Prozesse in der Kernschmelze im unteren Plenum bis hin zum Versagen des RDB-Bodens werden durch das Modul AIDA berechnet.

Das anfängliche Spaltproduktinventar im Reaktorkern wird mittels OREST / FIPISO bestimmt. Der Nutzer kann die Historie (gefahrene Reaktorleistung als Funktion der Zeit) für verschiedene Brennstoffzustände bzw. Abbrände vorgeben. Daraus wird das Inventar in diesem Brennstoff durch OREST berechnet. Das gesamte Kerninventar kann dann aus mehreren Berechnungen für vordefinierte Brennstoffe "zusammengemischt" werden. Dieser Schritt wird durch FIPISO durchgeführt. FIPISO berechnet dann auch die zeitliche Entwicklung der Nachzerfallsleistung (NZL) aus dem so bestimmten Kerninventar. Die Freisetzung von Spaltprodukten während der Kernzerstörung aus dem Reaktorkern wird durch das Modul FIPREM simuliert, während der Transport der Spaltprodukte durch SOPHAEROS berechnet wird, eine Programmversion, die von IRSN (Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Frankreich) entwickelt wurde. In dieser bisherigen Version kann der Transport aus dem Reaktorkern nur über einen einzelnen Pfad, z. B. durch die Frischdampfleitung und gemeinsam über alle Sicherheitsventile in die Kondensationskammer (KoKa), simuliert werden. Freisetzungen aus dem Reaktor über andere Pfade, z. B. als Leckage am RDB-Boden direkt in die Druckkammer, mussten somit entfallen. Eine neue, erweiterte Programmversion war zu Beginn des Forschungsvorhabens in Arbeit und sollte zum Einsatz kommen.

Das Modul MEWA zur Berechnung von Partikelbetten aus Kernschmelze kam nicht zum Einsatz.

2.1 Charakteristika des Codes COCOSYS

Der Code COCOSYS (**CO**ntainment **CO**de **SYS**tem) wird von der GRS für die umfassende Simulation von Stör- und Unfällen im Containment und den angrenzenden Gebäuden von Leichtwasserreaktoren entwickelt und validiert. Er besteht ebenfalls aus mehreren Modulen (Abb. 2.3).



Abb. 2.3 Struktur des Codes COCOSYS

Der COCOSYS-Treiber sorgt für den Datenaustausch und die Synchronisation der Module untereinander als auch für die Steuerung von ATHLET/ATHLET-CD.

Das Modul THY (Thermohydraulik) berechnet alle thermohydraulischen Vorgänge. Dabei wird das Containment in verschiedene Zonen unterteilt, wobei innerhalb eines Zonenvolumens der Zustand des Systems nicht ortsveränderlich ist, sondern durch einen einzigen Satz von Zustandsvariablen (z. B. Druck, Temperatur und Stoffmengen im Bereich der Thermohydraulik) gekennzeichnet ist. Für die Verknüpfung der Zonen stehen verschiedene Verbindungsmodelle zur Verfügung. In COCOSYS wird grundsätzlich zwischen Atmosphären- und Drainageverbindungen (Wassertransport) unterschieden, wobei auch durch die Atmosphärenverbindungen Wasser (Wassermitriss) und durch die Drainageverbindungen gelöstes Gas transportiert werden kann. Auf Erweiterungen diesbezüglich wird später eingegangen. Zur Simulation der technischen Systeme stehen spezielle Modelle/Optionen zur Verfügung, wie z. B. Berstscheiben, Ventile, trägheitsbehaftete Klappen und Türen oder Sprühsysteme.

Das Modul AFP (Aerosole und Spaltprodukte) simuliert den Transport und das Ablagerungsverhalten von Aerosolen im Containment, das Verhalten von Iod und anderen Spaltprodukten (SP) inklusive ihrer Nachzerfallswärmefreisetzung. Darunter fällt auch der Rückhalt von SP beim Durchströmen einer Wasservorlage, also beim Eintrag aus dem Reaktor in die KoKa eines SWR. Auch die Umwandlung (Zerfall) von Spaltprodukten und die daraus resultierende NZL werden von AFP berechnet.

Das Modul CCI (Core-Concret-Interaction) simuliert die Vorgänge nach dem Austrag des geschmolzenen Kerns aus dem RDB ins Containment, d. h. die Betonerosion und die Freisetzung nichtkondensierbarer Gase als auch die Freisetzung eines Teils der in der Schmelze verbliebenen Spaltprodukte. Bisher konnte nur eine Reaktorgrube simuliert werden.

3 AP 1: Analytische Arbeiten im OECD/NEA Projekt ARC-F

3.1 Verwendete Datensätze



3.1.1 Der verwendete ATHLET-CD Datensatz

Abb. 3.1 Die wichtigsten Thermohydraulik-Objekte im ATHLET-CD-Datensatz

Zentral in Abb. 3.1 sind die 4 thermohydraulischen konzentrischen Kernkanäle (TFYM00KAR1-4) sowie die jeweils zugehörigen Bypässe TFYD00BY11-4 zu erkennen; dies ist eine Besonderheit des Siedewasserreaktors. Da die Brennelemente in Kästen im Kern stehen, existierten zwei klar getrennte Bereiche in jedem Kern-Ring – der Bereich innerhalb des Brennelementkastens und der außerhalb des Kastens. Dieser Bereich außerhalb wird durch den sogenannten Bypass simuliert. Die Bypässe sind untereinander in jeder Ebene mit dem nächsten inneren bzw. äußeren Bypass verbunden (dies ist in der Abbildung aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht dargestellt). Sobald es im weiteren Unfallablauf zu einem Versagen der Brennelementkästen kommt, werden solche Verbindungen in den entsprechenden Ebenen vom Code automatisch definiert. Axial sind alle Elemente im Kernbereich in 26 Volumen unterteilt.

Oberhalb des Kerns befindet sich der Innenraum des Kerndecks. Der Dampf-Wasser-Abscheider wird durch TFYD00SEIN und TFYD00SEAU simuliert, das Wasser läuft

dann von hier wieder nach unten in den Rückströmraum, dessen unterer Bereich in zwei parallele Elemente (TFYD02RRD1-2) unterteilt wurde. Dadurch wird die Simulation von Konvektionsprozessen im späteren Verlauf der Simulation ermöglicht, wenn der Kernmantel (die Struktur, die den Rückströmraum vom Kern trennt) durch Strahlung stark aufgeheizt wird. An den im untersten Bereich wieder vereinten Rückströmraum schließt die Leitung der externen Pumpenschleife an, und von dort wird das Wasser durch eine Pumpe stark beschleunigt bzw. der Druck wird stark erhöht, so dass die Jetpumpen (TFYD00JEPU) angetrieben werden können. Dieses System wird auch verwendet, um für eine Phase von 420 s Länge den Reaktor zu betreiben, bevor die Simulation des eigentlichen Unfallablaufs beginnt. Dadurch kann ATHLET die Widerstandsbeiwerte und Reibungsverluste anpassen; durch den Eingabedatensatz ist das System überbestimmt, und im Rahmen der so genannten Steady-State-Rechnung passt ATHLET das System so weit an, dass sich ein konsistentes Bild ergibt. Das untere Plenum ist in zwei nahezu unabhängige Bereiche unterteilt – den Innenraum der Steuerstabführungsrohre (TFYD00SS00) sowie den verbleibenden Freiraum (simuliert durch die drei Thermofluid-Objekte TFYD00UP01-3).

Im oberen Bereich ist der Dampftrockner (TFYD00TRIN) und über ihm der Raumbereich innerhalb des Deckels zu erkennen. Der Bereich des Dampftrockners, an den die Frischdampfleitungen anschließen, wird vor allem aus Stabilitätsgründen nur durch ein Volumen simuliert, während jede der vier Frischdampfleitungen einzeln simuliert wird. Dadurch wird die Oberfläche, die zur Ablagerung der Spaltprodukte zur Verfügung steht, reduziert. Es wird davon ausgegangen, dass die Druckentlastung über ein Sicherheitsund Entlastungsventil (S&E-Ventil) stattgefunden hat oder dass zumindest in der längeren Phase nur ein S&E-Ventil zum "Druckausgleich"¹ mit dem Sicherheitsbehälter (SHB) offengehalten wurde.

In Abb. 3.1 nicht dargestellt sind die Führungsrohre von Sensoren, die zur Messung der Kernleistung genutzt – und wie bei Siedewasserreaktoren typisch – von unten in den Kern gefahren werden. Insgesamt sind 35 solcher Führungsrohre vorhanden. Auch wenn der Querschnitt jedes einzelnen Rohrs klein ist, so ergibt sich über alle Rohre zusammen doch eine nicht zu vernachlässigende Leckage. Im äußersten thermohydraulischen Kern-Ring sind keine solchen Führungsrohe zu finden, aber für die inneren drei Ringe werden die dort befindlichen Rohre je mit allen Strukturen aus dem oberen Plenum

¹ Aufgrund der Eintauchtiefe der Einblaserohe der S&E-Ventile wird auch bei offenem Sicherheitsventil aber ohne größeres Leck immer ein gewisser Druckunterschied bestehen.

bis zum Boden des Reaktordruckbehälters (RDB) simuliert. Die Temperatur dieser Strukturen wird für jeden Ring fortwährend überprüft. Sobald sie hoch genug ist, wird das entsprechende Ventil geöffnet. Über einen als Tabelle im Datensatz vorgehaltenen Modifikator kann die freigegebene Fläche modifiziert werden (auf Wunsch kann dieser Modifikator auch auf null gesetzt und somit das Leck vorerst geschlossen gehalten werden). Dadurch kann es zu einer Leckage vom RDB direkt in die Druckkammer – unter Umgehung der Kondensationskammer – kommen. Da es zu Beginn der finalen Analysen nicht möglich war, mit SAFT (dem Spaltprodukttransport-Modul von ATHLET-CD) einen Transport von Spaltprodukten durch den Kern zu simulieren, werden die Ventile, die ein Versagen der Instrumentierungsrohre simulieren, angrenzend an das obere Plenum geöffnet.

Ein weiterer möglicher Pfad direkter Freisetzung vom RDB in den SHB – ebenfalls unter Umgehung der Kondensationskammer – ist ein gleichermaßen thermisch induziertes Versagen der Dichtung eines S&E-Ventils. Die Implementierung entspricht dem Vorgehen bei den Instrumentierungsrohren.

Die Systeme zur Bespeisung des Reaktors RCIC (Reactor Core Isolation Cooling System) / HPCI (High Pressure Core Injection System) und die mobilen Feuerlöschpumpen werden mittels GCSM simuliert. Für das RCIC- und HPCI-System in Block 3 wurden schon während des BSAF-Projekts zeitliche Verläufe der eingespeisten Wassermasse sowie der entnommenen Dampfmasse² spezifiziert. Da sich mit diesen Tabellen (wie auch bei den anderen Teilnehmern) aber keine guten Ergebnisse erzielen ließen, wurde eine Tabelle mit dem zeitlichen Verlauf von Multiplikatoren für die Ein- bzw. Ausspeisung implementiert. Zur Simulation derartiger Vorgänge gibt es in ATHLET das General Control Simulation Module (GCSM). Das Modul erlaubt es, mit Hilfe sehr einfacher Operatoren (z. B. Addierer, Funktionsgenerator oder Schalter) sehr komplexe Probleme abzubilden. So wird die Veränderung des Massenstroms bei Pumpen mit Nullförderhöhe genauso wird auch die Enthalpie-Änderung aufgrund der Druckerhöhung bei der Einspeisung berücksichtigt. Der Effekt ist zwar klein, da aber in diesem Fall sehr lange Zeiträume berücksichtigt werden, können auch solche an sich kleinen Effekte eine sehr große Rolle spielen. Die mobilen Feuerlöschpumpen, die eine essenzielle Rolle für das Verständnis des Unfallablaufs spielen, werden auch mittels GCSM abgebildet. Aber hier werden verschiedene Effekte, wie eine Leckage der Leitungen zwischen Pumpe und

² Beide Systeme werden jeweils über eine Turbine mit Dampf aus dem RDB betrieben.

RDB in Abhängigkeit vom Druck und ein Massenstrom abhängiger Druckverlust über die Leitung, berücksichtigt, um die Anforderung an die Rechenzeit zu reduzieren. Um die Flexibilität der Rechnung bzgl. Anpassungen während der Rechnung³ zu bewahren, wurden die relevanten Parameter (soweit es ging) extern berechnet und in Form von Tabellen im Datensatz hinterlegt. Die entsprechenden Tabellen wurden dann in den entsprechenden Zeiträumen angepasst. Natürlich sind für die gesamte Zeit des Betriebs der mobilen Feuerlöschpumpen die gleichen Tabellen genutzt worden; lediglich ein Modifikator des Massenstroms erlaubt weitere Feineinstellungen.

Während das RCIC- und das HPCI-System Dampf aus den Frischdampfleitungen entnehmen und in den oberen Bereich des Rückströmraums einspeisen, befindet sich der Anschluss zur Bespeisung mit den Feuerlöschpumpen an der externen Schleife der Umwälzpumpen. Die Einspeisung mittels der Feuerlöschpumpen muss also zuerst die externe Schleife und den Rückströmraum bis zum oberen Ende der Jetpumpen auffüllen, bevor Wasser in das untere Plenum und von da aus in den Kern gelangen kann, und dabei gegen den zusätzlichen Druck der steigenden Wassersäule arbeiten.

Die Simulation des RCIC-Systems in Block 2 wurde so angepasst, dass die Ergebnisse die Messungen gut reproduziert konnten; die Details werden in Abschnitt 3.2.1 diskutiert.

Während der Kernbereich (wie oben beschrieben) aus thermohydraulischer Sicht aus 4 konzentrischen Ringen besteht, wird der Brennstoff in 6 konzentrische Ringe verteilt. Dadurch ist eine bessere Simulation des Fortschreitens bzw. des Einsetzens der Kernzerstörung möglich. Die thermisch träge Masse wird im Vergleich zu einer gröberen Nodalisierung reduziert, während die Rechenzeit durch die Reduktion auf vier Kanäle nicht zu stark anwächst. Rod2 und Rod3 werden dem zweiten Kanal und Rod4 und Rod5 dem dritten Kanal zugeordnet. Rod1 und Rod6 werden je in einem eigenen Kernkanal gerechnet, da beiden Bereichen eine spezielle Rolle zukommt. Bedingt durch den konzentrischen Aufbau und das Leistungsprofil, das in der Mitte am höchsten ist und zum Rand hin abfällt, sowie aufgrund der Tatsache, dass während der Kernzerstörungsphase Strahlung den größten Teil der Energie transportiert, beginnt Kernzerstörung in der Mitte. Der Randbereich des Kerns hingegen kann nach außen hin Wärme in Richtung der Behälterwand / des Rückströmraums abstrahlen.

³ In einer gekoppelten Rechnung muss die Zahl und Reihenfolge der GCSM-Signale gleichbleiben; Multiplikatoren, Tabellen oder auch Zahl der Summanden können aber angepasst werden.



 Abb. 3.2 Darstellung der 6 Kernringe (Rod1 – 6) von innen nach außen, jeweils die Brennstäbe, die Behälterwände und die Steuerstäbe

Ein weiterer Vorteil der feineren Unterteilung des Kernbrennstoffs ist die Möglichkeit, das Kerninventar, ausgehend von der an die Teilnehmer des Projekts verteilten Daten, bzgl. des Abbrandes zum Anfang und zum Ende des letzten Zyklus sowie ein entsprechendes Leistungsprofil des letzten Zyklus zu berechnen. Da sich während der ersten Phase des BSAF-Projekts zeigt, dass sich die Messwerte durch verschiedene thermohydraulische Ansätze in den verschiedenen verwendeten Codes verschieden erklären lassen und sich auch ein großes Spektrum möglicher Kernschäden ergab, wurde entschieden, die während der Unfallphase gemessene Freisetzung (im Rahmen des Projekts für drei Wochen) ebenfalls in den Vergleich mit aufzunehmen und die Ergebnisse der Simulation auch mit diesen Messwerten zu simulieren. Besonderes Augenmerk wird dabei auf die Freisetzung von Cäsium und lod gelegt, da sich die Messungen auf diese konzentrierten. Besonders die langlebigen Cs-Isotope sind bzgl. der gemessenen Kontaminierung der Abdeckplatten oberhalb des Sicherheitsbehälter-Deckels (siehe Seite 25) von Bedeutung. Da die Strahlung dort auch fast 10 Jahre nach dem Unfall immer noch sehr hoch ist,

kommt besonders Cs-137 mit seiner hohen Halbwertszeit (30,08 a) aber hohen Volatilität in Frage, um die hohe Dosis dort zu erklären.



Abb. 3.3 Abbrand Verteilung innerhalb des Kerns (Bsp. Block 2)



Abb. 3.4 Leistungsprofil des Kerns ermittelt aus den Abbrand-Daten (Block 2)

Würde das von TEPCO berechnete, vorgegebene Inventar verwendet, wären die Spaltprodukte homogen im Kern verteilt; auch zeitliche Änderungen des Leistungsprofiles bedingt durch unterschiedliche Halbwertzeiten würden nur sehr bedingt berücksichtigt. Das Problem an diesem Vorgehen wäre, dass unter Umständen schon ein deutlich geringerer Kernschaden die gemessene Freisetzung erklären könnte. Wie sich bei den Analysen zeigte, hat dieser detaillierter Ansatz noch den Vorteil, dass Veränderungen der Verteilung der Nachzerfallsleistung, die in Anbetracht des langen Zeitraums bis zum Einsatz des Kernschadens nicht unerheblich sind, berücksichtigt werden.

3.1.2 Der verwendete COCOSYS-Datensatz

Der Sicherheitsbehälter wird mittels 7 Zonen in der Druckkammer, 8 Zonen für die international als Vent Lines bezeichneten Verbindungen zwischen Druckkammer und Kondensationskammer – sie haben etwa die gleiche Funktion wie die Kondensationsrohre in einem deutschen Siedewasserreaktor, aber ein größeres Volumen sowie Strukturen zum Gebäude hin – und 16 Zonen für die Kondensationskammer simuliert. Ein Schnitt durch den Sicherheitsbehälter und das Reaktorgebäude mit eingezeichnetem Nodalisationsschema ist in Abb. 3.5 dargestellt.



Abb. 3.5 Nodalisierung des Reaktorgebäudes und Sicherheitsbehälters

Der Bereich direkt unterhalb des RDB innerhalb der Betontragestrukturen (Cont4l) ist nur durch einen etwa türgroßen Durchgang sowie eine etwa halb so große Öffnung, durch die die Steuerstäbe bei einem Wechsel bewegt werden, mit dem unteren Bereich des Sicherheitsbehälter verbunden. Der Bereich innerhalb des Betons um den RDB (biologisches Schild) wird ebenfalls durch eine auch räumlich begrenzte Zone (Cont4) simuliert, sonstige Unterteilungen in der Druckkammer sind eher numerisch begründet, etwa um Konvektionsprozesse zu simulieren oder um die Wechselwirkung von Dampf nicht direkt mit der gesamten Strukturoberfläche zu berücksichtigen. Der Bereich außerhalb des Betonsockels / des biologischen Schildes wird in der unteren und mittleren Eben mittels zwei Zonen abgebildet, während der Bereich direkt unterhalb des SHB-Deckels durch ein einzelnes Volumen simuliert wird. Der dünne Luftspalt zwischen dem SHB und dem umgebenden Beton ist laut Aussage der Betreiber nach oben und unten geschlossen, so dass Konvektion nur sehr begrenzt möglich wäre. Aus diesem Grund wurde hier Luft als ein weiteres Material zwischen der Stahlhülle des SHB und dem Beton des Reaktorgebäudes eingeführt. Die Abbildung jeder Vent Line (VL) als eigene Zone hat vor allem Stabilitätsgründe. Die Kondensationskammer muss nämlich, um den Druck innerhalb des SHB korrekt simulieren zu können, in Sektoren und Ebenen unterteilt werden. Ausgehend von den acht S&E-Ventilen und den acht VLs lag ein Ansatz mit acht Sektoren nahe. Möglicherweise wäre auch eine Simulation mit vier oder sechs Sektoren in Block 2 möglich, in Block 3 würde dies aber vermutlich schon zu deutlich schlechteren Ergebnissen führen. Ein Versuch mit zwei Hälften und zwei Ebenen ergab – zumindest für Block 3 – keine befriedigenden Ergebnisse; weitere Versuche wurden aufgrund des hohen Zeitaufwands nicht unternommen. Die verwendete Nodalisierung ist in Abb. 3.6 dargestellt.



Abb. 3.6 Nodalisierungsschema des Torus (Kondensationskammer)

Die feinere Unterteilung erlaubt es, die Wassermassen in den verschiedenen Raumbereichen des Torus verschieden stark zu erhitzen, wobei der azimutale Temperaturunterschied sehr gering ist, der Unterschied zwischen der oberen und unteren Wasserschicht hingegen teilweise schon deutlich höher ausfällt. Versuche, die im Nachgang des Fukushima-Unfalls durchgeführt wurden (/PEL 16/), zeigten, dass mit steigender Temperatur Kondensationsschläge⁴ ausblieben und am Rohr ein Gemisch aus heißem Wasser und Blasen aufstieg, aber die Temperatur des unteren Bereichs des Pools stagnierte. In COCOSYS kann ein solches Verhalten gegenwärtig (vor allem in Verbindung mit Spaltprodukten) nur durch sogenannte SUMP-BALANCE-Verbindungen simuliert

⁴ Als Kondensationsschlag wird das Kondensieren von Dampf an einer kalten Wasseroberfläche im Rohr und der daraus resultierende Druckabfall, der Wasser in das Rohr saugt, das dann aufgeheizt aus dem Rohr geschoben wird, wodurch wieder kaltes Wasser in Kontakt mit dem Dampf kommt, bezeichnet.

werden. Dieser Verbindungs-Typ erlaubt es, Wasser so zwischen zwei Zonen zu transferieren, dass der Wasserspiegel in beiden Zonen die gleiche Höhe hat und dass auch z. B. bei Temperaturunterschieden Wasser zwischen beiden Zonen hin- und zurückströmen kann. Die Stärke dieser Konvektion, die auch vom Temperaturunterschied abhängig ist, kann vom Nutzer durch die Angabe von Konvektionsparametern gesteuert werden. Und genau auf diese Art und Weise wurde die Temperaturverteilung im Torus im Rahmen der Simulation aufgebaut; die Konvektion zwischen den unteren und den oberen Zonen wurde beim Erreichen einer Temperatur von ca. 55 °C drastisch reduziert (von 0,25 auf ca. 0,002 – 0,0025). Dadurch kann die Temperatur der oberen Zone deutlich schneller steigen, wodurch ein signifikant schnellerer Druckanstieg simuliert werden kann. Das Verhalten des SHB-Drucks von Block 2 während des erneuten Ansprechens der S&E-Ventile ab etwa 250.000 s unterstützt die These der Temperaturstratifikation (siehe Seite 32 f.). Der Torus befindet sich ohne Isolation im Untergeschoss des Reaktorgebäudes. Direkt an diesen, im Folgenden als Torus-Raum bezeichneten Raum, grenzen vier Treppenhäuser sowie der Raum, in dem das RCIC- bzw. HPCI-System untergebracht sind, an. Die Nodalisierung des Untergeschosses ist in Abb. 3.7 dargestellt. Jeder dieser Räume ist über eine im Boden eingelassene Drainageverbindung mit dem Torus-Raum verbunden. Wasser, das – wie später im Fall von Block 2 diskutiert – in das Untergeschoss eindringt, wird also neben dem Torus-Raum auch die angrenzenden Räume fluten. Dies ist von Bedeutung, da nicht die gesamte Wassermasse aufgeheizt werden muss, aber Wasser, das verdampft, aus den angrenzenden Räumen nachströmen kann.

In den im Laufe des BSAF-Projekts zur Verfügung gestellten (relativ groben) Daten mit Angaben zu Raumvolumen, Strukturoberflächen (ausschließlich Wänden, Decken und Böden) und Verbindungen fehlte eine Angabe zu einer direkten Verbindung aus dem Torus-Raum in das sonstige Reaktorgebäude. Natürlich würde durch das Versagen einer Tür zu den Treppenhäusern ein solche Verbindung geschaffen. Auf Nachfrage ergab sich, dass entlang von Rohren oder sonstigen Verbindungen (Kabel etc.) Verbindungen existieren, die hier mit insgesamt 0,5 m² abgeschätzt wurden.



Abb. 3.7 Nodalisierung des Torus-Raums, der die Kondensationskammer umgibt, mit eingezeichneten Drainage-Verbindungen

Auf der Ebene des Erdgeschosses sowie der 3 Ebenen darüber bis zur Ebene des Beckenflurs (siehe Abb. 3.8, Abb. 3.9 und Abb. 3.10) wurden kleinere Räume mittels eigener Zonen, der große offene Raum auf jeder Ebene aber nur durch zwei Zonen abgebildet. Dabei wurden die zur Verfügung gestellten Daten bzgl. freiem Volumen mit der Fläche auf den Schnitten skaliert, die Strukturen (Boden / Decke) und die Wände wurden entsprechend einer Messung der Wandlänge in jeder Zone skaliert. Die Unterteilung in diese zwei Zonen wurde so vorgenommen, dass der Schnitt zwischen den Zonen an der schmalsten Stelle vorgenommen wurde. Jede der beiden Zonen hat dabei zumindest über eine Treppe (in den Ecken zu erkennen) eine Verbindung nach oben / unten. So ist es möglich, eine rudimentäre Konvektion innerhalb des Gebäudes zu simulieren.



Abb. 3.8 Nodalisierungsschema des Erdgeschosses



Abb. 3.9 Nodalisierung des Reaktorgebäudes auf der ersten und zweiten Ebene



Abb. 3.10 Nodalisierung der vierten Ebene mit dem Flutraum (R43)

Oberhalb des Beckenflurs wird das Reaktorgebäude nur durch Leichtbetonplatten von der Umwelt getrennt; in Block 2 ist durch die Explosion in Block 1 eine Platte aus einer der Wände auf dieser Ebene gefallen. Die Folge ist ein direkter Pfad aus dem Reaktorgebäude in die Umgebung. Die Ebene des Beckenflurs, der größte Raum, wird deutlich feiner mit 11 Ebenen simuliert. Bis auf die oberste Ebene R14.11 wird jede Ebene durch zwei Zonen sowie einen Plume, eingebettet in die größere der beiden Zonen, simuliert. Diese feine Unterteilung wurde gewählt, da erstens die Idee aufkam, die Wasserstoffexplosion in Block 3 durch eine Schichtung mit geringeren Wasserstoffmassen zu erklären⁵, und zweitens ergab sich aus späteren Messungen der Kontamination, dass ein erheblicher Austrag aus dem SHB über den Weg einer Deckelleckage aus dem SHB durch die Betonplatten, die den Flutraum vom Beckenflur trennen, stattfand. Wenn nun heiße Gase durch die Spalte zwischen den Betonplatten austreten, werden diese zuerst aufgrund der geringeren Dichte nach oben steigen und hier mit Strukturen wechselwirken, bevor es zu einer Freisetzung in die Umgebung kommen würde. Bei einer Abbildung mittels einer einzelnen Zone würden direkt alle Flächen für Ablagerungen zur Verfügung

⁵ Experimente am KIT im Rahmen von Pro-Science / HYKA zeigten, dass eine Wasserstoff-Schichtung zu deutlich energetischerer Reaktion führen kann.

stehen, aber der Druckgradient vom Beckenflur in die Umgebung würde einen prozentualen Anteil (gemäß dem Verhältnis Volumen zu Volumenstrom) in die Umgebung freisetzen.

Die Umgebung wird über vier sehr große übereinanderliegende Zonen simuliert; die unterste Zone verfügt über eine sehr große Betonstruktur, um die Ablagerung von Spaltprodukten zu erlauben. Vier Zonen sind nötig, da in Block 2 davon auszugehen ist, dass über den Weg, den das Wasser in das Reaktorgebäude genommen hat (wahrscheinlich auf Bodenhöhe), auch Gas in das Gebäude gelangen kann. Zusammen mit der oben beschriebenen Öffnung auf der Ebene des Beckenflurs ist so eine Strömung durch das Gebäude möglich. Mit nur einer Zone zur Simulation der Umgebung würde dann aber eine numerische Konvektion getrieben. Da jede Zone einen Wert für den Druck hat und da geodätische Effekte von COCOSYS berücksichtigt werden, könnte die Umgebungszone nur mit der oberen oder unteren Zone im Druckgleichgewicht stehen, eine Druckdifferenz zu der anderen Zone würde eine Strömung bedingen. Über die lange Zeit des Unfalls und auch durch die Jahreszeit kommt es zu nicht unerheblichen Temperaturschwankungen zwischen Tag und Nacht, die über die Wärmeleitung durch Strukturen einen Einfluss auf Kondensation und somit auch auf die Ablagerung von Spaltprodukten haben können. Um dies zu berücksichtigen, wurden alle Strukturen des Reaktorgebäudes an der Außenseite an eine einzige Zone gekoppelt, auf die dann genau die Temperatur- und Druckmessungen aus den Wetteraufzeichnungen aufgeprägt werden. Dieses Modell ist extra zur Simulation des Unfallablaufs in Fukushima implementiert worden. Da die Vorgabe von Druck und Temperatur Energie in das System bringen oder ihm entziehen können, kann dieses Verfahren leider nicht für die sonstigen Umgebungszonen genutzt werden, weil sonst die Energiebilanz in diesen gestört würde, wodurch die Fehlersuche erheblich erschwert werden würde. Die Umgebungszonen für die Strukturkopplung (Randbedingungen) sind also andere als die Umgebungszonen für die Freisetzung aus dem Reaktorgebäude.

Die hohe gemessene Kontamination – auch noch Jahre nach dem Unfall – der Abdeckplatten des Flutraums (im Folgenden nur noch als Abdeckplatten bezeichnet), aber eine geringe Ortsdosisleistungen im Flutraum deuten darauf hin, dass sich eine erhebliche Menge der freigesetzten Spaltprodukte zwischen den Betonplatten abgelagert hat. Genauer gesagt, kommt wie oben schon beschrieben, besonders Cs-137 in Frage, die immer noch hohe Ortsdosisleistung zu erklären. Die Anordnung der Abdeckplatten ist in Abb. 3.11 dargestellt. Es handelt sich um drei Schichten von Betonplatten, die jeweils wiederum aus drei Teilstücken bestehen, wobei die Schlitze zwischen den Platten immer

23

um 90° gegenüber der vorherigen Schicht verdreht sind. Ein Lump-Parameter-Code wie COCOSY ist nicht geeignet, die Vorgänge beim Durchströmen dieser Öffnungen aufzulösen. Die Ablagerung von Spaltprodukten während des Durchströmens einer Verbindung kann jedoch mittels eines Filters simuliert werden. Neben verschiedenen vordefinierten Filtern gibt es in COCOSYS auch die Möglichkeit, einen Filter anhand der Dekontaminationsfaktoren über die verschiedenen Partikelgrößen zu definieren. Dieser Filtertyp wurde hier gewählt. Die Parameter müssen dann genauer eingestellt werden. Der erste Ansatz wurde aus Betrachtungen zu Ablagerungen beim Durchströmen von Rissen im Beton gewonnen; da die Freiräume hier etwas größer sind, wurden die Werte etwas verringert.





(Quelle: interne Kommunikation im Rahmen des BSAF / ARC-F Projekts)

In Block 3 ist davon auszugehen, dass der RDB versagt und es zu einer ausgedehnten MCCI Phase kommt, während in Block 2 zwar ein Brennelementkopf unterhalb des RDB gefunden wurde, aber Myonen-Messungen und eine Inspektion mit einem Roboter eher auf einen geringen Schmelzeaustrag hinweisen. Sobald es aber zu einem Schmelzeaustrag kommt, wird MCCI zuerst im Steuerstabantriebsraum stattfinden. Hier sind zwei Sümpfe mit je 2,5 m³ Volumen vorhanden. Sollten diese mit Schmelze aufgefüllt werden und zusätzlich die Schmelze ein Level erreichen, das höher liegt als die Stufe zwischen dem Steuerstabantriebsraum und dem sonstigen Boden des Sicherheitsbehälters (16 cm), wird sich die Schmelze nach sehr kurzer Zeit aus dem Steuerstabantriebsraum auf den Boden des Sicherheitsbehälters vor dem Durchgang ergießen. Die Verzögerung ergibt sich aus der Notwendigkeit, den Transfer von einem MCCI⁶-Bereich in einen

⁶ MCCI steht für Molten Core Concrete Interaction.

anderen Bereich zu triggern. Dafür wird hier das Versagen einer dünnen (1 cm) Betonplatte postuliert. Da in der gegenwärtigen Programmversion die Fläche, auf der sich die Schmelze ausbreitet, fest vorgegeben werden muss, wurde eine Fläche von 85 m² definiert. Vermutlich wird es zu keinem Transfer kommen, aber falls doch, ist diese Fläche wohl deutlich zu groß ausgefallen und muss in einer neuen Rechnung deutlich kleiner eingestellt werden.

3.1.3 Die Kopplung der Datensätze

Während einer gekoppelten Rechnung werden entweder nach einer vorgegebenen Anzahl von ATHLET-Zeitschritten oder nachdem ATHLET die im letzten Zeitschritt von ramain (dem Thermohydraulik-Modul von COCOSYS) vorhergesagte Zeitschrittweite erreicht hat, Daten zwischen den beiden Codes ausgetauscht. Im AC²-Treiber (siehe Abb. 2.1) wird zwischen zwei Zeitschritten des THY-COCOSYS-Moduls ein Integral der verschiedenen eingetragenen Energien (z. B. an jeder Strukturaußenseite) oder der einoder ausgespeisten Massenströme gebildet. ATHLET erfragt die relevanten Temperaturen oder Drücke vom AC²-Treiber. Die wurden zwar beim letzten Zeitschritt hinterlegt, sind also möglicherweise ein paar Sekunden alt, aber normalerweise wird auch der Zeitschritt in der Thermohydraulik des Containments sehr klein ausfallen, wenn es zu kleinen Zeitschritten im RDB kommt. Außerdem sind die Volumen im SHB um ein Vielfaches größer als im RDB (häufig sogar größer als der RDB), so dass der Einfluss auf z. B. den Druck zwischen zwei Zeitschritten sehr klein ausfallt.

Eine Massenaustausch von ATHLET nach COCOSYS wird derart modelliert, dass der Druck, die Temperatur und die Zusammensetzung des Gases von COCOSYS auf ein spezielles Thermohydraulikobjekt (TFO) in ATHLET übertragen werden. Dies TFO übernimmt diese Eigenschaften unabhängig davon, ob Wasser/Gas nach ATHLET strömt oder von ATHLET kommt. Solche speziellen TFOs nennt man TDVs (Time Dependent Volume). Da die thermohydraulischen Größen als GCSM-Signale vorgegeben werden (in solche werden sie auch eingelesen), können relevante Parameter angepasst werden. Ein S&E-Ventil endet in einem Düsenstock, der aufgrund der Wassersäule und der Dichte des Wassers einen Gegendruck hat, der höher ist als der Druck in der Zone. Es wird also auch die Dichte des Wassers aus dem Druck und der Temperatur der Kondensationskammer ermittelt und das Wasserlevel in der Kondensationskammer übertragen, um so den hydrostatischen Druck zu ermitteln. Die Trägheit des Wassers innerhalb des Rohrs und der Rückhalt von Spaltprodukten beim Durchströmen der Wasserphase, wird wiederrum dadurch berücksichtigt, dass die Einspeisung nicht direkt in die Zone (wie z. B. bei einem Leck) erfolgt, sondern von ATHLET in eine COCOSYS-Junction. Diese Junction kann dann in COCOSYS als Düsenstock mit der entsprechenden Anzahl von Löchern mit entsprechender geometrischer Ausrichtung abgebildet werden.

Die Wärmeleitung zwischen dem RDB und dem SHB wird dadurch berechnet, dass ATHLET die Temperatur auf der Außenseite der Strukturen vorgegeben bekommt und der Energiefluss aus der Struktur in den SHB an COCOSYS übergeben wird. Die einzige Ausnahme davon ist der Wärmefluss aus dem Modell zur Simulation des unteren Plenums nach Verlagerung der Schmelze (AIDA). Da AIDA nicht die ATHLET-Strukturen nutzt, wird von AIDA ein Integral des Energieflusses an der Außenseite der Bodenkalotte berechnet und als GCSM-Signal an COCOSYS übergeben. Hier wird dadurch der Energiefluss zur Definition einer Einspeisung genutzt.

Aufgrund der hohen Flexibilität von GCSM wurde auch das Sprühen oder genauer gesagt, die Pumpen, die das Wasser aus der Kondensationskammer entnehmen und dann in die Sprühdüsen verteilen, in ATHLET abgebildet.

3.2 Ergebnisse

3.2.1 Block 2

Zum Zeitpunkt 0 s erfolgt aufgrund der Beschleunigungen durch das Erdbeben die Schnellabschaltung des Reaktors. Die Nachzerfallsleistung wird durch das RCIC-System, das Dampf zum Betrieb einer Turbine nutzt, und ein System, das die Kondensationskammer, in deren Wasservorlage der Dampf aus den Sicherheits- und Entlastungsventilen (S&E-Ventile) kondensiert, kühlt, abgeführt. Fast 50 Minuten nach dem Erdbeben trifft der Tsunami ein. Das Wasser, das in die Turbinenhalle eindringt, zerstört die Notstromdiesel sowie alle anderen Formen der Spannungsversorgung. Das RCIC-System war zu diesem Zeitpunkt in Betrieb, konnte aber von den Operateuren nun nicht mehr gesteuert werden. Außerdem verschob sich der Ansprechdruck der S&E-Ventile nach oben. Der Füllstand im Reaktor stieg also bis zur Frischdampfleitung (siehe Abb. 3.13), für Block 2 standen nur Messungen des Wasser-Levels im Kernbereich zur Verfügung (*fuel range a* und *b*, wobei Messung b nicht zu funktionieren scheint).



Abb. 3.12 Verlauf des RDB-Drucks für die ersten 331.000 s (Block 2)



Abb. 3.13 RDB-Füllstand simuliert sowie verfügbare Messwerte (Block 2)

Es ist davon auszugehen, dass nun Wasser in die Turbine des RCIC-Systems gelangt. Der folgende Abfall des RDB-Drucks und die lange Phase, in der der Druck unterhalb des S&E-Ventilansprechdrucks liegt (siehe Abb. 3.12), lässt sich durch die
Beaufschlagung der RCIC-Turbine mit einem 2-Phasen-Gemisch und dem zwar reduzierten Volumenstrom aber erhöhten Massenstrom und dem damit einhergehenden Energiestrom erklären. Anfänglich (bis zum Erreichen des Minimums im RDB bei ca. 38.200 s) werden die Massenströme im Zwei-Phasen-Betrieb im Datensatz durch Anpassungen von Tabellen händisch eingestellt. Das System schwankt dabei noch zwischen einphasigem Betrieb (also reiner Dampfentnahme von 2,51 kg/s und einer Wassereinspeisung von 26,4 kg/s) und zweiphasigem Betrieb, während dem Wasserdampfgemisch aus der Frischdampfleitung entnommen und Wasser in den Rückströmraum eingespeist wird. Mit dem Erreichen des Druckminimums werden die Massenströme mit Hilfe eines GCSM-Blocks so kontrolliert, dass das Wasser in der Frischdampfleitung nahezu auf einem gewissen Niveau stehen bleibt (sinkt der Füllstand, wird die Einspeisung erhöht und umgekehrt), die Entnahme wird durch einen Vergleich des berechneten Druckwerts mit dem gemessen Druckwert gesteuert. Um akzeptable Rechengeschwindigkeiten zu erreichen, wurde noch eine Art Reibungsterm eingeführt, da sonst der Druck zu stark um den Messwert oszilliert. Die auf diese Art und Weise bestimmten Massenströme des RCIC-Systems sind in Abb. 3.14 dargestellt. Dabei sind die Massenströme aus "Sicht" des RDB dargestellt; eine Einspeisung hat ein positives, eine Entnahme ein negatives Vorzeichen.



Abb. 3.14 Massenströme des RCIC-Systems (Block 2)

Die Entwicklung des Drucks im SHB und der Wassertemperaturen in der Kondensationskammer ist in Abb. 3.15 dargestellt. Der erste ausgeprägte Anstieg in der Wasserdampfkonzentration bzw. der Temperatur der oberen Kondensationskammerzonen markiert genau den Zeitpunkt, zu dem die Umgebung des RCIC-Auslassrohrs eine Temperatur von mehr als 50 °C erreicht hat. Die Konvektion innerhalb des Pools zwischen den oberen und unteren Zonen wird durch eine Anpassung der entsprechenden Parameter stark reduziert.

Nach dem Minimum des RDB-Drucks sinkt für etwa 10.000 s der Massenstrom durch das RCIC-System. Die Ursache ist unklar, aber der Druck des RDB steigt, was auch zur Folge hat, dass weniger Energie in die oberen Wasserschichten der Kondensationskammer transportiert wird. Die Konvektion in der Simulation wurde zu diesem Zeitpunkt nicht weiter angepasst, wodurch sich ein Temperatur- und als Folge ein Druckplateau ausbildet. Möglicherweise hätte der Temperaturanstieg zuvor etwas langsamer ausfallen müssen, aber insgesamt ist die Übereinstimmung des gemessenen und simulierten Drucks in dieser Phase ausreichend gut.



Abb. 3.15 Entwicklung des SHB-Drucks und der Fluid-Temperaturen in der Kondensationskammer während der ersten 280.000 s (Block 2)

Nach 51.240 s wird das RCIC-System, das bisher aus einem Kondensattank Wasser gezogen hat, so umgestellt, dass das Wasser nun aus der Kondensationskammer gesaugt wird. Da der Pumpeneinlass im unteren Bereich des Torus ansaugt, wird ein Teil des heißen Wassers aus den oberen Zonen in die unteren nachströmen, wodurch der Temperatur-/Druckanstieg etwas verlangsamt wird.

Vergleicht man die Entwicklung der Drücke im SHB von Block 2 und Block 3, fällt sofort auf, dass der Druck in Block 3 deutlich schneller ansteigt, und nur durch ein Sprühen in der Kondensationskammer bei ca. 80.000 s kann der Druck in Block 3 reduziert werden. Obwohl in Block 2 nicht gesprüht wurde, erreicht der Druck nach 25.000 s nicht ganz 5 bar. Es muss also einen zusätzlichen/stärkeren Wärmeaustrag aus dem SHB in Block 2 geben. Ein Leck im SHB würde im weiteren Verlauf des Unfalls eine Reproduktion der Messwerte deutlich schwieriger gestalten. Ein Leck würde aber auch anders wirken; mit steigendem Druck steigt der Massenstrom und somit der Einfluss auf den Druck.

Eine mögliche Erklärung, die auch von allen Partnern im Projekt BSAF / ARC-F unterstützt wird, ist ein Eindringen von Wasser in das Untergeschoss des Reaktorgebäudes als Folge des Tsunamis, das dann den nicht isolierten Torus von außen kühlt. Techniker, die in das Untergeschoss der Anlage gelangen wollten, haben schon in den Treppenhäusern eine hohes Wasserlevel gemeldet. Dieses Wasser kühlt dann den unteren Teil des Torus von außen und verstärkt somit die Temperaturstratifikation. Die in der Simulation unterstellte Wassermasse und ihr zeitlicher Verlauf sind in Abb. 3.16 dargestellt. Dabei wird nur bis 120.000 s unterstellt, dass Wasser von außen in das Reaktorgebäude gelangt. Die geringe Änderung im weiteren Verlauf ergibt sich durch Kondensat, das langfristig in das Untergeschoss läuft. Der Anstieg ab 287.000 s ergibt sich durch eine Leckage im Torus, auf die später eingegangen wird.

Die Entwicklung des Temperaturverlaufs dieses Wassers ist ebenfalls in Abb. 3.15 bei den Temperaturen der unteren Zonen (RB30) dargestellt, wobei deutlich zu erkennen ist, dass das Wasser bei etwas über 200.000 s anfängt zu sieden.



Abb. 3.16 Wassermasse im Untergeschoss (Block 2)

Aus unbekannten Gründen fällt nach 247.400 s das RCIC-System aus, der Druck beginnt wieder zu steigen. Um in dieser Phase den gemessenen Druckverlauf gut zu reproduzieren, wurde für einen kurzen Zeitraum ein deutlich erhöhter Dampfmassenstrom aus dem RDB unterstellt, ansonsten wäre der Anstieg des RDB-Drucks früher und steiler simuliert worden. Der Druck steigt so weit an, dass die S&E-Ventile wieder ansprechen. Kontraintuitiv führt dies nicht zu einem weiteren Anstieg des SHB-Druckes, sondern zu einem Abfall. Dies kann wiederum mit der unterstellten Stratifikation des Pools erklärt werden. Während das Abdampfrohr des RCIC-Systems an einer relativ hohen Stelle den Dampf in die Kondensationskammer leitet, sind die Düsenstöcke der S&E-Ventile sehr nah am Boden montiert. Der gesamte Dampf aus dem Reaktor kondensiert in dem deutlich unterkühlten Wasser (mehr als 20 °C kälter), wodurch kaltes Wasser aus den unteren Zonen in die oberen Zonen gedrückt wird und es zu einer Durchmischung von kaltem und heißem Wasser kommt. Der Dampf oberhalb der Wasseroberfläche kann an dieser kondensieren, was ein Sinken des Drucks bewirkt.

Zu diesem Zeitpunkt sind auch Temperaturmesswerte für eine kurze Zeit verfügbar. Der Sensor war an einem Kondensationsrohr befestigt – leider ist die genaue Höhe, in der der Sensor befestigt war, der GRS nicht bekannt. Die Messerwerte wurden aus dem Chart ausgelesen und sind in Abb. 3.17 mit dem Temperaturverlauf der oberen und unteren Wasserschichten im Torus dargestellt (die Grafik liegt vor, da die Quelle aber nicht mehr ermittelt werden kann, wird hier auf eine Abbildung verzichtet). Der Temperaturabfall ist deutlich zu erkennen, fällt aber stärker aus als in der Simulation, was daran liegen kann, dass der Sensor in einer Schicht liegt, die schneller gekühlt wird, während die Temperatur der Wasseroberfläche langsamer sinkt. Dies ist in einer Darstellung mit nur zwei übereinanderliegenden Ebenen jedoch nicht abzubilden.



Abb. 3.17 Temperatur-Messung in der Kondensationskammer bei S&E-Ventil-Aktivität

Der beobachtete Druckabfall während des periodischen Ansprechens der S&E-Ventile sowie der deutlich frühere Druckanstieg (gegenüber einem homogen abgebildeten Pool) rechtfertigen den erhöhten Aufwand der feiner aufgeteilten Torus-Nodalisierung.

Der Druck im RDB in der Phase der drei Druckpeaks ist in Abb. 3.18 im Detail dargestellt. Die Druckentlastung wird durch das Öffnen eines S&E-Ventiles erreicht. Sobald der Druck unter 9 bar fällt, beginnt die Einspeisung mittels mobiler Feuerlöschpumpen den RDB zu erreichen, dadurch sinkt die Temperatur das Wassers im Rückströmraum, wodurch der Druck weiter sinkt. Um den RDB-Druck gut zu reproduzieren, wird angenommen, dass das S&E-Ventil, das zur Druckentlastung geöffnet wurde, nach dem Druckminium nahezu wieder zufällt. Der Wassermassenstrom wurde dabei so eingestellt, dass genug Wasser eingespeist wird, um eine ausreichende Dampfmenge zur Abbildung des ersten Druckpeaks zur Verfügung zu haben. Vor Ort wurde von Technikern noch vor dem ersten Druckpeak bemerkt, dass die Kraftstoffvorräte der Pumpen erschöpft waren. Wann die Pumpen wirklich ausgefallen sind, ist nicht klar. Neben der Modifikation des Massenstroms kann auch über die Länge des Ausfalls der Bespeisung die Rechnung an die Messwerte angepasst werden. Die verwendeten Massenströme sind in Abb. 3.19 dargestellt. Es wird genau wie bei den folgenden zwei Druckpeaks unterstellt, dass das Ventil zufällt. Es gibt zwar keinerlei Aufzeichnungen über ein Ereignis dieser Art, aber das Fehlen einer Reaktion im SHB-Druck während des Druckanstiegs, zusammen mit dem deutlichen Druckanstieg am Ende des Druckpeaks, untermauert die These, dass der RDB und SHB während des ersten Druckpeaks voneinander getrennt waren.



Abb. 3.18 Die drei Peaks im RDB-Druck im Detail (Block 2)

Sobald der Druck im RDB 9 bar erreicht, gelangt von der Pumpe kein Wasser mehr in den RDB. Die Nullförderhöhe der Pumpen läge zwar bei 10 bar⁷, aber die implementierte Leckage aus diesem System verhindert die Bespeisung schon vorher. Der Zustand des Kerns kurz vor dem ersten Druckpeak mit der Temperaturverteilung ist auf der linken Seite von Abb. 3.20 zu erkennen. Der Kern hat sich deutlich aufgeheizt; im Inneren haben die Hüllrohre Temperaturen von bis zu 1800 °C. Die Oxidation des Zirkons hat bereits begonnen und die Kernaufheizung beschleunigt, wie aus der Menge des produzierten Wasserstoffs in Abb. 3.21 zu erkennen ist (zu diesem Zeitpunkt fast 131 kg).

⁷ Genauer: Die Pumpen sind auf eine Nullförderhöhe von 10 bar eingestellt worden, da dies der für die Schläuche zulässige Maximaldruck ist.



Abb. 3.19 Massenstrom der mobilen Feuerlöschpumpen in den RDB (Block 2)

Das sogenannte "Ballooning", also die physikalische Verformung (Anschwellen) der Brennstäbe ist auf dem Bild zu erkennen, aber die Brennstäbe haben aufgrund des Innendrucks schon versagt (bei ca. 276.200 s der innerste Ring und bei ca. 278.440 s zuletzt der äußerste Ring); erste leicht flüchtige Spaltprodukte wurden aus dem Gasraum der Brennelemente freigesetzt.

Ebenfalls deutlich zu erkennen ist, dass die Steuerstäbe (die Darstellung für die sechs Ringe ist von links nach rechts immer wie folgt: Brennelement, Kasten und Steuerstab) bis auf den äußersten Ring geschmolzen sind. In Siedewasserreaktoren versagen genau wie in Druckwasserreaktoren die Steuerstäbe aufgrund eutektischer Reaktionen zuerst. Der Steuerstab besteht aus Stahl, und durch die Wechselwirkung mit dem Bor wird der Schmelzpunkt von z. B. 1500 °C für Eisen je nach dem Verhältnis der beiden Bestandteile auf etwas unter 1200 °C abgesenkt (Bor allein schmilzt erst bei deutlich über 2000 °C).



Abb. 3.20 Kernschaden vor und nach dem ersten Druckpeak (Block 2)



Abb. 3.21 Wasserstoffproduktion aufgrund der Zirkonoxidation (Block 2)

Während der Phase des ersten Druckpeaks stagniert die Oxidation nahezu, da sich im Kern ein Dampfmangel ausbildet. Mit dem erneuten Öffnen des Sicherheitsventiles kommt Dampf an die nun deutlich heißeren Strukturen, und innerhalb sehr kurzer Zeit wird sehr viel Wasserstoff gebildet. Der Eintrag dieses nichtkondensierbaren Gases macht sich auch direkt im SHB-Druck bemerkbar – ein starker, sehr schneller Anstieg ist die Folge. Dampf würde in der Wasservorlage der Kondensationskammer kondensieren und dies langsam erhitzen. Die freiwerdende Oxidationsenergie beschleunigt die Kernzerstörung; die rechte Seite von Abb. 3.20 zeigt den Zustand nach dem Druckausgleich

zwischen RDB und SHB nach dem ersten Druckpeak. Die Brennelementbehälter und die Steuerstäbe sind nahezu komplett geschmolzen, auch von den Hüllrohren ist nicht mehr viel übrig. Nur der äußerste Bereich des Kerns mit der niedrigen Nachzerfallsleistung und der Möglichkeit, Energie an den Kernbehälter abzustrahlen, hat eine geringes Schadensbild. Das geschmolzene Material blockiert nun Strömungen durch den Kern, dadurch gelangt wieder wenig Wasserdampf an das geschmolzene Zirkon sowie an aufgeheizte und nun schmelzende Zirkonstrukturen, die Oxidation wird stark reduziert. In der Phase zwischen dem zweiten und dritten Druckpeak musste die Einspeisung reduziert werden, da sonst Wasser in den Kernbereich gelangt wäre und dies zu einer starken Druckerhöhung und zu erneuter Oxidation geführt hätte, die sich in einem Anstieg des SHB-Drucks bemerkbar gemacht hätte. Die Bespeisung wurde so weit reduziert, dass der Wasserstand im RDB zu Beginn des dritten Druckpeaks knapp unterhalb der Kerntrageplatte lag. Am Ende des zweiten Druckpeaks würden die Strukturtemperaturen der Instrumentierungsrohre ausreichend hoch sein, um ein Versagen zu erklären. Bei vollem RDB-Druck läge die Temperatur bei 900 – 1025 °C bei 1400 – 1500 °C würde das Material schmelzen. Da der RDB-Druck nur etwa ein halbes Bar oberhalb des SHB-Drucks liegt, wird die Versagenstemperatur in diesem Bereich liegen. In der Simulation ergeben sich aber Werte von über 1500 °C. Die Freisetzung wird trotzdem bis kurz vor der Verlagerung über einen Faktor von Null unterbunden. Da es keine Druckantwort des SHB gibt, kann kein Austrag stattgefunden haben, was auf verschiedene Arten erklärt werden kann. Das Rohr hat im Kernbereich versagt, aber Material hat im unteren Bereich des Rohres die Freisetzung blockiert. Hier sind die Temperaturen aufgrund des Wassers im unteren Plenum deutlich niedriger (150 – 160 °C); die Instrumentierungsrohe haben zwar Umgebungsdruck im Inneren, aber das Rohr ist trotzdem verschlossen, z. B. mit einer Haltestruktur oder einer Art Kunststoffpfropfen. Das Material des Instrumentierungsrohres ist duktil geworden, wodurch es im unteren Kernbereich zu einem Kontakt des Rohrmaterials mit dem Sensor und dem Führungsgewinde kam, was die axiale Wärmeleitung erhöhen würde. Während der Grund für die spätere Freisetzung nicht im Rahmen dieses Projekts geklärt werden kann, so ist es jedoch ausgeschlossen, dass es auf diesem Weg zu einer Freisetzung vor dem Druckanstieg im SHB zu Beginn des zweiten RDB-Druckpeaks kommt.

Da bis zu Beginn des zweiten Druckpeaks die Kernkühlung ausgeblieben ist, ist der Kernschaden weiter fortgeschritten; ein erheblicher Teil des Brennstoffs im Zentrum des Kerns ist geschmolzen, wie in Abb. 3.22 gut zu erkennen ist.

Zu Beginn des zweiten Druckpeaks wird wieder davon ausgegangen, dass das Sicherheitsventil zufällt (bei ca. 288.000 s), 400 s später wird die Verlagerung in das untere Plenum getriggert. Die Freisetzung über die Instrumentierungsrohre wird freigegeben, allerdings nicht mit der vollen Querschnittsfläche, sondern vorläufig nur mit 32 %. Der steigende Druck verhindert wiederum die Einspeisung von Wasser durch die Feuerlöschpumpen.



Abb. 3.22 Zustand des Kerns direkt vor der Verlagerung (Block 2)

Der beobachte Druckanstieg im SHB kann nicht ausschließlich durch Dampf erklärt werden, da der Druckanstieg im SHB Atmosphäre in die Kondensationskammer drückt und Wasserdampf hier kondensiert. Das Wasserinventar innerhalb des RDB kann aber nicht genug Energie auf diese Art und Weise in den Sicherheitsbehälter transferieren, um eine entsprechende Aufheizung des Wassers in den oberen Zonen der Kondensationskammer zu simulieren. Analysen der Ergebnisse bis zu diesem Zeitpunkt zeigten, dass sehr viel metallisches (unoxidiertes) Zirkon verlagert wird (siehe Abb. 3.23). Das flüssige Zirkon wird als Teil der Schmelze in das untere Plenum verlagert. In ATHLET-CD findet die Verlagerung immer relativ schnell statt, die Verlagerungsgeschwindigkeit kann man zwar vorgeben – es wäre ja z. B. auch eine Verlagerung entlang der Steuerstabführungsrohre möglich – aber eine langsame Verlagerung in dem Sinne, dass es nur eine kleine Querschnittsfläche gibt, durch die sich der Schmelzestrom ergießen muss, ist im Programm gegenwärtig nicht vorgesehen.

Unterstellt man aber genau eine solche Verlagerung, so ist eine starke Fragmentierung der Schmelze bei Kontakt mit dem Wasser durchaus vorstellbar; dabei würde dann auch ein größerer Anteil des immer noch sehr heißen Zirkons mit Wasser in Kontakt kommen. Die Oxidation könnte also bei der Verlagerung in das untere Plenum wieder einsetzen.



Abb. 3.23 Metallisches (unoxidiertes Zirkon) im Kernbereich und postulierte Oxidation im unteren Plenum (Block 2)

Diese Überlegung wurde mit einem entsprechenden GCSM-Logik-Block hinterlegt. Die chemische Reaktion von Zirkon mit Wasserdampf kann damit zwar nicht direkt erreicht werden, aber eine Einspeisung von Wasserstoff und Energie gemäß einer im Datensatz vorgegebenen zu oxidierenden Zirkonmasse je Zeiteinheit kann simuliert werden. Das heißt, wenn es zu einem Versagen des RDB kommt, würde das chemische Potential des metallischen Zirkons wieder vollumfänglich zur Verfügung stehen. Solange das Material aber innerhalb des RDB verbleibt, wird nur die Wärmeleitung beeinflusst, und die Schmelz- bzw. Erstarrungsenthalpie würden sich verschieben. Es ist nicht davon auszugehen, dass dies Ergebnisse signifikant verschieben würde. Die in der Schmelze freigesetzte Nachzerfallsleistung muss entweder an die Wand oder über die obere Kruste auf der Schmelze abgeführt werden. Leichte Änderungen in der Wärmeleitfähigkeit würden die Temperatur des Schmelzepools im Inneren verschieben, was auch die Krustendicke beeinflussen kann. Sollte die Nachzerfallsleistung nicht unter den gegebenen Bedingungen abgeführt werden, wird sich entweder die Bedingung entsprechen anpassen, z. B.

wird die Krustendicke durch Abschmelzen reduziert, oder die Temperatur der flüssigen Schmelze steigt. Im äußersten Fall kann an der Außenseite des RDB-Bodens nicht genug Leistung abgestrahlt werden und der RDB wird versagen.



Abb. 3.24 Zirkon-Oxidation im unteren Plenum gemäß Nutzereingabe (Block 2)

In dem GCSM-Block wird aus einem vom Nutzer vorgegebenen Zirkon-Massenstrom, der als Tabelle im Input vorliegt, die so entstandene Wasserstoffmasse und die bei der Oxidation freiwerdende Energie berechnet und in das untere Plenum (in den Rechnungen wurde die Energie komplett dem Gas zugeteilt) eingespeist; die dafür benötigte Wassermasse wird dem unteren Plenum dabei entnommen. In der Rechnung wurden insgesamt 9375,8 kg Zirkon im unteren Plenum oxidiert, das entspricht ca. 42 % der gesamten verlagerten Zirkon-Masse; die dabei unterstellte Oxidationsrate ist in Abb. 3.24 dargestellt. Die gesamte im Kern verfügbare Masse geschmolzenen metallischen Zirkons ist in Abb. 3.23 zu sehen, davon werden in einigen Zwischenschritten 95 % in das untere Plenum transferiert. Leider gibt es keine Plot-Ausgabe der Zirkonmasse im unteren Plenum.

Die Verlagerung entfernt auch die Blockade im Kernbereich. Die erneute Durchströmung des Kerns bringt erneut Wasserdampf in Kontakt mit heißem Zirkon, wodurch auch die Oxidationsrate wieder steigt (Abb. 3.21).



Abb. 3.25 Entwicklung des SHB-Drucks in der Phase der drei Druckpeaks

Mit steigendem Druck im RDB steigt auch die Freisetzungsrate über die Leckage der Instrumentierungsrohre Abb. 3.25 unten), wodurch der SHB-Druck zunimmt. Der Austrag von Wasserstoff erhöht zuerst die Wasserstoffkonzentration im SHB und dann auch

die Wasserstoffkonzentration in Gasraum des Torus. Vor allem werden aber auch die anderen nichtkondensierbaren Gase (96 % Stickstoff, 4 % Sauerstoff) in die Kondensationskammer gedrückt, was an der deutlichen Abnahme der Wasserdampf-Volumenkonzentration noch vor der Zunahme der Wasserstoffkonzentration zu erkennen ist (die Wasserstoff-Volumenkonzentration zusammen mit der Wasserdampf-Volumenkonzentration ergibt nicht 100 %, der Rest wird durch die ursprüngliche SHB-Atmosphäre gebildet). Der Eintrag von nichtkondensierbaren Gasen kann den Druck in der Kondensationskammer deutlich erhöhen, wodurch der Transfer aufgrund der Druckdifferenz gering ausfällt. Dadurch ist es nun möglich, dass ausströmender Wasserdampf eine deutlich größere Rolle im Anstieg des SHB-Drucks spielt. Auch eine besonders starke Temperaturerhöhung im SHB spielt beim Druckanstieg eine entscheidende Rolle. Ohne die direkte Leckage aus dem RDB in den SHB (also ein nur gering geöffnetes S&E-Ventil) würde das Gas in der Kondensationskammer auch gekühlt, insbesondere würde jedoch Wasserdampf kondensieren. Eine direkte Leckage aus dem RDB in den Sicherheitsbehälter hat aber vor allem auch eine Bedeutung für den Transport von Spaltprodukten nach der Freisetzung in den Sicherheitsbehälter, da die Freisetzung dann in die Gasphase der Druckkammer und nicht in die Wasserphase der Kondensationskammer erfolgt.



Abb. 3.26 Cäsium-Verteilung 331.000 s nach Beginn der Rechnung (Block 2)

Abb. 3.26 zeigt die Cs-Verteilung. Schon zu Beginn des zweiten Druckpeaks wurde Cs aus dem Brennstoff, aber noch nicht in den Sicherheitsbehälter freigesetzt. Da der RDB zu diesem Zeitpunkt noch intakt ist, muss das Spaltprodukt bis zu den S&E-Ventilen transportiert werden, bis es zu einer Freisetzung aus dem RDB (unter RDB ist der RDB und der Teil der Frischdampfleitungen innerhalb des SHB zu verstehen) kommt. In dieser gesamten Phase des Unfalls sind aber die Geschwindigkeiten und auch die Massenströme relativ gering, so dass es kaum zu einer Freisetzung kommt. Erst mit dem Versagen der Instrumentierungsrohe und der somit sehr direkten Verbindung aus dem oberen Plenum in den SHB kommt es zu einer signifikanten Freisetzung aus dem RDB. Innerhalb von weniger als einer halben Stunde werden über 30 % der ursprünglich im Brennstoff enthaltenen Cs-Masse in den SHB und dort vor allem in die Druckkammer transferiert.

lod hat in diesem Zeitraum eine deutlich geringere Freisetzung aus dem RDB, ca. 90 % des anfänglichen lod-Inventars sind schon zu Beginn der Verlagerung in das untere Plenum aus dem Brennstoff freigesetzt worden, haben sich aber an der noch relativ kalten Struktur des Kerndeckels abgelagert. Die Re-Mobilisierung ist temperaturabhängig, d. h. erst nachdem sich die Struktur ausreichend stark erhitzt hat, wird das lod von dort auch in den SHB freigesetzt. Am Ende des zweiten Druckpeaks sind gerade einmal 10 % des lods in den Sicherheitsbehälter gelangt.



Abb. 3.27 Iod-Verteilung 331.000 s nach Beginn der Rechnung (Block 2)

Der schematische Kernschaden am Ende des zweiten Druckpeaks ist in Abb. 3.28 dargestellt. Deutlich zu erkennen ist, dass noch relativ viel Brennstoff im Kernbereich vorhanden ist und auch dass der äußerste Brennstab sich zwar deutlich aufgeheizt hat, aber vor allem im unteren Teil, der durch den Strahlungsaustausch mit dem Kernmantel, der vom im Rückströmraum befindlichen Wasser gekühlt wird, deutlich kühler als der restliche Kern ist. Gerade die detaillierten Abbrandrechnungen verordnen hier einen großen Teil des Cäsiums im Kern und noch ist der Brennstoff nicht stark genug für eine Freisetzung erhitzt worden, so dass noch fast 30 % des ursprünglichen Cs-Inventars im Brennstoff gebunden sind.



Abb. 3.28 Kernschaden zwischen dem zweiten und dritten Druckpeak bei 292.400 s (Block 2)

Der Druckanstieg im Sicherheitsbehälter erreicht nicht ganz das Niveau des gemessenen Druckanstiegs. Eine Erhöhung der Leckage durch ein weiteres Öffnen des Lecks würde den SHB-Druck während des zweiten Druckpeaks besser treffen und damit auch eine frühere Leckage aus dem Sicherheitsbehälter initiieren, aber um eine gute Übereinstimmung der Simulationsergebnisse mit den Messwerten des dritten Druckpeaks zu erhalten, wäre eine Reduktion der Leck-Querschnittsfläche nötig und dies wäre argumentativ nur schwierig zu rechtfertigen, weshalb in der Rechnung darauf verzichtet wurde.

Der gegenüber der Messung etwas langsamere Anstieg des SHB-Drucks verzögert die Freisetzung aus dem SHB bis zum Beginn des dritte Druckpeaks. Dann erst sorgt die hohe Temperatur im oberen Bereich des SHB (Cont1) in Kombination mit dem hohen Druck zu einer – so zumindest die in der internationalen Community vertretende Theorie – Dehnung der Bolzen, die den Ladedeckel des Sicherheitsbehälter fixieren. Dies führt zu einer Undichtigkeit und einer direkten Leckage aus dem Sicherheitsbehälter in das Reaktorgebäude (in Raum R43, siehe Abb. 3.5).



Abb. 3.29 Leckage des Sicherheitsbehälters am Ladedeckel (Block 2)

Wie schon bei den beiden vorherigen Druckpeaks wird angenommen, dass das Sicherheitsventil zufällt und der RDB somit nur über die Instrumentierungsrohre mit geringer Querschnittsfläche Masse an den SHB transferieren kann. Die gute Übereinstimmung des Simulationsergebnisses des dritten Druckpeaks mit den Messwerten ergibt sich durch eine noch sehr hohe Nachzerfallsleistung im Kernbereich von über 4 MW (siehe Abb. 3.30). Die Wärmestrahlung der Schmelze erhitzt das Wasser im Rückstromraum derart stark, dass der Druckanstieg vor allem aus dem hier produzierten Wasserdampf verursacht wird. In einigen anderen Rechnungen (die hier nicht vorgestellt werden) war eine Anpassung der Einspeiseraten der mobilen Pumpen hin zu niedrigeren Massenströmen nötig, wenn die Nachzerfallsleistung im Kernbereich etwas geringer ausfiel. Der steigende Druck führt zu einer Reduktion der Konvektion im Kernbereich, da sich die Gase aufheizen, zugleich wird aber auch mehr Wasserdampf in diesen Bereich gedrückt, wodurch die Zr-Oxidation nochmal leicht zunimmt. Mit dem Ende des dritten Druckpeaks und dem Öffnen des Sicherheitsventils sinkt der Massenstrom über die Instrumentierungsrohrleckage und zeitgleich, da das Gas in der Kondensationskammer gekühlt wird und der Wasserdampf beim Durchströmen der Wasservorlage kondensiert, sinkt die Leckage am SHB-Ladedeckel. Die Freisetzung über das Sicherheitsventil hat eine starke Erhitzung der Strukturen an dieser Stelle zur Folge, so dass die Temperatur ausreicht, um die Dichtung versagen zu lassen, und sich hier somit eine weitere Möglichkeit der direkten Freisetzung in den SHB ergibt. Außerdem wird unterstellt, dass sich die Leckage über die Instrumentierungsrohre etwas erhöht.



Abb. 3.30 Nachzerfallsleistung im Kernbereich und im unteren Plenum in der Zeit der drei Druckpeaks (Block 2)

Die Fläche des Lecks wird von 32 % auf 50 % der geometrischen Größe erhöht. Als Folge der nun vier direkten Leckagen mit zusätzlich erhöhter Gesamtfläche sinkt die Freisetzung über das S&E-Ventil. Da sich aber der Druck zwischen dem RDB und dem SHB mehr und mehr angleichen, sinken alle Leckagen.

Ebenfalls am Ende des dritten Druckpeaks wird eine Leckage unterhalb des Wasserlevels in der Kondensationskammer unterstellt. Der verwendete Verbindungstyp SUMP_BALANCE (der auch zur Unterteilung der Kondensationskammer verwendet

wird) erlaubt es, die erhöhte Leckage aufgrund der Druckdifferenz der beiden Zonen zu berücksichtigen. Die Leckage ist anfänglich klein wird aber in den folgenden Restarts Schrittweise etwas erhöht. Der Wasseraustrag aus dem Torus macht sich in einem steigenden Wasserstand im Torus-Raum (Abb. 3.16) bemerkbar. Da der Anteil der Spaltprodukte in der Kondensationskammer noch verhältnismäßig gering ist und daher auch die Konzentration im Wasser gering ausfällt, wird dadurch zunächst nur im geringen Maße Cs bzw. Iod in das Reaktorgebäude transportiert.

Es ist unklar, wann genau diese Leckage in Block 2 entstanden ist. Da aber auch nach Monaten – so haben Schallmessungen ergeben – immer noch eine Gasphase im Torus besteht und es auch trotz kontinuierlicher Bespeisung nicht gelingt, das SHB mit Wasser zu füllen (bzw. ähnlich wie in Block 3 ein hohes Wasserlevel zu erreichen), wird davon ausgegangen, dass es eine Leckage unterhalb des Wasserlevels besteht. Die Annahme, dass sich diese während des Unfallablaufs bei hohen Drücken ergeben hat, scheint plausibel.

Der Zustand des Kerns nach dem dritten Druckpeak ist in Abb. 3.31 (links) zu sehen. Der untere Bereich des äußersten Kernrings hat sich noch nicht stark genug erhitzt, um Cs freizusetzten. Der größte Teil der noch fast 18 % (Abb. 3.26) im Brennstoff gebundenen Cs sind im äußersten Kernring zu finden. Erst nach dem dritten Druckpeak in der Phase des anhaltend hohen RDB- und SHB-Drucks (allerdings mit sinkender Freisetzung aus dem RDB) schmelzen weitere Teile des Kerns und der Brennstoff wird heiß genug, um Cs nahezu komplett freizusetzen. Zwischen 303.000 s und 305.000 s kommt es nochmal zu mehreren Verlagerungen in das untere Plenum. Aufgrund der fehlenden Wechselwirkung des Materials mit dem Wasser im unteren Plenum macht sich dies im Druck nicht bemerkbar. Geringe Einflüsse sind nicht zu bemerken, da aufgrund der Leckagen der RDB stark an den SHB gekoppelt ist und dieser eine Leckage in das Reaktorgebäude aufweist. Die sehr geringe Einspeisung mittels der mobilen Feuerlöschpumpen (siehe Abb. 3.19) zwischen 2,5 und 3,1 kg/s reicht in Verbindung mit der immer noch hohen auf den Kernbehälter abgestrahlten Leistung kaum aus, den Rückströmraum so weit aufzufüllen, dass Wasser durch die Jetpumpen in das unter Plenum laufen kann. Erst ab 311.000 s strömt Wasser in das untere Plenum und erst 1000 s später erreicht der Massenstrom einen Wert von über einem Kilogramm pro Sekunde.

Bei ca. 318.400 s wird unterstellt, dass sich die Leckagefläche am Ladedeckel des SHB deutlich erhöht, was dann den beobachteten Druckabfall im SHB und in Folge auch im RDB verursacht. Der RDB-Druckabfall wird durch die finale Erhöhung der Leckagefläche der Instrumentierungsrohe auf 100 % der geometrischen Fläche unterstützt. Durch den

sinkenden RDB-Druck steigt der Wassermassenstrom der mobilen Feuerlöschpumpen in den RDB. Anfänglich ist das kalte Wasser nur bedingt in der Lage, zu dieser Druckreduktion beizutragen. Zuerst verdampft das gesättigte Wasser im unteren Plenum, und die Kombination der erhöhten Leckageflächen zusammen mit dem erhöhten Massenstrom mobilisiert noch etwas Cs und Iod.



Abb. 3.31 Kernschaden nach dem dritten Druckpeak (298.000 s) sowie bei 331.000 s (Block 2)

Da der Zeitschritt von ATHLET-CD mit dem Sinken des Drucks ebenfalls so weit abfiel, dass 1 h Problemzeit ca. 25 h Rechenzeit benötigen würde, der vorgegebene Simulationszeitraum von 3 Wochen also eine Rechenzeit von ca. 1,17 Jahren benötigen würde⁸, musste eine andere Möglichkeit gesucht werden, die Rechnung fortzusetzen. Die innerhalb der Druckkammer abgelagerten Cs-Mengen wären ausreichend hoch, um eine signifikante Kontamination der Betonplatten oberhalb des RDB-Ladedeckels zu ergeben, sollte es gelingen die Spaltprodukte wieder zu mobilisieren. Gerade die Phase der weiteren Druckentlastung des SHB sollten eigentlich diesem Prozess zuträglich sein, da auch die Fläche des Deckellecks immer weiter geöffnet wird.

Die Cäsium- bzw. Iod-Verteilung relativ zum Anfangsinventar ist Tab. 3.1 zu sehen. Der hohe Anteil in der Druckkammer und dem RDB deutet an, dass eine Kontamination wie sie sich in den Messungen zeigt, möglich wäre. Wäre ein hoher Anteil des Cäsiums in der Wasserphase der Kondensationskammer gelöst, wäre eine Mobilisierung aus dem SHB über die Leckage entlang des Ladedeckels nur schwer vorstellbar.

⁸ Alle Versuche, dies z. B. durch Reduktion der Genauigkeiten zu beheben, schlugen fehl. Natürlich besteht die Möglichkeit, dass nach 3 – 4 Monaten die Zeitschrittweite steigt, nach 1,5 Monaten war dies aber nicht abzusehen.

	lod	Cäsium (%)
Brennstoff	0	0,98
RDB	14,21	27,82
Druckkammer	54,13	50,15
Kondensationskammer	23,14	17,13
VLs	0,11	0,13
Umgebung	2,54	1,04
Betonplatten	1,12	0,48
Reaktorgebäude	5,87	2,76

Tab. 3.1Cs- und I-Verteilung bezogen auf das Anfangsinventar bei 331.000 s(Block 2)

Der einzig gangbare Weg, die Rechnungen in einem realistischen Zeitrahmen vorzusetzen, bestand darin, während eines Restarts den ATHLET-CD Datensatz, also den gesamten RDB einschließlich geschmolzenem Kern, gegen einen Restart mit intaktem Kern bei einem hohen Druck auszutauschen. Da in den COCOSYS-Restart-Daten (SHB) ein laufender ATHLET-CD-Datensatz erwartet wird, kann die ATHLET-CD-Rechnung nicht einfach beendet werden. Da die Einspeisung ausreicht, um den Kern im unteren Plenum zu kühlen und sich auch kein RDB-Versagen angedeutet hat, ist dieser Weg von diesem Standpunkt aus gangbar. Die im RDB abgelagerten Spaltprodukte werden natürlich nicht mehr freigesetzt werden. Die Freisetzungen aus dem RDB werden durch Dampf und später durch ein Wasserdampfgemisch ersetzt, wobei die noch im RDB vorhandene Nachzerfallsleistung als Energie eingetragen wird.

Der "neue" Datensatz mit dem intakten Kern und RDB wird soweit es möglich ist, vom SHB abgekoppelt, d. h. das RCIC-System, das wieder die Kühlung übernehmen wird, entnimmt kein Wasser aus der Kondensationskammer und es wird auch kein Dampf / Wasser eingespeist; die Wärmeleitung über Strukturen wird im COCOSYS-Datensatz unterbunden⁹. Solange nun der Druck im RDB nicht so weit ansteigt, dass die S&E-Ventile ansprechen, oder so weit abfällt, dass die Zeitschrittweite wieder reduziert wird, kann man sagen, dass die Rechnung im SHB "eigenständig" läuft.

⁹ Eigentlich dient der Schalter dazu, die Wärmeverluste aus dem Primärkreislauf vor dem Beginn der Transiente zu unterbinden.

Die Entwicklung der Cäsium- bzw. Iod-Verteilung ist Abb. 3.32 bzw. Abb. 3.33 dargestellt. In beiden Abbildungen ist auf die Darstellung der Ablagerung in den Betonplatten verzichtet worden, da die Werte mit unter einem Prozent zu gering sind.







Abb. 3.33 Iod-Verteilung in den ersten drei Wochen nach dem Erdbeben (Block 2)

Eine atmosphärische Freisetzung aus dem SHB kann nicht beobachtet werden; der gesamte Transport scheint mehr oder weniger auf die Fluidphase konzentriert zu sein. Das Wasser aus dem RDB braucht bis ca. 566.000 s, um in der Druckkammer einen ausreichenden Füllstand zu erreichen, damit es zu einem Transfer von hier über die Kondensationsrohre (VLs) in die Kondensationskammer kommt. Währenddessen wird über die Leckage aus dem Torus das hier gelöste Cs in das Untergeschoss des Reaktorgebäudes transportiert (siehe Abb. 3.33). Nach ca. 950.000 s ist der Füllstand im Torus so weit angestiegen, dass sich auch in den VL ein steigender Wasserspiegel ausbildet. Dadurch wird schlagartig das hier abgelagerte Cs in den Torus transportiert. Die andauernde Leckage aus dem Torus in das Reaktorgebäude transportiert immer weiter gelöstes Cäsium in das Reaktorgebäude.

Das Verhalten von lod stellt sich analog dar.

Die Verteilung von Iod und Cäsium drei Wochen nach dem Beginn der Transiente ist in Tab. 3.2 angegeben. Wie zu erkennen ist, hat die längere Rechnung kaum zu weiteren Freisetzungen in die Umgebung geführt; die Ablagerung in den Betonplatten wurde durch die andauernde Freisetzung aus dem SHB sogar reduziert (siehe Abb. 3.35). Zumindest konnte so der Druckverlauf im SHB über die drei Wochen reproduziert werden (siehe Abb. 3.34).



Abb. 3.34 Wasserleckage aus dem Torus in das Reaktorgebäude (Block 2)



Abb. 3.35 Leckage über den Ladedeckel (Block 2)

Die genaue Ursache für die drastische Unterschätzung der Freisetzung über den Ladedeckel konnte derzeit noch nicht abschließend geklärt werden. Ein Versuch mit einer anderen Nodalisierung (eine zusätzliche Ebene innerhalb des SHB) brachte keine Verbesserung, die über ein minimal numerisches Maß hinausging. Zusätzlich bestand in der verwendeten AC²-Version das Problem, dass durch Änderungen am COCOSYS-Datensatz über die Änderung der Zeitpunkte zudem Restartdaten (in beiden Codes simultan) rausgeschrieben werden, Auswirkungen auf die Numerik der Vorgänge im RDB hat. Das heißt, jede Änderung an der Nodalisierung verlangt ein erneutes "Feintuning" der Rechnung.

Tab. 3.2Iod- bzw. Cäsiumverteilung nach drei Wochen bezogen auf das Anfangsin-
ventar (Block 2)

	lod	Cäsium (%)
Druckkammer	17,32	17,71
Kondensationskammer	18,21	15,58
VLs	0,01	0,00
Reaktorgebäude	47,52	36,34
Betonplatten	0,5	0,22
Umgebung	2,72	1,57

Um eine erneute Mobilisierung von Cs zu simulieren, müsste

- entweder im Fall von abgelagerten Spaltprodukten die Strömungsgeschwindigkeit deutlich steigen, was in Anbetracht der großen Querschnittsflächen unrealistisch erscheint
- oder eine Simulation von Spaltprodukten in verschiedenen Wasserfilmen¹⁰ und die Mobilisierung mit der Verdampfung des Wasserfilms wie in der neuen Implementierung von AFP (NewAFP) erfolgen.

Der zweite Ansatz erscheint vielversprechender. Ob eine direkte Umstellung auf NewAFP oder eine diskretere Nodalisierung, die deutlich kleinere Restwassermassen (Sümpfe) in verschiedenen Zonen simuliert, der vielversprechendere Ansatz ist, ist noch nicht abschließend geklärt, besonders da die Arbeiten an NewAFP noch nicht abgeschlossen sind.

¹⁰ AFP simuliert die Spaltprodukte nach der Ablagerung, z. B. durch Kondensation, direkt in den Sumpf der Zone, und erst mit der vollständigen Verdampfung dieses Sumpfes werden die Spaltprodukte wieder mobilisiert.



Abb. 3.36 Druckverlauf im SHB während der ersten drei Wochen

3.2.2 Block 3

Zum Zeitpunkt 0 s erfolgt wie beim Block 2 aufgrund der Beschleunigungen durch das Erdbeben die Schnellabschaltung des Reaktors. Die Nachzerfallsleistung wird durch das RCIC-System und durch intermittierendes Öffnen der S&E-Ventile in die Kondensationskammer abgeführt, bis zum Eintreffen des Tsunamis an der Anlage, wird die Kondensationskammer gekühlt; mit dem Eintreffen des Tsunamis fällt dies System aber leider aus. Das RCIC wurde einmal manuell aktiviert und automatisch gestoppt, als der RDB-Wasserstand bei 2340 s das erwünschte Niveau (siehe Abb. 3.39) erreichte. Fast 50 Minuten nach dem Erdbeben trifft der Tsunami ein. Das Wasser, das in die Turbinenhalle eindringt, zerstört die Notstromdiesel sowie alle anderen AC-Stromversorgungen. Die DC-Stromversorgung des Blocks 3 funktioniert weiterhin, da sie sich im Block 3 an einer höheren Position befindet als im Block 1 und 2.



Abb. 3.37 Verlauf des RDB-Drucks (Block 3)

Da die DC-Stromversorgung im Block 3 verfügbar ist, wird das RCIC bei 4620 s manuell neu gestartet. Der Druck im RDB und das Wasserniveau werden somit durch den "S&E-Ventile / RCIC"-Zyklus gesteuert. Es wurde auch festgestellt, dass Operateure den Füllstand im RDB adjustieren konnten, indem sie die Massenstromeinstellungen der Durchflussregler anpassten, um graduelle Änderungen des Reaktorwasserstands zu ermöglichen. Dadurch werden stabile Füllstände im RDB sichergestellt. Diese Anpassung wurde über eine "Zeit vs. Massenstrom"-Tabelle und den Einsatz eines Multiplikationsfaktors durch ein GCSM-Signal definiert (siehe Abb. 3.38).

Weil der Auslassdruck in der Kondensationskammer 0,29M Pa (Überdruck), d. h. 0,39 MPa(abs), erreicht hat (siehe Abb. 3.40), was auch der eingestellte Wert für die automatische Abschaltung des RCIC-Systems ist, stoppt dies bei 75.000 s. Darüber

hinaus wurde bei einer Untersuchung festgestellt, dass die Verriegelung für das Auslösedrosselventil der RCIC-Turbine (das das RCIC-System auslöst) gelöst worden war und sich das Ventil geschlossen hatte. Bis zur RCIC-Abschaltung (75.000 s) wurde gemessen, dass der Druck der Druckkammer (DK) schneller als erwartet ansteigt. Der Grund für diesen starken Druckanstieg ist immer noch nicht vollständig verstanden (thermische Schichtung des Wassers im Pool? Ein direktes Leck der Umwälzpumpe?); in den meisten Analysen wird mittlerweile aber die thermische Schichtung oder zumindest ein inhomogenes Aufheizen unterstellt, da andere Erklärungsversuche später in der Simulation zu gewissen Problemen führen. Der Anstieg des Drucks in der Kondensationskammer und in der Druckkammer wird bis zum Abschalten des RCIC (75.000 s) gut wiedergegeben.



Abb. 3.38 Wassereinspeisung oder -entnahme über RCIC (oben) und HPCI (unten)



Abb. 3.39 RDB-Füllstand simuliert sowie verfügbare Messwerte (Block 3)



Abb. 3.40 Entwicklung des Drucks in der Kondensations- und Druckkammer (Block 3)



Abb. 3.41 Entwicklung der Fluid-Temperaturen in der Kondensationskammer

Nach dem automatischen Abschalten des RCIC (ab 75.000 s) fängt der RDB-Füllstand an zu sinken (siehe Abb. 3.39). Die dieselbetriebene Feuerlöschpumpe wird bei 76.800 s gestartet, um das Sprühen in der Kondensationskammer zu ermöglichen, da der Druck in der Kondensationskammer aufgrund des Abgasdampfes vom RDB und RCIC gestiegen ist. Das führt dazu, dass der Druck dementsprechend abnimmt. Um eine möglichst gute Übereinstimmung der Ergebnisse mit den Messwerten zu erzielen, wurde der Sprühmassenstrom entsprechend angepasst. Dies kann gerechtfertigt werden, da unbekannt ist, wie effizient die mobilen Pumpen wirklich Wasser zu den entsprechenden Düsenstöcken fördern können. Dampfanteil sowie Temperatur des Fluids im oberen und unteren Teil der Kondensationskammer sind in Abb. 3.41 gezeigt. Als der Füllstand im RDB bei 78.540 s unter eine gewisse niedrige Schwelle fällt, startet die HPCI automatisch. Die Operateure konnten dabei wieder die Massenströme der HPCI steuern, indem sie Durchflussregler verwendet haben. Dadurch konnte ein Überspeisen des RDB / ein zu schnelles Erreichen des Füllstands "hoch" im RDB verhindert werden. Die genauen Aktionen der Operateure sind leider nicht aufgezeichnet (was in Anbetracht der Situation nachvollziehbar ist). Da der Füllstand aber deutlich langsamer steigt, als es mit dem HCPI-System in "Volllast" der Fall wäre, und auch der Druck langsamer fällt, ist davon auszugehen, dass gewisse Eingriffe in den Betrieb stattgefunden haben. In der Simulation wurde die HPCI über eine "Zeit vs. Massenstrom"-Tabelle definiert. Die da eingegebenen Massenströme wurden von TEPCO übermittelt. Der Einsatz eines Multiplikationsfaktors durch ein GCSM-Signal ermöglicht die Adjustierung des Füllstands (siehe Abb. 3.38). Nach dem Start der HPCI fängt der RDB-Druck an, schnell abzunehmen, was wahrscheinlich auf die relativ großen Abmessungen und den Dampfverbrauch der HPCI-Turbine (im Vergleich zur RCIC) zurückzuführen ist, und reicht circa 1 MPa(abs) bei ungefähr 102.000 s. Die gesamte Druckabnahme im RDB wird von der Simulation hervorragend wiedergegeben (siehe Abb. 3.37). Außerdem wird die Druckabnahme, die parallel auch im SHB stattfindet, auch gut wiedergegeben, selbst wenn der Druck in der Simulation im Vergleich zu den Messdaten schneller zu sinken scheint.

Mit dem immer niedrigeren RDB-Druck nimmt auch der Turbinengeschwindigkeit des HPCI-Systems ab. Normalerweise sollte ein "niedriger Dampfversorgungsdruck" von 0,686 MPa (Überdruck) ein automatisches HPCI-Abschalten auslösen. Erstaunlicherweise war der RDB-Druck kurz vor dem manuellen Abschalten auf 0,58 MPa (Überdruck) abgefallen, d. h. es gab kein Signal zum automatischen Abschalten. Die Ursache dafür ist unklar; ein Nachlassen der anliegenden Spannung könnte eine mögliche Erklärung sein. Die Feuerlöschpumpe wird bei ca. 130.740 s vom Kondensationskammer-Sprühen auf die RDB-Wassereinspeisung umgeleitet (d. h. ungefähr 20 min nach HPCI-Abschaltung). Der RDB-Druck fängt dann an zu steigen, da die Versuche, die S&E-Ven-tile manuell zu öffnen, gescheitert sind. Der RDB-Druck steigt schnell über den Feuerlöschpumpen-Förderdruck. Das führt dazu, dass die Einspeisung durch die Feuerlöschpumpe ab diesem Zeitpunkt nicht mehr möglich ist.

Die Messung des RDB-Füllstands wurde bei 107.340 s wegen Stromausfalls unterbrochen und nach Wiederherstellung der Stromversorgung bei 134.040 s wieder aufgenommen. Die Wasserstandsanzeiger im Fuel-Range zeigten einen Füllstand von etwa 2,0 m zur Kernoberkante (siehe Abb. 3.39).

Bei 138.120 s wurde erneut in die Kondensationskammer gesprüht, bei 147.180 s wurde zusätzlich zum Kondensationskammer-Sprühen das Druckkammer-Sprühen eingeleitet (das Sprühen in die Kondensationskammer stoppt bei 147.420 s, d. h. 4 min später), um den Druck in der Kondensations- und Druckkammer zu senken. Bei 150.900 s wird das Kondensationskammer-Entlüftungsventil geöffnet. Von etwa 150.840 s bis 152.640 s wird die Feuerlöschpumpe wiederum vom Druckkammer-Sprühen auf die RDB-Einspeisung umgeschaltet.

Aufgrund des manuellen Abschaltens des HPCI (seit 129.360 s) steigt der RDB-Druck an und erreicht etwa 7,0 MPa(abs) um circa 135.840 s und bleibt etwa 5 Stunden lang auf diesem Wert. Der RDB-Druck sinkt ab 152.040 s abrupt unter 1 MPa(abs), so dass bei 152.520 s der RDB entlastet ist und ein Druckgleichgewicht mit dem SHB erreicht wird. Wahrscheinlich ist das auf das automatische Druckminderungssystem (ADS) zurückzuführen.

Nach der raschen Druckentlastung des RDB wird das Frischwasser von 153.540 s bis 164.040 s aus Feuerwehrfahrzeugen und dann bei 167.160 s aus dem Meer eingespeist.

Die Druckentlastung des RDB (152.520 s) führt dazu, dass der SHB-Druck stark bis 0,7 MPa ansteigt und sogar in der Kondensationskammer den Berstdruck der Berstscheibe übersteigt. Danach nimmt der SHB-Druck bei etwa 153.240 s – 153.500 s ab als Folge des Ventings. Nach dieser schnellen Druckentlastung oszilliert der Füllstand im RDB, nach 162.840 s liegt der Füllstand unterhalb der Kerngitterplatte. Da das Wasser nicht erhitzt wird, verdampft es nicht mehr und der Füllstand bleibt konstant. Dieses Phänomen wird auch in der Simulation beobachtet, obwohl in einem viel niedrigeren Ausmaß (siehe Abb. 3.42). Bei der RDB-Druckentlastung fängt der Druck im SHB (hier in Druckkammer) auch rasch an zu steigen, aber nur bis etwa 0,5 MPa, dann nimmt er sehr langsam zu und stabilisiert sich, während der Druck im RDB da auch um 0,5 MPa ein Plateau erreicht.



Abb. 3.42 Entwicklung des SHB- und RDB-Drucks von 140.000 s bis 252.000 s

Den Messungen zufolge zeigt der RDB-Druck zunächst bei 155.640 s und erneut bei 162.840 s einen starken Anstieg auf mehrere MPa(abs). Diese Anstiege können mit Folgen des Kernzerstörungsprozesses verbunden sein, wie z. B. Schüttungen oder geschmolzenes Material, die ins Wasser herunterfallen, oder aufsteigendes Wasser, das in Kontakt mit heißen Reaktorstrukturen kommt. Während des zweiten Anstiegs steigt der RDB-Druck auf etwa 0,75 MPa(abs). Zu diesem Zeitpunkt ist es wahrscheinlich, dass die S&E-Ventile geschlossen waren, was der Grund für den hohen Druck sein könnte, während die VLs bis 170.040 s offen waren. Außerdem könnte der gleichzeitige Druckanstieg im SHB auf eine Leckage zwischen dem RDB und dem SHB hindeuten. Diese zwei Druckanstiege konnten in der Simulation nicht wiedergegeben werden. Jedoch, wenn man den Kernzustand bei etwa 163.000s (siehe Abb. 3.45) beobachtet, merkt man, dass eine gewisse Menge Material schon geschmolzen ist und auf der Kerngitterplatte liegt. Wegen Rechnungsinstabilitäten musste das Modell für die Schmelzverlagerung in das untere Plenum (MTLP) leider deaktiviert werden, was dazu führt, dass bei diesen Zeitpunkten weder Schüttungen noch Schmelze im unteren Plenum vorhanden sind (d. h., es kann keine thermische Wechselwirkung zwischen heißem Material und

Wasser stattfinden). Darüber hinaus merkt man auch auf Abb. 3.39, dass bei diesen Zeitpunkten der Füllstand im RDB deutlich niedriger als der von den Messdaten ist, was zur Folge hat, dass auch da kein Kontakt zwischen kaltem Wasser und Kernstrukturen möglich ist.

Die Zr-Oxidation startet ab circa 155.000 s, und nach 180.000 s ist ein Plateau um 240 kg Wasserstoff erreicht (siehe Abb. 3.43). Im Vergleich zu den Ergebnissen anderer Codes ist die hier erhaltene Wasserstoffmasse niedriger als erwartet. Absorbermaterial fängt aufgrund eutektischer Reaktion zuerst an zu schmelzen ungefähr bei 157.500 s, ab 160.000 s schmelzen dann auch die Brennstäbe (Zr und UO) (Abb. 3.44).

Bei 245.700 s fand eine Wasserstoffexplosion im Reaktorgebäude vom Block 3 statt. Diese Explosion wurde nicht simuliert. Die Bedingungen dafür sind in der Simulation zumindest schon in einem Raum erfüllt worden. Trotz der niedrigen Wasserstofferzeugung scheint das Luft-Wasserstoff-Dampf-Gemisch in Zone R43 (Reaktorgebäudebereich über dem SHB, siehe Nodalisierung Abb. 3.6) einmal nahe am detonativen Bereich zu liegen (siehe ternäres Diagramm in Abb. 3.46).



Abb. 3.43 Wasserstoffproduktion aufgrund der Zirkonoxidation (Block 3)


Abb. 3.44 Schmelzmasse im Reaktor ab 140.000 s (Block 3)

Wie schon bei der Simulation von Block 2 wird auch hier eine direkte Leckage aus dem RDB in die Druckkammer unterstellt, genauer wurden die entsprechenden temperaturabhängigen Schädigungsmechanismen im Datensatz abgebildet. Bei Erreichen der notwendigen Randbedingungen öffnen sich dann entsprechende Leckage-Pfade. Dadurch kann eine Freisetzung durch Venting oder eine SHB-Leckage deutlich mehr Spaltprodukte mobilisieren, als eine Freisetzung aus der Wasserphase der Kondensationskammer. Die räumliche Verteilung von Cäsium und lod in der Simulation (siehe Abb. 3.47) ab dem Beginn der Kernzerstörung zeigt, dass die Spaltprodukte, die erst aus dem Brennstoff in den RDB freigesetzt sind, dann direkt über ein Leck in die Druckkammer transportiert werden. Wenn man die Abb. 3.48 anschaut, merkt man, dass tatsächlich Ausströmungen über die Instrumentierungsrohre stattfinden (was bedeutet, dass die Rohre wegen einer zu hohen Temperatur beschädigt wurden). Außerdem scheint es kein Leck über die S&E-Ventil-Dichtung zu geben, deshalb ist der Anteil von Spaltprodukten, die in die Kondensationskammer und danach in die Umgebung über das "Venting" transportiert werden sollten, vernachlässigbar. Da in Block 3 die Leckage des SHB sehr gering ist, ist es zu erwarten, dass auch der Anteil von Spaltprodukten im Reaktorgebäude vernachlässigbar ist.



Abb. 3.45 Kernschaden bei 163.000 s (oben) und 189.300 s (unten) (Block 3)



Abb. 3.46 Ternäres Diagramm für Wasserstoffexplosion im Reaktorgebäude über den SHB, kurz vor dem Explosionszeitpunkt



Abb. 3.47 Cäsium- und lodverteilung ab dem Beginn der Kernszerstörung



Abb. 3.48 Ausströmrate durch die Instrumentierungsrohre (SRM 1, 2 und 3) und S&E-Ventil-Dichtung (SRV)

4 AP 2: Arbeiten zur Rückrechnung des Quellterms im OECD/NEA Projekt ARC-F

4.1 Aufgabenstellung

Im Forschungsvorhaben RS1534 begleitend zum OECD/NEA Projekt BSAF /SON 18/ wurde eine Methode zur Rückrechnung von verfügbaren radiologischen Messdaten auf dem Anlagengelände und in seiner näheren Umgebung auf die Freisetzung von Spaltprodukten aus den drei havarierten Blöcken des KKW Fukushima Daiichi (Quellterm) entwickelt und erfolgreich auf die ersten zwei Wochen des Unfallablaufs angewendet. Die Methode basiert auf der optimierten Anpassung der Nuklidzusammensetzung aus Messwerten und rechnerisch ermittelten Beiträgen kurzlebiger Nuklide und Edelgase an gemessene Verläufe der Ortsdosisleistung und anschließender Rückrechnung auf den Quellterm durch die Invertierung der Beziehungsgleichung zwischen Freisetzung, Ausbreitung und Gammasubmersion am jeweiligen Messort. Die hierfür erforderlichen Ausbreitungsparameter wurden mittels zahlreicher Modellsimulationen mit dem Modellsystem ARTM ermittelt /RIC 20/. In die Rekonstruktion des Quellterms wurden erstmals auch die auf dem Anlagengelände gemessenen Verläufe der Ortsdosisleistung (ODL) einbezogen. Diese lassen sich nur dann sinnvoll interpretieren, wenn Beiträge kurzlebiger Nuklide, insbesondere von I-132, im abgelagerten Nuklidgemisch berücksichtigt werden.

Im Vergleich mit dem mittels des japanischen Modellsystems WSPEEDI (**W**orldwide version of **S**ystem for **P**rediction of **E**nvironmental **E**mergency **D**ose Information) ermittelten Quellterm /KAT 15/ ergibt sich eine bemerkenswert genaue Übereinstimmung. Durch die Verwendung der ODL-Messungen auf dem Anlagengelände wurde im Vergleich mit dem WSPEEDI-Quellterm eine hohe zeitliche Auflösung des Quellterms erzielt. Allerdings werden mit den verfügbaren ODL-Daten der GRS keine Freisetzungen, die sich über das Meer ausbreiten, erfasst. Diese Datenlücken wurden durch Ergebnisse des WSPEEDI-Quellterms ergänzt. Der so kombinierte Quellterm wurde den Teilnehmern des OECD/NEA Projektes BSAF als Datenbasis für die Evaluierung der Freisetzung von Spaltprodukten aus der Anlage, die mit anlagentechnischen Unfallanalysen berechnet wurden, zur Verfügung gestellt.

Eine Validierung der im Rahmen des OECD/NEA Projektes BSAF entwickelten Methodik zur Rückrechnung des Quellterms aus radiologischen Messdaten erfolgte exemplarisch durch den Vergleich gemessener mit der auf Basis des Quellterms berechneter ODL- Verläufe an acht Messpunkten /SON 18/. Gegenüber der überraschend guten Übereinstimmung mit dem WSPEEDI-Quellterm zeigt die Validierung mittels ODL-Vergleich bei generell qualitativ ähnlichen Verläufen zwischen gemessener und berechneter ODL an einzelnen Messpunkten stärkere Abweichungen. Die Vermutung liegt nahe, dass derartige Abweichungen durch das Verfahren der Quelltermberechnung auf der Basis von möglichst vielen verfügbaren ODL-Messpunkten tendenziell ausgeglichen werden. Dieser Effekt ist bislang nicht quantitativ untersucht worden.

Im AP 2 wurden Unsicherheiten der Quelltermberechnung nach der im Vorläufervorhaben entwickelten Methode zur Rückrechnung des Quellterms aus radiologischen Messdaten (im Folgenden als "GRS-Methode" bezeichnet) quantifiziert. Fehlerquellen wurden ermittelt, eingegrenzt und, soweit möglich, korrigiert. Auf dieser Basis wurde der mit der GRS-Methode berechnete Quellterm präzisiert. Die Arbeiten gliedern sich in die Quantifizierung von Unsicherheiten und den Abgleich mit anlagentechnischen Informationen zum Unfallablauf (AP 2.1) und die Verbesserung der Quelltermberechnung auf Basis der vertieften Analyse und erweiterten Nutzung von Mess- und Modelldaten (AP 2.2).

Im AP 2.1 wurden die Unsicherheiten der GRS-Methode zur Quelltermermittlung analysiert und, soweit möglich, quantifiziert. Die Analyse bestimmt im Rahmen der verwendeten Modellansätze die Fehlerbandbreite bezüglich der berechneten Spaltproduktfreisetzungen, die sich durch Ungenauigkeiten in den zur Berechnung der Ausbreitung und Deposition verwendeten Eingangsdaten und Modellparametern ergeben. In die Analyse wurden auch mögliche Einflussfaktoren, die auf der mikrophysikalischen und chemischen Form der aus der Anlage freigesetzten Spaltprodukte beruhen, einbezogen. Zusätzlich wurden die bisherigen Berechnungen detailliert auf Konsistenz mit verfügbaren anlageninternen Informationen zum Unfallablauf sowie mit gesicherten Erkenntnissen der anlagentechnischen Unfallanalysen untersucht.

Die Analyse aus AP 2.1 wurde durch exemplarische Berechnungen mit verfügbaren anderen Modelldaten zur Strömung und Ausbreitung sowie durch die vertiefte Auswertung verfügbarer Messdaten und geeigneter zusätzlicher Datensätze, die im Rahmen von ARC-F bereitgestellt wurden, ergänzt. Darauf aufbauend werden die Daten, Parameter und Modellansätze, die den größten Einfluss auf die Quelltermermittlung haben, identifiziert. In Abstimmung mit den Aktivitäten im OECD/NEA-Projekt ARC-F zur Bereitstellung zusätzlicher Datensätze wurden diese Daten, Parameter und Modellansätze gezielt ergänzt und präzisiert. Auf dieser Basis wurde eine Quelltermberechnung mit verbesserter Genauigkeit und unter Ausweisung der Unsicherheiten vorgenommen. Die Arbeiten gliedern sich in die folgenden Bereiche:

- Berechnung der Dispersion und Deposition mit alternativen Modellansätzen: Strömungsantriebe aus den im OECD/NEA-Projekt BSAF 2 von Sandia National Laboratories (SNL) durchgeführten und Vorwärtsrechnungen zur atmosphärischen Dispersion und Deposition von Spaltprodukten wurden genutzt, um die für die Rückrechnung benötigten Ausbreitungs- und Depositionsparameter auf einer anderen Modellbasis als der bisher verwendeten zu bestimmen. Mit diesen alternativen Modelldatensätzen wurde die Quelltermermittlung wiederholt und mit den bislang erzielten Ergebnissen verglichen.
- Vertiefte Analyse gemessener Radionuklidkonzentrationen: Auf dem Gelände der JAEA in Tokai-Mura, ca. 120 km südlich des Unfallortes wurden ab dem 15.03.2011 nuklidspezifische Messungen der Luftkonzentration insbesondere von Cs-134 und Cs-137 sowie I-131, I-132 und I-133 durchgeführt /JAEA 12/, die bereits im OECD/NEA-Projekt BSAF 2 zur Untersuchung des Verhältnisses zwischen I-131 und I-132 herangezogen wurden. Diese Auswertung wurde systematisch auf alle gemessenen Nuklide sowie auf die chemische Zusammensetzung der gemessenen Iodisotope ausgeweitet, um umfassende Rückschlüsse auf Freisetzungs-, Ausbreitungs- und Ablagerungsmechanismen zu ermöglichen.
- Verbesserte Quelltermbestimmung: Die Ergebnisse der vorgenannten Arbeitspunkte wurden zur Verbesserung der Modellansätze und -parameter sowie zur Korrektur der Ergänzung der verwendeten Eingangsdaten genutzt. Auf dieser Basis wurde der Quellterm mit verbesserter Genauigkeit und unter Ausweisung der Fehlerbandbreiten und Unsicherheiten neu berechnet und nach dem bewährten Verfahren mit WSPEEDI-Ergebnissen ergänzt. Damit wurde den Projektpartnern ein präzisierter Quellterm zur Verfügung gestellt.

4.2 Daten und Methoden

4.2.1 Überblick über verwendete Daten

4.2.1.1 Messungen der spezifischen Aktivität im Boden

Messungen der spezifischen Aktivität im Boden werden zur Bestimmung der Nuklidzusammensetzung herangezogen. Gammaspektrometrische Auswertungen von Bodenproben auf dem Anlagengelände liegen ab dem 21.03.2011 für einen vergleichsweise umfangreichen Nuklidvektor vor. Für die vorliegenden Untersuchungen wurden acht Proben aus dem Zeitraum 21.03. – 25.03.2011 benutzt, die in /TEP 11/ dokumentiert sind. Ort und Datum der Probenahme sind in Tab. 4.1 zusammengefasst.

Ortsbezeichnung der Probe in /TEP 11/	Richtung und Entfernung zum Kamin Block 1/2	Datum der Probenahme
X5	N 500 m	22.03.2011
X4	N 1000 m	25.03.2011
X1	WNW 500 m	21.03.2011
X2	W 500 m	25.03.2011
X3	SSW 500 m	25.03.2011
X6	SSW 500 m	22.03.2011
X7	SSW 750 m	22.03.2011
X8	SSW 1000 m	22.03.2011

Tab. 4.1Lage und Datum der herangezogenen Proben der spezifischen Aktivität im
Boden auf dem Gelände das KKW Fukushima Daiichi

Zur weiteren Untersuchung der räumlichen Verteilung von I-131 und Cs-137 in der Umgebung des KKW Fukushima Daiichi wurden Messdaten der spezifischen Aktivität dieser Nuklide im Boden herangezogen, ab Mitte März 2011 bis April 2013 an zahlreichen Messpunkten regelmäßig vom Ministry of Education, Culture, Sports Science and Technology (MEXT) aktualisiert und veröffentlicht. Diese Arbeiten werden seitdem von der japanischen Nuclear Regulation Authority (NRA) bereitgestellt und weitergeführt. Nuklidspezifische Messungen der Bodenkontamination (hauptsächlich I-131, Cs-134 und Cs-137) liegen etwa ab dem 21.03.2011 vor. Zur weiteren Analyse der Bodenkontamination in der Umgebung wurden die Messpunkte herangezogen, für die mindestens eine Messung der Bodenkontamination im März, April oder Anfang Mai 2011 vorliegt. Die Auswertung erstreckt sich auf den Zeitraum März bis Anfang Mai 2011. Die Lage ist in Tab. 4.2 zusammengefasst.

Tab. 4.2Lage und Zeitraum der herangezogenen Proben der spezifischen Aktivität
im Boden von Cs-137 und I-131 in der Umgebung des KKW Fukushima
Daiichi

Messpunkt	Richtung/ Entfernung zum KKW Fukushima Daiichi	Zeitraum der Probenahme	Anzahl Proben
MP 6	N; 32 km	25.03.2011 – 28.04.2011	29
MP 7	NNW; 32 km	25.03.2011 - 30.04.2011	17

Messpunkt	Richtung/ Entfernung zum KKW Fukushima Daiichi	Zeitraum der Probenahme	Anzahl Proben
MP 5	NNW; 42 km	25.03.2011 – 28.03.2011	4
MP 32	NW; 31 km	25.03.2011 – 27.04.2011	29
MP 33	NW; 33 km	23.03.2011 – 27.04.2011	30
MP 3	NW; 46 km	31.03.2011 - 02.04.2011	3
MP 4	NW; 47 km	23.03.2011 – 23.03.2011	1
MP 2	NW; 56 km	31.03.2011 - 02.04.2011	4
MP 34	WNW; 30 km	23.03.2011 – 23.03.2011	1
MP 31	WNW; 30 km	25.03.2011 – 27.04.2011	29
MP 21	WNW; 32 km	23.03.2011 - 30.04.2011	21
MP 36	WNW; 40 km	25.03.2011 – 30.04.2011	28
MP 11	WNW; 43 km	23.03.2011 – 23.03.2011	1
MP 15	W; 32 km	23.03.2011 – 24.04.2011	12
A13	WSW; 2 km	01.05.2011 - 01.05.2011	1
41	WSW; 4 km	29.04.2011 – 29.04.2011	1
6	SSW; 4 km	30.04.2011 - 30.04.2011	1
MP 71	S; 23 km	23.03.2011 - 30.04.2011	16
MP 72	S; 31 km	31.03.2011 - 04.04.2011	4
MP 73	S; 35 km	31.03.2011 - 04.04.2011	4

4.2.2 Messungen der Ortdosisleistung

Anlagengelände

Messungen der Ortsdosisleistung auf dem Anlagengelände des KKW Fukushima Daiichi werden regelmäßig durch den Betreiber Tokio Electric Power Company (TEPCO) veröffentlicht. Die Messdaten zur Ortsdosisleistung (ODL) auf dem Anlagengelände werden durch den Betreiber TEPCO ermittelt und regelmäßig veröffentlicht /TEP 18/. Die Messpunkte sind in Abb. 2.2 wiedergegeben. Durch den Verlust der externen Stromversorgung am 11.03.2011 waren nach Aussagen von TEPCO keine automatisierten Messungen an den vorgesehenen Messpunkten auf dem Anlagengelände möglich. Diese waren erst nach Wiederherstellung der Stromversorgung verfügbar, die ab dem 25.03.2011 erfolgte. Als Ersatz wurden vom Betreiber mobile Messstationen verwendet, die im Verlauf des Unfallgeschehens mehrfach ihre Position wechselten. In der Folge liegen keine zeitlich vollständigen Datenreihen für alle Messstellen vor. Am 28.05.2011 stellte TEPCO weitere, bis zu diesem Zeitpunkt unveröffentlichte Messwerte für den Zeitraum vom 11. bis 17.03.2011 zur Verfügung. Alle verfügbaren Daten wurden während und nach dem

Unfall durch die GRS gesammelt, digitalisiert und aktualisiert. Die Auswertungen in den vorliegenden Untersuchungen beruhen auf dieser Datenbasis der GRS.

Aus den verfügbaren Messpunkten wurden diejenigen ausgewählt, die im März 2011 eine ausreichende Datenbedeckung für die in Abschnitt 4.2 erläuterte Analyse aufweisen.

Umgebung

In der Umgebung des KKW Fukushima Daiichi liegen Messdaten der Ortsdosisleistung an folgenden Stationen vor:

- KKW Fukushima Daini: Die Messdaten zur Ortsdosisleistung (ODL) auf dem Anlagengelände des KKW Fukushima Daini werden durch den Betreiber TEPCO ermittelt und regelmäßig veröffentlicht /TEP 18a/. Durch die GRS wurde die Messreihe der ODL am MP4 noch während des Unfallablaufs digitalisiert und entsprechend dem jeweiligen Informationsstand korrigiert und fortgeschrieben. Sie wird für die vorliegenden Untersuchungen verwendet.
- Station Oono: An der automatischen Station Oono, die ca. 5 km westsüdwestlich des KKW Fukushima Daiichi liegt, wurden bis zum Nachmittag des 16. März 2011 in zeitlich hoher Auflösung (2 min) ODL- und Wetterdaten registriert. Diese Daten wurden seitens der OECD/NEA für das BSAF-2-Vorhaben zur Verfügung gestellt /OECD 15/.
- Weitere Stationen in der Umgebung: Seitens der OECD/NEA wurde f
 ür das BSAF-2-Vorhaben ein Datensatz von weiteren ODL-Messungen an insgesamt 26 Messpunkten (inkl. der Station Oono) in der Umgebung des KKW Fukushima zur Verf
 ügung gestellt /OECD 16/. Die Daten liegen in st
 ündlicher Auflösung vor und wurden bei ausreichender Datenabdeckung zur Quelltermrekonstruktion benutzt.

Die Lage aller Messpunkte ist in Abb. 4.1 wiedergegeben. Tab. 4.3 fasst die Eigenschaften der zur Quelltermrekonstruktion verwendeten ODL-Messpunkte zusammen.



Abb. 4.1 Überblick über die Lage der verschiedenen Messpunkte zur Ortsdosisleistung

Links: Am Standort des KKW Fukushima Daiichi. Rechts: In der Umgebung, Grafik basierend auf /OECD 16/. Rot: Zur Rekonstruktion verwendet.

Tab. 4.3Messpunkte der Ortsdosisleistung, die für die Rekonstruktion des Quell-
terms verwendet wurden

Beobachtungspunkt	Richtung und Ent- fernung zum Kamin Block 1/2	Verwendeter Messzeitraum	Zeitl. Auflö- sung
Kiyohashi	N; 8,2 km	12.03. 00:00 – 14.03. 16:00	1 h
Fukushima I KKW, MP 1	N; 1,7 km	12.03. 11:30 – 13.03. 18:00	10 min
Namie	NNW; 8,6 km	12.03. 00:00 – 25.03. 24:00	1 h
Fukushima I KKW, MP Hauptgeb. Nord	NNW; 0,35 km	17.03. 09:40 – 21.03. 16:30	10 min
Fukushima I KKW, MP 4	NW; 1,1 km	12.03. 15:20 – 14.03. 11:10	aggregiert auf 10 min
Yamada	WNW, 4,1 km	12.03. 00:00 – 25.03. 24:00	1 h
Fukushima I KKW, MP Hauptgeb. Süd	WNW; 0,29 km	17.03. 09:40 – 25.03. 24:00	10 min
Oono	WSW, 4,9 km	12.03. 00:00 – 16.03. 16:40	aggregiert auf 10 min
Fukushima I KKW, MP Haupttor	WSW; 0,9 km	12.03. 00:00 - 16.03. 16:20 21.03. 16:50 - 25.03. 24:00	10 min

Beobachtungspunkt	Richtung und Ent- fernung zum Kamin Block 1/2	Verwendeter Messzeitraum	Zeitl. Auflö- sung
Yonomori	SSW; 7,3 km	12.03. 00:00 – 15.03. 19:00	1 h
Shoukan	SSW; 14,2 km	12.03. 00:00 – 25.03. 24:00	1 h
Yamadoaka	S 18,7 km	12.03. 00:00 – 25.03. 24:00	1 h
Fukushima I KKW, MP 8	S; 1,2 km	12.03. 03:40 – 13.03. 07:30	10 min
Fukushima II KKW, MP 4	S; 12 km	12.03. 00:00 – 25.03. 24:00	10 min

4.2.2.1 Messungen der Luftkonzentration

Für die vorliegenden Untersuchungen wurden nuklidspezifische Messungen der Luftkonzentration analysiert, die zwischen dem 15.03.2011 und dem 21.03.2011 durch die Japan Atomic Energy Agency (JAEA) in Tokai-Mura (ca. 120 km südlich des KKW Fukushima Daiichi) durchgeführt und ausgewertet wurden /JAEA 12/. Auf dem Gelände wurden ab dem 15.03.2011 nuklidspezifische Messungen der Luftkonzentration insbesondere von Cs-134 und Cs-137, Te-132 sowie I-131, I-132 und I-133 durchgeführt, die bereits im Vorläufervorhaben zur Untersuchung des Verhältnisses zwischen I-131 und I-132 herangezogen wurden. Diese Untersuchungen beschränkten sich auf den 15.03.2011, da die Daten in diesem Zeitraum nicht zerfallskorrigiert sind. Auf weitere, nach dem 15.03.2011 ausgewertete Luftproben, die in /JAEA 12/ veröffentlicht sind, wurde eine Korrekturmethode angewendet, die sich systematisch auf die gemessenen Nuklidverhältnisse auswirkt. Da die ansonsten nicht näher beschriebenen Korrekturen auf Gleichgewichtsannahmen zwischen I-132 und Te-132 beruhen, deren Gültigkeit anhand dieser Daten somit nicht überprüfbar ist, wurden im Vorläufervorhaben Daten aus /JAEA 12/ nur für den 15.03.2011 verwendet.

Um diese Auswertung systematisch auf weitere Zeiträume sowie alle gemessenen Nuklide und die chemische Zusammensetzung der gemessenen Iodisotope ausweiten zu können, wurden seitens JAEA im Rahmen des ARC-F-Projekts Messdaten der Ortsdosisleistung, die gegenüber den bislang genutzten Datensätzen mit 10 Minuten Messintervall statt 30 Minuten zeitlich höher aufgelöst sind, sowie Zusatzinformationen zur Zerfallskorrektur der Luftkonzentration bereitgestellt. Mit diesen Erweiterungen ist eine Einbeziehung von Messdaten bis zum 21.03.2011 möglich. Danach erfolgte ein Wechsel des Messinstruments mit einer deutlichen Verlängerung des Probenahmezeitraums von 20 Minuten auf 12 Stunden /JAEA 12/. Aufgrund der entsprechend niedrigeren zeitlichen Auflösung sind die Daten nach dem Wechsel des Messinstruments nicht ohne weiteres für die vorliegenden Untersuchungen nutzbar.

4.2.3 Wetterdaten

Wetterdaten am Standort des KKW Fukushima Daiichi werden durch den Betreiber TEPCO ermittelt und regelmäßig veröffentlicht /TEP 18/. Es werden Windrichtung, Windgeschwindigkeit sowie qualitative Angaben zu Niederschlag. Wetterdaten wurden analog zu den ODL-Messungen Daten wurden während des Unfallablaufs durch die GRS gesammelt, digitalisiert und aktualisiert. Die Auswertungen der Wetterdaten in den vorliegenden Untersuchungen beruhen wiederum auf dieser Datenbasis der GRS.

Niederschlagsinformationen wurden in Zweifelsfällen durch Radarbeobachtungen ergänzt, die als Grafiken im Internet veröffentlicht sind /NII 11/. Zusätzlich liegen bis zum 16.03.2011, 16:44 Uhr Informationen zu Windrichtung, Windgeschwindigkeit und Niederschlag an der Station Oono mit einer zeitlichen Auflösung von 2 Minuten vor, die auf 10 Minuten Zeitauflösung aggregiert wurden.

Seitens SNL wurden Zeitreihen der modellierten meteorologischen Parameter als Punktdaten am Standort des KKW Fukushima 1 bereitgestellt, die aus drei unterschiedlichen Ausbreitungssimulationen von SNL, die für das Vorhaben BSAF 2 durchgeführt wurden, entnommen sind. Die entsprechenden Charakteristika der Strömungsmodelle sind in Tab. 4.4 zusammengefasst.

Die meteorologischen Daten umfassen Stundenwerte von Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Schichtung (d. h. statischer Stabilitätsklasse) und Niederschlag in Bodennähe (10 m über Grund).

Modell	Räumliche Auflösung	Zeitliche Auflösung	Assimilation von Beobachtungsdaten
GDAS	0,5° (ca. 32 km)	3 std	nein
WRF 2014	4 km	20 min	nein
WRF 2017	4 km	5 min	ja

Tab. 4.4	Modellsimulationen, die den meteorologischen Antriebsdaten von SNL zu-
	grunde liegen

4.2.4 Reaktorinventare

Die Kerninventare der Blöcke 1 – 3 wurden durch JAEA berechnet und veröffentlicht /JAEA 12a/. Die Reaktorinventare sind digital im Internet verfügbar und wurden in dieser Form als Grundlage für die vorliegenden Untersuchungen genutzt.

4.3 Überblick über das Verfahren zur Quelltermrückrechnung in der Grundversion

Im Folgenden wird die Grundversion des Rückrechnungsverfahrens beschrieben, die im Vorläufervorhaben erarbeitet wurde. Die Erläuterungen beschränken sich auf die Aspekte, die für das Verständnis der in diesem Bericht dargestellten Arbeiten wesentlich sind. Eine ausführliche Gesamtdarstellung ist /SON 18/ zu entnehmen.

Das Verfahren zur Rückrechnung von radiologischen Messungen ist eng auf die Verfügbarkeit von Messdaten im Zeitraum der heftigsten unkontrollierten Freisetzungen aus dem Kernkraftwerk Fukushima Daiichi (12. – 25.03.2011) abgestimmt. Die Vorgehensweise ist schematisch in Abb. 4.2 dargestellt.



Abb. 4.2 Methode zur Rekonstruktion der Freisetzung von Radionukliden aus einer Anlage basierend auf gemessenen örtlichen Dosisleistungen auf dem Gelände und in der näheren Umgebung Das Verfahren verfolgt in drei Schritten die Prozesskette zurück, die aufgrund der Freisetzung radioaktiver Stoffe zu einer erhöhten Ortdosisleistung (ODL) führt. Dabei ist zu berücksichtigen, dass im fraglichen Zeitraum nur für die Messgrößen Ortdosisleistung, spezifische Bodenaktivität und Windrichtung/Windgeschwindigkeit tatsächlich quantitative Messungen verfügbar sind. Zusätzlich sind noch qualitative Informationen über Niederschlag am Freisetzungsort verwendbar. Die Oberflächenkontamination und Luftkonzentration radioaktiver Stoffe am Ort der ODL-Messung müssen hingegen ebenso durch das Verfahren ermittelt werden wie die Freisetzung radioaktiver Stoffe aus der Anlage in die Umgebung. Zu diesem Zweck müssen die Prozesse der Ablagerung radioaktiver Stoffe auf dem Boden und der Ausbreitung radioaktiver Stoffe mit Luft modelliert werden. Das Verfahren gliedert sich in die folgenden Schritte:

• Schritt 1: Von der Ortsdosisleistung zur Oberflächenkontamination

Zunächst wird an einem Beobachtungsort aus der gemessenen Ortsdosisleistung die nuklidspezifische Oberflächenkontamination abgeschätzt. Für diesen Zweck ist eine realitätsnahe Aufteilung der gemessenen Ortsdosisleistung in Bodenstrahlung und Wolkenstrahlung erforderlich. Die Schätzung der nuklidspezifischen Oberflächenkontamination erfolgt dann nach Ende jeder Depositionsphase mittels der Bodenstrahlung und nuklidspezifischen Messungen der massenspezifischen Aktivität im Boden.

• Schritt 2: Von der Oberflächenkontamination zur Luftkonzentration

Die Schätzung der Luftkonzentration abgelagerter Nuklide (Iod, Aerosole) erfolgt mittels der in Schritt 1 abgeschätzten nuklidspezifischen Oberflächenkontamination. Dabei wird auf Basis vorhandener Niederschlagsinformationen zwischen trockener oder nasser Deposition unterschieden. Die Edelgaskonzentration wird als Residuum aus der Differenz zwischen gemessener und durch Iod/Aerosolkonzentration ermittelter Wolkenstrahlung abgeschätzt. Dieser Schritt ist erforderlich, da in den Hauptfreisetzungsphasen keine Messungen der Luftkonzentration verfügbar sind.

• Schritt 3: Von der Luftkonzentration und der Wolkenstrahlung zum Quellterm

Der Quellterm wird durch Rückwärtsrechnungen aus der Wolkenstrahlung unter Berücksichtigung der nuklidspezifischen Luftkonzentration quantifiziert. Dazu werden die Relativbeiträge der berechneten Nuklidkonzentrationen in der Luft zur Wolkenstrahlung betrachtet. Für ein ausgewähltes Referenznuklid wird die Beziehung zwischen dem Beitrag dieses Nuklids zur Wolkenstrahlung am Beobachtungsort und der zuvor erfolgten Freisetzung dieses Nuklids ausgewertet. Aus dem so ermittelten Quellterm für das Referenznuklid werden die Freisetzungen der anderen betrachteten Nuklide über die zerfallskorrigierten Relativanteile in der Luftkonzentration ermittelt. Als Referenznuklid wird Cs-137 betrachtet, da die Beziehung zwischen Wolkenstrahlung und Freisetzung für Cs-137 praktisch nicht durch den radioaktiven Zerfall beeinflusst wird.

Die Beziehung zwischen der Wolkenstrahlung, die durch ein Radionuklid an einem bestimmten Ort verursacht wird, und den zuvor erfolgten Freisetzungen dieses Nuklides bildet den Kern des Rückrechnungs-Verfahrens. Diese Beziehung wird in Abb. 4.3 veranschaulicht.



Abb. 4.3 Grundlegende Beziehung zwischen Wolkenstrahlung an einem gegebenen Beobachtungsort (x_I, y_I) und Freisetzung an einem Freisetzungsort (x_0, y_0)

Die Wolkenstrahlung, die ein Messinstrument an einem Beobachtungsort (x_i , y_i) zum Zeitpunkt t_k misst, setzt sich aus verschiedenen Raumbereichen einer vorbeiziehenden radioaktiven Wolke zusammen, die ihrerseits verschiedenen Zeitpunkten $t_j \le t_k$ der Freisetzung am Ort (x_{0} , y_0) zugeordnet werden können. Dabei entspricht der in Ausbreitungsrichtung vorne liegende Teil der Wolke älteren Freisetzungen als die weiter hinten liegenden Bereiche.

Liegt am Beobachtungsort *i* eine Messreihe der ODL vor, aus der sich die Wolkenstrahlung $h(x_k, y_k, t_k) =: (h_k)_i$ in Sv/s an k=1, ..., NZeitpunkten rekonstruieren lässt, und nimmt man an, die Wolkenstrahlung wird von einem einzigen Nuklid verursacht, dessen Halbwertszeit groß gegen den Freisetzungszeitraum ist, so lässt sich dieser Sachverhalt durch folgende Beziehung ausdrücken:

$$(h_k)_i = \sum_{j=1}^k (\chi_{k,j})_i \cdot g_{\gamma} \frac{(Q_j)_i}{\Delta t}; \ k = 1, \dots, N$$
(4.1)

Dabei bedeuten Q_j die Freisetzungsmenge in Bq im Zeitintervall $[t_{j-1}; t_j]$ und $\chi_{k,j}$ den nuklidbezogenen Gammasubmersionsfaktor in s/m² für eine Radionuklidwolke, deren Strahlung im Zeitintervall $[t_{k-1}; t_k]$ gemessen wird und die im Zeitintervall $[t_{j-1}; t_j]$ freigesetzt wurde, wobei Δt die Länge des Zeitintervalls in s bedeutet. g_{γ} bezeichnet den nuklidbezogenen Dosisleistungskoeffizienten bzgl. der effektiven Dosis für Gammasubmersion in Sv·m²/Bq/s nach /BANZ 01/. Das Gleichungssystem lässt sich mit der abkürzenden Schreibweise $q_j := g_{\gamma} \frac{Q_j}{\Delta t}$ für einen einzelnen Messpunkt allgemein wie folgt in Matrixform ausdrücken:

$$\underline{h} = \mathbf{X} \cdot q \tag{4.2}$$

Dabei bilden h_k ; k=1, ..., N und q_j ; j=1, ..., N die Einträge der Vektoren <u>h</u> und <u>q</u>. Der Ortsindex wurde zur Übersichtlichkeit weggelassen. X ist eine NxN-Matrix in unterer Dreiecksform, die sich aus den Einträgen $\chi_{k,j}$ (= 0 falls j > k) zusammensetzt und im Folgenden als Einflussmatrix bezeichnet wird.

Aufgrund der unteren Dreiecksform ist das System $\underline{h} = X \cdot \underline{q}$ mathematisch eindeutig lösbar. Die mathematisch exakte Lösung ist allerdings aufgrund von Mess- und Modellfehlern, Datenlücken und sonstigen Beschränkungen in der Genauigkeit der Bestimmung von X und \underline{h} i. d. R. physikalisch nicht sinnvoll, da negative Einträge in \underline{q} ("negative Freisetzungen") und physikalisch sinnlose Schwingungslösungen auftreten können. Deswegen wird das System mit der Nebenbedingung $q_j \ge 0$ für alle Zeitpunkte t_j als Minimierungsproblem nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate formuliert:

$$\left|\underline{h} - \mathbf{X} \cdot \underline{q}\right|^2 = \min; q_j \ge 0 \ f \ddot{\mathbf{u}} r \ j = 1, \dots, N$$
(4.3)

Dieses Minimierungsproblem wird für den Relativbeitrag von Cs-137 zur Wolkenstrahlung unter Verwendung des "Non-Negative Least Square Fit"-Algorithmus /LAW 74/ gelöst. Die Rekonstruktion des Quellterms für ein Ensemble von ODL-Messpunkten erfolgt durch gewichtete Mittelbildung über die an den jeweiligen Stationen ermittelten Quelltermen. Dazu wird die quadratische Norm der Spaltenvektoren der Einflussmatrix an der jeweiligen Station herangezogen. Bei i = 1, ..., Min die Analyse einbezogenen Messpunkten werden die Gewichte für jeden Emissionszeitpunkt t_i wie folgt bestimmt:

Daraus ergibt sich als gewichteter Quellterm Q_j^{ens} für das Ensemble von ODL-Messpunkten im Intervall $[t_{j-1}; t_j]$ aus den für jeden Messpunkt einzeln ermittelten Quelltermabschätzungen $(Q_j)_i$:

$$Q_{j}^{ens} = \sum_{i=1}^{M} (w_{j})_{i} (Q_{j})_{i}$$
(4.5)

Falls für alle Messpunkte i = 1, ..., M die Gewichte $(w_j)_i = 0$, sind, bedeutet dies, dass für das Zeitintervall $[t_{j-1}, t_j]$ mit den verfügbaren Messdaten kein Quellterm rekonstruiert werden kann. Dadurch werden auch die Zeitfenster, in denen der Quellterm auf Basis des gewählten Ensembles von Messpunkten rekonstruierbar ist, festgelegt.

Für die Berechnung der Gammasubmersion wird das atmosphärische Radionuklid Transportmodell ARTM /RIC 15a/, /RIC 15b/, /RIC 15c/, /RIC 20/ verwendet. Bei ARTM handelt es sich um ein Lagrange'sches Partikelmodell, das auf dem Ausbreitungsmodell für konventionelle Luftschadstoffe AUSTAL2000 /UBA 16/ basiert. ARTM steht als Open-Source-Programm zum freien Download zur Verfügung /BFS 17/. Zusätzlich zu den bereits in AUSTAL2000 modellierten Prozessen werden in ARTM die nasse Deposition, der radioaktive Zerfall sowie die Wolkenstrahlung (Gammasubmersion) simuliert.

Der meteorologische Input für die Ausbreitungsrechnung kann unter anderem über eine meteorologische Zeitreihe vorgegeben werden. Diese entspricht den Messungen der Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Regenrate und der atmosphärischen Stabilitätsklasse, welche ein Maß für die Turbulenz in der Atmosphäre darstellt, an einem Punkt im Simulationsgebiet, der möglichst repräsentativ für die ungestörte Anströmung des Windes zum Emissionsort ist. Um ein Wind- und Turbulenzfeld für das gesamte Simulationsgebiet zu erhalten, werden entweder Profile verwendet, die horizontal homogen die Ausbreitungsbedingungen vorgeben, oder es wird das massenkonsistente diagnostische Windfeldmodell TALdia /JAN 04/ verwendet. Bei Einsatz von TALdia werden Einflüsse des Geländes auf das Strömungsfeld berücksichtigt. Die Rechenzeit verlängert sich entsprechend.

4.4 Vereinfachte Version des Rückrechnungsverfahrens für Sensitivitätsanalysen und Variationsrechnungen

Das Berechnungsverfahren erfordert für jedes Emissionsintervall eine eigene Ausbreitungsrechnung. Bei einem Beobachtungszeitrum von etwa zwei Wochen und bei einer zeitlichen Auflösung von 10 Minuten sind zur Quelltermrückrechung daher ca. 2300 einzelne Ausbreitungsrechnungen erforderlich, die in der Grundversion des Verfahrens mit ARTM, angetrieben durch das massenkonsistente Strömungsmodell TALdia, durchgeführt werden. Der Rechenzeitaufwand beträgt auf Standard-Arbeitsplatzrechnern einige Tage.

Um die Empfindlichkeit der Rückwärtsberechnungen auf Parametervariationen zu untersuchen und einen Satz optimierter Berechnungen durch Variationsparameter zu erstellen, ist eine große Anzahl von Simulationen erforderlich. Diese können mit der ursprünglichen Methode nicht durchgeführt werden. Daher wurde eine vereinfachte Berechnungsmethode (im Folgenden als "vereinfachte ARC-F-Methode" bezeichnet) angewendet, die aus den folgenden Schritten besteht:

 Ein Basissatz von grundlegenden Ausbreitungsrechnungen wird mit ARTM, angetrieben durch stationäre und horizontal homogene meteorologische Profile auf einem Gitter mit 200 m horizontaler Auflösung durchgeführt, das sich bis zu 50 km vom Emissionspunkt erstreckt. Die Berechnungen umfassen die atmosphärischen Pasquill-Stabilitätsklassen A – F und in jeder Stabilitätsklasse bis zu sechs Windgeschwindigkeitsbereiche von 1 m s⁻¹ bis 20 m s⁻¹ in 10 m Anemometerhöhe und berücksichtigen insgesamt zwanzig realistische Kombinationen von Stabilität und Windgeschwindigkeit (Tab. 4.5). Die Berechnungen beziehen sich jeweils auf vier unterschiedliche Emissionshöhen von 10 m, 50 m, 100 m und 300 m. Der Basissatz besteht somit aus insgesamt 80 Einzelrechnungen.

- Die Trajektorien der Radionuklidwolkenzentren werden durch Kombination der zeitabhängigen Windbeobachtungen f
 ür den Emissionspunkt und der aus den Basisrechnungen abgeleiteten Wolkenzugbahnen berechnet.
- Die entsprechenden Wolken werden zeitlich aus dem Satz der Basisrechnungen interpoliert und auf die Trajektorien der Wolkenzentren projiziert.

Atmosphärische	Windgeschwindigkeit in 10 m Höhe [m s ⁻¹]						
Stabilität	1	3	5	8	13	20	
A (sehr labil)	Х	X					
B (labil)	Х	X					
C (labil-neutral)	Х	X	Х	Х			
D (neutral)	Х	X	Х	Х	X	Х	
E (stabil)	Х	X	х	Х			
F (sehr stabil)	Х	X					

Tab. 4.5Berücksichtigte Kombinationen von atmosphärischer Stabilität und Wind-
geschwindigkeit im Basissatz von Ausbreitungsrechnungen

Das Verfahren ist detailliert in /SOG 20/ beschrieben. Diese Methode berücksichtigt die Auswirkungen zeitlicher Schwankungen des Windantriebs auf die Ausbreitung in vereinfachter Weise. Im Gegensatz zur ursprünglichen Methode werden jedoch weder die Auswirkungen der Orographie auf das Windfeld noch die Deformation der Wolkenform durch die Strömung berücksichtigt. Die Rechenzeit für eine Quelltermrückrechnung wird auf wenige Minuten reduziert, was eine große Anzahl von Berechnungen ermöglicht. Abgesehen von der Berechnung der Gammasubmersionskoeffizienten sind die Grundversion und die vereinfachte Methode identisch. Der Ensemble-Quellterm wird wie oben beschrieben in beiden Verfahren aus den Ergebnissen für das Ensemble von 14 Messpunkten durch gewichtete Mittelung rekonstruiert.

4.5 Kriterium zum Vergleich von Ergebnissen der Quellterm-Rückrechnung

Es wurde ein einfaches Kriterium eingeführt, um die Qualität der berechneten Ensemble-Quellterme vergleichen zu können. Bei jedem Messpunkt wird eine Schätzung der Wolkenstrahlung unter Verwendung des jeweiligen Ensemble-Quellterms und der entsprechenden Einflussmatrix modelliert:

$$(h_{k}^{mod})_{i} = \sum_{j=1}^{k} (\chi_{k,j})_{i} \cdot g_{\gamma} \frac{Q_{j}^{ens}(t_{j})}{\Delta t}$$
(4.6)

Diese Größe kann mit der analysierten Wolkenstrahlung durch lineare Korrelation verglichen werden. Das sich daraus ergebende Kriterium (im Folgenden als "Hindcast-Skill" r_{ens} bezeichnet) ist das gewichtete Mittel der linearen Korrelation zwischen der analysierten und modellierten Wolkenstrahlung an allen Messpunkten:

$$r_{ens} = \sum_{i=1}^{M} \omega_i \cdot r\left[\left(\underline{h}^{mod}\right)_{i'}, \left(\underline{h}\right)_{i}\right]$$
(4.7)

Dabei bezeichnet $r\left[\left(\underline{h}^{mod}\right)_{i'}, \left(\underline{h}\right)_{i}\right]$ den Korrelationskoeffizienten nach Pearson zwischen der modellierten und der analysierten Wolkenstrahlung über den gesamten Untersuchungszeitraum am Messpunkt *i*. Die Gewichte ω_i sind proportional zum relativen Abdeckungsgrad des Untersuchungszeitraums durch Messdaten am jeweiligen Messpunkt gewählt. Der Hindcast-Skill wird verwendet, um die Qualität der mit der vereinfachten ARC-F-Version des Rückrechnungsverfahrens im Vergleich mit der Originalmethode zu beurteilen. Darüber hinaus werden mittels des Hindcast-Skills Auswirkungen von Parametervariationen und Optimierungsrechnungen auf die Ergebnisse der Rückwärtsrechnung bewertet.

4.6 Variationsverfahren zur Optimierung des Windantriebs

Zur Untersuchung der Sensitivität der Quelltermrückrechnung für Änderungen in Windrichtung und -geschwindigkeit sowie zur Optimierung des Windantriebs wird ein systematisches Verfahren zur Variation der beiden Parameter eingesetzt. Das Verfahren gliedert sich in die folgenden Schritte:

 Den zum Windantrieb verwendeten Messdaten werden Änderungen der Windrichtung und der Windgeschwindigkeit aufgeprägt, die über den gesamten Untersuchungszeitraum zeitlich konstant gehalten werden. Für jede gewählte Kombination aus Windrichtungs- und Windgeschwindigkeitsänderung wird eine Quelltermrückrechnung auf Basis der entsprechend veränderten Winddaten vorgenommen.

- Aus dem auf diese Weise erzeugten Variationsensemble werden zeitabhängig diejenigen Parameterkombinationen des Windantriebs identifiziert, die zu einem gegebenen Beobachtungsintervall im Mittel über alle Messpunkte zur jeweils besten Übereinstimmung zwischen analysierter und modellierter Wolkenstrahlung führen. Die auf diese Weise identifizierten Parameterkombinationen sind zeitlich dem Effekt der damit verbundenen Änderungen im Windantrieb auf die Modellierung der Wolkenstrahlung zugeordnet.
- Die identifizierten Parameterkombinationen werden zur optimierten Quelltermrückrechnung genutzt. Bei dieser Optimierung kommen zwei verschiedene Verfahren zum Einsatz, die das Problem der zeitlichen Zuordnung von Windvariationen unterschiedlich behandeln:
 - In der ersten Variante der Optimierung werden für jeden Messpunkt die zugehörigen Einflussmatrizen aus dem vorberechneten Variationsensemble entsprechend den identifizierten Parameterkombinationen modifiziert. Mit den modifizierten Einflussmatrizen wird eine erneute Rückrechnung durchgeführt. Bei dieser Variante werden mögliche Inkonsistenzen im zeitlichen Zusammenhang zwischen den Gammasubmersionskoeffizienten in Kauf genommen. Letztere können dadurch entstehen, dass die berechnete Gammasubmersion für überlappende Zeiträume nicht notwendig auf einem eindeutigen Windantrieb basiert.
 - In der zweiten Variante der Optimierung wird der zeitlich veränderte Windantrieb aus den identifizierten Parameterkombinationen rekonstruiert. Die zur Rekonstruktion erforderliche Rückdatierung der identifizierten Parameterkombinationen auf die zugehörigen ursächlichen Variationen im Windantrieb muss aufgrund empirischer Ansätze erfolgen, da sie sich nicht eindeutig aus dem Verfahren ableiten lässt. Der rekonstruierte Windantrieb wird für eine erneute Rückrechnung (einschließlich Neuberechnung der zugehörigen Einflussmatrizen) genutzt.

Die Ergebnisse beider Varianten werden in Bezug auf die Qualität des rückgerechneten Quellterms verglichen und ggf. komplementär genutzt.

4.6.1 Variationsschema

Die Variation beruht auf der Veränderung des Windantriebs, der durch die Windrichtung *DD* in deg und Windgeschwindigkeit *FF* in m s⁻¹ charakterisiert ist, durch *2P* vorgegebene Abweichungen in der Windrichtung und *2Q* vorgegebene Abweichungen in der Windgeschwindigkeit. Der veränderte Windantrieb im Intervall $[t_{j-1}; t_j]$ berechnet sich für jede Kombination (p, q) mit p=-P, ..., P und q=-Q, ..., Q wie folgt:

$$DD_{j}^{p} = DD_{j}^{0} + \Delta DD^{p}; \ FF_{j}^{q} = FF_{j}^{0}(1 + \delta_{FF}^{q})$$
(4.8)

Dabei bezeichnen ΔDD^p und δ_{FF}^q jeweils die vorgegebenen Abweichungen. Es gilt $\Delta DD^{-p} = -\Delta DD^p$; $\delta_{FF}^{-q} = -\delta_{FF}^q$ und somit insbesondere $\Delta DD^0 = 0$; $\delta_{FF}^0 = 0$. Einschließlich der Originalzeitreihe des Windantriebes ergeben sich daraus insgesamt (2P + 1)(2Q + 1) Realisierungen der Quelltermrückrechnung.

4.6.2 Optimierungsverfahren

Die Parameterkombinationen zur Optimierung werden mittels einer Qualitätsfunktion $R_k^{p,q}$ für jede Realisierung (p, q) ermittelt, die auf der jeweils momentanen Übereinstimmung der modellierten Wolkenstrahlung $h_k^{mod p,q}$ mit der analysierten Wolkenstrahlung $h_k^{p,q}$ am Messpunkt *i* und im Intervall $[t_{k-1}, t_k]$ der Beobachtungszeit beruht:

$$(R_{k}^{p,q})_{i} = \begin{cases} Min\left[\frac{\left(h_{k}^{mod \ p,q}\right)_{i}}{\left(h_{k}^{p,q}\right)_{i}}, \frac{\left(h_{k}^{p,q}\right)_{i}}{\left(h_{k}^{mod \ p,q}\right)_{i}}\right] & falls \ h_{k}^{p,q} > 0 \ und \ h_{k}^{mod \ p,q} > 0 \\ 0 & sonst \end{cases}$$
(4.9)

Die Qualitätsfunktion wird analog zum mittleren Quellterm über das Ensemble der verwendeten Messpunkte gemittelt:

$$R_k^{ens\,p,q} = \sum_{i=1}^M (w_k)_i (R_k^{p,q})_i \tag{4.10}$$

Die Mittelungsgewichte werden in diesem Fall auf Basis der Zeilenvektoren der Einflussmatrix und ansonsten analog zur Berechnung von Q_i^{ens} bestimmt. Zur Ermittlung der für die Optimierung maßgeblichen Abweichungen $(\Delta DD)_k$ und $(\delta_{ff})_k$ wird $R_k^{ens\,p,q}$ als Gewichtsfunktion genutzt:

$$(\Delta DD)_k = \frac{\sum_{p,q} R_k^{ens \, p,q} \, \Delta DD^p}{\sum_{p,q} R_k^{ens \, p,q}}; \ \left(\Delta \delta_{ff}\right)_k = \frac{\sum_{p,q} R_k^{ens \, p,q} \, \delta_{ff}^q}{\sum_{p,q} R_k^{ens \, p,q}}$$
(4.11)

• Variante 1: Modifikation der Einflussmatrizen

Aus den für die Optimierung maßgeblichen Abweichungen $(\Delta DD)_k$ und $(\delta_{ff})_k$ werden die zu kombinierenden Einflussmatrizen gemäß folgenden Bedingungen identifiziert:

$$p^*: \Delta DD^{p^*} \le (\Delta DD)_k < \Delta DD^{p^*+1}; \ q^*: \ \delta_{ff}^{q^*} \le (\delta_{ff})_k < \ \delta_{ff}^{q^*+1}$$
(4.12)

Die Einflussmatrizen für die Optimierung $(X)_i^{opt}$ errechnen sich daraus durch bilineare Interpolation wie folgt:

$$(\chi_{k,j})_{i}^{opt} = W_{k}^{p^{*},q^{*}}(\chi_{k,j})_{i}^{p^{*},q^{*}} + W_{k}^{p^{*}+1,q^{*}}(\chi_{k,j})_{i}^{p+1^{*},q^{*}} + W_{k}^{p^{*},q^{*}+1}(\chi_{k,j})_{i}^{p^{*},q^{*}+1} + W_{k}^{p^{*}+1,q^{*}+1}(\chi_{k,j})_{i}^{p^{*}+1,q^{*}+1}$$

$$(4.13)$$

Die zugehörigen Gewichte werden aus dem Abstand der maßgeblichen Abweichungen zu den vorgegebenen Abweichungen der Variationsensembles bestimmt:

$$\Delta_{p} = \frac{\Delta D D^{p^{*}+1} - (\Delta D D)_{k}}{\Delta D D^{p^{*}+1} - \Delta D D^{p^{*}}}; \ \Delta_{q} = \frac{\delta_{ff}^{q^{*}+1} - (\delta_{ff})_{k}}{\delta_{ff}^{q^{*}+1} - \delta_{ff}^{q^{*}}};$$
(4.14)

$$W_{k}^{p^{*},q^{*}} = \Delta_{p}\Delta_{q}; \ W_{k}^{p^{*}+1,q^{*}} = (1 - \Delta_{p})\Delta_{q}; \ W_{k}^{p^{*},q^{*}+1} = \Delta_{p}(1 - \Delta_{q}); \ W_{k}^{p^{*}+1,q^{*}+1} = (1 - \Delta_{p})(1 - \Delta_{q})$$

• Variante 2: Rekonstruktion eines modifizierten Windantriebs

Zur Rekonstruktion eines modifizierten Windantriebs müssen die nach obigem Verfahren ermittelten Abweichungen $(\Delta DD)_k$ und $(\delta_{ff})_k$ geeignet dem Transportzeitraum zwischen der Emission radioaktiver Stoffe und der Beobachtung der von dieser Emission verursachten Wolkenstrahlung an einem Messpunkt zugeordnet werden. Diese Zuordnung ist nicht notwendig eindeutig, da sich Transportzeiträume, die verschiedenen Beobachtungszeitpunkten zuzuordnen sind, überlappen können und somit verschiedene Werte für ΔDD und δ_{ff} aus unterschiedlichen Beobachtungszeiten für den gleichen Transportzeitraum maßgeblich sein können. Die Zuordnung erfolgt daher über eine empirische Formulierung, die diesem Umstand Rechnung trägt.

Die Transportzeit für die Emissionen, welche die im Intervall $[t_{k-1}; t_k]$ analysierte Wolkenstrahlung am Messpunkt *i* maßgeblich beeinflussen, wird über das Maximum der Komponenten des zum Beobachtungszeitpunkt gehörigen Zeilenvektors der Einflussmatrix abgeschätzt:

$$\max_{j} \chi_{k,j} =: \chi_{k,e} \to \begin{cases} t_e: \text{Bezugszeit für Emission} \\ \delta t_k = t_k - t_e: \text{ Transportzeit} \end{cases}$$
(4.15)

Die Transportzeit wird analog zur Qualitätsfunktion über das Ensemble der verwendeten Messpunkte gemittelt:

$$\delta t_k^{ens\,p,q} = \sum_{i=1}^M (w_k)_i (\delta t_k^{p,q})_i \tag{4.16}$$

Die Mittelungsgewichte sind mit jenen für die Bestimmung von $R_k^{ens p,q}$ identisch. Die maßgebliche Transportzeit aus dem Variationsensemble wird analog zu ΔDD und δ_{ff} abgeschätzt:

$$\delta t_k^{ens} = \frac{\sum_{p,q} R_k^{ens\,p,q} \,\delta t_k^{ens\,p,q}}{\sum_{p,q} R_k^{ens\,p,q}} \tag{4.17}$$

Aus der Transportzeit werden die optimierten Abweichungen $(\Delta DD)_l^{opt}$ und $(\delta_{ff})_l^{opt}$ zum Zeitpunkt t_l durch gewichtete Summierung über alle zu einem späteren Beobachtungszeitpunkt evidente Abweichungen, die aufgrund der zugehörigen Transportzeit potenziell dem Zeitpunkt t_l zugeordnet werden können, abgeschätzt:

$$(\Delta DD)_{l}^{opt} = \sum_{j=l}^{L} W_{j}^{opt} (\Delta DD)_{j}; \quad \left(\delta_{ff}\right)_{l}^{opt} = \sum_{j=l}^{L} W_{j}^{opt} \left(\delta_{ff}\right)_{j}; \quad L$$

$$= l + \max_{k=l,\dots,N} \left(\delta t_{k}^{ens} + 1\right)$$

$$(4.18)$$

Die zugehörige Wichtung beruht auf der empirischen Annahme, dass die zeitliche Datierung in der Mitte des Transportzeitintervalls den Zeitpunkt, zu dem die Veränderung des Windantriebs auftritt, mit der größten Wahrscheinlichkeit entspricht:

$$W_{j}^{\prime opt} = exp\left[-\left(\frac{(j-l)\Delta t - \frac{1}{2} \,\delta t_{j}^{ens}}{\Delta t + \frac{1}{2} \,\delta t_{j}^{ens}}\right)^{2}\right]; W_{j}^{opt} = \frac{W_{j}^{\prime opt}}{\sum_{j'=l}^{N} W_{j'}^{\prime opt}}$$
(4.19)

Dabei bedeutet Δt das allgemein im Verfahren genutzte Zeitintervall zwischen zwei benachbarten Beobachtungs- oder Emissionszeitpunkten (600 s).

Die entsprechend optimierte Zeitreihe des Windantriebs wird aus den optimierten Abweichungen wie folgt berechnet:

$$DD_{l}^{opt} = DD_{l}^{0} + (\Delta DD)_{l}^{opt}; \ FF_{j}^{q} = FF_{j}^{0} \left[1 + \left(\delta_{ff} \right)_{l}^{opt} \right]; l = 1, \dots, N$$
(4.20)

4.7 Ergänzung der Quelltermdaten für Phasen ohne Beobachtung

Wie bereits im Vorläufervorhaben werden die berechneten Freisetzungen für Phasen, in denen mit den verfügbaren landbasierten ODL-Messpunkten keine Beobachtung vorliegt, durch Ergebnisse aus /KAT 15/ ergänzt. Diese Studie fasst die Arbeiten mit Beteiligung der JAEA auf dem Gebiet der Quelltermrückrechnung zusammen und präsentiert Ergebnisse einer Neuberechnung auf Basis verbesserter Ausbreitungs- und Depositionsmodelle /KAT 15/. Die Ergebnisse wurden unter Verwendung des japanischen Entscheidungshilfesystems WSPEEDI berechnet. In den Rückrechnungen werden sowohl Freisetzungen, die über Land ausgebreitet und registriert wurden, als auch Freisetzungen mit Ausbreitung über den Ozean erfasst; letztere erfasst die in den Abschnitten 4.3 bis 4.6 beschriebene Methode der GRS nicht. Die zeitabhängige Entwicklung der Freisetzungen ist für die Nuklide Te-132, Cs-134, Cs-137 und I-131 detailliert dokumentiert. Die Daten sind in digitaler Form publiziert /KAT 15a/. Damit bietet sich eine optimale Datenbasis (im Folgenden als "WSPEEDI-Daten" bezeichnet), die für einen detaillierten Vergleich mit den Ergebnissen der vorliegenden Untersuchungen genutzt wird. Ergebnisse sind in Abschnitt 4.10.4.3 beschrieben.

4.8 Berechnung und Bereitstellung eines Referenzquellterms

Das Rückrechnungsverfahren wird für die Freisetzungen von Cs-137 durchgeführt, mit den WSPEEDI-Daten nach Abschnitt 4.7 ergänzt und auf insgesamt 16 weitere Nuklide, für die nach /SON 18/ Abschätzungen der Aktivitätskonzentration in der Luft vorliegen, erweitert. Das Verfahren ist in /SON 18/ beschrieben. Zusätzlich werden für diese Nuklidauswahl die zugehörigen Elementmassen für insgesamt zehn Elemente hochgerechnet. Dabei werden implizit auch Isotope berücksichtigt, die nicht in der Nuklidauswahl enthalten sind, die jedoch maßgeblich die Elementmasse an Spaltprodukten im Inventar bestimmen. Zu diesem Zweck wird für ein jeweils ausgewähltes Isotop der zeitabhängige Massenanteil am Inventar des zugehörigen Elements abgeschätzt. Als Basis dienen die Reaktorinventare nach /JAEA 12a/. Aus der jeweils freigesetzten Isotopenmasse wird mittels dieses Massenanteils die Elementmasse abgeschätzt.

Mittels der im Vorhaben erzielten Verbesserungen und erweitert um die Zeitreihen der freigesetzten Elementmassen wird ein revidierter und verfeinerter Quellterm zum Vergleich mit Ergebnissen der Unfallanalysen erstellt und allen ARC-F-Projektpartnern verfügbar gemacht.

4.9 Vertiefte Analyse von Messungen der luftgetragenen Aktivitätskonzentration

Die vertiefte Analyse der durch die JAEA in Tokai-Mura gemessenen Aktivitätskonzentration in der Luft dient dazu, charakteristische Eigenschaften der Nuklidzusammensetzung während verschiedener Freisetzungsphasen zu ermitteln und eine Grundlage für ein besseres Verständnis der Freisetzungs- und Dispersionsprozesse zu schaffen. Eine ähnliche Analyse einer kleineren Gruppe von Proben im Vorhaben BSAF 2 hat ergeben, dass die gemessene I-132-Konzentration das Gleichgewicht mit Te-132 überschreitet und eine Erhöhung des Verhältnisses von I-132 zu I-131 in den Spaltproduktfreisetzungen gegenüber dem Inventarverhältnis in den frühen Morgenstunden des 15.03.2011 auf die Möglichkeit eines Rekritikalitätsereignisses hindeutet /SON 18/. Im Rahmen von ARC-F wurde diese Analyse auf weitere Nuklide und auf fünf Episoden zwischen dem 14. und 21. März 2011 ausgeweitet. Während dieser Episoden können die gemessenen Konzentrationen eindeutigen ODL-Peaks in Tokai-Mura zugeordnet und somit ungefähr auf eine entsprechende Emissionsepisode zurückdatiert werden. Die Arbeiten gliedern sich in die folgenden Schritte:

 Bereinigung der Zerfallskorrektur: Die in /JAEA 12/ veröffentlichten Daten sind bis zum 15.03.2011 nicht zerfallskorrigiert. Ab dem 16.03.2011 wurden die Daten einer Zerfallskorrektur unterzogen, die für I-132 eine Gleichgewichtshypothese mit Te-132 anwendet. Diese Korrektur wird für die betreffenden Datensätze rückgängig gemacht. Anschließend werden alle Messdaten nach einem einheitlichen Verfahren ohne die Anwendung einer Gleichgewichtshypothese auf den Zeitpunkt der jeweiligen Probenahme zerfallskorrigiert.

- Rückdatierung auf den Emissionszeitpunkt: Für die Proben, die einer ODL-Spitze in Tokai-Mura zugeordnet werden können, wird eine näherungsweise Bestimmung des Emissionszeitpunktes vorgenommen. Zu diesem Zweck wird der Verlauf gemessener ODL-Zeitreihen in Tokai-Mura und am etwas mehr als 100 km nördlich gelegenen KKW Fukushima Daini verglichen. Damit wird für einen Großteil der Messungen die Transportzeit zwischen beiden Standorten abgeschätzt. Die zusätzliche Transportzeit zwischen den KKW-Standorten Fukushima Daiichi und Daini wird mittels eines analogen Vergleichs zwischen dem rückgerechneten Quellterm und den am KKW Fukushima Daini gemessenen ODL-Verläufen abgeschätzt. Alternativ wird diese Abschätzung auf Basis der berechneten Ausbreitungsparameter und zeitverschobener Korrelationen der ODL-Verläufe an den unterschiedlichen Standorten vorgenommen. Der Vergleich beider Methoden erlaubt eine Betrachtung der zugehörigen Ungenauigkeiten. Für die Messungen am 21.03.2011 kann dieses Verfahren nicht angewendet werden, da im fraglichen Zeitraum keine am KKW Fukushima Daini vorbeiziehende Wolke gemessen wurde. Deswegen wird die Transportzeit grob auf Basis von Windmessungen abgeschätzt.
- Rückrechnung der Nuklidverhältnisse auf den Emissionszeitraum: Bei der Rückrechnung werden der radioaktive Zerfall aller betrachteten Nuklide und die Nachproduktion von I-132 aus dem Zerfall von Te-132 explizit berücksichtigt. Potenzielle Unterschiede in der Abreicherung während des Transports durch Deposition zwischen Aerosolen und gasförmigem Iod werden näherungsweise betrachtet. Dabei wird vereinfachend angenommen, dass die Abreicherung für alle Aerosole sowie für gasförmige Iodisotope jeweils gleich ist und die Unterschiede zwischen den Spezies während des Transportes konstant bleiben. Die Auswirkung dieser Hypothese auf die Berechnungsergebnisse wird durch Parameterstudien untersucht. Details der Berechnung sind in Anhang A zusammengefasst. Die sich aus der Rechnung zum Freisetzungszeitpunkt ergebenden Nuklidverhältnisse werden auf ihre entsprechenden Inventarverhältnisse normiert, um Zerfallseffekte zu eliminieren.

Für die Untersuchung möglicher Zusammenhänge zwischen den ermittelten Nuklidverhältnissen werden die Ergebnisse, ihre möglichen Interpretationen sowie ihre

92

Verbindung zu weiteren radiologischen Befunden in einer zu diesem Zweck konzipierten Diskussionsmatrix gegenübergestellt.

4.10 Ergebnisse

4.10.1 Vergleich des vereinfachten Berechnungsverfahrens mit der Originalmethode

Die schnelllaufende Version des Rückrechnungs-Algorithmus nutzt gegenüber der im Vorläufervorhaben angewendeten Originalmethode ein vereinfachtes Verfahren zur Berechnung der Gammasubmersion, das auf der Interpolation vorberechneter Wolkenverteilungen beruht. Außerdem ist als Referenz für die Sensitivitätsstudien ein einheitlicher, gegenüber der Originalmethode vereinfachter meteorologischer Antrieb erforderlich. Zur Validierung der schnelllaufenden Version wurden die Ensemble-Quellterme der Originalmethode des vereinfachten Verfahrens verglichen.



Abb. 4.4 Rekonstruktion der Freisetzungen von Cs-137

Oben: Originalmethode. Unten: Vereinfachtes Verfahren. Rot: Akkumulierte Freisetzungen auf Basis des jeweiligen Minimums aus MP-Ensemble. Blau: Akkumulierte Freisetzungen auf Basis des gewichteten Ensemble-Mittels. Grün: Akkumulierte Freisetzungen auf Basis des jeweiligen Maximums aus MP-Ensemble. Grau unterlegt: Freisetzungen in diesen Zeiträumen können durch das Ensemble nicht beobachtet werden.

Die akkumulierte Menge von C-137 ist bei der schnelllaufenden Version mit vereinfachtem Antrieb gegenüber der Originalmethode lediglich um 2 % erhöht. Allerdings ergeben sich episodenweise größere Unterschiede im zeitlichen Verlauf. Der Hindcast-Skill liegt mit 0,51 etwas niedriger als bei der Originalmethode (0,62). Dieser Unterschied ist teilweise auf den unterschiedlichen Windantrieb zurückzuführen. Letzterer beruht für das vereinfachte Verfahren auf den an der Station Oono verfügbaren Winddaten bis zu deren Ausfall am 16.03.2011 nachmittags. Danach werden die am KKW Fukushima Daiichi gemessenen Winddaten benutzt. Dieser eindeutige Windantrieb ist erforderlich, um die beabsichtigten Sensitivitätsstudien und das Variationsverfahren zur Optimierung durchzuführen. Im Originalverfahren werden hingegen die auf Basis der jeweiligen Winddaten für Fukushima Daiichi und Oono getrennt berechneten Einflussmatrizen in empirischer Wichtung überlagert /SON 18/. Bei analoger Berechnung der Gammasubmersion mit dem vereinfachten Verfahren erhöht sich der Hindcast-Skill auf 0,56. Insgesamt ergibt sich trotz der Vereinfachungen der schnelllaufenden Version eine bemerkenswert gute Übereinstimmung mit der Originalmethode.

4.10.2 Sensitivitätsstudien

4.10.2.1 Einfluss von Emissionshöhe und atmosphärischer Stabilität

Mittels Vergleichsrechnungen wurde der Einfluss von Variationen der Parameter "Emissionshöhe" und "atmosphärische Stabilität" untersucht. Die durchgeführten Simulationen sind in Tab. 4.6 zusammengefasst und in Abb. 4.5 illustriert.

Tab. 4.6Durchgeführte Simulationen zum Einfluss von atmosphärischer Stabilität
(rot schattiert) und Emissionshöhe (blau schattiert) im Vergleich zum Refe-
renzlauf (REF). Letzterer ist identisch mit dem Vergleichslauf für das ver-
einfachte Verfahren (vgl. Abschnitt 4.10.2).

Name der Simulation	Windan- trieb	Atmosphä- rische Sta- bilität	Emissions- höhe	Cs-137 akkumuliert [Bq]	Mengenverhält- nis zu Original- methode	Hind- cast- Skill
REF (D50m)		D	50 m	5,74E+15	102 %	0,51
C50m	Messungen	С	50 m	3,89E+15	69 %	0,49
E50m	Oono und	E	50 m	1,10E+16	195 %	0,53
D10m	Fukushima	D	10 m	4,82E+15	86 %	0,51
D100m	Daiichi	D	100 m	7,29E+15	130 %	0,49
D300m		D	300 m	2,37E+16	422 %	0,47

Die Variation der atmosphärischen Stabilität zu "leicht labil" (C) oder "leicht stabil" (E) führt gegenüber der bei der Originalmethode angenommenen Klasse D ("neutral") zu moderaten Änderungen des Ensemble-Quellterms.



Abb. 4.5 Einfluss von Variationen der atmosphärischen Stabilität (oben) und Emissionshöhe (unten) auf die Rekonstruktion der Freisetzungen von Cs-137

Die Variation der Emissionshöhe zu 10 m oder 100 m führt gegenüber der bei der Originalmethode angenommenen Emissionshöhe von 50 m nur zu geringfügigen Änderungen des Ensemble-Quellterms. Deutlichere Änderungen ergeben sich bei einer leichten Verschlechterung des Hindcast-Skills für eine Emissionshöhe von 300 m, die allerdings nur für die Phasen der Explosionen in den Blöcken 1 und 3 sinnvoll zu unterstellen ist.

4.10.2.2 Einfluss modellbasierter meteorologischer Antriebsdaten

Seitens SNL wurden Zeitreihen von modellierten meteorologischen Parametern am Standort des KKW Fukushima 1 bereitgestellt, die aus drei Ausbreitungssimulationen von SNL, die für das Vorhaben BSAF 2 durchgeführt wurden, entnommen sind (vgl. Abschnitt 4.2.3). Mittels dieser Daten als Antrieb wurden drei verschiedene Quelltermsimulationen durchgeführt. Die durchgeführten Simulationen sind in Tab. 4.7 zusammengefasst und in Abb. 4.6 illustriert. Alle drei Simulationen zeigen im Vergleich zur Modellierung mit lokalen meteorologischen Messdaten als Antrieb eine deutliche

Verschlechterung des Hindcast-Skills bei ähnlichen modellierten Gesamtmengen an emittiertem Cs-137.

Name der Si- mulation	Windantrieb	Atmosphä- rische Stabilität	Emissions- höhe	Cs-137 akkumuliert [Bq]	Mengenver- hältnis zu Ori- ginalmethode	Hind- cast- Skill
REF (D50m)	Messungen Oono; KKW F1	D	50 m	5,74E+15	102 %	0,51
SNL-Gdas0p5	Modell Gdas0p5	Variabel	50 m	6,03E+15	107 %	0,38
SNL-WRF14	Modell WRF14	Variabel	50 m	8,54E+15	152 %	0,47
SNL-WRF17	Modell WRF17	Variabel	50 m	5,51E+15	98 %	0,34

Tab. 4.7Durchgeführte Simulationen mit modellbasierten meteorologischen Antrie-
ben (grün schattiert) im Vergleich zum Referenzlauf (REF)



Abb. 4.6 Einfluss modellbasierter meteorologischer Antriebe auf die Rekonstruktion der Freisetzungen von Cs-137



Abb. 4.7 Vergleich der an der Station Oono gemessenen mit modellierten Winddaten mittels der Autokorrelationsfunktion für die Windgeschwindigkeit

Zur weitergehenden Analyse der modellbasierten Winddaten wurden die an der Station Oono gemessenen mit modellierten Winddaten mittels der Autokorrelationsfunktion für die Windgeschwindigkeit verglichen (Abb. 4.7). Dieser Vergleich zeigt für die Messdaten eine schnelle Dekorrelation innerhalb weniger Stunden und einen ausgeprägten Tageszyklus, während die Modelldaten eine deutlich längere Erhaltungsneigung von zwei Tagen und mehr ohne ausgeprägten Tageszyklus aufweisen. Diese Unterschiede weisen darauf hin, dass die Modelldaten stärker vom Einfluss der großräumigen Wettersysteme geprägt sind als die Messdaten. Die Rolle der Oberfläche und der damit verbundenen Turbulenz- und lokalen Zirkulationsmuster ist in den Modelldaten hingegen unterrepräsentiert.

4.10.3 Einfluss von Windrichtung und Windgeschwindigkeit

Für die Vergleichsrechnungen zum Einfluss von Variationen der Parameter Windrichtung und Windgeschwindigkeit werden die folgenden Variationsbereiche betrachtet:

- Windrichtung: -45°, -35°; -25°; -15°; -10°; -5°; 0°; 5°; 10°; 15°; 25°; 35°, 45°
 (13 Intervalle)
- Windgeschwindigkeit: -50 %; -25 %; -10 %; 0 %; 10 %; 25 %, 50 % (7 Intervalle)

Zur Betrachtung des Einflusses wird jeweils einer der beiden Parameter mittels einer konstanten Abweichung variiert, während der andere die Werte der Originalzeitreihe annimmt. Unterschiede werden mittels des Hindcast-Skills quantifiziert. Das Ergebnis ist in Abb. 4.8 illustriert. Sie zeigt den maßgeblichen Einfluss der Windrichtung für die Qualität der Rückrechnung, während letztere nur geringe Sensitivität für Variationen der Windgeschwindigkeit zeigt.





4.10.4 Optimierung des Windantriebs

4.10.4.1 Ermittlung der relevanten Abweichungen

Die Optimierung wurde auf Basis der in Abschnitt 4.10.3 definierten 13 Intervalle für Abweichungen der Windrichtung und 7 relative Abweichungen der Windgeschwindigkeit durchgeführt. Daraus ergeben sich insgesamt 91 unterschiedliche Kombinationen des Windantriebs, für die Quelltermrückrechnungen durchgeführt wurden. Aus diesen 91 Varianten der Quelltermrückrechnung wurden nach dem in Abschnitt 4.6.2 beschriebenen Verfahren sowohl die maßgeblichen Abweichungen $(\Delta DD)_k$ und $(\delta_{ff})_k$ für die Modifikation der Einflussmatrizen (Variante 1 des Optimierungsverfahrens) als auch die rückdatierten Abweichungen für die Rekonstruktion einer optimierten Zeitreihe des Windantriebs $(\Delta DD)_l^{opt}$ und $(\delta_{ff})_l^{opt}$ (Variante 2 des Optimierungsverfahrens) berechnet. Das Ergebnis ist in Abb. 4.9 exemplarisch für den Zeitraum 14. – 16.03.2011 wiedergegeben. Der Beispielzeitraum lässt in Abb. 4.9 den Effekt der zeitlichen Zuordnung der Abweichungen für die Variante 2 entsprechend Abschnitt 4.6.2 erkennen.



Abb. 4.9 Berechnungsbeispiel für die Abweichungen $(\Delta DD)_k$ (Variante 1, orange, gestrichelt) und $(\Delta DD)_l^{opt}$ (Variante 2, dunkelblau, durchgezogen) der Windrichtung (oben) sowie $(\delta_{ff})_k$ (Variante 1 rot, gestrichelt) und $(\delta_{ff})_l^{opt}$ (Variante 2, blau, durchgezogen) der Windgeschwindigkeit (unten)

4.10.4.2 Vergleich und Synthese der Optimierungsvarianten

Die Ergebnisse der Optimierung mittels Windvariation entsprechend Abschnitt 4.6.2 sind für die Variante 1 (Modifikation der Einflussmatrizen) und Variante 2 (Rekonstruktion einer optimierten Zeitreihe des Windantriebs) in Tab. 4.8 und Abb. 4.10 zusammengefasst. Alle Berechnungen beziehen sich auf eine Emissionshöhe von 50 m und die atmosphärische Stabilitätsklasse D.

Tab. 4.8Vergleich der Optimierungsvarianten 1 und 2 mit der BSAF-Original-
Rückrechnung und der Synthese aus den optimierten Varianten anhand
charakteristischer Parameter

Berechnung	Freisetzungs- menge Cs-137 akkumuliert [Bq]	Hindcast- Skill [-]	Abdeckungsgrad Beobachtungs- zeitraum [%]
BSAF Original	5,62E+15	0,62	48 %
ARC-F Optimierung, Variante 1	8,53E+15	0,70	69 %
ARC-F Optimierung, Variante 2	9,54E+15	0,69	64 %
ARC-F Optimierung, Synthese*	1,06E+16	k.A.*	72 %
* Für die Synthese ist kein Hindcast-Skill angebbar, weil die Synthese nicht auf einem einzelnen Satz von Einflussmatrizen beruht.

Wie Tab. 4.8 zu entnehmen ist, führt die Variante 1 zum höchsten Abdeckungsgrad und besitzt einen geringfügig höheren Hindcast-Skill als die Variante 2. Daher wurde sie als Basis für die Synthese eines optimierten Quellterms genutzt und wie folgt modifiziert:

- Sofern sich f
 ür die Variante 2 zu Zeitpunkten, zu denen in der R
 ückrechnung nach Variante 1 keine Beobachtung m
 öglich ist, ein Beobachtungswert ergibt, wird dieser Wert in die Synthese
 übernommen. Insgesamt ist dies f
 ür 61 Zeitpunkte innerhalb des Untersuchungszeitraums der Fall.
- Die Berechnung nach Variante 2 wurde f
 ür eine Emissionsh
 öhe von 300 m unter sonst gleichen Randbedingungen wiederholt. F
 ür Zeitr
 äume von jeweils einer Stunde nach den Explosionen in Block 1 und Block 3 werden die Freisetzungswerte aus dieser Rechnung in die Synthese
 übernommen, wenn sie h
 öher liegen als in den anderen beiden Rechnungen. Dies ist f
 ür einen Zeitpunkt nach der Explosion in Block 1 und 4 Zeitpunkte nach der Explosion in Block 3 der Fall.

Durch die Ergänzungen erhöht sich für die Synthese der Abdeckungsgrad des Untersuchungszeitraums durch Beobachtungen auf 72 %. Der Effekt auf die Wiedergabe der Freisetzungen nach den Explosionen in den Blöcken 1 und 3 wird im folgenden Abschnitt beschrieben.



Abb. 4.10 Quellstärke der Freisetzung von Cs-137 in Bq/h im Vergleich der Original-Rückrechnung mit den Optimierungsvarianten 1 und 2 sowie der Synthese aus den betrachteten Optimierungsvarianten

Grau: Kein Beobachtungsfenster für das verwendete Ensemble an Messpunkten der ODL

4.10.4.3 Untersuchungen zu weiteren Optimierungsmöglichkeiten

Die optimierte Zeitreihe des Windantriebs (Variante 2 der Optimierung) wurde als Basis für zwei weitere Optimierungsansätze genutzt:

- Zur Untersuchung der Optimierungsmöglichkeiten bezüglich Variationen der atmosphärischen Stabilität wurde nach einem zur Windoptimierung entsprechend Abschnitt 4.6.2 analogen Verfahren eine Modifikation der Einflussmatrizen auf Basis von Variationen der Stabilitätsklassen durchgeführt und ihr Effekt auf die Quelltermrückrechnung untersucht.
- Unter Verwendung des optimierten Windantriebs wurden die Berechnungen mit der komplexen Grundversion zur Berechnung der Einflussmatrizen nach

Abschnitt 4.3 erneut durchgeführt und das entsprechende Verbesserungspotenzial ausgelotet.

Für keinen der beiden Ansätze ergeben sich über die bereits erzielte Optimierung hinaus nutzbare Verbesserungen in der Qualität der Quelltermrückrechnung. Der Grund hierfür liegt vermutlich darin, dass die Optimierung des Windantriebs nach Abschnitt 4.6.2 auf den verwendeten Modellansatz der vereinfachten Version zur Berechnung der Einflussmatrizen sowie den verwendeten Parametersatz für die sonstigen Randbedingungen abgestimmt ist. Dadurch werden mittels der berechneten Abweichungen des Windantriebs bereits Modellfehler und Fehler in den Randbedingungen kompensiert. Diese Kompensation führt auch dazu, dass die Abweichungen selbst fehlerbehaftet sind und deswegen nicht notwendig zu einer realitätsnäheren Repräsentation der tatsächlichen Windverhältnisse führen.

4.10.5 Ergänzung des Quellterms mittels WSPEEDI-Daten

Zum Vergleich des berechneten Synthese-Quellterms nach Abschnitt 4.10.4.2 (im Folgenden als "ARC-F GRS-Quellterm" oder "ARC-F GRS-QT" bezeichnet) werden, wie in Abschnitt 4.7 beschrieben, die Ergebnisse der Quelltermrekonstruktion von /KAT 15/, /KAT 15a/ herangezogen, die unter Verwendung des japanischen Entscheidungshilfesystems WSPEEDI (siehe Abschnitt 4.7) berechnet wurden. In dem Quellterm nach /KAT 15/, der im Folgenden als "WSPEEDI-Quellterm" oder "WSPEEDI-QT" bezeichnet wird, werden sowohl Freisetzungen, die über Land ausgebreitet und registriert wurden (wie in der GRS-Methode), als auch zusätzlich Freisetzungen mit anschließender Ausbreitung über den Ozean erfasst. Die Übereinstimmung beider Quellterme ist für Phasen, in denen nach beiden Methoden Werte berechnet werden, hervorragend /SON 18/. Dies gilt auch für die optimierte ARC-F-Version des Quellterms. Durch die Optimierung wird gegenüber der Originalversion der Ergänzungsbedarf durch WSPEEDI-Daten reduziert, wie Abb. 4.11 zu entnehmen ist.







Grau: Kein Beobachtungsfenster für den jeweiligen GRS-QT.

Abb. 4.12 Wie Abb. 4.11, jedoch jeweils für die Tage, an denen die Explosionen in den Blöcken 1 (links, 12.03.2011) und 3 (rechts, 14.03.2011) stattfanden

Der Effekt der Optimierung auf die Wiedergabe der Freisetzungen nach den Explosionen in den Blöcken 1 und 3 ist in Abb. 4.12 illustriert. Die Explosion in Block 1 ist bereits in der BSAF-Originalvariante des GRS-Quellterms erfasst. Durch die Optimierung ergeben sich nur marginale Veränderungen im Zeitverhalten. Die Explosion in Block 3 ist in der BSAF-Originalversion hingegen nur durch die WSPEEDI-Ergänzung repräsentiert. In der optimierten ARC-F-Fassung des GRS-QT ist sie zumindest teilweise erfasst und ergänzt sich augenscheinlich mit den WSPEEDI-Daten zu einem höher aufgelösten Zeitverlauf. Inwiefern dieser die Freisetzungen realitätsnäher wiedergibt, kann allerdings nur durch Vergleich mit anlagentechnischen Unfallanalysen oder anderen Quelltermrückrechnungen eingeschätzt werden.



Abb. 4.13 Vergleich der akkumulierten Freisetzungsmengen des kombinierten GRS + WSPEEDI-Quellterms zwischen BSAF-Original und ARC-F-Optimierung für Cs-137 und I-131

Grau: Keine Beobachtung (d. h. Ergänzung mit WSPEEDI Daten) für den BSAF-Original GRS-Quellterm.

Ein Vergleich zwischen BSAF-Original und ARC-F-Optimierung bezüglich der akkumulierten Freisetzungen von Cs-137 und I-131, die sich jeweils für die kombinierten GRS + WSPEEDI-Quellterme ergeben, ist in Abb. 4.13 dargestellt. Der jeweils größte Unterschied zwischen beiden Berechnungen ist in einer Freisetzungsphase am 16.03.2011 nachmittags erkennbar, die in der optimierten ARC-F-Version wiedergegeben wird, nicht aber in der BSAF-Originalversion, für die in diesem Zeitraum keine Freisetzungen beobachtbar sind. Bezüglich der gesamten Freisetzungsmenge zum Ende des Untersuchungszeitraums ergeben sich nur geringfügige Unterschiede (+7 % bei Cs-137 und -0,5 % bei I-131 in der optimierten ARC-F-Version gegenüber der BSAF-Originalversion).

4.10.6 Gesamt-Freisetzungsmengen und Bereitstellung des verbesserten Quellterms

Die Summe aller Freisetzungen für alle betrachteten Nuklide ist in Tab. 4.9 zusammengefasst. Dazu wurden die für jedes Zehnminuten-Intervall berechneten Freisetzungen ohne weitere Zerfallskorrektur aufsummiert und mit dem betrieblichen Inventar aller drei Blöcke zum Zeitpunkt der Reaktor-Schnellabschaltung aufgrund des Erdbebens (11.03.2011, 14:47 JST) verglichen. Die Hochrechnung auf die Elementmassen erfolgte nach der in Abschnitt 4.8 beschriebenen Vorgehensweise.

Tab. 4.9 Gesamtmenge der Freisetzungen des optimierten ARC-F GRS + WSPEEDI Quellterms

		Kernin- ventar bei RESA (Ak-	Kernin- ventar bei RESA		Akkumulierte 12.03.2011 'ARC-F GRS +	Freisetzunger – 25.03.2011 WSPEEDI-QT) '''
Nuklid, <i>Element</i>	Halb- wertzeit	tivität), Blöcke 1 – 3 [Bq]	(Masse) Blöcke 1 – 3 [g]	Aktivität [Bq]	Masse [g]	Aktivitäts- anteil an In- ventar bei RESA, Blöcke 1 – 3	Massenan- teil an In- ventar bei RESA, Blöcke 1 – 3
I-131	8,02 d	6,01E+18	1,31E+03	1,63E+17	3,54E+01	2,7 %	
I-132*	2,3 h	8,84E+18	2,32E+01	3,06E+17	8,02E-01	3,5 %	
I-133	20,7 h	1,26E+19	3,00E+02	2,03E+16	4,83E-01	0,16 %	
I-135	6,63 h	1,20E+19	9,24E+01	9,00E+14	6,96E-03	0,0075 %	
l gesamt			5,35E+04		1,74E+03		3,2 %
Nb-95	35 d	8,00E+18	5,51E+03	5,47E+13	3,76E-02	0,00068 %	
Nb gesamt			5,52E+03		3,77E-02		0,00068 %
Mo-99	2,75 d	1,14E+19	6,43E+02	4,92E+15	2,77E-01	0,043 %	
Mo gesamt			7,91E+05		8,52E+02		0,11 %
Ru-106	1,005 a	2,24E+18	1,81E+04	1,14E+15	9,21E+00	0,051 %	
Ru gesamt			5,02E+05		2,10E+02		0,042 %
Ag-110m	250 d	1,64E+16	9,35E+01	1,07E+14	6,10E-01	0,65 %	
Ag gesamt			1,66E+04		9,21E+01		0,55 %
Te-129m	33,6 d	1,89E+17	1,70E+02	9,72E+15	8,72E+00	5,13 %	
Te-132	3,18 d	8,68E+18	7,55E+02	7,67E+16	6,67E+00	0,88 %	
Te gesamt			1,12E+05		2,42E+03		2,2 %
Cs-134	1,998 a	7,18E+17	1,45E+04	1,40E+16	2,83E+02	1,94 %	
Cs-136	13,15 d	2,18E+17	8,06E+01	2,04E+15	7,56E-01	0,94 %	
Cs-137	30,108 a	6,99E+17	2,18E+05	1,40E+16	4,37E+03	2,01 %	

		Kernin- ventar bei RESA (Ak-	Kernin- ventar bei RESA	"	Akkumulierte 12.03.2011 · 'ARC-F GRS +	Freisetzungen – 25.03.2011 WSPEEDI-QT) '''
Nuklid, <i>Element</i>	Halb- wertzeit	tivitat), Blöcke 1 – 3 [Bq]	(Masse) Blöcke 1 – 3 [g]	Aktivität [Bq]	Masse [g]	Aktivitäts- anteil an In- ventar bei RESA, Blöcke 1 – 3	Massenan- teil an In- ventar bei RESA, Blöcke 1 – 3
Cs gesamt			5,33E+05		1,05E+04		2,0 %
Ba-140	12,73 d	1,12E+19	4,14E+03	7,04E+14	2,60E-01	0,0063 %	
Ba gesamt			3,58E+05		2,32E+01		0,0065 %
La-140	1,67 d	1,14E+19	5,55E+02	1,29E+16	6,27E-01	0,11 %	
La gesamt			2,93E+05		2,92E+02		0,10 %
Xe-133* [,] **	5,23 d	1,20E+19	1,76E+03	1,09E+19	1,59E+03	90,3 %	
Xe-135*, **	9,14 h	4,28E+18	4,55E+01	4,10E+17	4,53E+00	9,6 %	
Xe ^{*,**} ge- samt			1,26E+06		1,14E+06		90,7 %

 Indirekte Bestimmung basierend auf Residuum der Bodenstrahlung (I-132) oder Wolkenstrahlung (Xe-133 / Xe-135). Daher Überschätzung durch Anteile nicht explizit berücksichtigter kurzlebiger Nuklide möglich.

** Keine Daten nach dem 19.03.2011, 24:00 JST (Residuumsmethode ergibt danach keine plausiblen Resultate).

Der optimierte ARC-F GRS + WSPEEDI-Quellterm wurde den Teilnehmenden des ARC-F-Vorhabens als dokumentierte Datenbasis im Tabellenkalkulationsformat zur Verfügung gestellt.

Die Datei mit den aktuellen Quellterm-Daten

ARC-F_GRS_Fukushima_Source_term_Rev0_2022_01_06.xlsx liegt diesem Bericht auf Daten-CD bei.

4.10.7 Vertiefte Analyse von Messungen der luftgetragenen Aktivitätskonzentration in Tokai-Mura

Insgesamt 36 Proben, die bei der JAEA in Tokai-Mura zwischen dem 15. und 21. März 2011 genommen wurden, sind in die Betrachtungen einbezogen. Für diese Proben wurde die bereinigte Zerfallskorrektur wie in Abschnitt 4.9 beschrieben durchgeführt. Die resultierenden Luftkonzentrationen sind für ausgewählte Nuklide in Abb. 4.14 dargestellt.



Abb. 4.14 Luftkonzentration für ausgewählte Nuklide nach Bereinigung der Zerfallskorrektur und gemessene Ortsdosisleistung bei der JAEA in Tokai-Mura

In Abb. 4.14 ist zu erkennen, dass die Luftkonzentration von I-132 für die meisten Messungen deutlich diejenige von Te-132 übertrifft. Dieser systematische Effekt ist auch in den Originaldaten vor Bereinigung der Zerfallskorrektur erkennbar. Die Messungen weisen somit darauf hin, dass I-132 auch in einer Entfernung von mehr als 100 km nicht im Gleichgewicht mit Te-132 ist. Dies ist insofern bemerkenswert, als dass in der Zeit, die zwischen der Freisetzung am KKW Fukushima Daiichi und der Verfrachtung bis nach Tokai-Mura vergeht, ein wesentlicher Anteil des überschüssig freigesetzten I-132 bereits wieder zerfallen ist.

Wie der Vergleich mit dem Verlauf der ODL erkennen lässt, können 27 der 36 Proben einer Phase mit erhöhter Wolkenstrahlung zugeordnet werden. Insgesamt lassen sich fünf Phasen mit entsprechenden Spitzen in der ODL unterscheiden. Innerhalb dieser fünf Phasen ist eine Rückdatierung auf den Emissionszeitpunkt möglich.



Abb. 4.15 Exemplarische zeitliche Zuordnung der gemessenen ODL-Maxima in Tokai-Mura zu analogen ODL-Spitzen am KKW Fukushima Daini, MP 4 sowie Zuordnung von Emissionen zu den ODL-Spitzen am MP 4 des KKW Fukushima Daini

Das Verfahren der Rückdatierung ist exemplarisch für die Phasen I und II in Abb. 4.15 illustriert. Zu diesem Zweck wurden die Zeitreihen der gemessenen ODL in Tokai-Mura mit den Messungen am MP 4 des KKW Fukushima Daini verglichen. Abb. 4.15 zeigt, dass die drei ODL-Maxima, die im Zeitraum der Probenahme in Tokai-Mura gemessen werden, eindeutig und vergleichsweise genau entsprechenden ODL-Spitzen am MP 4 des KKW Fukushima Daini zugeordnet werden können. Diese ODL-Spitzen können ihrerseits über bestimmten Freisetzungszeiträumen, für die Freisetzungen aus dem KKW Fukushima Daiichi am KKW Fukushima Daini registriert wurden, zugeordnet werden. Insgesamt können so die Zeiten, zu denen die in Tokai-Mura gemessenen luftgetragenen Radionuklide freigesetzt wurden, näherungsweise bestimmt werden. Alternativ wurde diese Abschätzung auf Basis der maximalen Gammasubmersionskoeffizienten im Zusammenhang mit den beobachteten ODL-Spitzen am KKW Fukushima Daini sowie der Maxima zeitverschobener Korrelationen zwischen den ODL-Kurven am KKW Fukushima Daini und in Tokai-Mura vorgenommen. Der Vergleich beider Methoden erlaubt eine Abschätzung der zugehörigen Ungenauigkeiten. Das Ergebnis der Rückdatierung ist in Tab. 4.10 zusammengefasst.

Phase	Proben-Nr. in /JAEA 12/	Beginn Probenahme	Geschätzte Emissionszeit	Geschätzte Transportdauer [h]	Geschätzter Unsicherheits- bereich [h]
	1	15.03.2011 01:25	14.03.2011 20:19	5,1	0,5
	2	15.03.2011 01:55	14.03.2011 20:54	5,0	0,5
	3	15.03.2011 02:25	14.03.2011 21:36	4,8	0,5
I.	4	15.03.2011 02:55	14.03.2011 22:06	4,8	1,1
	5	15.03.2011 03:25	14.03.2011 22:13	5,2	1,1
	6	15.03.2011 03:55	14.03.2011 22:52	5,0	1,6
	7	15.03.2011 04:25	14.03.2011 23:02	5,4	1,4
	8	15.03.2011 04:55	14.03.2011 23:10	5,7	0,5
	9	15.03.2011 05:25	14.03.2011 23:19	6,1	0,6
	10	15.03.2011 05:55	14.03.2011 23:52	6,0	0,8
	11	15.03.2011 06:25	15.03.2011 00:10	6,2	0,8
П	12	15.03.2011 06:55	15.03.2011 00:57	6,0	0,8
	13	15.03.2011 07:25	15.03.2011 01:30	5,9	1,3
	14	15.03.2011 07:55	15.03.2011 03:04	4,8	0,7
	15	15.03.2011 08:25	15.03.2011 03:41	4,7	0,6
	16	15.03.2011 08:55	15.03.2011 03:47	5,1	0,5
	17	16.03.2011 06:05	16.03.2011 01:32	4,5	0,5
	18	16.03.2011 06:35	16.03.2011 01:56	4,6	0,6
Ш	19	16.03.2011 07:05	16.03.2011 02:41	4,4	0,5
	20	16.03.2011 07:35	16.03.2011 03:19	4,3	0,5
	21	16.03.2011 08:35	16.03.2011 04:08	4,4	0,5
	30	20.03.2011 10:35	20.03.2011 04:26	6,1	0,5
IV	31	20.03.2011 11:35	20.03.2011 05:13	6,4	0,5
	32	20.03.2011 12:35	20.03.2011 06:09	6,4	0,5
	33	21.03.2011 03:45	20.03.2011 20:45	7,0	1,5
V	34	21.03.2011 04:45	20.03.2011 21:45	7,0	1,5
v	35	21.03.2011 05:45	20.03.2011 22:45	7,0	1,5
	36	21.03.2011 06:45	20.03.2011 23:45	7,0	1,5

Tab. 4.10Ergebnisse der Rückdatierung für die während der Phasen I – V gemesse-
nen Proben in Tokai-Mura auf den Freisetzungszeitpunkt

: Probe augenscheinlich kontaminiert (hohe Aktivitätskonzentration von Te-132 oder Cs-134 / Cs-137 auf Aktivkohlefilter)

Bei einigen Proben fällt eine hohe Aktivität von schwebstoffgebundenen Nukliden auf dem zur Absorption des gasförmigen lods vorgesehenen Aktivkohlefilter auf, die eigentlich durch den vorgeschalteten Aerosolfilter zurückgehalten werden müssten. Bei diesen Proben ist nach /JAEA 12/ eine Kontamination durch Fallout oder Handhabung zu vermuten, die das Ergebnis der gemessenen Luftkonzentration verfälschen könnten. Diese in Tab. 4.10 markierten Proben wurden zunächst nicht in die weitere Auswertung einbezogen. Tab. 4.11 fasst die für die Phasen I – V charakteristischen Zeiten und Depositionsbedingungen zusammen. Letztere sind der Analyse der Niederschlagsbedingungen am Emissionsort in /SON 18/ und am Messort in /JAEA 12/ entnommen.

Phase	# Proben	Probenahmezeitraum in Tokai-Mura (JST)	Rückdatierte Emissionsphase am KKW Fukushima Daiichi (JST)	Vorherrschende- Deposition
Phase I	5	15.03.2011 01:25 – 15.03.2011 04:25	14.03.2011 20:20 – 14.03.2011 23:00	trocken
Phase II	5	15.03.2011 05:55 – 15.03.2011 07:55	14.03.2011 23:55 – 15.03.2011 03:00	trocken
Phase III	4	16.03.2011 06:05 – 16.03.2011 08:35	16.03.2011 01:30 – 16.03.2011 04:10	nass
Phase IV	2	20.03.2011 10:35 – 20.03.2011 11:35	20.03.2011 04:30 – 20.03.2011 20:45	trocken
Phase V	4	21.03.2011 03:45 – 21.03.2011 06:45	20.03.2011 20:45– 20.03.2011 23:45	nass

Tab. 4.11Zusammenfassung der für die Phasen I – V charakteristischen Zeiten und
Depositionsbedingungen

Die Rückrechnung der Nuklidverhältnisse auf den Freisetzungszeitpunkt erfolgt nach dem Schema gemäß Anhang A. Dabei wird davon ausgegangen, dass alle Nuklide gleich ausgebreitet und deponiert werden, so dass sich das Verhältnis auf dem Transportweg nur durch den radioaktiven Zerfall und ggf. durch die Nachproduktion eines zerfallenden Mutternuklids ändert. Die sich aus der Rechnung zum Freisetzungszeitpunkt ergebenden Nuklidverhältnisse werden auf ihre entsprechenden Inventarverhältnisse normiert, um Zerfallseffekte zu eliminieren und so die Vergleichbarkeit zu vereinfachen. Die Ergebnisse sind in Tab. 4.12 zusammengefasst und in Abb. 4.16 illustriert. An den Nuklidverhältnissen sind folgende Auffälligkeiten bemerkenswert:

- Das Verhältnis von I-132 zu I-131 ist in Phase II deutlich höher als in den anderen Phasen.



Abb. 4.16 Rückgerechnete und auf das jeweilige Reaktorinventar normierte Nuklidverhältnisse für die den Phasen I – V zugeordneten Emissionsphasen

Diese Befunde sind unabhängig von Parametervariationen innerhalb der Rückdatierungsfehlerbereiche und haben auch dann Bestand, wenn offensichtlich kontaminierte Proben in die Analyse einbezogen werden.

Einblicke in mögliche Ursachen gibt die Betrachtung von Aerosol- und Gasanteilen für verschiedene Iodisotope in Tab. 4.13. Die Phase III geht für alle Iod-Isotope mit einem reduzierten Aerosolanteil einher. Die entsprechende Dominanz der Gasphase kann entweder auf besondere Freisetzungsbedingungen, die zu den beobachteten Verhältnissen von I-131 zu schwebstoffgebundenen Nukliden führen können, oder auf eine deutlich geringere Abreicherung der Gasfraktion des Iods während des Transports zurückgeführt werden. Im Gegensatz dazu unterscheidet sich die Phase II hinsichtlich des Iod-Aerosolanteils nicht deutlich von den anderen Phasen.

Tab. 4.12Rückgerechnete und auf das jeweilige Reaktorinventar normierte Nuklid-
verhältnisse für die den Phasen I – V zugeordneten Emissionsphasen

		R	ückgerechnete	e normierte Nu	ıklidverhältnis	se	
Phase	Normiertes Vh. I-132/ I-131	Normiertes Vh. I-132/ I-133	Normiertes Vh. I-133/ I-131	Normiertes Vh. I-131/ Cs-137	Normiertes Vh. Te-132/ Cs-137	Normiertes Vh. Te-132/ I-131	Normiertes Vh. Te-132/ I-132
I	1.32 +/- 0.20	1.18 +/- 0.41	1.21 +/- 0.37	1.80 +/- 0.87	1.04 +/- 0.12	0.65 +/- 0.21	0.50 +/- 0.15
Ш	2.47 +/- 0.51	2.55 +/- 0.51	0.97 +/- 0.02	1.10 +/- 0.15	0.93 +/- 0.04	0.86 +/- 0.12	0.36 +/- 0.07
III	1.51 +/- 0.59	1.53 +/- 0.71	1.00 +/- 0.07	9.02 +/- 1.48	1.03 +/- 0.18	0.12 +/- 0.04	0.08 +/- 0.01
IV	1.53 +/- 1.13	n.a. +/- n.a.	n.a. +/- n.a.	1.14 +/- 0.08	0.50 +/- 0.04	0.44 +/- 0.07	0.42 +/- 0.36
V	1.09 +/- 0.93	n.a. +/- n.a.	n.a. +/- n.a.	2.19 +/- 2.09	0.46 +/- 0.14	0.31 +/- 0.19	0.59 +/- 0.55

Mittelwert und Standardabweichung über die jeweilige Phase. Auffällige Werte sind rot markiert.

Tab. 4.13Aerosolanteile verschiedener Iodisotope und des durch Zerfall von Te-132
nachproduzierten I-132 für die Phasen I – V

	Zum Start o	der Probenahme (zerfall	skorrigiert)	Zum Ende der Messung (unkorrigiert)
Phase Nr.	Aerosolanteil I-131	Aerosolanteil I-132	Aerosolanteil I-133	Aerosolanteil I-132 ausTe-132 Zerfall
I	41,9 % +/- 14,6 %	71,0 % +/- 9,7 %	34,5 % +/- 24,3 %	82,0 % +/- 4,7 %
Ш	56,1 % +/- 5,8 %	75,0 % +/- 3,2 %	57,7 % +/- 7,1 %	81,9 % +/- 1,7 %
Ш	27,8 % +/- 4,1 %	40,0 % +/- 4,2 %	29,1 % +/- 7,1 %	80,3 % +/- 1,9 %
IV	62,9 % +/- 10,9 %	77,5 % +/- 0,1 %	n.a. +/- n.a.	82,2 % +/- 3,1 %
V	49,0 % +/- 11,3 %	73,1 % +/- 16,6 %	n.a. +/- n.a.	88,2 % +/- 8,8 %

Mittelwert und Standardabweichung über die jeweilige Phase. Auffällige Werte sind orange markiert.

Durch die vorliegenden Untersuchungen werden die Ergebnisse von /SON 18/ zum Verhältnis von I-132 zu I-131 auch für den erweiterten Untersuchungszeitraum bestätigt. Der Unterschied von Phase II zu anderen Phasen zeigt sich auch im Verhältnis von I-132 zu I-133, während das Verhältnis von I-133 zu I-131 dem Reaktor-Inventarverhältnis entspricht. Diese Erkenntnisse sind insgesamt konsistent mit der bereits in /SON 18/ aufgeworfenen Hypothese eines Rekritikalitätsereignisses in Phase II. Parameterstudien unter Variation des Verhältnisses der Abreicherung von gasförmigem Iod und Aerosolen zeigen allerdings auch alternative Erklärungsmöglichkeiten auf. So ist eine erheblich stärkere Abreicherung von Te-132 als des durch Te-132-Zerfall nachgebildeten I-132 in Phase II als Erklärung für die gemessenen Verhältnisse denkbar, sofern der gasförmige Anteil des nachgebildeten I-132 erheblich schlechter am Boden deponiert als Schwebstoffe. Letzteres könnte dann der Fall sein, wenn in Phase II ein deutlich höherer Anteil des gasförmigen I-132 als Organolod vorliegt als in anderen Phasen. Dies lässt sich allerdings mit den vorliegenden Messungen nicht klären.

Insgesamt bestätigt die vertiefte Analyse der Luftkonzentrationsproben die Ergebnisse des Vorläufervorhabens und zeigt weitere charakteristische Unterschiede für mehrere Nuklidverhältnisse in verschiedenen Freisetzungsphasen auf. Für diese Befunde kann derzeit keine abschließende Erklärung gegeben werden. Vielmehr sind mehrere alternative Interpretationen möglich. Die Ergebnisse sind daher Gegenstand zukünftiger Untersuchungen, insbesondere des Vergleichs mit Ergebnissen von anlagentechnischen Unfallanalysen. Als Basis für die Untersuchung möglicher Zusammenhänge zwischen den ermittelten Nuklidverhältnissen werden die Ergebnisse, mögliche, ggf. auch einander widersprechende Interpretationen sowie ihre Verbindung zu weiteren radiologischen Befunden in einer zu diesem Zweck konzipierten Diskussionsmatrix gegenübergestellt. Dabei ist zu beachten, dass die Einträge keinen Anspruch auf Vollständigkeit haben. Vielmehr soll die Diskussionsmatrix eine Basis für den strukturierten Vergleich mit anlagentechnischen Befunden und ggf. weiteren Erkenntnissen bieten, um in zukünftigen Untersuchungen Erklärungsmöglichkeiten für die o. g. Erkenntnisse transparent eingrenzen und bewerten zu können.

Tab. 4.14Diskussionsmatrix zur Interpretation und Verknüpfung der Erkenntnisse aus der vertieften Analyse von Messungen der luftgetrage-
nen Aktivität

Größe	Beobachtungen	Interpretationsmöglichkeiten	Verknüpfung zu anderen radiologischen Parametern
Auf Inventar normiertes Verhältnis I-132/ I-131	 In Phase II deutlich höher als in allen anderen Phasen In Phasen I, III, IV systema- tisch > 1 	 1.1 Rekritikalität in Phase II 1.2 Stark unterschiedliche Abreicherungsverhältnisse in Phase II im Vergleich zu anderen Phasen 1.3 Systematischer Fehler durch Rückrechnungs- Verfahren 2.1 Einfluss unterschiedlicher Abreicherung für ele- mentares Iod, Organolod und Aerosole 2.2 Sensitivität zu Fehlern in der Rückdatierung 2.3 Systematischer Fehler durch Rückrechnungs- Verfahren 2.4 Unterschiedliche Inventarverhältnisse in den Blö- cken 1 – 3 	 1.1.1 Konsistente Verhältnisse I-132/I-133 1.1.2 Minimale Erhöhung auch im Vh. I-133/I-131 1.2.1 Einfluss nur über Te-132-Zerfall gegeben, <i>χ</i>_{1,gas}/<i>χ</i>_a müsste in Phase II 2,5mal höher sein als in den anderen Phasen, denkbar für größere Organolod-Anteile aus Te-Zerfall. 1.3.1, 2.3.1 Absolutkonzentrationen, Verhältnisse zu Te-132 und Aerosolanteile unauffällig in Phase II gegenüber anderen Phasen. 2.1.1 Einfluss nur über Te-132-Zerfall gegeben, <i>χ</i>_{1,gas}/<i>χ</i>_a müsste in Phase I 1.5, in Phase IV 3 betragen. Keine Erklärbarkeit von Phase III (Vh. nicht sensitiv aufgrund niedrigen Aerosolanteils), kein Bezug zur Depositionsart (trocken, nass) erkennbar. 2.2.1 Systematische Überschätzung der Transportzeit in Phasen I, III und IV um 2 h würde Erhöhung erklären, unwahrscheinlich im Vergleich mit Fehlerabschätzung der Rückdatierung 2.3.1 Das Vh. I-133 zu I-131 weist keine derartige Abweichung auf. 2.4.1 Nach Angaben der JAEA zu Inventaren Verhältnis I-131/Te-132 bei RESA in allen Blöcken = 0,69
Auf Inventar normiertes Verhältnis I-131/ Cs-137	 In Phase III deutlich höher als in allen anderen Phasen In Phasen I; II, IV innerhalb eines Faktors 1-2 wie Reak- torinventar In Phase V sehr starke Streuung, verursacht durch letzten Wert 	 1.1. Größere Rückhaltung von Aerosolen als von gas- förmigem Iod in Phase III als in anderen Phasen 1.2 Größere Abreicherung von Aerosolen als von gasförmigem Iod in Phase III als in anderen Pha- sen 3.1, 3.2 für letzten Messwert in Phase V wie 1.1 und 1.2 	1.1.1, 1.3.1 Deutlich niedriger Aerosolanteil von I-131 in Phase III 1.2.1, 1.2.3 Konsistent niedrige Te-132/I-131 Vh. in Phase III
Auf Inventar normiertes Verhältnis Te-132/ Cs-137	1 ungefähr 1 in Phasen I-III, ungefähr 0.5 in Phasen IV, V	1.1 Niedrigere Temperaturen der Schmelze in Phase IV	

5 Zusammenfassung

Zehn Jahre nach dem Unfall im Kernkraftwerk Fukushima Daiichi ist der Unfallhergang immer noch nicht vollständig aufgearbeitet. Auch heute noch gibt es zahlreiche Aktivitäten mit dem Ziel, einerseits Japan beim sicheren Rückbau des Kernkraftwerks Fukushima Daiichi zu unterstützen und andererseits existierende Wissenslücken zu sicherheitstechnischen Fragestellungen und Modellierungslücken in der nuklearen Rechenkette der GRS zu schließen.

Zur wissenschaftlichen Unterstützung japanischer Organisationen beim langfristigen Rückbau der durch die Reaktorunfälle im März 2011 zerstörten Blöcke in Fukushima Daiichi wurde im Januar 2019 das OECD/NEA-Projekt ARC-F "Analysis of Information from Reactor Buildings and Containment Vessels of Fukushima Daiichi NPS" initiiert. Die deutsche Beteiligung am OECD/NEA-Projekt ARC-F erfolgte über das Vorhaben des BMWK RS1573. Die Arbeiten der GRS als deutsche Sachverständigenorganisation (TSO) in ARC-F (Januar 2019 – Dezember 2021) wurden in einem separaten Forschungsprojekt des BMWK durchgeführt, parallel zu Forschungsvorhaben der Codeentwicklung von ATHLET-CD und COCOSYS.

Die wesentliche Zielsetzung des OECD/NEA-Projektes ARC-F war es, die Analysen zu den Unfallabläufen in den baugleichen Blöcken 2 und 3 am Standort Fukushima Daiichi mit AC² fortzusetzen und die Arbeiten zur Quantifizierung der Unsicherheiten und der punktuellen Verbesserung der entwickelten GRS-Methode zur Rückrechnung der Freisetzung von Spaltprodukten aus der Anlage (dem Quellterm) basierend auf radiologischen Messdaten weiterzuführen.

Im Forschungsvorhaben erfolgte eine aktive Begleitung an dem OECD/NEA-Projekt ARC-F im Rahmen der Program Review Group. GRS als Projektpartner stellte zunächst ein nominiertes Mitglied in der PRG. Im Verlauf des Projektes fiel der Projektleiter, der ebenfalls das nominierte Mitglied der PRG darstellte, krankheitsbedingt vollständig aus. Durch die COVID-19-Pandemie konnte nur teilweise und remote an den dann stattfindenden Treffen teilgenommen werden. Somit konnten auch nur bedingt die Ergebnisse der jeweiligen Arbeiten vorgestellt und vertreten werden. Zu Beginn des Projekts erklärte sich das nominierte PRG-Mitglied bereit, die Analysen und Diskussionen zu Block 2 im Rahmen des Projektes federführend zu leiten und zu koordinieren. Dies konnte dann aufgrund des krankheitsbedingten Ausfalls nicht umgesetzt werden. Der Abschlussbericht des OECD/NEA-Projektes ARC-F lag zum Zeitpunkt der Erstellung dieses Abschlussberichtes noch nicht vor, d. h. er befand sich erst in der finalen Erstellungsphase. Generell wurde festgestellt, dass die Analysen bezüglich der Simulation des Kernschmelzablaufes deutliche Fortschritte im Vergleich zur Phase II des OECD/NEA-Projektes BSAF gemacht haben, aber dennoch eine Reihe von Fragen offenblieben sind.

Des Weiteren wurden im Forschungsvorhaben die deterministischen Unfallanalysen mit AC² für die baugleichen Blöcke 2 und 3 in Fukushima Daiichi aus BSAF-Phase II fortgesetzt. Dabei wurde der Analyseumfang erweitert und es wurden Anforderungen an die weitere Codeentwicklung abgeleitet. Für die Erweiterungen wurden die im OECD/NEA-Projekt ARC-F bereitgestellten zusätzlichen Informationen genutzt. Diese lagen zu unterschiedlichen Zeitpunkten im Vorhaben vor und wurden eingesetzt bzw. erprobt. Im Rahmen dieses Projekts konnten die Unfallanalysen nun für beide Blöcke für den Zeitbereich von mehreren Wochen durchgeführt werden. Bis zu diesem Zeitpunkt bestand in vielen Punkten der thermohydraulischen Betrachtung eine gute Übereinstimmung zwischen Rechnung und gemessenen Anlagenparametern. Die noch im OECD/NEA-Projekt BSAF nicht zufriedenstellende Berechnung der Phase der Kernzerstörung während der drei Druckpeaks speziell für Block 2 konnte am Ende des Vorhabens in guter Übereinstimmung mit den gemessenen Anlagenparametern berechnet werden. Es wurden dabei verschiedene Einflussfaktoren auf den Unfallablauf vertieft untersucht.

Die im OECD-Projekt BSAF Phase II aufgetretenen Probleme bei der Berechnung der Wärmeabgabe an das Wasser bei der Schmelzeumlagerung, insbesondere auch die Fehler in der Berechnung des Spaltproduktverhaltens und der Nachzerfallsleistung im Reaktorkreislauf, wurden durch Modelleerweiterung und Fehlerbehebung in den Codes behoben, so dass eine Fortsetzung der Analysen über einen längeren Zeitraum für beide untersuchten Blöcke in Fukushima Daiichi nun möglich war und erste Ergebnisse zur Spaltproduktverteilung in der Anlage Block 2 analysiert werden konnten. Jedoch war der Aufwand für die Analysen deutlich höher als erwartet, so dass die Auswertungen zum Spaltproduktverhalten nicht vollumfänglich und abschließend durchgeführt werden konnte. Daher liegen diesbezüglich auch noch keine gesicherten Erkenntnisse vor.

Bei den Analysen des Unfallablaufes von Block 2 ist der Druckverlauf im Containment von besonderem Interesse, da mit zunehmendem Druck mehr Spaltprodukte aus dem Containment in das Reaktorgebäude und von dort in die Umwelt gelangen können. Daher wurden die Wassereinspeisung über die mobilen Pumpen und das Öffnungsverhalten der S&E-Ventile so angepasst, dass eine Kernzerstörung unter Dampfmangel stattfindet, bei der ein großer Teil des Zirkons im nicht oxidierten Zustand in das untere Plenum verlagert wird. Gerade in Siedewasserreaktoren kann unterhalb des Kerns ein sehr großes Wasserinventar mit dem geschmolzenen Material bei der Verlagerung wechselwirken. Dabei ist davon auszugehen, dass die Schmelze stark fragmentiert, und so ein großer Anteil des Zirkons bei hohen Temperaturen mit (Wasser-) Dampf in Kontakt kommt, das Zirkon oxidiert, Wasserstoff produziert und hierdurch Energie freigesetzt wird.

Nachdem eine mögliche Erklärung für die Druckanstiege im RDB in Block 2 gefunden wurde, die auch den Druckanstieg in der Druckkammer zufriedenstellend gut reproduziert, wurde in den folgenden Arbeiten die Spaltproduktfreisetzung detaillierter analysiert.

Um die Cs-Freisetzung aus den Wasserpools während des Druckabfalls simulieren und auch das angestrebte Ziel der Simulationszeit von 3 Wochen erreichen zu können, muss das während der Analysen aufgetretene Problem der sehr hohen Rechenzeiten bei niedrigen Drücken im Reaktor behoben werden. In diesen Zeitbereichen sind die Zustandsänderungen im Reaktor eher vernachlässigbar, denn der Kern ist gekühlt, d. h. der Reaktor fungiert nur als Energie- / Wasser- bzw. Dampfquelle für die Simulation der Vorgänge im Sicherheitsbehälter / Reaktorgebäude. Daher wurde begonnen, die Freisetzungen durch direkte Einspeisungen in den Sicherheitsbehälter zu simulieren.

Bis zum Ende des Vorhabens war ein Ergebnis, dass die Freisetzung von Caesium und lod über den Ladedeckel stark unterschätzt wurde. Eine genaue Ursache für diese drastische Unterschätzung konnte derzeit noch nicht abschließend geklärt werden. Zusätzlich bestand in der verwendeten AC²-Version das Problem, dass Änderungen am COCOSYS-Datensatz Auswirkungen auf die Numerik der Vorgänge im RDB haben. Das heißt, jede Änderung an der Nodalisierung verlangt ein erneutes "Feintuning" der Rechnung.

Darüber hinaus wurden auch in diesem Vorhaben wertvolle Beiträge zur signifikanten Verbesserung des Analysetools AC² erreicht, die – soweit möglich – nationalen und internationalen Forschungsstellen über die Weitergabe verbesserter Codes nutzbar gemacht werden. Diese sind stets auch auf eine internationale Zusammenarbeit und Vernetzung ausgerichtet. Die Erkenntnisse aus der Codeanwendung und ggf. Erfordernisse für Modellverbesserungen fließen laufend in die tangierenden Vorhaben des BMWK zur Codeentwicklung ein.

Außerdem wurde im Rahmen des Vorhabens die Sensitivität der GRS-Methode zur Rückrechnung des Quellterms für verschiedene Antriebsparameter quantifiziert und eine Variationsmethode für verbesserte Quelltermberechnungen entwickelt. Auf diese Weise konnte ein verfeinerter Quellterm rekonstruiert werden. Zu den Verbesserungen gehören eine verbesserte Korrelation zwischen der analysierten und der quelltermbasiert modellierten Wolkenstrahlung für das verwendete Ensemble von Messpunkten der Ortsdosisleistung, eine erweiterte Abdeckung des Untersuchungszeitraums durch Beobachtungsepisoden und die Identifizierung oder verbesserte Auflösung zusätzlicher und / oder erweiterter Freisetzungsphasen. Die Gesamtfreisetzungsmengen stimmen mit den Ergebnissen des Vorläufervorhabens überein. Der verfeinerte Quellterm wurde den Projektpartnern zur Verfügung gestellt. Die Informationen über Freisetzungen wurden auf Elementmassen von Spaltprodukten ausgedehnt, um eine bessere Vergleichbarkeit mit Ergebnissen der Analysecodes für schwere Unfälle zu gewährleisten.

Die vertiefte Analyse von Messungen der luftgetragenen Aktivität in Tokai-Mura bestätigt die Ergebnisse des Vorläufervorhabens. Darüber hinaus wurden weitere charakteristische Merkmale für eine erweiterte Anzahl von Nuklidverhältnissen und Freisetzungsepisoden identifiziert. Der entsprechende Datensatz bietet eine Grundlage für intensivere Untersuchungen und Diskussionen über Querverbindungen zwischen anlagenbezogenen und radiologischen Informationen.

In ihrer Gesamtheit stellen diese Ergebnisse auch eine potenzielle Basis für künftige Arbeiten dar. In diesem Zusammenhang sind folgende Aufgaben relevant für den Ausbau der gewonnen Erkenntnisse:

- Der verfeinerte Quellterm sollte durch Vergleich mit unabhängigen Messungen der Ortsdosisleistung zusätzlich validiert werden.
- Die Sensitivität des Verfahrens gegenüber der Beschreibung der Nuklidzusammensetzung sowie der trockenen und nassen Deposition und das zugehörige Verbesserungspotenzial für die Berechnungsmethode wurde noch nicht untersucht.

Zukünftige Arbeiten könnten sich auch mit der Einbeziehung des verfeinerten Quellterms in Vorwärtsrechnungen und einem intensiveren Vergleich zwischen Quelltermabschätzungen, die sowohl aus verschiedenen Rückwärtsberechnungsmethoden als auch Unfallanalysen abgeleitet wurden, befassen. Hierfür wäre die Etablierung einer systematischen Vergleichsmethode von Vorteil. Die Ergebnisse der vertieften Analyse von Luftkonzentrationsproben könnten in diesen breiteren Vergleichsrahmen einbezogen werden. Dieser Rahmen zielt auf eine Synthese verschiedener Ansätze zur Untersuchung des Unfallverlaufs und der Freisetzung von Spaltprodukten ab, um ein gemeinsames Verständnis der damit verbundenen Prozesse und Phänomene zu erreichen.

Literaturverzeichnis

- /AVV 12/ Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 47 Strahlenschutzverordnung: Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen oder Einrichtungen, Bundesanzeiger Nr. BAnz AT 05.09.2012 B1.
- /BAN 18/ Band, S., Richter, C., Sogalla, M., Sonnenkalb, M.: Unfallablauf- und Quelltermanalysen zu den Ereignissen in Fukushima im Rahmen des OECD/NEA BSAF-Projektes Phase II. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH (GRS), GRS-485, ISBN 978-3-946607-69-4: Köln, 2018.
- /BANZ 01/ Bekanntmachung der Dosiskoeffizienten zur Berechnung der Strahlenexposition vom 23. Juli 2001. Teil 1: Dosisleistungskoeffizienten bei äußerer Strahlenexposition. Bundesanzeiger Nr. 160 vom 28.08.2001.
- /BFS 17/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Atmosphärisches Radionuklid-Transport-Modell (ARTM). erreichbar unter http://www.bfs.de/DE/themen/ion/umwelt/luftboden/emissionsueberwachung/artm.html, abgerufen am 5. September 2017.
- /HOL 21/ Hollands, T., Austregesilo, H., D'Alessandro, C., Lovasz, L., Pandazis,
 P., Tiborcz, L., Wielenberg, A.: ATHLET-CD 3.3 Validation. GRS-P-4 /
 Vol. 3, Rev. 1, November 2021.
- /JAEA 12/ Ohkura, T.; Oishi, T.; Taki, M.; Shibunama, Y.; Kikuchi, M.; Akino, H.; Ki-kuta, Y.; Kawasaki, M.; Saegusa, J.; Tsutsumi, M.; Ogose, H.; Tamura, S.; Sawahata, T.: Emergency Monitoring of Environmental Radiation and Atmospheric Radionuclides at Nuclear Science Research Institute, JAEA Following the Accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. JAEA Data Code 2012-10; 2012.

- /JAEA 12a/ Nishihara, K.; Iwamato, H.; Suyama, K.: Estimation of fuel compositions in Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant. Appendix to JAEA Data Code 2012-18, 2012. <u>http://jolissrch-inter.tokai-</u> <u>sc.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Data-Code-2012-018-appendix(CD-ROM).zip</u>; abgerufen am 24.01.2018.
- /JAN 04/ Janicke, U., Janicke, L.: Weiterentwicklung eines diagnostischen Windfeldmodells für den anlagenbezogenen Imissionsschutz (TA Luft), Umwelt-forschungsplan des Bundeministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reak-torsicherheit, Anlagenbezogener Immissionsschutz, Förderkennzeichen (UFOPLAN) 203 43 256, Im Auftrag des Umweltbundesamtes Berlin. Hrsg.: Ingenieurbüro Janicke, Oktober 2004.
- /KAT 15/ Katata, G., Chino, M., Kobayashi, T., Terada, H., Ota, M., Nagai, H., Kajino, M., Draxler, R., Hort, M. C., Malo, A., Torii, T., Sanada, Y.: Detailed source term estimation of the atmospheric release for the Fukushima Daiichi Nu-clear Power Station accident by coupling simulations of an atmospheric dispersion model with an improved deposition scheme and oceanic disper-sion model. Atmospheric Chemistry and Physics, Bd. 15, Nr. 2, S. 1029–1070, DOI 10.5194/acp-15-1029-2015, 2015.
- /KAT 15a/ Katata, G., Chino, M., Kobayashi, T., Terada, H., Ota, M., Nagai, H., Kajino, M., Draxler, R., Hort, M. C., Malo, A., Torii, T., Sanada, Y.: Supplement to Article: Detailed source term estimation of the atmospheric release for the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident by coupling simulations of an atmospheric dispersion model with an improved deposition scheme and oceanic dispersion model. doi:10.5194/acp-15-1029-2015-supplement, 2015.
- /LAW 74/ Charles L. Lawson and Richard J. Hanson: Solving Least Squares Problems. Prentice-Hall, 1974.
- /LOV 19/ Lovasz, L. et. al.: Weiterentwicklung des Moduls ATHLET-CD des Programmsystems AC2, Anlage A der Vorhabensbeschreibung RS1574 (Januar 2019).

- /NII 11/ National Institute of Informatics (NII): Radardaten unter http://agora.ex.nii.ac.jp/earthquake/201103-eastjapan/weather/data/radame-20110311/; zuletzt besucht am 24.01.2018.
- /OECD 15/ Oono MP 11-16 Jul 22 2013 Revision 1.1. Unveröffentlichter Datensatz für die Teilnehmer des OECD BSAF 2 Vorhabens.
- /OECD 16/ Hourly dose Rate around site (Fukushima Prefecture). Unveröffentlichter Datensatz für die Teilnehmer des OECD BSAF 2 Vorhabens.
- /OECD 18/ OECD/NEA und JAEA, Japan, Proposal of "Analysis of Information from Re-actor Buildings and Containment Vessels of Fukushima Daiichi NPS (ARC-F)" Project, (July 2018)
- /PEL 16/ Suppression pool testing at the SIET laboratory: experimental investigation of critical phenomena expected in the Fukushima Daiichi suppression chamber https://www.tandfonline.com/doi/full/10.1080/00223131.2015.1134359 Marco Pellegrini et. Al. Feb 2016.
- /RIC 15a/ Richter, C., Sogalla, M., Thielen, H., Martens, R.: ARTM Atmosphärisches Radionuklid-Transport-Modell mit der graphischen Benutzeroberfläche GO-ARTM, Programmbeschreibung zu Version 2.8.0 (GO-ARTM Version 2.0), Stand 2015-09-15. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 15. September 2015.
- /RIC 15b/ Richter, C., Sogalla, M., Thielen, H., Martens, R.: ARTM Atmosphärisches Radionuklid-Transport-Modell mit Radon Postprozessor und SBG-Modul, Modellbeschreibung zu Version 2.8.0, Stand 2015-09-15. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 15. September 2015.
- /RIC 15c/ Richter, C., Thielen, H., Sogalla, M.: Ergänzende Untersuchungen zur Vali-dierung des Atmosphärischen Radionuklid-Transport-Modells (ARTM). Ge-sellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-394, 384 S., ISBN 978-3-944161-75-4: Köln, 2015.

- /RIC 20/ Richter, C., Thielen, H., Spieker, K.: Weiterentwicklung des atmosphärischen Ausbreitungsmodells ARTM bezüglich weiterer Anwendungsbereiche, Windfeld- und Grenzschichtmodell, Dokumentation, Abschlussbericht zum Vorhaben 3616S72575. Hrsg.: Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A-Bericht, GRS-A-3973, 153 S.: Köln, Oktober 2020.
- /SOG 20/ Sogalla, M., Stahl, T., Meinerzhagen, F., Holbein, S., Mühr-Ebert, E.: Ausbau der wissenschaftlichen und technischen Basis für die Aufgaben des Teams "Strahlenschutz" im Notfallzentrum der GRS. GRS, Bd. 557, 179 S., ISBN 978-3-947685-42-4, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, Februar 2020.
- /SON 18/ Sonnenkalb, M., Band, S., Richter, C., Sogalla, M.: Unfallablauf- und Quelltermanalysen – Untersuchungen zu den Ereignissen in Fukushima im Rahmen des OECD/NEA BSAF-Projektes, Phase II, Abschlussbericht der GRS zum Vorhaben RS1534, GRS-485, ISBN 978-3-946607-69-4, (April 2018).
- /SPE 21/ Spengler, C., et. al.: Modellentwicklung zu Vorgängen im Containment für das GRS-Codesystem AC2 (ATHLET / CD / COCOSYS), GRS-629, März 2021
- /SSK 04/ Strahlenschutzkommission (SSK) (Hrsg.): Leitfaden für den Fachberater Strahlenschutz der Katastrophenschutzleitung bei kerntechnischen Unfäl-len. Berichte der Strahlenschutzkommission (SSK) des Bundesministeri-ums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Heft 37, 2004.
- /TEP 11/ Tokyo Electric Power Company: Press Release (Apr 06, 2011): Detection of radioactive material in the soil in Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (Continued Report). Appendix 2: Result of gamma ray analysis of soil. <u>http://www.tepco.co.jp/en/press/corp-com/release/11040612-e.html</u>, zuletzt besucht am 24.01.2018.

- /TEP 17/ Tokyo Electric Power Company (TEPCO): Pre-investigation results of the area inside the pedestal for the Unit 2 Primary Containment Vessel Investigation at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (Reports), <u>http://www.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/handouts/2017/images/</u> <u>handouts_170130_01-e.pdf, http://www.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/ handouts/2017/images/handouts_170202_01-e.pdf,</u> <u>http://www.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/handouts/2017/images/</u> handouts_170215_01-e.pdf, zuletzt besucht am 20.03.2018.
- /TEP 17a/ Tokyo Electric Power Company (TEPCO): Unit 1 Primary Containment Vessel Internal Investigation (Report), <u>http://www.tepco.co.jp/en/nu/</u> <u>fuku-shima-np/handouts/2017/images/handouts_170327_01-e.pdf</u>, zuletzt besucht am 20.03.2018.
- /TEP 17b/ Tokyo Electric Power Company (TEPCO): Progress of Unit 3 PCV internal investigation (Preliminary Reports), <u>http://www.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/handouts/2017/images/handouts_170719_01-e.pdf,</u> <u>http://www.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/handouts/2017/images/handouts_170721_01-e.pdf, http://www.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/handouts/2017/images/handouts_170722_01-e.pdf, zuletzt besucht am 20.03.2018.</u>
- /TEP 17c/ Tokyo Electric Power Company (TEPCO): Locating Fuel Debris inside the Unit 3 Reactor Using a Muon Measurement Technology at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (Interim Report), <u>http://www.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/handouts/2017/images/ handouts_170727_01-e.pdf</u>, zuletzt besucht am 12.03.2018.
- /TEP 17d/ Tokyo Electric Power Company (TEPCO): Unit 3 Primary Containment Vessel Internal (Report), <u>http://www.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-</u> <u>np/handouts/2017/images/handouts_171130_03-e.pdf</u>, zuletzt besucht am 20.03.2018.
- /TEP 18/ Tokyo Electric Power Company: Radiation Dose measured at Monitoring Post of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. <u>http://www.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/f1/index-e.html</u>, zuletzt besucht am 24.01.2018.

- /TEP 18a/ Tokyo Electric Power Company: Radiation Dose measured at Monitoring Post of Fukushima Daini Nuclear Power Station. <u>http://www.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/f2/index-e.html</u>, zuletzt besucht am 24.01.2018.
- /UBA 16/ Umweltbundesamt (UBA): Ausbreitungsmodelle für anlagenbezogene Immissionsprognosen, AUSTAL2000. erreichbar unter http://www.umweltbundesamt.de/themen/luft/regelungen-strategien/ausbreitungsmodelle-fuer-anlagenbezogene, abgerufen am 8. Juli 2016.
- /WEB 19/ Weber, S., Austregesilo, H., Bals, C., Herb, J., Hollands, T., Langenfeld, A., Lovasz, L., Pandazis, P., Sarkadi, P., Schubert, J.D., Tiborcz, L.: Wei-terentwicklung des Systemrechenprogramms ATHLET-CD zur Simulation von Unfällen im Primärkreislauf, Abschlussbericht. Gesellschaft für Anla-gen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH (GRS), GRS-, Vol. 535, 208 p., ISBN 978-3-947685-20-2, 2019.
- /WIE 19/ Wielenberg, A., Lovasz, L., Pandazis, P., Papukchiev, A., Ti-borcz, L., Schöffel, P. J., Spengler, C., Sonnenkalb, M., Schaffrath, A.: Recent improvements in the system code package AC2 2019 for the safe-ty analysis of nuclear reactors. Nuclear Engineering and Design, Nr. 354, DOI 10.1016/j.nucengdes.2019.110211, 2019.

Abkürzungsverzeichnis

AP	Arbeitspaket
ARC-F	Benchmark Study of the Accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station
ARTM	Atmosphärisches Radionuklid-Transportmodell
BSAF	Benchmark Study of the Accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station
GDAS	Global Data Assimilation System
GRS	Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit
JAEA	Japan Atomic Energy Agency
JST	Japan Standard Time
KKW	Kernkraftwerk
MEXT	Ministry of Education, Culture, Sports Science and Technology
MP	Messpunkt
NRA	Nuclear Regulation Authority
ODL	Ortsdosisleistung
OECD	Organisation for Economic Co-operation and Development
OECD/NEA	OECD Nuclear Energy Agency
QT	Quellterm
REF	Referenz-Simulation
RESA	Reaktor-Schnellabschaltung
SNL	Sandia National Laboratories
TEPCO	Tokyo Electric Power Company
WRF	Weather Research and Forecasting Model
WSPEEDI	Worldwide Version of System for Prediction of Environmental Emer- gency Dose Information

Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.1	Bestandteile des AC ² -Code-Pakets	5
Abb. 2.2	Struktur des Codes ATHLET-CD	6
Abb. 2.3	Struktur des Codes COCOSYS	9
Abb. 3.1	Die wichtigsten Thermohydraulik-Objekte im ATHLET-CD-Datensatz	. 11
Abb. 3.2	Darstellung der 6 Kernringe (Rod1 – 6) von innen nach außen, jeweils die Brennstäbe, die Behälterwände und die Steuerstäbe	. 15
Abb. 3.3	Abbrand Verteilung innerhalb des Kerns (Bsp. Block 2)	. 16
Abb. 3.4	Leistungsprofil des Kerns ermittelt aus den Abbrand-Daten (Block 2)	. 16
Abb. 3.5	Nodalisierung des Reaktorgebäudes und Sicherheitsbehälters	. 17
Abb. 3.6	Nodalisierungsschema des Torus (Kondensationskammer)	. 18
Abb. 3.7	Nodalisierung des Torus-Raums, der die Kondensationskammer umgibt, mit eingezeichneten Drainage-Verbindungen	. 20
Abb. 3.8	Nodalisierungsschema des Erdgeschosses	. 21
Abb. 3.9	Nodalisierung des Reaktorgebäudes auf der ersten und zweiten Ebene	. 21
Abb. 3.10	Nodalisierung der vierten Ebene mit dem Flutraum (R43)	. 22
Abb. 3.11	Anordnung der Betonplatten, die den Flutraum vom Beckenflur trennen	. 24
Abb. 3.12	Verlauf des RDB-Drucks für die ersten 331.000 s (Block 2)	. 27
Abb. 3.13	RDB-Füllstand simuliert sowie verfügbare Messwerte (Block 2)	. 27
Abb. 3.14	Massenströme des RCIC-Systems (Block 2)	. 28
Abb. 3.15	Entwicklung des SHB-Drucks und der Fluid-Temperaturen in der Kondensationskammer während der ersten 280.000 s (Block 2)	. 30
Abb. 3.16	Wassermasse im Untergeschoss (Block 2)	. 32
Abb. 3.17	Temperatur-Messung in der Kondensationskammer bei S&E-Ventil- Aktivität	. 33
Abb. 3.18	Die drei Peaks im RDB-Druck im Detail (Block 2)	. 34
Abb. 3.19	Massenstrom der mobilen Feuerlöschpumpen in den RDB (Block 2)	. 35

Abb. 3.20	Kernschaden vor und nach dem ersten Druckpeak (Block 2)
Abb. 3.21	Wasserstoffproduktion aufgrund der Zirkonoxidation (Block 2)
Abb. 3.22	Zustand des Kerns direkt vor der Verlagerung (Block 2)
Abb. 3.23	Metallisches (unoxidiertes Zirkon) im Kernbereich und postulierte Oxidation im unteren Plenum (Block 2)
Abb. 3.24	Zirkon-Oxidation im unteren Plenum gemäß Nutzereingabe (Block 2) 40
Abb. 3.25	Entwicklung des SHB-Drucks in der Phase der drei Druckpeaks41
Abb. 3.26	Cäsium-Verteilung 331.000 s nach Beginn der Rechnung (Block 2) 42
Abb. 3.27	Iod-Verteilung 331.000 s nach Beginn der Rechnung (Block 2)43
Abb. 3.28	Kernschaden zwischen dem zweiten und dritten Druckpeak bei 292.400 s (Block 2)44
Abb. 3.29	Leckage des Sicherheitsbehälters am Ladedeckel (Block 2)45
Abb. 3.30	Nachzerfallsleistung im Kernbereich und im unteren Plenum in der Zeit der drei Druckpeaks (Block 2)46
Abb. 3.31	Kernschaden nach dem dritten Druckpeak (298.000 s) sowie bei 331.000 s (Block 2)48
Abb. 3.32	Cs-Verteilung in den drei Wochen nach dem Erdbeben (Block 2)50
Abb. 3.33	Iod-Verteilung in den ersten drei Wochen nach dem Erdbeben (Block 2)
Abb. 3.34	Wasserleckage aus dem Torus in das Reaktorgebäude (Block 2)51
Abb. 3.35	Leckage über den Ladedeckel (Block 2)52
Abb. 3.36	Druckverlauf im SHB während der ersten drei Wochen54
Abb. 3.37	Verlauf des RDB-Drucks (Block 3)55
Abb. 3.38	Wassereinspeisung oder -entnahme über RCIC (oben) und HPCI (unten)
Abb. 3.39	RDB-Füllstand simuliert sowie verfügbare Messwerte (Block 3)58
Abb. 3.40	Entwicklung des Drucks in der Kondensations- und Druckkammer (Block 3)
Abb. 3.41	Entwicklung der Fluid-Temperaturen in der Kondensationskammer59
Abb. 3.42	Entwicklung des SHB- und RDB-Drucks von 140.000 s bis 252.000 s 62

Abb. 3.43	Wasserstoffproduktion aufgrund der Zirkonoxidation (Block 3)	63
Abb. 3.44	Schmelzmasse im Reaktor ab 140.000 s (Block 3)	64
Abb. 3.45	Kernschaden bei 163.000 s (oben) und 189.300 s (unten) (Block 3)	65
Abb. 3.46	Ternäres Diagramm für Wasserstoffexplosion im Reaktorgebäude über den SHB, kurz vor dem Explosionszeitpunkt	66
Abb. 3.47	Cäsium- und lodverteilung ab dem Beginn der Kernszerstörung	67
Abb. 3.48	Ausströmrate durch die Instrumentierungsrohre (SRM 1, 2 und 3) und S&E-Ventil-Dichtung (SRV)	68
Abb. 4.1	Überblick über die Lage der verschiedenen Messpunkte zur Ortsdosisleistung	75
Abb. 4.2	Methode zur Rekonstruktion der Freisetzung von Radionukliden aus einer Anlage basierend auf gemessenen örtlichen Dosisleistungen auf dem Gelände und in der näheren Umgebung	78
Abb. 4.3	Grundlegende Beziehung zwischen Wolkenstrahlung an einem gegebenen Beobachtungsort (x_I, y_I) und Freisetzung an einem Freisetzungsort (x_0, y_0)	80
Abb. 4.4	Rekonstruktion der Freisetzungen von Cs-137	93
Abb. 4.5	Einfluss von Variationen der atmosphärischen Stabilität (oben) und Emissionshöhe (unten) auf die Rekonstruktion der Freisetzungen von Cs-137	95
Abb. 4.6	Einfluss modellbasierter meteorologischer Antriebe auf die Rekonstruktion der Freisetzungen von Cs-137	96
Abb. 4.7	Vergleich der an der Station Oono gemessenen mit modellierten Winddaten mittels der Autokorrelationsfunktion für die Windgeschwindigkeit	96
Abb. 4.8	Sensitivität der Quelltermrückrechnung für Variationen der Windrichtung und Windgeschwindigkeit quantifiziert durch den Hindcast-Skill	98
Abb. 4.9	Berechnungsbeispiel für die Abweichungen ΔDDk (Variante 1, orange, gestrichelt) und $(\Delta DD)lopt$ (Variante 2, dunkelblau, durchgezogen) der Windrichtung (oben) sowie δffk (Variante 1 rot, gestrichelt) und $\delta fflopt$ (Variante 2, blau, durchgezogen) der Windgeschwindigkeit (unten)	99

Abb. 4.10	Quellstärke der Freisetzung von Cs-137 in Bq/h im Vergleich der Original-Rückrechnung mit den Optimierungsvarianten 1 und 2 sowie der Synthese aus den betrachteten Optimierungsvarianten
Abb. 4.11	Quellstärke der Freisetzung von Cs-137 in Bq/h im Vergleich der Original-Rückrechnung nach ARC-F mit der optimierten Version nach ARC-F, jeweils ergänzt um WSPEEDI-Daten
Abb. 4.12	Wie Abb. 4.11, jedoch jeweils für die Tage, an denen die Explosionen in den Blöcken 1 (links, 12.03.2011) und 3 (rechts, 14.03.2011) stattfanden
Abb. 4.13	Vergleich der akkumulierten Freisetzungsmengen des kombinierten GRS + WSPEEDI-Quellterms zwischen BSAF-Original und ARC-F- Optimierung für Cs-137 und I-131
Abb. 4.14	Luftkonzentration für ausgewählte Nuklide nach Bereinigung der Zerfallskorrektur und gemessene Ortsdosisleistung bei der JAEA in Tokai-Mura
Abb. 4.15	Exemplarische zeitliche Zuordnung der gemessenen ODL-Maxima in Tokai-Mura zu analogen ODL-Spitzen am KKW Fukushima Daini, MP 4 sowie Zuordnung von Emissionen zu den ODL-Spitzen am MP 4 des KKW Fukushima Daini
Abb. 4.16	Rückgerechnete und auf das jeweilige Reaktorinventar normierte Nuklidverhältnisse für die den Phasen I – V zugeordneten Emissionsphasen

Tabellenverzeichnis

Tab. 3.1	Cs- und I-Verteilung bezogen auf das Anfangsinventar bei 331.000 s (Block 2)
Tab. 3.2	lod- bzw. Cäsiumverteilung nach drei Wochen bezogen auf das Anfangsinventar (Block 2)52
Tab. 4.1	Lage und Datum der herangezogenen Proben der spezifischen Aktivität im Boden auf dem Gelände das KKW Fukushima Daiichi72
Tab. 4.2	Lage und Zeitraum der herangezogenen Proben der spezifischen Aktivität im Boden von Cs-137 und I-131 in der Umgebung des KKW Fukushima Daiichi
Tab. 4.3	Messpunkte der Ortsdosisleistung, die für die Rekonstruktion des Quellterms verwendet wurden75
Tab. 4.4	Modellsimulationen, die den meteorologischen Antriebsdaten von SNL zugrunde liegen
Tab. 4.5	Berücksichtigte Kombinationen von atmosphärischer Stabilität und Windgeschwindigkeit im Basissatz von Ausbreitungsrechnungen
Tab. 4.6	Durchgeführte Simulationen zum Einfluss von atmosphärischer Stabilität (rot schattiert) und Emissionshöhe (blau schattiert) im Vergleich zum Referenzlauf (REF). Letzterer ist identisch mit dem Vergleichslauf für das vereinfachte Verfahren (vgl. Abschnitt 4.10.2)94
Tab. 4.7	Durchgeführte Simulationen mit modellbasierten meteorologischen Antrieben (grün schattiert) im Vergleich zum Referenzlauf (REF)96
Tab. 4.8	Vergleich der Optimierungsvarianten 1 und 2 mit der BSAF-Original- Rückrechnung und der Synthese aus den optimierten Varianten anhand charakteristischer Parameter
Tab. 4.9	Gesamtmenge der Freisetzungen des optimierten ARC-F GRS + WSPEEDI Quellterms
Tab. 4.10	Ergebnisse der Rückdatierung für die während der Phasen I – V gemessenen Proben in Tokai-Mura auf den Freisetzungszeitpunkt 109
Tab. 4.11	Zusammenfassung der für die Phasen I – V charakteristischen Zeiten und Depositionsbedingungen110
Tab. 4.12	Rückgerechnete und auf das jeweilige Reaktorinventar normierte Nuklidverhältnisse für die den Phasen I – V zugeordneten Emissionsphasen

Tab. 4.13	Aerosolanteile verschiedener lodisotope und des durch Zerfall von
	Te-132 nachproduzierten I-132 für die Phasen I – V 112
Tab. 4.14	Diskussionsmatrix zur Interpretation und Verknüpfung der
	Erkenntnisse aus der vertieften Analyse von Messungen der
	luftgetragenen Aktivität114

A Rückrechnung von gemessenen Nuklidverhältnissen auf die Emissionsverhältnisse am Freisetzungsort

A.1.1 Nomenklatur

- t₀: Sampling-Beginn [s]
- *t_{emi}*: Emissionszeitpunkt [s]

 χ_r : Diffusions- und Abreicherungsfaktor [s m⁻³]

- χ_a : Diffusions- und Abreicherungsfaktor Schwebstoffe
- $\chi_{I,gas}$: Diffusions- und Abreicherungsfaktor gasförmiges lod
- $\chi_{I,emi}$: Diffusions- und Abreicherungsfaktor emittiertes Iod (Gas+Aerosol)
- $\chi_{I,prod}$: Diffusions- und Abreicherungsfaktor nachproduziertes I-132 aus Te-132-Zerfall (Gas+Aerosol)
- χ_{TE} : Netto-Diffusions- und Abreicherungsfaktor Tellur (= χ_a)
- δ_a^{emi} : Aerosolanteil emittiertes lod [-]
- δ_a^{prod} : Aerosolanteil nachproduziertes I-132 aus Te-132-Zerfall [-]
- $C_r(t_0)$: Konzentration zu Sampling-Beginn am Messort [Bq m⁻³]
- $A_r(t_{emi})$: Quellstärke zum Emissionszeitpunkt am Emissionsort [Bq s⁻¹]

A.1.2 Allgemeine Annahmen

Die Konzentration eines Nuklids *r* am Messort zum Zeitpunkt der Probenahme t_0 wird (ohne Betrachtung etwaiger Nachproduktion) bestimmt durch seine Quellstärke zum Emissionszeitpunkt t_{emi} , die auf dem Transportweg erfolgte Diffusion und Abreicherung $\chi_r(t_0 - t_{emi})$ sowie den radioaktiven Zerfall auf dem Transportweg:

$$C_r(t_0) = A_r(t_{emi})\chi_r(t_0 - t_{emi}) e^{-\lambda_r(t_0 - t_{emi})}$$

Der Diffusions- und Abreicherungsfaktor wird für alle aerosolförmigen Nuklide sowie für alle gasförmigen Iodisotope als jeweils gleich angenommen.
A.1.3 Nachproduktion von I-132 mit potenziell unterschiedlicher Abreicherung von Iod und Tellur bei der Ausbreitung

Annahme: I-132 Konzentration am Messort setzt sich aus dem ursprünglich emittierten I-132 und dem aus dem Te-132-Zerfall nachproduzierten I-132 zusammen:

$$C_{I-132}(t_0) = C_{I-132}^{emi}(t_0) + C_{I-132}^{prod}(t_0) = \chi_{I,emi}A_{I-132}(t_{emi})e^{-\lambda_{I-132}(t_0-t_{emi})} + \chi_{I,prod} \frac{\lambda_{I-132}A_{Te-132}(t_{emi})}{\lambda_{I-132} - \lambda_{Te-132}} [e^{-\lambda_{Te-132}(t_0-t_{emi})} - e^{-\lambda_{I-132}(t_0-t_{emi})}]$$

Mit der abkürzenden Schreibweise $a_r = \lambda_r(t_0 - t_{emi})$ folgt durch Einsetzen von $A_{Te-132}(t_{emi}) = C_{Te-132}(t_0) e^{a_{Te-132}}/\chi_a$:

$$A_{I-132}(t_{emi}) = \frac{C_{I-132}(t_0)}{\chi_{I,emi}} e^{a_{I-132}} - \frac{\chi_{I,prod}}{\chi_{I,emi}} \frac{\lambda_{I-132}C_{Te-132}(t_0)}{\chi_a(\lambda_{I-132} - \lambda_{Te-132})} [e^{a_{I-132}} - e^{a_{Te-132}}]$$

Für das Verhältnis zu I-131 folgt durch Division mit

 $A_{I-131}(t_{emi}) = C_{I-131}(t_0) e^{a_{I-131}} / \chi_{I,emi}:$

$$\frac{A_{I-132}(t_{emi})}{A_{I-131}(t_{emi})} = \frac{C_{I-132}(t_0)}{C_{I-131}(t_0)} e^{a_{I-132}-a_{I-131}} - \frac{\chi_{I,prod}}{\chi_a} \frac{\lambda_{I-132} C_{Te-132}(t_0)/C_{I-131}(t_0)}{(\lambda_{I-132} - \lambda_{Te-132})} [e^{a_{I-132}-a_{I-131}} - e^{a_{Te-132}-a_{I-131}}]$$

A.1.4 Beziehung der Diffusions- und Abreicherungsfaktoren für Aerosolund Gasfraktionen von lod

$$\chi_{I,prod} = \delta_a^{prod} \chi_a + (1 - \delta_a^{prod}) \chi_{I,gas}$$

$$\rightarrow \frac{\chi_{I,gas}}{\chi_a} = \frac{\frac{\chi_{I,prod}}{\chi_a} - \delta_a^{prod}}{(1 - \delta_a^{prod})};$$

$$\chi_{I,emi} = \delta_a^{emi} \chi_a + (1 - \delta_a^{emi}) \chi_{I,gas}$$

 $\rightarrow \frac{\chi_{1,enu}}{\chi_a} = \delta_a^{emi} + (1 - \delta_a^{emi}) \frac{\chi_{1,gas}}{\chi_a}$

Reines I-Aerosol: $\chi_{I,prod} = \chi_{I,emi} = \chi_a$; reines I-Gas: $\chi_{I,prod} = \chi_{I,emi} = \chi_{I,gas}$

Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

Schwertnergasse 1 50667 Köln Telefon +49 221 2068-0 Telefax +49 221 2068-888

Boltzmannstraße 14 **85748 Garching b. München** Telefon +49 89 32004-0 Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200 **10719 Berlin** Telefon +49 30 88589-0 Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4 **38122 Braunschweig** Telefon +49 531 8012-0 Telefax +49 531 8012-200

www.grs.de