

**Unsicherheits- und
Sensitivitätsuntersu-
chung der COCOSYS-
AIM-Ergebnisse
zum Iodverhalten im
PHEBUS-Versuch FPT1**

Technischer Bericht/ Technical Report

Reaktorsicherheitsforschung-
Vorhabens Nr.:/
Reactor Safety Research-Project No.:
RS 1190

Vorhabensitel / Project Title:
Gezielte Validierung von
COCOSYS und ASTEC sowie
Unsicherheits- und Sensitivi-
tätsanalyse zum Iodverhalten

Specific Validation of
COCOSYS and ASTEC and
Uncertainty and Sensitivity
study on Iodine

Berichtstitel / Report Title:
Unsicherheits- und Sensivi-
tätsuntersuchung der
COCOSYS-AIM-Ergebnisse
zum Iodverhalten im PHEBUS-
Versuch FPT1

Autor / Authors:
G. Weber
B. Krzykacz-Hausmann
F. Funke (AREVA NP, Erlan-
gen)

Berichtszeitraum / Publication Date:
Juli 2012

Anmerkung:
Das diesem Bericht zugrunde lie-
gende F&E-Vorhaben wurde im
Auftrag des Bundesministeriums
für Wirtschaft und Technologie
(BMWi) unter dem Kennzeichen
RS 1190 durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt
dieser Veröffentlichung liegt beim
Auftragnehmer.

GRS - A - 3676

Kurzfassung

Zu einer COCOSYS-AIM-Nachrechnung des PHEBUS-Versuchs FPT1 wurde eine Unsicherheits- und Sensitivitätsstudie zum Iodverhalten in einem Reaktor-Containment durchgeführt. Die Rechnung umfasste neben allen wesentlichen Iodreaktionen, auch die Wechselwirkung der Iodchemie mit der Thermohydraulik und dem Aerosolverhalten.

Für die Unsicherheits- und Sensitivitätsstudie wurde das GRS-Analyseprogramm SUSA verwendet. Insgesamt wurden 93 unsichere Parameter identifiziert und berücksichtigt, 56 davon waren Reaktionskonstanten des Iodmodells AIM. Der Kenntnisstand zu den Parametern wurde durch Experten von AREVA NP, Erlangen, und der GRS quantifiziert. Die Untersuchung wurde in zwei Schritten mit jeweils 208 Rechenläufen durchgeführt, wobei im zweiten Schritt die Unsicherheitsangaben des ersten Schritts punktuell präzisiert wurden.

Die wichtigsten Iod-Ergebnisvariablen sind die Konzentrationen der luftgetragenen Iodspezies I_2 , CH_3I , IO_x und CsI , die den potentiellen Quellterm aus der Anlage bilden. Der ermittelte Unsicherheitsbereich des Iodquellterms ist relativ groß. Die statistischen Toleranzgrenzen liegen typischerweise einen Quotienten 7,0 unter bzw. einen Faktor 5,0 über dem Referenzwert. Nur für einen frühen Quellterm, der fast ausschließlich aus CsI -Aerosol besteht, ist der Bereich deutlich schmaler. Auch die Unsicherheit anderer Ergebnisgrößen, wie z. B. die Konzentration der Iodspezies im Sumpf, ist erheblich.

Zur Unsicherheit der Iodergebnisse tragen vor allem fünf unsichere Parameter bei. Vier davon betreffen die AIM-Einzelmodelle (1) Radiolytische Bildung von molekularem Iod (I_2) im Sumpf, (2) Iod/Silberreaktion im Sumpf, (3) Ablagerung von I_2 auf Farbe und daraus (4) radiolytische Bildung von Organoiod. Der fünfte unsichere Parameter ist die Freisetzung von I_2 aus dem Kühlkreislauf ins Containment. Er ist eine Eingabegröße in der COCOSYS-AIM-Rechnung.

Der Kenntnisstand dieser unsicheren Parameter kann durch die gezielte Überarbeitung der entsprechenden Einzelmodelle verbessert werden, wozu teilweise neue experimentelle Daten erforderlich sind. Dadurch wird auch die Aussagesicherheit des mit COCOSYS-AIM berechneten Iodquellterms effektiv angehoben.

Abstract

An uncertainty and sensitivity analysis on a COCOSYS-AIM calculation of the PHEBUS test FPT1 focusing on the iodine behaviour in the reactor containment was performed. The calculation comprised all relevant iodine reactions in the containment as well as the interaction of iodine chemistry with thermal hydraulics and aerosol physics.

The GRS analysis code SUSANA was applied for the uncertainty and sensitivity study. A total of 93 uncertain parameters were identified and considered, 56 of them were reaction rate constants of the iodine model AIM. The state of knowledge of the parameters was quantified by experts from AREVA NP, Erlangen and GRS. The study was performed in two steps with 208 computer runs each. In the second step the uncertainty description of some selected parameters from the first step has been refined.

The most important iodine results are the concentrations of the gas phase iodine species I_2 , CH_3I , IO_x and CsI , forming the potential source term from the plant. The analyzed uncertainty range of the iodine source term is relatively large. Typically, the statistical tolerance limits lie a quotient of 7.0 under respectively a factor of 5.0 above the reference value. Only for an early source term consisting mainly of CsI aerosol the typical range is significantly smaller. The uncertainty of other results, such as the iodine concentrations in the sump, is also rather large.

In particular, five uncertain parameters have an essential impact on the uncertainty of the iodine results. Four of them concern the following sub modes (1) radiolytic formation of molecular iodine (I_2) in the sump, (2) iodine/silver reaction in the sump, (3) adsorption of I_2 onto paint and from it, (4) radiolytic formation of organic iodine. The fifth parameter concerns the release of I_2 from the coolant circuit into the containment. It is an input value in the COCOSYS-AIM calculation.

The knowledge of these parameters can be improved by a specific revision of the identified sub models, partially requiring some new experimental data. Thus the certainty of the iodine source term prediction with COCOSYS-AIM can be enhanced efficiently.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	PHEBUS-Versuch FPT1	3
2.1	Übersicht	3
2.2	Thermohydraulik und Aerosolverhalten in FPT1	5
2.3	Iodverhalten in FPT1	6
3	COCOSYS-AIM-Rechnung zu FPT1	9
3.1.1	Rechenprogramm COCOSYS-AIM-3	9
3.1.2	Nodalisierung	9
3.1.3	Rechenergebnisse	12
3.1.3.1	Thermohydraulische und Aerosol-Ergebnisse	12
3.1.3.2	Iodergebnisse	13
4	Unsicherheits- und Sensitivitätsuntersuchung	18
4.1	Kurzer Abriss der angewandten Methodik der probabilistischen Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse („GRS-Methode“)	18
4.1.1	Durchzuführende Schritte einer Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse	20
4.1.2	Sensitivitätsanalyse	27
4.1.3	SUSA - Programm	31
4.2	Identifizierung der unsicheren Parameter	32
4.3	Quantifizierung des Kenntnisstands	38
4.3.1	Thermohydraulische Parameter (Parameter 1 – 6)	39
4.3.2	Einspeisungen (Parameter 7 – 16)	41
4.3.3	Aerosolparameter (Parameter 17 – 23)	44
4.3.4	Dosisleistung (Parameter 24 und 25)	46
4.3.5	Iodmodul-Parameter (Parameter 26 – 37)	46
4.3.6	Iod-Reaktionskonstanten (Parameter 38 - 93)	51
4.3.6.1	Hydrolyse im Sumpf (Parameter 38 – 42)	51
4.3.6.2	Radiolyse im Sumpf (Parameter 43 – 46)	52

4.3.6.3	Silber/Iod-Reaktion im Sumpf (Parameter 47 – 49)	53
4.3.6.4	Homogene organische Iod-Reaktionen im Sumpf, Parameter 50 – 54.....	54
4.3.6.5	Iod/Farbe-Reaktionen im Sumpf (Parameter 55 – 63)	55
4.3.6.6	Iod/Stahl-Reaktion im Sumpf (Parameter 64)	56
4.3.6.7	Iod/Ozon-Reaktion im Gas (Parameter 65 – 71).....	57
4.3.6.8	Homogene organische Reaktion im Gas (Parameter 72)	58
4.3.6.9	Iod/Farbe-Reaktion im Gas (Parameter 73 – 83).....	58
4.3.6.10	Iod/Stahl-Reaktion im Gas (Parameter 84 – 91)	60
4.3.6.11	Iod-Massentransfer zwischen Wasser und Gas (Parameter 92 und 93)...	61
4.4	Identifikation von Abhängigkeiten	62
4.5	Zusammenfassung der unsicheren Parameter	63
4.6	Auswahl von Ergebnisvariablen	73
4.7	Ergebnis des ersten Schritts der UaSA.....	75
4.7.1	Iodquelltermrelevante Variable (UaSA, Schritt 1).....	75
4.7.1.1	Molekulares Iod im Gas	76
4.7.1.2	Organoiod im Gas	79
4.7.1.3	IOx-Aerosol im Gas	81
4.7.1.4	CsI-Aerosol im Gas	83
4.7.2	Weitere Variable (UaSA, Schritt 1).....	85
4.7.3	Zusammenfassung und Konsequenz aus Schritt 1 der UaSA	90
4.7.4	Änderungen an den Unsicherheitsangaben für Schritt 2 der UaSA.....	92
4.8	Ergebnis des zweiten Schritts der UaSA.....	94
4.8.1	Relevante Variablen für den Iodquellterm.....	95
4.8.1.1	Molekulares Iod im Gas	95
4.8.1.2	Organoiod im Gas	98
4.8.1.3	IOx-Aerosol und Ozon im Gas	100
4.8.1.4	CsI-Aerosol und MMD im Gas	105
4.8.1.5	Maximal freisetzbare Iodmenge	107
4.8.2	Weitere Iodvariablen	111
4.8.2.1	Iod am Condenser.....	112
4.8.2.2	I ₂ ⁻ , I ⁻ , HOI-Konzentration im Sumpf.....	115

4.8.2.3	Ag-, AgOx- und AgI-Konzentration im Sumpf.....	116
4.8.2.4	Gesamte Iodmenge im Sumpf	116
4.8.3	Thermohydraulische Variable	118
4.8.4	Überblick über die Ergebnisse der UaSA, Schritt 2.....	119
5	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen	124
6	Literatur.....	129
7	Weitere Abbildungen	135
8	Verteiler.....	155

Abbildungsverzeichnis

Abb. 2-1	Schematische Darstellung der PHEBUS-Anlage, aus /JAC 00/.....	4
Abb. 2-2	Ablauf des PHEBUS-Versuchs FPT1, aus /BOS 12/	5
Abb. 2-3	Verlauf der Temperaturen im Containment während PHEBUS FPT1, aus /BOS 12/	6
Abb. 2-4	Wesentliche Iod-Reaktionen im PHEBUS-Containment	7
Abb. 3-1	COCOSYS-Nodalisierung des PHEBUS-Containments	10
Abb. 3-2	Gemessene und berechnete Csl- und IOx-Aerosolkonzentrationen.....	12
Abb. 3-3	I ₂ Konzentration im Containment.....	13
Abb. 3-4	Organoiodkonzentration im Containment.....	14
Abb. 3-5	IOx-Konzentration im Containment	15
Abb. 3-6	AgI-Konzentrationen im Sumpf	16
Abb. 3-7	Am nassen Condenser abgelagertes Iod	17
Abb. 4-1	Graphische Veranschaulichung der Verteilungstypen zur Quantifizierung der Parameterunsicherheiten.....	24
Abb. 4-2	Wahrscheinlichkeitsverteilung für Parameter 16 (I ₂ -Einspeisung)	43
Abb. 4-3	Effektive Ag-Oberfläche als Funktion der Partikelgröße	48
Abb. 4-4	Wahrscheinlichkeitsverteilung für Parameter 26 (Spezifische Ag- Oberfläche)	48
Abb. 4-5	Wahrscheinlichkeitsverteilung für Parameter 43 (Radiolytische Bildung von I ₂ (w) aus I-(w)).....	53
Abb. 4-6	I ₂ -Konzentration im Gas, UaSA Schritt 1, Variationsläufe.....	76
Abb. 4-7	I ₂ im Gas, UaSA Schritt 1, Sensitivitäten.....	77
Abb. 4-8	CH ₃ I im Gas, UaSA Schritt 1, Variationsläufe	80
Abb. 4-9	CH ₃ I im Gas, UaSA Schritt 1, Sensitivitäten	80
Abb. 4-10	IOx im Gas, UaSA Schritt 1, Variationsläufe.....	82
Abb. 4-11	IOx im Gas, UaSA Schritt 1, Sensitivitäten	82
Abb. 4-12	Csl-Aerosol, UaSA Schritt 1, Variationsläufe	84
Abb. 4-13	Csl-Aerosol, UaSA Schritt 1, Sensitivitäten.....	84
Abb. 4-14	I ₂ im Sumpf, UaSA Schritt 1, Variationsläufe	86
Abb. 4-15	I ₂ im Sumpf, UaSA Schritt 1, Sensitivitäten.....	86
Abb. 4-16	I ⁻ im Sumpf, UaSA Schritt 1, Variationsläufe.....	87
Abb. 4-17	I ⁻ im Sumpf, UaSA Schritt 1, Sensitivitäten	88
Abb. 4-18	Silberiodid im Sumpf, UaSA Schritt 1, Variationsläufe.....	89
Abb. 4-19	Silberiodid im Sumpf, UaSA Schritt 1, Sensitivitäten	89

Abb. 4-20	I ₂ -Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	95
Abb. 4-21	I ₂ -Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Toleranzgrenzen.....	96
Abb. 4-22	I ₂ -Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	97
Abb. 4-23	CH ₃ I-Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Variationsläufe.....	99
Abb. 4-24	CH ₃ I-Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Toleranzgrenzen	99
Abb. 4-25	CH ₃ I-Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	100
Abb. 4-26	IOx-Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Variationsläufe.....	101
Abb. 4-27	IOx-Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Toleranzgrenzen	101
Abb. 4-28	IOx-Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	102
Abb. 4-29	O ₃ -Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	103
Abb. 4-30	O ₃ -Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Toleranzgrenzen.....	103
Abb. 4-31	O ₃ -Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	104
Abb. 4-32	Csl-Aerosolkonzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	106
Abb. 4-33	Csl-Aerosolkonzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten.....	106
Abb. 4-34	Maximal freisetzbare Iodmenge, UaSA Schritt 2, Variationsläufe.....	108
Abb. 4-35	Maximal freisetzbare Iodmenge, UaSA Schritt 2, Toleranzgrenzen.....	109
Abb. 4-36	Maximal freisetzbare Iodmenge, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	110
Abb. 7-1	Massengemittelter Partikeldurchmesser des gesamten Aerosols, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	135
Abb. 7-2	Massengemittelter Partikeldurchmesser des gesamten Aerosols, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	135
Abb. 7-3	Csl-Aerosolkonzentration am nassen Condenser, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	136
Abb. 7-4	Csl-Aerosolkonzentration am nassen Condenser, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	136
Abb. 7-5	Csl-Aerosolkonzentration am trockenen Condenser, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	137
Abb. 7-6	Csl-Aerosolkonzentration am trockenen Condenser, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	137
Abb. 7-7	I ₂ -Aerosolkonzentration am nassen Condenser, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	138
Abb. 7-8	I ₂ -Aerosolkonzentration am nassen Condenser, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	138
Abb. 7-9	I ₂ -Aerosolkonzentration am trockenen Condenser, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	139

Abb. 7-10	I ₂ -Aerosolkonzentration am trockenen Condenser, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	139
Abb. 7-11	I ₂ -Konzentration an der Stahlwand, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	140
Abb. 7-12	I ₂ -Konzentration an der Stahlwand, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	140
Abb. 7-13	Fel ₂ -Konzentration an der Stahlwand, UaSA Schritt 2, Variationsläufe ..	141
Abb. 7-14	Fel ₂ -Konzentration an der Stahlwand, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	141
Abb. 7-15	Fixed-I-Konzentration an der Stahlwand, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	142
Abb. 7-16	Fixed-I-Konzentration an der Stahlwand, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten ..	142
Abb. 7-17	Csl-Konzentration an vertikalen Wänden, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	143
Abb. 7-18	Csl-Konzentration an vertikalen Wänden, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	143
Abb. 7-19	I ₂ -Konzentration im Sumpf, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	144
Abb. 7-20	I ₂ -Konzentration im Sumpf, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	144
Abb. 7-21	I-Konzentration im Sumpf, UaSA Schritt 2, Variationsläufe.....	145
Abb. 7-22	I-Konzentration im Sumpf, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten.....	145
Abb. 7-23	HOI-Konzentration im Sumpf, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	146
Abb. 7-24	HOI-Konzentration im Sumpf, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	146
Abb. 7-25	Ag-Masse im Sumpf, UaSA Schritt 2, Variationsläufe.....	147
Abb. 7-26	Ag-Masse im Sumpf, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten.....	147
Abb. 7-27	AgOx-Masse im Sumpf, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	148
Abb. 7-28	AgOx-Masse im Sumpf, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	148
Abb. 7-29	AgI-Masse im Sumpf, UaSA Schritt 2, Variationsläufe.....	149
Abb. 7-30	AgI-Masse im Sumpf, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	149
Abb. 7-31	Gesamte Iodmasse im Sumpf, UaSA Schritt 2, Variationsläufe.....	150
Abb. 7-32	Gesamte Iodmasse im Sumpf, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten	150
Abb. 7-33	Gastemperatur, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	151
Abb. 7-34	Relative Feuchte, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	151
Abb. 7-35	Gasgeschwindigkeit, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	152
Abb. 7-36	Sumpfwassertemperatur, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	152
Abb. 7-37	Gesamtdruck, UaSA Schritt 2, Variationsläufe.....	153
Abb. 7-38	Kondensationsrate am nassen Condenser, UaSA Schritt 2, Variationsläufe	153

Tabellenverzeichnis

Tab. 3-1	Einspeisung von Gas, Iod und Aerosol ins Containment	11
Tab. 4-1	Alternative Modellergebnisse N und Index s	26
Tab. 4-2	Alternative Modellergebnisse N sowie die Indizes s1 und s2.....	26
Tab. 4-3	Überblick über die ausgewählten unsicheren Parameter.....	35
Tab. 4-4	Unsichere Parameter, Teil 1 thermohydraulische-, Aerosol- und Iodmodul Parameter.....	63
Tab. 4-5	Unsichere Parameter, Teil 2 Reaktionskonstanten	66
Tab. 4-6	Ausgewählte Ergebnisvariablen für UaSA Step 1 und 2.....	73
Tab. 4-7	Sensitivitäten der Ergebnisvariable I ₂ (g)-Konzentration	78
Tab. 4-8	Sensitivitäten der Ergebnisvariable CH ₃ I-(g)-Konzentration	81
Tab. 4-9	Sensitivitäten der Ergebnisvariable IOx(g)-Konzentration.....	83
Tab. 4-10	Sensitivitäten der Ergebnisvariable Csl-Aerosolkonzentration.....	85
Tab. 4-11	Sensitivitäten der Ergebnisvariablen I ₂ (w), I-(w) und AgI(w)	90
Tab. 4-12	Unsichere Parameter mit Einfluss auf die quelltermrelevanten Spezies I ₂ (g), RI(g), IOx (UaSA Schritt 1)	91
Tab. 4-13	Sensitivitäten der Ergebnisvariable I ₂ (g)-Konzentration, UaSA Schritt 2 ..	97
Tab. 4-14	Sensitivitäten der Ergebnisvariable CH ₃ I(g)-Konzentration, UaSA Schritt 2	100
Tab. 4-15	Sensitivitäten der Ergebnisvariablen IOx-Konzentration und O ₃ (g)- Konzentration, UaSA Schritt 2	104
Tab. 4-16	Sensitivitäten der Ergebnisvariable Csl-Aerosolkonzentration und mittlerer Partikeldurchmesser des gesamten Aerosols, UaSA Schritt 2 .	107
Tab. 4-17	Sensitivitäten der Ergebnisvariable „Maximal freisetzbare Iodmenge“, UaSA Schritt 2.....	111
Tab. 4-18	Sensitivitäten der Ergebnisvariablen Csl und I ₂ am nassen und trockenen Condenser, UaSA Schritt 2	113
Tab. 4-19	Sensitivitäten der Ergebnisvariablen I ₂ ⁻ , FeI ₂ ⁻ , fixed-I und Csl- Ablagerung auf Stahlwänden	114
Tab. 4-20	Sensitivitäten der Ergebnisvariablen I ₂ (w), I-(w), HOI(w), Ag(w), AgOx, AgI(w) und des gesamten Iods im Sumpf, UaSA Schritt 2.....	117
Tab. 4-21	Typischer Unsicherheitsbereich der 208 alternativen Verläufe von Ergebnisparametern für den Schritt 2 der UaSA.....	120
Tab. 4-22	Alle unsicheren Parameter mit Einfluss auf die Unsicherheit der Ergebnisvariablen in der UaSA, Schritt 2	122

1 Einleitung

Mit dem Containment-Rechenprogramm COCOSYS werden unter anderem Analysen von schweren Unfällen in Kernkraftwerken durchgeführt und der radioaktive Quellterm an die Umgebung berechnet. Dem Verhalten des Spaltprodukts Iod kommt dabei besondere Bedeutung zu, da es wegen seiner Flüchtigkeit und seiner hohen Radiotoxizität in den ersten Wochen nach einem schweren Unfall die radiologischen Folgen in der Umgebung der Anlage bestimmt.

Das in COCOSYS integrierte, semiempirische Iodmodell AIM (**A**dvanced **I**odine **M**odel) /WEB 09a/ wird von der GRS in enger Zusammenarbeit mit AREVA NP ständig weiterentwickelt. Aus der Nachrechnung von Experimenten und Parameterrechnungen ist bekannt, dass die Simulation des Iodverhaltens wegen der großen Zahl chemischer Reaktionen und chemisch-physikalischer Prozesse mit größeren Unsicherheiten verbunden ist. Eine Quantifizierung dieser Unsicherheiten ist im Zuge der Validierungsarbeiten, das sind im Wesentlichen Rechnungen zu ausgewählten Iodversuchen, nicht möglich. Auch können die Ursachen dieser Unsicherheiten nur vage, z. B. aus Parameterrechnungen, ermittelt werden.

Für die Weiterentwicklung von AIM mit einem Abbau von Modellunsicherheiten sind Daten aus neuen Experimenten erforderlich, die in der Regel aufwendig und teuer sind. Um die zur Verfügung stehenden Mittel effizient einzusetzen, muss vor allem die Modellierung jener Reaktionen und Prozesse weiter verbessert werden, die einen wesentlichen Beitrag zur Unsicherheit des berechneten Iodquellterms leisten. Bei der Identifikation von verbesserungsbedürftigen Teilmodellen können die Ergebnisse einer Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse (**U**ncertainty and **S**ensitivity **A**nalysis - UaSA) eine wertvolle Entscheidungshilfe sein.

In der GRS wurde in anderen Vorhaben eine UaSA nach einer eigenen Methode für Simulations-Rechenprogramme entwickelt und verbreitet eingesetzt. Die Anwendung der sogenannten GRS-Methode wird durch das Programmsystem SUSA (Programm-System für **U**nsicherheits- und **S**ensitivitäts-**A**lysen) unterstützt /KRZ 88/, /KRZ 90a/, /KRZ 90b/, /KRZ 94/, HOF 93/, /KLO 99/. Mit SUSA wurden bereits erfolgreich Studien zu einer Reihe von thermohydraulischen und Aerosol-Rechenergebnissen mit COCOSYS durchgeführt.

Für Rechnungen zum Iodverhalten im Containment wurde SUSANA bzw. UaSA bisher noch nicht eingesetzt. Auch sind keine vergleichbaren Analysen zu Iodmodellen in anderen Unfallcodes (ASTEC, MAAP, etc.) bekannt. Eine Arbeit mit ähnlicher Zielsetzung wurde jüngst auf der Konferenz ERMSAR 2012 von IRSN vorgestellt /CHE 12/. Dabei wurde die Unsicherheit des mit ASTEC-IODE berechneten Iodquellterms aus einem französischen 1300 MWe DWR untersucht. Dabei wurden nur 8 unsichere Parameter berücksichtigt. Die berechnete Unsicherheit des Iodquellterms streut mindestens einen Faktor 20.

Als Referenzrechnung für die hier durchgeführte UaSA wurde eine COCOSYS-AIM-Rechnung des Iodverhaltens im Containment des PHEBUS-Versuchs FPT1 /JAC 00/ und /BOS 12/ gewählt. Der Versuch, in dem das Verhalten von radioaktivem Iod und anderen Spaltprodukten unter Kernschmelzbedingungen gemessen wurde, zeichnet sich durch seine große Realitätsnähe aus.

Zwei Hauptziele werden mit der Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse zur Simulation des Iodverhaltens mit COCOSYS-AIM verfolgt: (1) Es soll die Aussagesicherheit der Iod-Ergebnisse bestimmt werden und (2) es soll die spezifische Auswirkung der Unsicherheit einzelner Modell- und Anlagenparametern auf die Berechnung des Iodverhaltens im Sicherheitsbehälter und den Iodquellterm ermittelt werden.

Ein wichtiger Schritt in der UaSA ist die Definition der unsicheren Parameter im Iodmodell AIM und die Quantifizierung des Kenntnistanandes bezüglich dieser Parameter. AIM enthält zahlreiche Einzelmodelle, von denen einige von AREVA NP zur Verfügung gestellt wurden, u. a. basierend auf experimentellen Ergebnissen aus verschiedenen Projekten (z. B. BMBF-Projekt „Flüchtiges Iod“ /FUN 99a/, PARIS-Projekt /LAN 05/). Die Unsicherheiten aller Iodmodellparameter wurden nunmehr gemeinsam mit AREVA NP bewertet. Der Beitrag von AREVA NP war nicht Gegenstand des BMWi-Projekts RS 1190, er war aber für die erfolgreiche Durchführung der UaSA wesentlich.

2 PHEBUS-Versuch FPT1

Das PHEBUS Fission Product (FP) Projekt war ein internationales Forschungsprogramm zu schweren Reaktorunfällen bei IRSN in Frankreich. Es wurde das integrale Reaktorverhalten beim Aufheizen des Brennstoffs bis hin zur Spaltprodukt-Freisetzung an die Umgebung experimentell untersucht. Zwischen 1993 und 2004 wurden in der PHEBUS-Anlage in Cadarache, Frankreich, insgesamt 5 Versuche durchgeführt. In 4 Versuchen (FPT0, FPT1, FPT2, FPT3) wurde ein Brennstoffbündel zusammen mit einem Steuerstab zum Schmelzen gebracht und das Verhalten der freigesetzten Spaltprodukte (SP) in einem vereinfachten Primärkreis und einem angeschlossenen Containment gemessen. In einem fünften Versuch (FPT4) wurde nur die Freisetzung von Spaltprodukten aus einem zerstörten Kern ohne Messung von Primärkreis- und Containment-Chemie untersucht.

Im zweiten Test, PHEBUS FPT1 (1996), wurde ein DWR-Bündel mit hohem Abbrand und einem Steuerstab aus Silber-Indium-Cadmium niedergeschmolzen. Neben anderen Spaltprodukten wurde Iod aus dem zerstörten Bündel freigesetzt und in das Containment transportiert.

Das Verhalten von Iod wurde so detailliert wie für kein anderes Spaltprodukt (SP) gemessen bzw. analysiert. Der Versuch wurde erfolgreich mit COCOSYS-AIM nachgerechnet. Anhand dieser PHEBUS-Daten konnte AIM auch an einigen Stellen verbessert und erweitert werden, wie z. B. die Iod/Silber-Reaktion im Sumpf und die Iod/Ozon-Reaktion in der Atmosphäre /WEB 09a/.

2.1 Übersicht

In Abb. 2-1 sind die einzelnen Komponenten der PHEBUS-Anlage schematisch dargestellt. Links ist der Reaktor mit dem Brennstoffbündel und rechts das 10 m³ Containment. In das Containment ragt von oben der sogenannte Condenser, der aus einem nassen Teil, an dem zeitweise Dampf kondensiert, und einem trockenen Teil besteht und der mit Containment-typischem Dekontaminationsanstrich, im weiteren Text schlicht als "Farbe" bezeichnet, versehen ist. Der Sumpf ist mit 125 l Wasser gefüllt und der pH-Wert ist sauer (Anfangswert pH = 5,6). Die enthaltene Borsäure hat eine begrenzte Pufferwirkung. Der pH-Wert fällt dennoch im Verlauf des Experiments infolge des Eintrags von Aerosolen auf 4,5 am Ende des Versuchs (t = 97 h) ab. Die Con-

tainmentwand besteht aus elektropoliertem Stahl, nur die Condenseroberfläche ist mit Farbe angestrichen.

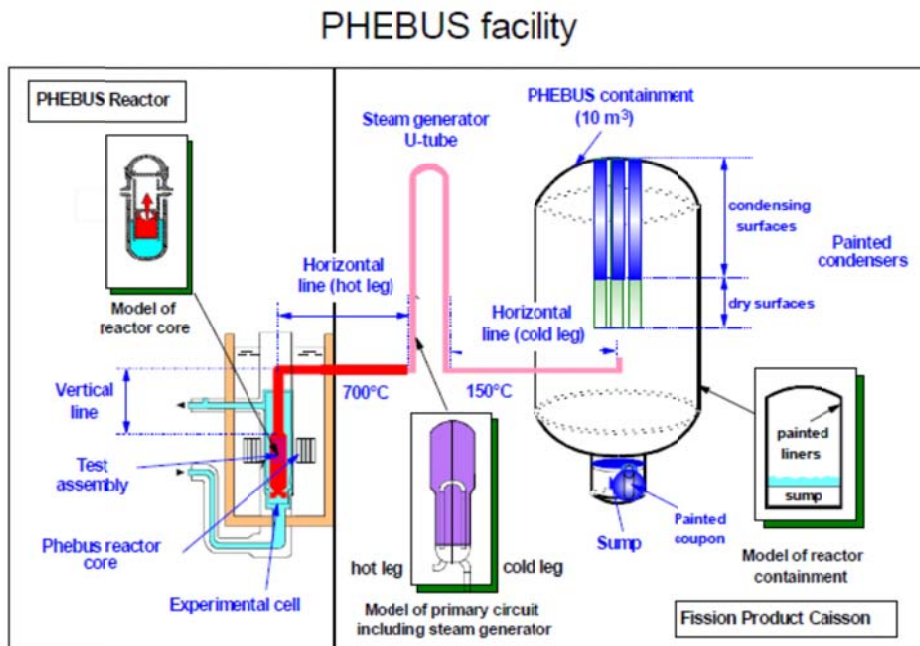


Abb. 2-1 Schematische Darstellung der PHEBUS-Anlage, aus /JAC 00/

Abb. 2-2 zeigt die einzelnen Versuchsphasen des FPT1. Ab $t = 3$ h gelangen SP ins Containment, zuerst die Edelgase, dann flüchtige SP, darunter gasförmiges Iod, weiter aerosolförmiges Iod und schließlich weitere aerosolförmige SP. Mit ihnen wird auch Dampf freigesetzt, der zu einem großen Teil am nassen Condenser kondensiert. Bei $t = 5,8$ h wird das Containment vom Primärkreis strömungstechnisch getrennt und die aerosolförmigen SP lagern sich durch natürliche Prozesse im Containment vorwiegend am Boden ab. Die anschließende Chemie-Phase dient vorwiegend der Messung des Iodverhaltens. In der Abwaschphase werden die auf dem elliptischen Boden abgelagerten SP mit Hilfe eines starken Sprays in den Sumpf abgewaschen. Nach $4 \frac{1}{2}$ Tagen endet der Versuch.

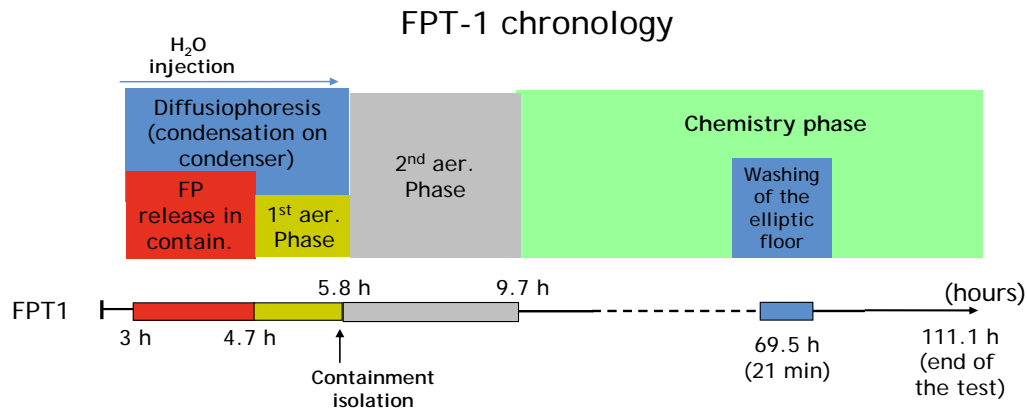


Abb. 2-2 Ablauf des PHEBUS-Versuchs FPT1, aus /BOS 12/

2.2 Thermohydraulik und Aerosolverhalten in FPT1

Die Temperaturen der Containmentoberflächen, das sind die Behälterwand, der nasse und trockene Condenser sowie die Sumpfoberfläche werden während des ganzen Versuches auf konstanten, aber unterschiedliche Temperaturen gehalten (Abb. 2-3). Die Atmosphärentemperatur folgt der Wandtemperatur, nur während der Dampfeinspeisung treten kleinere Abweichungen auf. Vor dem Abwaschen werden die Sumpftemperatur und die Temperatur des nassen Condensers abgesenkt, um eine SP-Freisetzung durch Verdampfung des Sprühwassers zu verhindern.

Das Sumpfwasser wird mechanisch durchmischt. Im Sumpf befindet sich ein farbgeschichteter Coupon zur Messung der Iod/Farbe-Reaktion in wässriger Phase.

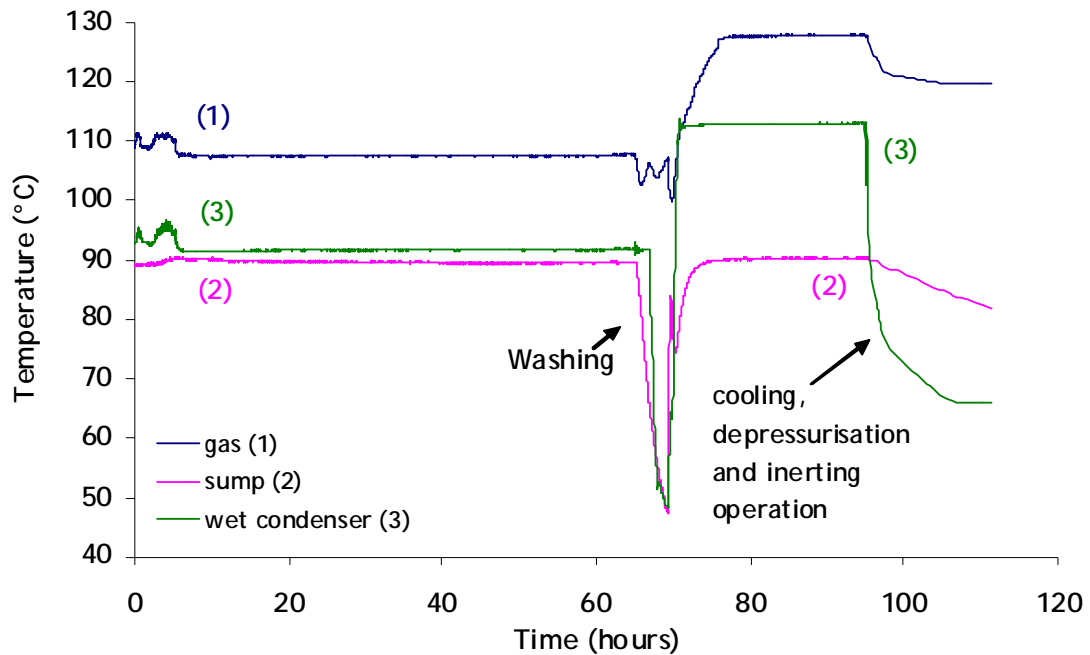


Abb. 2-3 Verlauf der Temperaturen im Containment während PHEBUS FPT1, aus /BOS 12/.

2.3 Iodverhalten in FPT1

Insgesamt werden in das Containment 0,72 g Iod aus dem Kreislauf freigesetzt, das sind 64 % des Bündel-Inventars. Von den 0,72 g sind 1,25 % gasförmig, im Wesentlichen elementares Iod (I_2) und HI. Der überwiegende Teil ist aerosolförmiges CsI.

CsI-Aerosol und I_2 werden zusammen mit anderen SP (Edelgase und Aerosole) sowie Steuerstab- und Strukturmaterial in das Containment eingespeist. Die Aerosole setzen sich vorwiegend auf dem elliptischen Boden ab. Nur etwa 1/10 gelangt direkt in den Sumpf. Das reaktive Gas I_2 reagiert mit der Stahlwand und mit dem Farbanstrich des Condensers. Unter Einwirkung radioaktiver Strahlung (0.2 bis 0.6 Gy/s) entsteht aus dem abgelagerten I_2 Organoiod (RI), dessen wichtigster Vertreter Methyljodid (CH_3I) ist. Die wesentlichsten Iod-Reaktionen sind schematisch in Abb. 2-4 dargestellt.

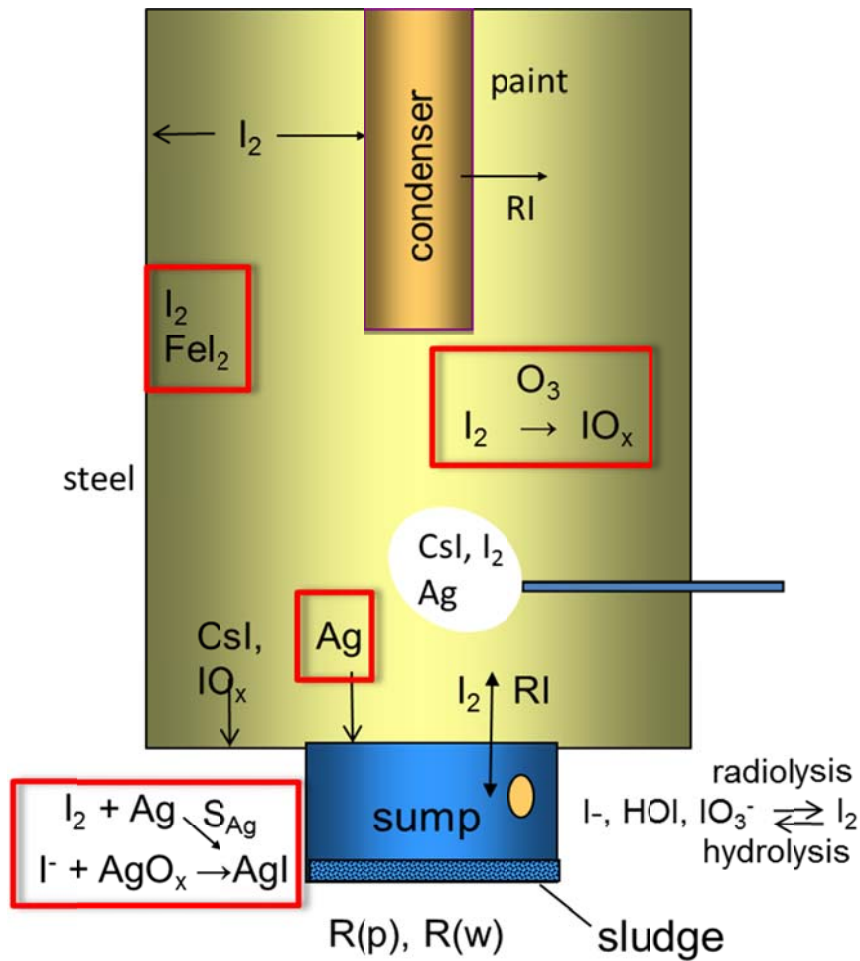


Abb. 2-4 Wesentliche Iod-Reaktionen im PHEBUS-Containment

In der Gasphase reagiert I_2 auch mit den Radiolyseprodukten der Luft, vor allem mit Ozon, unter Bildung des feindispersen Aerosols IO_x .

Ein wesentlicher Teil der Iodchemie spielt sich in wässriger Phase, im Wesentlichen im Sumpf ab. Hydrolyse- und Radiolysereaktionen bestimmen die Anteile von flüchtigen (I_2) und nichtflüchtigen Iodspezies (I^- , IO_3^- , HOI) im Sumpf. In Gegenwart von organischem Material wird auch **RI** im Sumpf gebildet. Die flüchtigen Spezies I_2 und **RI** treten aus dem Sumpf in den Gasraum aus. I_2 aber auch I^- reagieren im Sumpf mit den Silberpartikeln zu **AgI**, das nicht flüchtig und schwerlöslich ist und sich in dem sogenannten Schlamm des Sumpfes ablagert.

Die Iodspezies haben sehr unterschiedliche physikalische Eigenschaften:

- **Organoiod** (CH_3I , etc.) ist ein nicht-reaktives Gas, das sich nicht nennenswert auf Oberflächen ablagert und keine chemischen Reaktionen eingeht, aber radiolytisch zersetzt werden kann.
- **Elementares Iod** (I_2) ist ein reaktives Gas, das eine Vielzahl von Verbindungen eingeht und wasserlöslich ist. I_2 lagert sich auf Oberflächen ab und kann von dort wieder freigesetzt werden.
- **Cäsiumiodid** (CsI) ist ein leicht hygroskopisches Aerosol. Es dissoziiert im Wasser zu nicht flüchtigem I^- und Cs^+ .

3 COCOSYS-AIM-Rechnung zu FPT1

3.1.1 Rechenprogramm COCOSYS-AIM-3

Das **Containment Code System** COCOSYS wird von der GRS zur umfassenden Simulation der Vorgänge in Containments von Leichtwasserreaktoren bei einem schweren Unfall entwickelt /ALL 08/. Ein Schwerpunkt von COCOSYS ist die Erfassung von Wechselwirkungen zwischen Thermohydraulik, Wasserstoffverbrennung, Aerosolphysik, Iodchemie und das Nuklidverhalten. AIM (**A**dvanced **I**odine **M**odule) ist das Iodmodell in COCOSYS. AIM-3 berechnet insgesamt 70 chemische Reaktionen und physikalische Prozesse für 26 Iodspezies und 8 Spezies anderer Elemente in jeder Rechenzone sowie den Iodtransport mit den Gas- und Wasserströmen zwischen den Räumen. Die thermohydraulischen Randbedingungen werden vom Thermohydraulik-Modul zur Verfügung gestellt und das Aerosolverhalten der partikelförmigen Iodspezies wird im Aerosolmodul berechnet. Alle AIM-3-Teilmodelle werden, so wie in /WEB 09a/ beschrieben, auch in der Rechnung zu FPT1 eingesetzt. Eine Ausnahme bildet nur das Iod/Stahl-Modell /SPE 12/, das in einer weiterentwickelten Form verwendet wurde.

Alle Rechnungen zur Unsicherheits- und Sensitivitätsstudie werden mit der aktuellen Anwenderversion COCOSYS V2.4, die auch die aktuelle AIM-3-Version enthält, durchgeführt /KLE 12/. Auch die bereits früher durchgeführte und in /BOS 12/ beschriebene Rechnung zu FPT1, die jetzt als Referenzlauf diente, wurde mit dieser Version wiederholt. Die Abweichungen von den alten Ergebnissen sind minimal.

3.1.2 Nodalisierung

Aufgrund der Erfahrung aus früheren Arbeiten zu PHEBUS wird das Iodverhalten in FPT1 in einer integralen Rechnung, also inklusive Thermohydraulik und Aerosolphysik simuliert. Obwohl die Containmentatmosphäre relativ gut durch Naturkonvektion durchmischt war, wird eine Mehrraumrechnung durchgeführt. Die Mehrraum-Nodalisierung erlaubt, die Iodverteilung zwischen dem Condenser, der Behälterwand und dem Sumpf zu analysieren sowie lokale Konzentrationsunterschiede gasförmiger und abgelagerter Iodspezies zu bestimmen.

Die thermohydraulische Nodalisierung des PHEBUS Containments hat 14 Zonen (Abb. 3-1). Zylindrische Zonen sind von kreisringförmigen Zonen umgeben, um die Natur-

konvektion mit Gegenströmung vor allem im Bereich des Condensers gut abbilden zu können. Für die Iod-Rechnung können zwei oder mehrere thermohydraulische Zonen zu einer sogenannten Iod-Zone zusammengefasst werden. Für FPT1 wurde diese Option genutzt und die Iod-Nodalisierung umfasst daher 9 Zonen. Die lokale Auflösung ist für das vorliegende Problem völlig ausreichend.

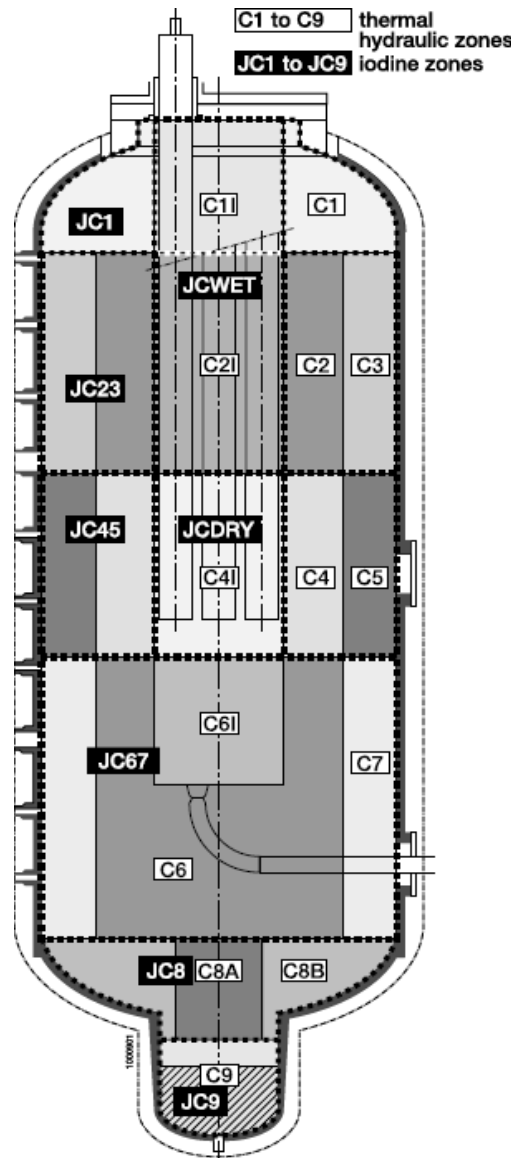


Abb. 3-1 COCOSYS-Nodalisierung des PHEBUS-Containments

Einspeisungen

Die Einspeisedaten für Dampf, Wasserstoff, Csl und andere SP-Aerosole in das Containment aus /JAC 00/ sind in Tab. 3-1 zusammengefasst. Es werden die Aerosolkomponenten Csl, Ag, IOx, und Restaerosol (AEREST) simuliert. In AEREST sind alle anderen Komponenten wie SP, Steuerstabmaterial, sowie Bündel und Strukturmaterial zusammengefasst.

Die I₂-Einspeisung wird aufgrund einer Abschätzung von IRSN vorgegeben, da die Messung kein eindeutiges Ergebnis lieferte. Die Abschätzung ergab, dass 1,25 % des ins Containment freigesetzten Iods gasförmiges I₂ waren. Es konnte aber nicht geklärt werden, ob das I₂ tatsächlich aus dem Primärkreis und damit aus dem Kern stammt oder ob es erst im Containment gebildet wurde.

Tab. 3-1 Einspeisung von Gas, Iod und Aerosol ins Containment

Ein- spei- sung	Zo- ne	Einspeisezeit, [s]	Masse, [g]	MMD*, [µm]	σ**	Anmerkungen
Dampf	C6I	0 – 18610	2.57·10 ⁴	-	-	
H₂	C6I	8760 – 14460 und 15380 – 17320	0.101	-	-	Aus der Hüllrohr- Oxidation
N₂	C6I	8200 – 35220	-1.82·10 ³	-	-	Abzug durch Pro- benahme
Csl	C6I	10500 – 17522	1.48	1.61	1.9	Aerosol, davon 0.72 g Iod
I₂	C6I	10500 – 17523	9·10 ⁻³	-	-	Entspricht 1.25 % des gesamten Iods, das ins Containment freigesetzt wurde
Ag	C6I	11040 – 17150	31.9	1.61	1.9	Aerosol, 10 % AgO _x
IOx	C6I	12810 – Ende der Rechnung	berech- net	0.2	2.0	IOx berechnet von AIM; Aerosolpara- meter aus THAI- Experimenten
Rest- aero- sol	C6I	10050 – 17550	75.5	1.61	1.9	Umfasst alle ande- ren Aerosole SP, Steuerstabmaterial, Bündel und Struk- turmaterial, etc.

für Aerosole * massengemittelter Median-Durchmesser, ** Standardabweichung

3.1.3 Rechenergebnisse

3.1.3.1 Thermohydraulische und Aerosol-Ergebnisse

Die thermohydraulischen Ergebnisse, das sind im Wesentlichen der Gesamtdruck im Containment, die Atmosphärentemperaturen und die Kondensationsraten am nassen Condenser, sind in guter Übereinstimmung mit den Messwerten. Dies ist auf die kontrollierten Wandtemperaturen zurückzuführen. Die Temperaturen weichen nicht mehr als ± 1 K von den Messwerten ab /JAC 00/.

Die berechneten Atmosphärenströme (Naturkonvektion) stellen sich als stark genug heraus, die luftgetragenen SP im Containment stets gut zu durchmischen. Messwerte zu den Strömen liegen nicht vor, doch deuten alle Messergebnisse auf eine stets homogene Verteilung der SP im Containment hin.

In Abb. 3-2 ist die gemessene und berechnete Csl-Aerosolkonzentration wiedergegeben. Das aus dem Primärkreis eingespeiste Csl lagert sich schnell ab.

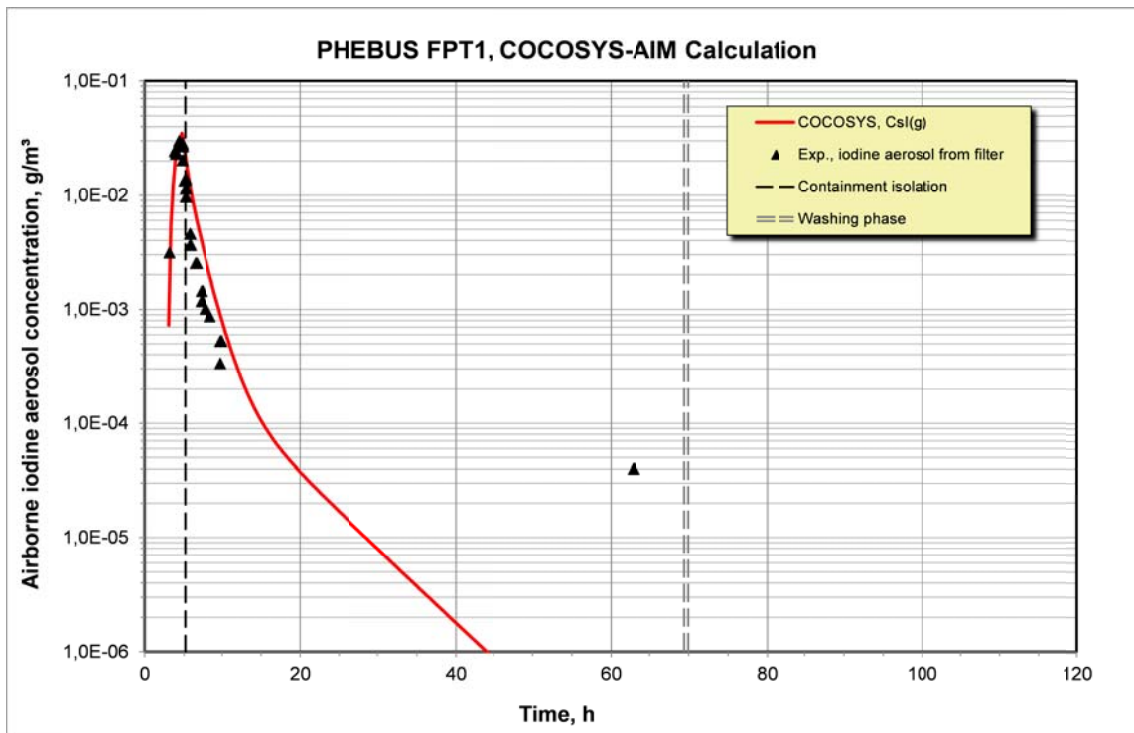


Abb. 3-2 Gemessene und berechnete Csl- und IOx-Aerosolkonzentrationen

3.1.3.2 Ioderggebnisse

Die wichtigsten Iodspezies sind die luftgetragenen, die im Falle eines Containmentlecks an die Umgebung entweichen können. Das sind I_2 , Organoiod und die aerosolförmigen Spezies CsI und IOx . Sie bilden den Iodquellterm.

Iod im Gas

Abb. 3-3 zeigt die gemessenen und mit COCOSYS-AIM gerechneten gasförmigen I_2 -Konzentrationen. Am Anfang des Versuchs (Konzentrationsspitze) ist ausschließlich das aus dem Primärkreis direkt eingespeiste I_2 im Containment vorhanden, 1,25 % des gesamten freigesetzten Iods. Dieses lagert sich schnell auf den Oberflächen ab. Im weiteren Verlauf wird durch Radiolyse im Containmentsumpf neues I_2 gebildet und es stellt sich mit den Abbaureaktionen in der Gasphase (I_2 -Ablagerung, I_2 /Ozon) ein Gleichgewicht ein. Nach dem Abwaschen des elliptischen Bodens steigt die Konzentration in der Gasphase wegen der höheren I^- -Konzentration im Sumpf. In der Rechnung wird die $I_2(g)$ -Konzentration um etwa einen Faktor 6 unterschätzt.

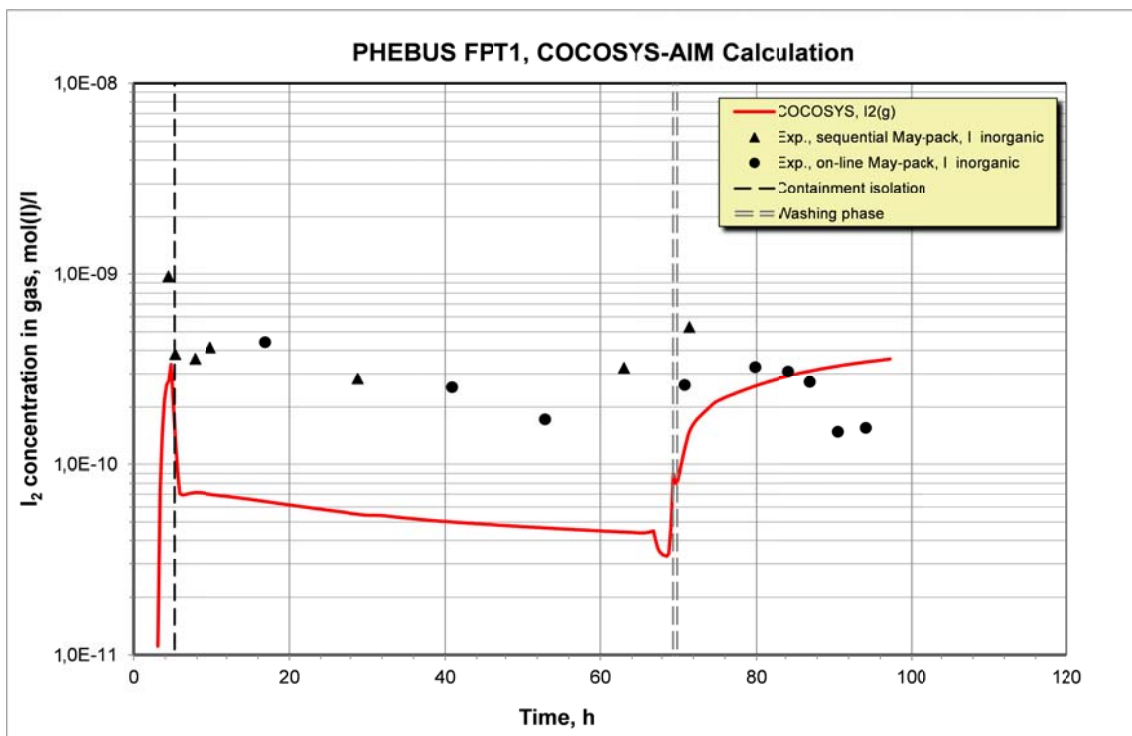


Abb. 3-3 I_2 Konzentration im Containment

Der Verlauf der Organoiodkonzentration ist in Abb. 3-4 dargestellt. Die Übereinstimmung der Rechen- mit den Messwerten ist generell gut, nur die gemessene Konzentrationsspitze am Anfang des Versuchs wird nicht korrekt wiedergegeben.

Abb. 3-5 zeigt die IOx-Konzentration im Containment. Es sind nur drei Messwerte verfügbar. Insbesondere nach dem Abwaschen lässt sich der gerechnete Konzentrationsverlauf nicht überprüfen.

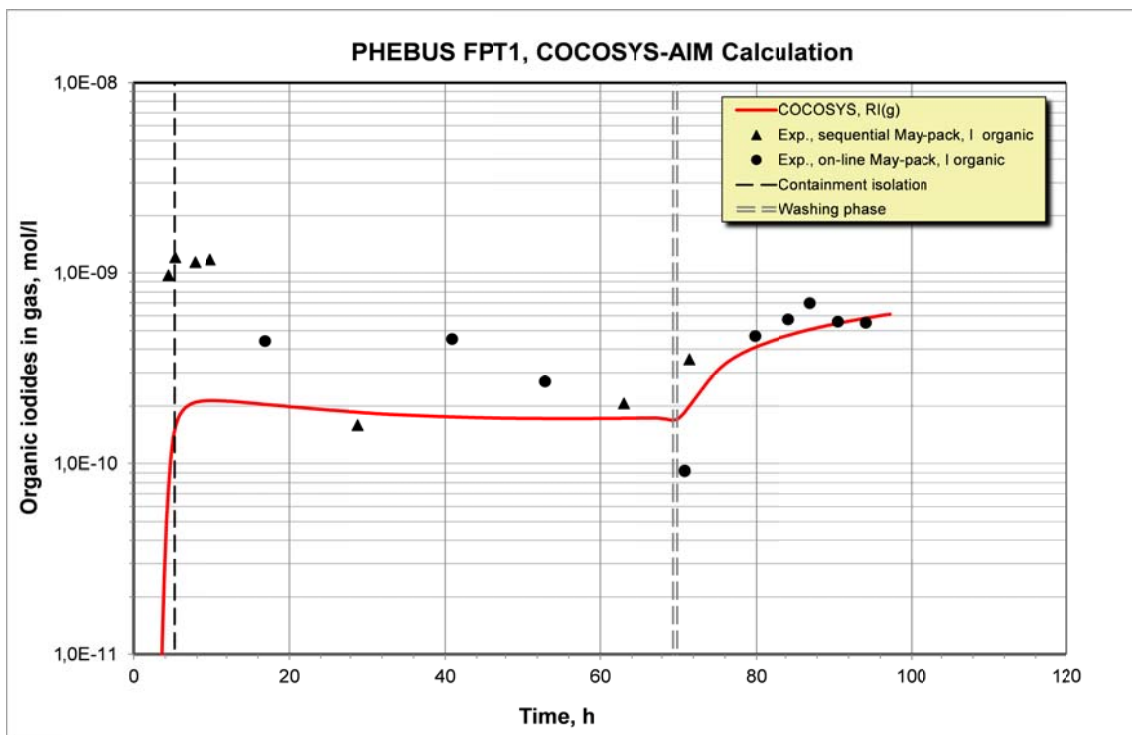


Abb. 3-4 Organoiodkonzentration im Containment

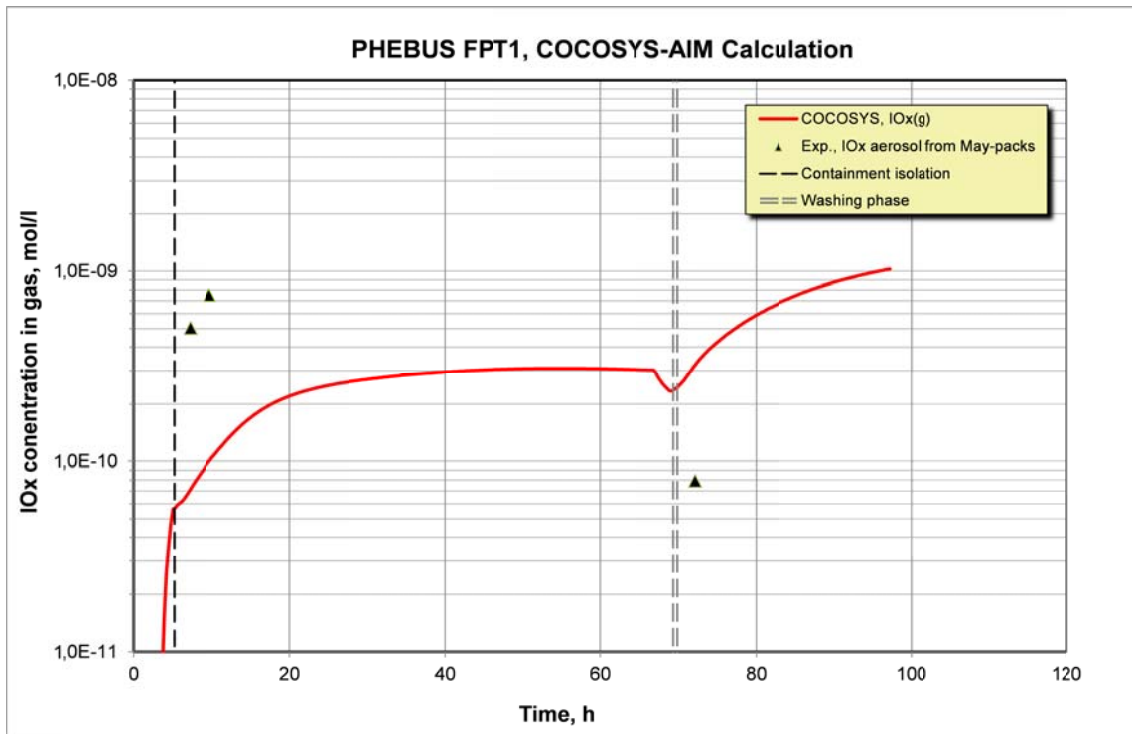


Abb. 3-5 IOx-Konzentration im Containment

Iod im Sumpf

Durch Hydrolyse und radiolytische Prozesse werden im Sumpf bei einem pH zwischen 4.55 und 5.77 die Spezies I_2 , IO_3^- , I^- und HOI gebildet. I_2 und I^- reagieren mit den Ag- bzw. AgOx-Partikeln zu schwerlöslichem AgI (Abb. 3-6). Diese Reaktionen hängen unter anderem von der spezifischen Oberfläche der Ag-Partikel ab. Je größer die spezifische Oberfläche, desto schneller laufen die Reaktionen im Sumpf ab.

In AIM ist die spezifische Oberfläche der Ag- und AgOx-Partikel für Containment-Sumpf-Anwendungen auf $5.7 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ gesetzt. Das entspricht einer mittleren Partikelgröße von 100 μm . Dabei wird angenommen, dass die schweren Silberpartikel im Sumpf schnell in den sogenannten Schlamm auf dem Sumpfboden sedimentieren und dort weiter agglomerieren.

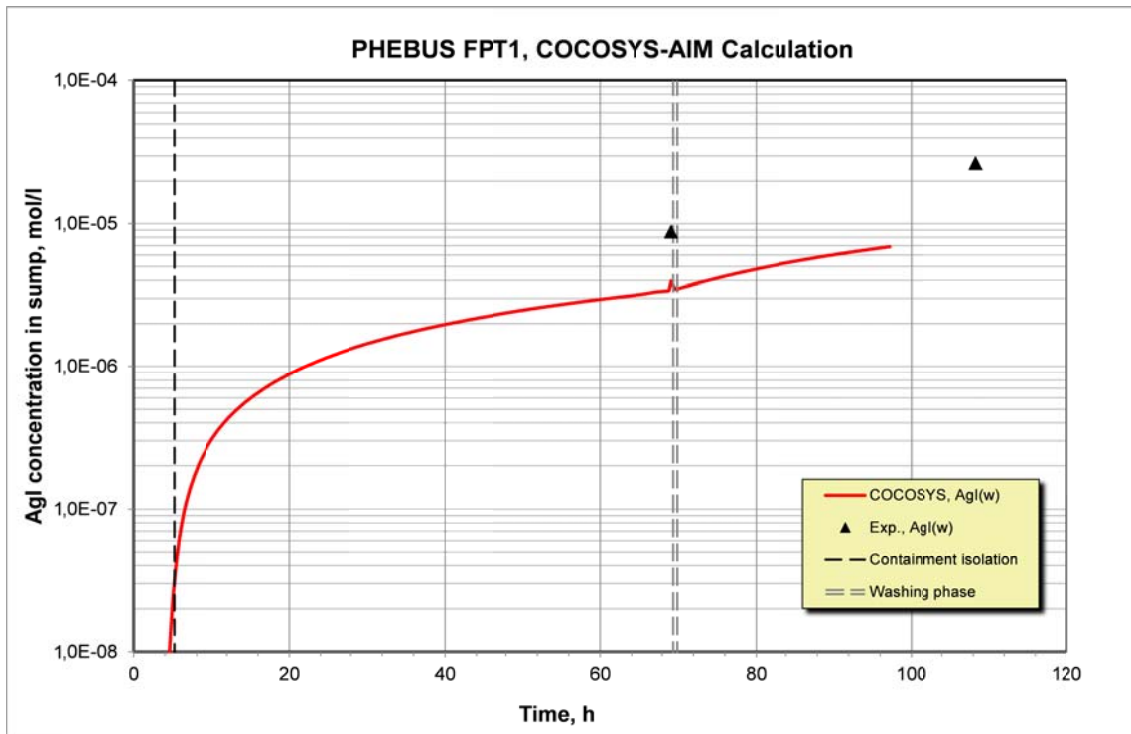


Abb. 3-6 AgI-Konzentrationen im Sumpf

Abgelagertes Iod

Abgelagertes Iod wurde nur am nassen Condenser gemessen Abb. 3-7. Die Messung mit dem Online-Gammaspektrometer erfasst das gesamte Iod, das sich im Wesentlichen aus abgelagertem CsI-Aerosol, physisorbiertem I_2 und chemisorbiertem Iod zusammensetzt.

Das mit AIM berechnete abgelagerte Iod ist hauptsächlich CsI. Bis zum Abwaschen des elliptischen Bodens bei $t = 69,5$ h stimmen Rechen- und Messwerte sehr gut überein. Durch Wandkondensation am Condenser wird dann in der Rechnung ein Großteil des abgelagerten, wasserlöslichen CsI in den Sumpf gespült. Durch die erhöhte $I_2(g)$ -Konzentration im Gas nach dem Abwaschen steigt die adsorbierte I_2 Menge und in der Folge das chemisorbierte Iod am Condenser an. Die Messung zeigt keine Änderung der gesamten Iodmenge am nassen Condenser. Eine mögliche Erklärung ist eine radiolytische Reaktion des abgelagerten CsI mit der Farbe. In AIM ist eine solche Reaktion nicht modelliert.

Die Iodrechnung zu PHEBUS FPT1 ist die Referenzrechnung für die Unsicherheits- und Sensitivitätsuntersuchung. Details der Rechnung sind in /BOS 12/ beschrieben.

PHEBUS FPT1, COCOSYS-AIM Calculation

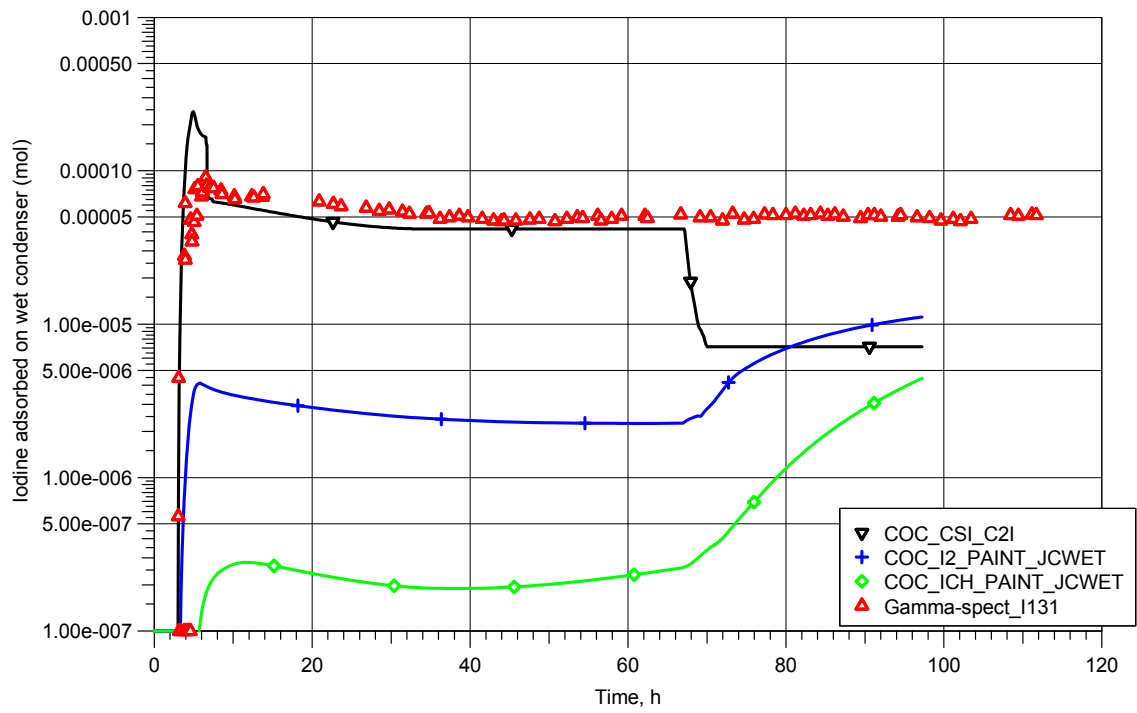


Abb. 3-7 Am nassen Condenser abgelagertes Iod

4 Unsicherheits- und Sensitivitätsuntersuchung

4.1 Kurzer Abriss der angewandten Methodik der probabilistischen Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse („GRS-Methode“)

Ziel von Analysen zur Unsicherheit und Sensitivität von Anwendungen komplexer Rechenmodelle ist die Beantwortung von zwei Fragen:

- (1) Wie groß ist der gemeinsame Einfluss aller Eingangsunsicherheiten auf die Ergebnisse des Rechenmodells? (Unsicherheitsanalyse)
- (2) Welche dieser Eingangsunsicherheiten tragen am meisten zur der Unsicherheit im Ergebnis bei? (Sensitivitätsanalyse)

Aussagen zu (1) sind u. a. von Bedeutung:

- beim Vergleich von Rechenmodellergebnissen mit Genehmigungsanforderungen. Damit lassen sich die Konservativität von Eingangsparametern und das Einhalten von Grenzwerten quantitativ bewerten.
- beim Vergleich von Rechenmodellergebnissen mit Messwerten bei Voraus- oder Nachrechnung von Experimenten. Damit lässt sich der Grad der Übereinstimmung von Experiment und Rechnung bewerten.
- beim Vergleich von Ergebnissen verschiedener Rechenmodelle zu demselben Szenario. Damit lässt sich der Grad der Übereinstimmung der Ergebnisse der beteiligten Rechenmodelle untereinander bewerten.

Aussagen zu (2) liefern Anhaltspunkte dafür, wo der Kenntnisstand durch weitere theoretische Untersuchungen, Experimente, Expertenbefragungen, Literaturrecherchen, Datensammlungen usw. vorrangig verbessert werden sollte, um die Unsicherheit der Ergebnisse des Rechenmodells in möglichst effizienter Weise zu reduzieren. Damit können Schwerpunkte für die Weiterentwicklung und Verbesserung des Rechenmodells gesetzt oder Hinweise geliefert werden, wo Entwicklungsarbeiten eingestellt werden könnten, weil durch genauere Modellierung keine wesentliche Reduzierung der Gesamtunsicherheit der Rechnung mehr zu erzielen ist.

Hauptmerkmale der in der GRS entwickelten Methode zur Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse ("GRS-Methode"), wie sie in der vorliegenden Studie angewandt wurde, sind:

- Die Quantifizierung der epistemischen Eingangsunsicherheiten, d. h. der Unsicherheiten im Kenntnisstand zu den Eingangsparametern, erfolgt probabilistisch durch Angabe von Wahrscheinlichkeitsverteilungen unter Zugrundelegung der Bayes'schen oder subjektivistischen Interpretation des Wahrscheinlichkeitsbegriffs, (Wahrscheinlichkeit zur Quantifizierung des Kenntnisstandes = „Grad des Fürwahrhaltens“, „degree-of-belief“).
- Die „Fortpflanzung“ der Eingangsunsicherheiten durch das Rechenmodell bis zum Endergebnis erfolgt mit Methoden der Monte-Carlo-Simulation, d. h. durch Zufallsauswahl der Parameterwerte gemäß den zugrunde gelegten Wahrscheinlichkeitsverteilungen. Wegen des hohen Rechenzeitbedarfs der verwendeten Rechenmodelle (z. B. ATHLET, ASTEC, COCOSYS etc.) muss der Stichprobenumfang, d. h. die Anzahl der im Zuge dieser Monte Carlo Simulation durchzuführenden Rechenläufe, möglichst gering gehalten werden.
- Aussagen zur resultierenden Ergebnisunsicherheit basieren auf statistischen Methoden der „geordneten Stichproben“ („order statistics“) und werden in Form verteilungsfreier statistischer Toleranzgrenzen formuliert. Die „Schärfe“ dieser Unsicherheitsaussagen wird dabei durch zwei statistische Größen β und γ vorgegeben

β = „Wahrscheinlichkeitsinhalt“, „Überdeckungswahrscheinlichkeit“, „probability content“, „coverage“ gibt an, welcher Anteil der Ergebnisunsicherheit von den zu ermittelnden Grenzen erfasst werden soll (in der Regel $\beta = 0,95$ bzw. 95%), und

γ = „Vertrauensgrad“, „Konfidenzniveau“, „confidence level“ gibt an, mit welcher statistischen Sicherheit (Vertrauen, Konfidenz) dies aufgrund der Beschränktheit des Stichprobenumfangs gelten soll (in der Regel $\gamma = 0,95$ bzw. 95%). Hiermit wird der Einfluss des Schätzfehlers berücksichtigt, der aus einer begrenzten Anzahl von Rechnungen resultiert.

In der gängigen internationalen Praxis wird eine Aussage über die Gesamtunsicherheit des Rechenergebnisses mit einer Wahrscheinlichkeit β von mindestens 95% und einem Vertrauensgrad γ von ebenfalls mindestens 95% gefordert. Bei einer Gaußverteilung würde dies in etwa dem Bereich $\mu \pm 2\sigma$ (Mittelwert \pm doppelte Standardabweichung) entsprechen. Die Standardabweichung ist gleich der Wurzel aus der Varianz, d. h. dem Mittelwert der quadrierten Abweichungen. Eine Abdeckung der doppelten mittleren Abweichung wird als adäquat und ausreichend angesehen.

- Sensitivitätsaussagen sollen zum Ausdruck bringen wie hoch der Beitrag ist, den die Unsicherheit in jedem der einzelnen Eingangsparameter zur Gesamtunsicherheit in der Ergebnisgröße liefert, d. h. „Sensitivität“ wird im Sinne von Unsicherheitsimportanz, „uncertainty importance“ verstanden. Solche Sensitivitätsaussagen basieren auf geeigneten Sensitivitätsmaßen oder Sensitivitätsindizes („uncertainty importance indices“), in deren Berechnung sowohl die im Rechenmodell abgebildeten funktionalen Zusammenhänge als auch die Verteilungen zur Quantifizierung der Unsicherheiten in den einzelnen Parametern eingehen.

Die „GRS-Methode“ hat gegenüber anderen Methoden der Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse folgende Vorteile:

- Sie ist ohne Einschränkungen auf jedes beliebige Rechenmodell anwendbar. Besondere Anpassungen des Rechenprogramms sind nicht nötig, außer dass die Werte der zu variierenden Parameter über den Eingabedatensatz zugänglich sein sollten.
- Die Anzahl N der durchzuführenden Rechenläufe hängt nur von der geforderten „Schärfe“ der Unsicherheitsaussagen ab, ausgedrückt durch die beiden statistischen Größen β (= zu erfassende Unsicherheit) und γ (= gewünschte statistische Konfidenz aufgrund der Beschränktheit des Stichprobenumfangs N), nicht aber von der Anzahl der beteiligten unsicheren Eingangsparameter oder der resultierenden Ergebnisvariablen.
- Die Herleitung der Aussagen zur Sensitivitätsanalyse erfolgt auf der Basis derselben Modellrechnungen wie die Herleitung der Aussagen zur Unsicherheitsanalyse, es werden also hierfür keine zusätzlichen Rechenläufe benötigt.

4.1.1 Durchzuführende Schritte einer Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse

Für die Durchführung der Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse sind folgende Arbeitsschritte erforderlich:

- Erstellung eines Eingabedatensatzes für das COCOSYS-AIM Rechenmodell (Referenzfall).
- Auswahl von Eingabeparametern, deren Unsicherheiten für einflussreich gehalten werden, hier 93 unsichere Parameter, s. Kapitel 4.3.

- Vorauswahl der Ergebnisvariablen, für welche die Unsicherheits- und Sensitivitätsaussagen gemacht werden sollen, hier 28 Ergebnisvariablen, s. Kapitel 4.6.
- Präparierung des Eingabedatensatzes zur Aufnahme der zu variierenden Parameterwerte für die Durchführung der Variationsrechnungen und zur Ausgabe der gewünschten Ergebnisgrößen.
- Quantifizierung der Parameterunsicherheiten
Für jeden der ausgewählten 93 Eingabeparameter Festlegung von Referenzwert, Wertebereich, Wahrscheinlichkeitsverteilung und evtl. weiterer Zusatzbedingungen wie z. B. Abhängigkeiten mit anderen Parametern, die im Zuge der Monte Carlo Simulation zu beachten sind. Im vorliegenden Fall wurden Korrelationskoeffizienten von jeweils 0.5 zwischen den Parametern Nr. 10, 12 und 15 festgelegt, um die Kenntnisstandabhängigkeit zwischen diesen Parametern zu quantifizieren, s. Kapitel 4.4. Es wurden überwiegend die Verteilungstypen Uniform, Log-Uniform, Dreiecks, Log-Dreiecks zur Quantifizierung der Parameterunsicherheit verwendet. Begründung dazu s. weiter unten.
- Durchführung der Zufallsauswahl von Parameterwerten und der entsprechenden Variationsrechnungen mit COCOSYS-AIM
Für alle unsicheren Parameter werden aus den festgelegten Wertebereichen entsprechend den festgelegten Wahrscheinlichkeitsverteilungen und Abhängigkeiten jeweils $N = 208$ Parameterwerte nach dem Zufallsprinzip ausgewählt (Monte-Carlo). Mit diesen Parameterwerten werden dann die entsprechenden $N = 208$ Eingabedatensätze erstellt und die Rechenläufe mit COCOSYS-AIM durchgeführt (Begründung für die Wahl von $N = 208$ s. unten). Aus jedem Rechenlauf ergibt sich dann jeweils ein alternativer zeitabhängiger Verlauf für jede der 28 betrachteten Ergebnisgrößen.
- Berechnung, geeignete Speicherung und gemeinsame graphische Darstellung der Ergebnisse der $N = 208$ Variationsrechnungen, d. h. der 208 Zeitverläufe für jede der betrachteten 28 Ergebnisvariablen.
- Unsicherheitsanalyse Bestimmung und graphische Darstellung der (zeitabhängigen) Unsicherheitsbereiche aus den Ergebnissen dieser $N = 208$ Variationsrechnungen in Form zeitabhängiger zweiseitiger statistischer 95%/95% Toleranzgrenzen für die ausgewählten Ergebnisvariablen (Formeln dazu s. unten).

- Sensitivitätsanalyse Berechnung und graphische Darstellung zeitabhängiger Sensitivitätsindizes zur Ermittlung der Rangfolge der Beiträge der einzelnen Parameterunsicherheiten zur Unsicherheit der jeweiligen Ergebnisgröße (Formeln dazu s. unten).
- Diskussion und Interpretation der Analyseergebnisse.

Weitere Erläuterungen

1. Begründung der Wahl der Verteilungstypen *Uniform*, *Dreieck*, *Log-Uniform* und *Log-Dreieck* zur Quantifizierung der Parameterunsicherheit und deren graphische Veranschaulichung:

- Die **Uniformverteilung** (auch Rechtecks- oder Gleichverteilung genannt) wird verwendet, wenn nur der Wertebereich (Intervall, min. und max.) eines Parameters gegeben ist, sonst aber keine weiteren Informationen oder Kenntnisse über diesen Parameter vorliegen. Alle Werte innerhalb des Intervalls sind dann als gleichwahrscheinlich zu betrachten, d. h. keinem der Werte wird gegenüber den übrigen in irgendeiner Weise der Vorzug gegeben (sog. „Maximum-Entropie-Prinzip“). Die Uniformverteilung wurde vorwiegend verwendet, wenn die Unsicherheit eines Parameters direkt oder über einen additiven Term zum Referenzwert zu quantifizieren war.

- Die **Dreiecksverteilung** ist dann angebracht, wenn zusätzlich zum Wertebereich (min., max.) eines Parameters auch ein Modalwert (in der Regel der Referenzwert) vorliegt, bei welchem die Verteilungsdichte ein ausgeprägtes globales Maximum besitzen soll, sonst aber keine weiteren Informationen oder Kenntnisse über diesen Parameter vorliegen. Der Modalwert/Referenzwert muss nicht in der Mitte des Wertebereichs liegen. Die Verteilungsdichte hat die Form eines Dreiecks mit der Spitze über dem Modalwert. Den vom Modalwert weiter entfernten Werten kommt daher naturgemäß eine geringere Wahrscheinlichkeit zu als den näher liegenden. Die Streubreite (Varianz) der Werte im Zuge der Zufallsauswahl bei der Dreiecksverteilung ist damit geringer als bei einer Uniformverteilung über demselben Intervall. Auch diese Verteilung wurde verwendet, wenn die Unsicherheit eines Parameters direkt oder über einen additiven Term zum Referenzwert zu quantifizieren war und die entsprechende Uniform-Verteilung als zu breit gestreut beurteilt wurde.

Die **Log-Uniform-Verteilung** geht aus der Uniform-Verteilung durch die Exponen-

tialtransformation hervor oder, anders ausgedrückt, der Logarithmus einer Log-Uniform verteilten Variablen ist Uniform verteilt. Die Log-Uniform ist besonders dann angebracht, wenn die Unsicherheit eines Parameters durch einen multiplikativen unsicheren Korrekturfaktor bezogen auf den Referenzwert repräsentiert werden soll. Der Wertebereich dieser Verteilung hat die Form $[1/a, a]$ mit $a > 1$ und die Wahrscheinlichkeitsdichte ist $f(x) = c/x$, mit $c = 1/(2 \ln a)$. Darüber hinaus gilt die charakteristische und erwünschte Eigenschaft, dass im beliebigen rechten Teilintervall der Form $[1, b]$ genauso viel Wahrscheinlichkeit/Unsicherheit liegt wie in dem entsprechenden linken Teilintervall $[1/b, 1]$ und zwar für jeden Wert b mit $1 \leq b \leq a$. Grob gesprochen bedeutet dies z. B., dass der zutreffende Parameterwert im Vergleich zum Referenzwert mit der gleichen Wahrscheinlichkeit höchstens doppelt so groß wie mindestens halb so groß sein kann.

Die **Log-Dreiecksverteilung** (mit Modalwert bei 1) wird, ähnlich der Log-Uniform-Verteilung, ebenfalls zur Darstellung und Quantifizierung der Unsicherheit eines Parameters durch einen multiplikativen unsicheren **Korrekturfaktor** verwendet. Die Streubreite (Varianz) der Log-Dreiecksverteilung ist naturgemäß geringer als die der entsprechenden Log-Uniform Verteilung. Ansonsten bestehen die gleichen Beziehungen, insbesondere die gleichen Symmetrieverhältnisse wie bei der Log-Uniform-Verteilung, s. oben.

Neben den jeweiligen Wahrscheinlichkeitsverteilungen zur probabilistischen Quantifizierung der Unsicherheit der einzelnen Parameter wurden auch **Korrelationskoeffizienten** zur Quantifizierung der **Kenntnisstandabhängigkeit** zwischen einzelnen Parametern festgelegt, und zwar jeweils ein Korrelationskoeffizient von 0.5 zwischen den Parametern 10 und 12, 10 und 15, sowie 12 und 15 (vgl. Tab. 4-4). Interpretation dazu: Die Unsicherheit der beteiligten Parameter setzt sich jeweils „zur Hälfte“ aus einem identischen gemeinsamen Anteil und einem unabhängigen individuellen Anteil zusammen.

Die in der vorliegenden Studie verwendeten Verteilungstypen sind in Abb. 4-1 schematisch dargestellt.

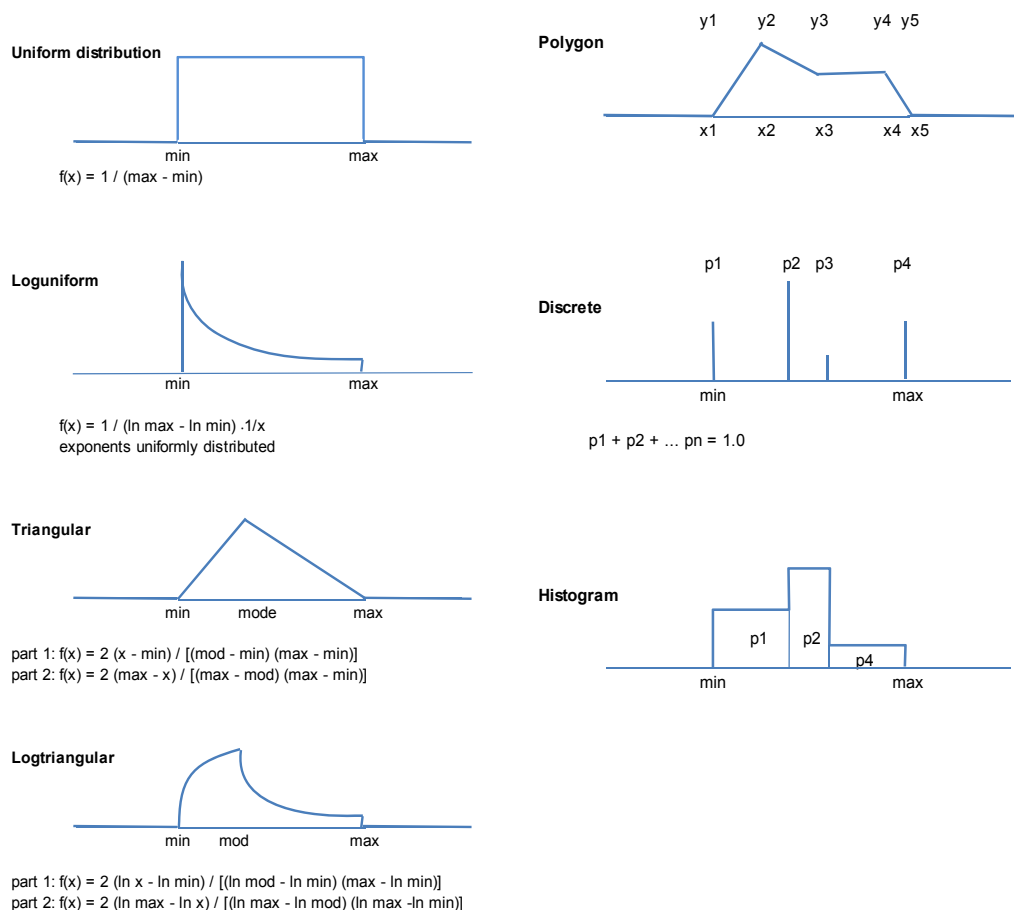


Abb. 4-1 Graphische Veranschaulichung der Verteilungstypen zur Quantifizierung der Parameterunsicherheiten

2. Begründung für die Wahl von $N = 208$ und Formeln zur Bestimmung der entsprechenden 95%/95%-Unsicherheitsbereiche:

Für die vorliegende Analyse wurden $N = 208$ Rechnungen durchgeführt. Jede dieser Rechnungen liegt eine der $N = 208$ verschiedenen, nach dem Zufallsprinzip generierten Wertekombinationen der 93 Eingangsparameterwerte zu Grunde. Dabei wurden alle Parameter gleichzeitig variiert und die Werte durch einfache Zufallsauswahl („simple random sampling“) aus den spezifizierten Wahrscheinlichkeitsverteilungen bestimmt unter entsprechender Berücksichtigung eventueller Abhängigkeiten zwischen den Parametern /KRZ 88/. Die Gesamtheit der resultierenden $N = 208$ alternativen (zeitabhängigen) Modellergebnisse bildet dann eine Stichprobe aus der (zeitabhängigen) Wahrscheinlichkeitsverteilung für jede der interessierenden Ergebnisgrößen zu festgelegten Zeitpunkten. Diese Anzahl N ist bei der Anwendung der GRS-Methode unabhängig von der Anzahl der unsicheren

Modellparameter und der Anzahl der interessierenden Ergebnisgrößen. Sie hängt lediglich von den geforderten statistischen Eigenschaften der zu bestimmenden Toleranzgrenzen ab, ausgedrückt durch die beiden statistischen Größen:

β = zu erfassende Unsicherheit (hier $\beta = 0.95$) und
 γ = gewünschte statistische Konfidenz aufgrund der Beschränktheit des Stichprobenumfangs N (hier $\gamma = 0.95$).

Die Bestimmung der einseitigen (oberen) Toleranzgrenze L erfolgt auf der Basis der „order statistics“, d. h. der N der Größe nach sortierten Werte $y(1N) \leq y(2N) \leq \dots \leq y(NN)$ der betrachteten Ergebnisgröße Y zum festgelegten Zeitpunkt, und zwar gemäß der Gleichung

$$L = y(sN) \qquad \text{Gl. 4-1}$$

(1) d. h. als der sortierte Y -Wert Nr. s von insgesamt N . Mit anderen Worten, die obersten $N-s$ Werte werden eliminiert. Der gesuchte Index $s \in \{1, \dots, N\}$ bestimmt sich aus der Beziehung

$$\sum_{i=s}^N \binom{N}{i} \beta^i (1-\beta)^{N-i} \leq 1-\gamma, \qquad \text{Gl. 4-2}$$

(2) die zwischen N , s , β und γ bestehen muss, damit $L = y(sN)$ ein einseitiges (β, γ) -Toleranzlimit ist /GUT 70/, /KRZ 90a/, /GLA 08/. Die nachfolgende Tabelle zeigt einige Wertpaare (N, s) , die aus der obigen Beziehung Gl. 4-2 für $(\beta, \gamma) = (0.95, 0.95)$ bestimmt wurden.

Tab. 4-1 zeigt einige Werte von N und den dazugehörigen Index s , ermittelt aus der obigen Gl. 4-2 für $\beta = 0.95$ und $\gamma = 0.95$, so dass die „order statistics“ $y(sN)$ ein einseitiges 95%/95%-Toleranzlimit ist.

Tab. 4-1 Alternative Modellergebnisse N und Index s

N	59	93	124	153	181	208	234	260	286	311	336	361	555
s	59	92	122	150	177	203	228	253	278	302	326	350	536

Danach sind z. B. mindestens $N = 59$ Rechenläufe erforderlich, um ein einseitiges oberes (oder unteres) 95%/95%-Toleranzlimit bestimmen zu können, welches dann aus dem 59-ten, d. h. dem größten der 59 Werte besteht.

Die Tabelle kann auch so gelesen werden, dass man, um das einseitige 95 %/95 %-Toleranzlimit zu erhalten, die obersten (oder untersten) N-s Werte aus der Stichprobe entfernen darf.

Die zweiseitigen Limits ergeben sich aus derselben Formel, nur dass nun zwei Indices s_1 und $s_2 \in \{1, \dots, N\}$ mit $s_1 < s_2$ so zu bestimmen sind, dass die insgesamt zu eliminierenden Werte $s_1 = N - s_2 + 1$ gleichmäßig auf beide Seiten verteilt werden. Dieses Vorgehen führt zu Tab. 4-2. Sie zeigt einige Werte von N und die dazugehörigen Indizes s_1 und s_2 , so dass die beiden Werte $y(s_1N)$ und $y(s_2N)$ der „order statistics“ ein zweiseitiges 95%/95%-Toleranzintervall bilden.

Tab. 4-2 Alternative Modellergebnisse N sowie die Indizes s_1 und s_2

N	93	153	208*	260	311	361	410	1013
s₂	93	152	206	257	307	356	404	994
s₁	1	2	3	4	5	6	7	20
*in vorliegender lod-Analyse									

Nach dieser Methode wären also mindestens $N = 93$ Rechenläufe erforderlich, um ein zweiseitigen 95 %/95 %-Toleranzintervall bestimmen zu können, welches dann aus dem 1-ten, d. h. dem kleinsten, und dem 93-ten, d. h. dem größten der 93 Werte bestehen würde (erste Wertespalte). Die 3-te Wertespalte ist für die vorliegende Studie

relevant und besagt, dass bei $N = 208$ Rechenläufen das 95%/95%-Toleranzintervall aus dem dritt kleinsten und dem dritt größten der 208 Stichprobenwerte besteht, mit anderen Worten, dass man von insgesamt $N = 208$ Stichprobenwerten die kleinsten zwei und die größten zwei eliminieren darf. Gegenüber dem Mindeststichprobenumfang von $N = 93$ hat der erhöhte Stichprobenumfang zwei Vorteile: (1) Reduzierung der Konservativität der so ermittelten Toleranzlimits, vgl. /GLA 08/ und (2) Erhöhung der Genauigkeit der resultierenden Sensitivitätsaussagen („importance ranking“).

Weitere Einzelheiten zur Unsicherheitsanalyse nach der „GRS-Methode“ und zusätzliche Literaturhinweise können den Referenzen /KRZ 90a/ /GLA 05/ /GLA 08/ entnommen werden.

4.1.2 Sensitivitätsanalyse

Aufgabe der Sensitivitätsanalyse ist es festzustellen, wie hoch der Beitrag ist, den die Unsicherheit in jedem der einzelnen Eingangsparameter zur Gesamtunsicherheit in der Ergebnisgröße liefert. Gemäß der Höhe der einzelnen Beiträge ergibt sich eine Rangordnung unter den unsicheren Eingangsparametern bezüglich des Einflusses ihrer Unsicherheiten auf die Unsicherheit der Ergebnisgröße („uncertainty importance ranking“). Diese Rangordnung liefert nützliche Hinweise darauf, wo der Kenntnisstand vorrangig verbessert werden sollte, um die Unsicherheit im Ergebnis möglichst effektiv zu reduzieren.

Im Vordergrund des Interesses einer Sensitivitätsanalyse steht also nicht die Frage, wie sensitiv ist der Wert einer Ergebnisgröße gegenüber kleinen Schwankungen der Werte der einzelnen unsicheren Eingangsparameter um den jeweiligen Nominalwert („lokale“, „differentielle“ Sensitivität), sondern vielmehr, wie stark hängt die Unsicherheit einer Ergebnisgröße von den Unsicherheiten in den einzelnen Eingangsparametern ab („globale“ Sensitivität im Sinne von Unsicherheitsimportanz, „uncertainty importance“). Im ersten Fall sind nur die im Rechenmodell abgebildeten funktionalen Beziehungen zwischen Eingangsparametern und Ergebnisgröße wirksam, im zweiten zusätzlich auch die durch Wahrscheinlichkeitsverteilungen quantifizierten Parameterunsicherheiten.

Bei Anwendung der „GRS-Methode“ erhält man die Sensitivitätsinformation auf der Basis derselben $N = 208$ Rechenläufe wie sie zur Ermittlung der Unsicherheitsergebnisse

bereits durchgeführt wurden. Zusätzliche Modellrechnungen eigens zum Zwecke der Sensitivitätsbestimmung werden also nicht benötigt.

Die gewünschte Rangordnung unter den unsicheren Parametern gemäß ihrem Beitrag zur Ergebnisunsicherheit erhält man mit Hilfe von Sensitivitätsmaßen oder -indizes. Ein Sensitivitätsmaß für eine Ergebnisgröße Y bezüglich eines unsicheren Parameters X ist ein in der Regel normierter, d. h. zwischen -1 und +1 liegender Zahlenwert, der die Stärke des Einflusses der Unsicherheit dieses Parameters auf die Unsicherheit der Ergebnisgröße quantitativ zum Ausdruck bringt.

Es gibt viele unterschiedliche Arten von Sensitivitätsmaßen mit unterschiedlichen Eigenschaften und Besonderheiten. Um zu beurteilen, welche von ihnen im jeweiligen Fall die geeigneten sind, ist nicht nur die genaue Kenntnis dieser Eigenschaften und Besonderheiten erforderlich, sondern häufig sind auch zusätzliche Untersuchungen durchzuführen. Im Rahmen der GRS-Methode werden in der Regel standardmäßig die sog. korrelationsbasierten Sensitivitätsmaße angewandt, wie z. B. der gewöhnliche Korrelationskoeffizient, der standardisierte Regressionskoeffizient, der partielle und der semipartielle Korrelationskoeffizient.

Um auch nicht-lineare Zusammenhänge zu erfassen, werden häufig Rangtransformationen durchgeführt. Die Originalwerte der Parameter und der Ergebnisse werden dabei durch die entsprechenden Ränge innerhalb der entsprechenden Stichproben substituiert. Aus diesen Rangwerten können dann in analoger Weise die entsprechenden rangkorrelationsbasierten Sensitivitätsmaße berechnet werden, so z. B. die Rang-Korrelationskoeffizienten, die den Grad eines monotonen Zusammenhangs zwischen Parameter X und Ergebnisgröße Y angeben.

Mehr Details zu diesen und weiteren Sensitivitätsmaßen siehe, /KRU 58/, /IMA 85/, /KRZ 90b/, /HOF 99/, /SAL 00/, /KRZ 01/

Im vorliegenden Fall wurde für die gesamte Analyse als Sensitivitätsmaß der *Rang-Korrelationskoeffizient* (nach Spearman, Abkürzung RCC Spearman's Rank Correlation Coefficient) gewählt.

Er wird nach der für die vorliegende Studie ausgewählten Formel

$$RCC(Y,X) = \frac{\sum (R(y_i) - \overline{Ry})(R(x_i) - \overline{Rx})}{\sqrt{\sum (R(y_i) - \overline{Ry})^2 \sum (R(x_i) - \overline{Rx})^2}} \quad \text{Gl. 4-3}$$

ermittelt. Hierbei sind

$R(y_i)$ = Rang des Wertes y_i innerhalb der N Stichprobenwerte der Ergebnisgröße Y

$R(x_i)$ = Rang des Wertes x_i innerhalb der N Stichprobenwerte des Parameters X

\overline{Rx} , \overline{Ry} = die entsprechenden Stichprobenrangmittelwerte.

Die wichtigsten Eigenschaften des Sensitivitätsmaßes RCC sind:

- $-1 \leq RCC \leq +1$,
- ist die Ergebnisgröße Y unabhängig von Parameter X, so ist $RCC = 0$,
- ist die Ergebnisgröße Y eine monotone steigende Fkt. in X, so ist $RCC = +1$,
- ist die Ergebnisgröße Y eine monotone fallende Funktion in X, so ist $RCC = -1$.

Der Rang-Korrelationskoeffizient ist also ein Maß für den Grad der monotonen Abhängigkeit der Ergebnisgröße Y vom Eingangsparameter X, im Unterschied zum gewöhnlichen Korrelationskoeffizienten (nach Pearson), der nur den Grad der linearen Abhängigkeit wiedergibt. Je größer der Rang-Korrelationskoeffizient seinem Betrag nach ist, desto größer ist daher der Grad dieser Abhängigkeit und damit auch der Einfluss der Unsicherheit des betreffenden Parameters auf die Unsicherheit der Ergebnisgröße. Das Vorzeichen des Rang-Korrelationskoeffizienten gibt die Ausrichtung dieses Einflusses wieder. Ein positives Vorzeichen bedeutet, dass mit zu- oder abnehmenden Werten des betreffenden Parameters die betrachtete Ergebnisgröße ebenfalls tendenziell zu- oder abnimmt. Entsprechend bedeutet ein negatives Vorzeichen, dass sich diese Ausrichtung umdreht. Diese Eigenschaft kann bei der Interpretation der Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse von Bedeutung sein.

Die Darstellung der Sensitivitätsergebnisse für zeitabhängige Ergebnisgrößen erfolgt weitgehend graphisch, indem der Verlauf des Rang-Korrelationskoeffizienten bezüglich jedes einzelnen Parameters zu den für die Analyse festgelegten Zeitpunkten über der Zeitachse aufgetragen wird.

Man kann davon ausgehen, dass bei dem vorliegenden Stichprobenumfang von $N = 208$ die Werte des Rang-Korrelationskoeffizienten RCC, die betragsmäßig kleiner sind als etwa 0,15 bis 0,20, statistisch nicht signifikant sind und daher vernachlässigt werden können.

In diesem Zusammenhang ist auch das sog. Rang-Bestimmtheitsmaß RR^2 , auch „multipler Rang-Korrelationskoeffizient“ genannt, bedeutsam. Es wird nach der Formel

$$RR^2 = r'_{Y,X} R_{X,X}^{-1} r_{Y,X} \quad \text{Gl. 4-4}$$

berechnet. Hierbei sind

$r_{Y,X}$ = Vektor der Rang-Korrelationskoeffizienten zwischen der Ergebnisgröße Y und der Gesamtheit aller Eingangsparameter X und

$R_{X,X}$ = Matrix der Rang-Korrelationskoeffizienten zwischen allen Eingangsparametern X.

Das Rang-Bestimmtheitsmaß RR^2 kann interpretiert werden als derjenige Anteil der Unsicherheit der Ergebnisgröße Y, der durch die Rang-Regression in allen Parametern erklärt wird. Je näher der RR^2 -Wert bei 1 liegt, desto höher ist dieser Anteil und desto zuverlässiger sind die rang-basierten Sensitivitätsmaße, zumindest die betragsmäßig größeren unter ihnen. Jedoch ist Vorsicht geboten, wenn der Stichprobenumfang N die Anzahl k der unsicheren Parameter nicht deutlich genug übersteigt. Ein hoher RR^2 -Wert könnte dann auf den sog. „overfit“ der Rang-Regression infolge zu geringen Stichprobenumfangs zurückzuführen sein, anstatt auf die hohe Güte der Rang-Regression. Im vorliegenden Fall, d. h. bei $k = 93$ unsicheren Parametern und $N = 208$ Rechenläufen ergibt sich für RR^2 eine obere Signifikanzgrenze von etwa 0.53 (=95 %-Quantil der Beta($k/2, (N-k-1)/2$)-Verteilung). Wenn also der errechnete RR^2 -Wert diese Signifikanzgrenze unterschreitet, kann die Variabilität oder Unsicherheit der Ergebnisgröße durch die Rangregression in den unsicheren Parametern nicht mehr zufriedenstellend erklärt werden. Eine Sensitivitätsaussage auf der Basis der rang-basierten Sensitivitätsmaße wäre dann u. U. nicht mehr zuverlässig. Dies war aber in der vorliegenden Studie nicht der Fall.

Mit der Sensitivitätsinformation ist ein zusätzliches Entscheidungskriterium für die effiziente Verbesserung der Aussagesicherheit von Rechenprogrammergebnissen gegeben. Es lassen sich zusätzliche Experimente oder andere Informationen zur Verbesse-

derung des Kenntnisstandes zu wichtigen unsicheren Parameterwerten identifizieren, deren Resultate voraussichtlich zur Verringerung der Unsicherheitsbereiche der Rechenresultate führen. Außerdem können die Sensitivitätsmaße Hinweise auf Fehler im Rechenprogramm, seiner Eingabespezifikation oder auch auf Modellierungsdefizite geben und so zur gezielten Verbesserung eines Rechenprogramms beitragen.

Weitere Einzelheiten zur Sensitivitätsanalyse und zusätzliche Literaturhinweise können den Referenzen /KRZ 90b/, /HOF 99/, /SAL 00/ entnommen werden.

4.1.3 SUSAS - Programm

Die Anwendung der GRS-Methode bei der Durchführung einer Unsicherheitsanalyse wird durch das Programmsystem SUSAS (Programm-System für Unsicherheits- und Sensitivitäts-Analysen) unterstützt /KRZ 88/, /KRZ 90a/, /KRZ 90b/, /KRZ 94/, /HOF 93/, /KLO 99/. Das in der GRS entwickelte Programmsystem SUSAS ermöglicht eine vollständige und weitgehend automatisierte Durchführung einer Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse von skalaren sowie von zeit- und/oder ortsabhängigen Modellergebnissen. Mit SUSAS wird die Aufgabe des Experten im Rahmen dieser Analyse im Wesentlichen reduziert auf die Identifizierung der unsicheren Eingangsparameter und auf die Quantifizierung des Kenntnisstandes zu diesen Parametern.

SUSAS bietet eine große Auswahl von Verteilungstypen für unsichere Eingangsparameter zur Quantifizierung der Unsicherheit von Parametern. Zur Quantifizierung der Abhängigkeiten zwischen unsicheren Parametern können sowohl unterschiedliche Abhängigkeitsmaße als auch bedingte Verteilungen (Verwendung einer unterschiedlichen Verteilung für unterschiedliche Modell-Korrelationen im Rechenprogramm) sowie auch funktionale Beziehungen eingegeben werden. Zur Generierung von Parameterstichprobenwerten steht sowohl die einfache Zufallsauswahl („simple random sampling“) als auch das sog "Latin-Hypercube" -Auswahlverfahren zur Verfügung.

Nachdem mit jedem der ausgewählten Parametervektoren eine Rechnung durchgeführt wurde, die zu jeder der interessierenden Ergebnisgrößen ein Resultat geliefert hat, leitet SUSAS daraus quantitative Unsicherheitsaussagen zu den Ergebnissen ab, z. B. in Form von statistischen Toleranzgrenzen. Für die Sensitivitätsanalyse steht eine Auswahl von verschiedenen Sensitivitätsmaßen zur Verfügung. Alle Ergebnisse aus der Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse werden grundsätzlich graphisch dargestellt.

Für SUSA existiert sowohl eine Workstation-Version als auch eine PC-Version. Die Workstation-Version von SUSA ist eine flexible „up-to-date“ Version auf dem neuesten Entwicklungsstand hinsichtlich Methodik und Ergebnisdarstellung. Sie besteht aus einer Sammlung von „stand-alone“ FORTRAN Programmen, die jeweils für bestimmte Aufgaben und Teilschritte der Analyse im Rahmen der „GRS-Methode“ zuständig sind. Die Benutzung dieser Programme erfordert eine gewisse Vertrautheit mit der „GRS-Methode“ und deren Ablauf. Diese Version wird deshalb vornehmlich bei GRS-internen Anwendungen der Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse eingesetzt.

Die PC-Version mit ihrer menü- und dialoggesteuerten Benutzeroberfläche bietet einen hohen Grad an Benutzerkomfort. Diese Version bietet eine konsequente Benutzerführung durch die einzelnen Teilschritte der Analyse.

4.2 Identifizierung der unsicheren Parameter

Als erster praktischer Schritt der UaSA zum Iodverhalten wurden die unsicheren Parameter in der COCOSYS-AIM Referenzrechnung zu PHEBUS FPT1 identifiziert.

Sie lassen sich grob in zwei Gruppen gliedern:

- Thermohydraulische- und Aerosol-Parameter
- Iodparameter.

Zur Thermohydraulik und zum Aerosolverhalten im Containment wurden von der GRS bereits mehrere Unsicherheits- und Sensitivitätsuntersuchungen mit unterschiedlichen Schwerpunkten durchgeführt (s. unten). Der Versuch FPT1 ist in Bezug auf die Thermohydraulik nicht sehr anspruchsvoll, da das Containment klein (10 m^3) ist und alle Strukturtemperaturen kontrolliert werden. Dies macht eine Auswahl und Quantifizierung der Unsicherheiten der thermohydraulischen und Aerosolparameter vergleichsweise einfach.

Zum Iodverhalten im Containment wurde mit COCOSYS-AIM noch keine UaSA durchgeführt. Auch mit anderen vergleichbaren Codes (ASTEC-IODE, MELCOR-INSPECT) sind solche Studien nicht bekannt. Bei einer Literaturrecherche im Internet wurden einzig Unsicherheitsanalysen zu chemischen Systemen gefunden, doch lieferte keine für die vorliegende Studie verwertbare Informationen, wie z. B. zur Quantifizierung der Un-

sicherheit chemischer Reaktionsparameter oder die Korrelation solcher Parameter für Hin- und Rückreaktion. Aus diesen Gründen war eine selektive Auswahl von unsicheren Parametern nicht möglich und es wurden praktisch alle in der Rechnung verwendeten Iodparameter in die Analyse mit einbezogen.

Insgesamt wurden 93 unsichere Parameter identifiziert. 37 betreffen die Thermohydraulik- und Aerosolrechnung sowie Randbedingungen für die Iod-Rechnung, wie der pH-Wert des Sumpfes.

Thermohydraulische und Aerosol-Parameter

Für die Auswahl der thermohydraulischen und Aerosolparameter wurden auch Ergebnisse der früheren UaSA zur Aerosolrechnung mit FIPLOC zum Versuch VANAM-M2 /LAN 94/ sowie der Gasverteilungsrechnung mit ASTEC zum THAI Versuch TH13 (ISP-47) /GLA 08/ herangezogen. In Vordergrund stand bei der Auswahl der unsicheren Parameter ein möglicher Einfluss auf die Iodrechnung, wie er z. B. durch die Temperatur gegeben ist.

Die Geschwindigkeit der meisten Iodreaktionen hängt von der Gas- bzw. Sumpftemperatur ab. Die Basiswerte der Reaktionskonstanten (BAS in /WEB 09a/) sind die kinetischen Konstanten bei 25°C. Für höhere Temperaturen wird im Allgemeinen eine Abhängigkeit nach Arrhenius modelliert.

Auch Ablagerungs- und Resuspensionsprozesse von Iodspezies auf Oberflächen (z. B. die I₂-Desorption von einer Stahlwand) sind temperaturabhängig. Dies gilt auch für das Konzentrationsgleichgewicht zwischen dem abgelagerten Iod und dem Iod in der Gasphase.

Weiter hat die **Kondensationsrate** am nassen Condenser Einfluss auf die I₂-Ablagerung und den Transport in den Sumpf (Abwaschen). Eine ähnliche Abhängigkeit existiert beim Abwaschen des Iods mittels Sprühen vom elliptischen Boden ebenfalls in den Sumpf.

Eine Reihe der Iodreaktionen im Sumpf sind vom **pH-Wert** abhängig. Sie sind in der Regel an der Wasserstoffionenkonzentration [H⁺], wie in Tab. 4-5 dargestellt, zu erkennen (s. z. B. Hydrolyse).

Radiolytische Reaktionen des Iods treten sowohl in der Wasserphase als auch in der Gasphase auf. Sie spielen eine wesentliche Rolle bei der Bildung von flüchtigem I₂ und Organoiod im Containment. Daher ist die **Dosisleistung** in Sumpf und in der Atmosphäre ein wichtiger Parameter der Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse.

Erfahrungsgemäß weisen die gemessenen **Einspeiseraten** größere Unsicherheiten auf, zumal diese bei PHEBUS in der Regel aus Aktivitätsmessungen abgeleitet oder aus dem Containmentinventar zurückgerechnet wurden, wie z. B. die Einspeiserate für I₂.

Die Auswahl der unsicheren Aerosolparameter wie Formfaktoren, mittlere Materialdichte, atmosphärische Grenzschichtdicke, etc. erfolgte in Anlehnung an die Ergebnisse einer früheren UaSA /LAN 94/.

Iodparameter

Wie bereits erwähnt, berechnet AIM die Konzentrationen von 26 Iodspezies unter Berücksichtigung von 70 chemischen Reaktionen und physikalischen Prozessen (z. B. Adsorption auf Oberflächen). Dabei wird das übliche Konzept der chemischen Reaktionskinetik angewendet. Die allgemeine Form einer typischen Reaktionsgleichung, hier exemplarisch mit 2 Ausgangsspezies und 2 Produktspezies, ist



k₁ ist die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante (im Folgenden verkürzt als Reaktionskonstante bezeichnet) für die Vorwärtsreaktion und k₂ die für die Rückwärtsreaktion. Die Geschwindigkeit der chemischen Reaktion (im Folgenden oft auch als Reaktionsrate bezeichnet) wird hier exemplarisch für die Bildungsrate der Spezies C dargestellt und ist dann

$$\frac{d[C]}{dt} = k_1[A][B] - k_2[C][D] + S \quad \text{Gl. 4-6}$$

[A], [B], [C] und [D] sind die volumenbezogenen molaren Konzentrationen der Ausgangs- und Produktspezies, wobei die Verwendung molarer Konzentrationen anstelle der chemischen Aktivitäten in den in Störfallchemie-Problemen zu behandelnden nied-

rigen Konzentrationsbereichen eine sinnvolle Näherung / Vereinfachung darstellt. S ist die Quelle der Spezies C, z. B. durch Einspeisung.

Unsichere Parameter sind in der Regel die Reaktionskonstanten, also k_1 und k_2 .

Für jede der 70 Reaktionen in AIM wird eine Reaktionskonstante verwendet, darüber hinaus können die kinetischen Ansätze jedoch auch noch weitere Modellparameter enthalten. Auch wichtige Modellparameter werden in dieser Studie mit betrachtet. Insgesamt wurden 56 chemische Reaktionskonstanten als potentiell unsichere Parameter berücksichtigt. Unberücksichtigt blieben nur solche Reaktionen, die in der analysierten FPT1-Rechnung definitiv keine Rolle spielen, wie z. B. die Ablagerung von Iodspezies auf Beton, da Beton im PHEBUS-Containment nicht vorhanden ist. Tab. 4-3 gibt einen Überblick über die potentiell unsicheren 93 Parameter, wobei die Iod-Parameter einen Großteil davon darstellen. Details zu den angeführten Iod-Parametern finden sich in der AIM-Beschreibung /WEB 09a/.

Eine vollständige Aufstellung aller unsicheren Parameter mit Darstellung des Referenzwerts und der verwendeten statistischen Grundannahmen für die UaSA mit Bezug auf Thermohydraulik, Einspeisungen, Aerosol und Iod-Moduldaten enthält Tab. 4-4 in Kapitel 4.5. Tab. 4-5, die ebenfalls in Kapitel 4.5 zu finden ist, enthält analoge Angaben zu den Iodreaktionen.

Tab. 4-3 Überblick über die ausgewählten unsicheren Parameter

Teilmodell	Anzahl	Unsichere Parameter
Thermohydraulik	6	<ul style="list-style-type: none"> - Wandtemperaturen (Containmentwand, Condenser, Sumpf) - Wärmeüberganskoeffizient - Charakteristische Länge - Nicht abwaschbare Aerosolkonzentration
Einspeisung	10	Einspeisedaten für <ul style="list-style-type: none"> - Dampf (Rate und Enthalpie) - CsI-Aerosol (Rate und Partikelgröße) - Ag und AgO_x-Aerosol (Rate und Partikelgröße) - Restaerosol (Rate und Partikelgröße) - I₂

Teilmodell	Anzahl	Unsichere Parameter
Aerosol	7	<ul style="list-style-type: none"> - Diffusionsgrenzschichtdicke - Aerosolmaterialdichte - Turbulente Dissipationsrate - Dyn. und Agglom.-Formfaktoren - Kollisionseffizienz - Wasserfilmdicke für Abwaschen
Dosisleistung	2	in der Atmosphäre und im Sumpf
Iod-Moduldaten	12	<ul style="list-style-type: none"> - pH des Sumpfes - Spezifische Oberfläche der Ag-Partikel - I₂ und CH₃I Massentransferkoeffizienten Sumpf/Atmosphäre - Min. Wandkondensationsrate für nasse Bedingungen - Anfangskonzentration von organischem Material - Anteil von abgelagertem I₂, der abgewaschen wird - 5 weitere Parameter für IO_x und Iod/Stahl-Reaktion
Iod-Reaktionskonstanten		
Hydrolyse von Iod	5	<ul style="list-style-type: none"> - I₂-Hydrolyse (Schritt 1 von 2) - Rückreaktion von I₂-Hydrolyse (Schritt 1 von 2) - I₂-Hydrolyse (Schritt 2 von 2); HOI Disproportionierung - Rückreaktion von I₂-Hydrolyse (Schritt 2 von 2); HOI Disproportionierung - I-Oxidation durch gelöstes O₂
Anorganische Iod-Radiolyse	4	<ul style="list-style-type: none"> - Radiolytische I₂-Bildung aus I⁻ - Rückreaktion der radiolytischen I₂-Bildung aus I⁻ - Radiolytische I₂-Bildung aus IO₃⁻ - Rückreaktion der radiolytischen I₂-Bildung aus IO₃⁻
Iod/Silber-Reaktion	3	<ul style="list-style-type: none"> - AgI-Bildung aus Ag + I₂ - AgI-Bildung aus AgO_x + I⁻ - AgO_x-Bildung durch die Oxidation von Ag
Homogene organische Iodreaktionen in der Wasserphase	5	<ul style="list-style-type: none"> - Thermische CH₃I-Bildung aus I₂ - Thermische CH₃I-Bildung aus HOI - radiolytische CH₃I-Zersetzung - Hydrolyse von CH₃I durch H₂O - Hydrolyse von CH₃I durch OH⁻
Iodreaktionen mit Farbe in der Wasserphase	9	<ul style="list-style-type: none"> - I₂-Ablagerung auf Farbe - I₂-Resuspension von Farbe nach

Teilmodell	Anzahl	Unsichere Parameter
		<ul style="list-style-type: none"> I₂-Ablagerung (T ≤ 90 °C) - I₂-Resuspension von Farbe nach I₂-Ablagerung (T > 90 °C) - I⁻-Resuspension von Farbe nach I₂-Ablagerung - I⁻-Ablagerung auf Farbe - I⁻-Resuspension von Farbe nach I⁻-Ablagerung - Chemisorption aus physisorbiertem I⁻ - Thermische CH₃I-Freisetzung von Farbe - Radiolytische CH₃I-Freisetzung von Farbe
Iodreaktionen mit Stahl in der Wasserphase	1	<ul style="list-style-type: none"> - I₂-Konversion zu I⁻ an Stahloberflächen
Iod/Ozon-Reaktion	7	<ul style="list-style-type: none"> - IOx-Bildung aus I₂ und O₃ - Radiolytische Zersetzung von IOx - Radiolytische Bildung von O₃ - Radiolytische O₃-Zersetzung - O₃-Zersetzung an Farbe - O₃-Zersetzung an Stahl - Thermische O₃-Zersetzung
Homogene organische Iodreaktionen in der Gasphase	1	<ul style="list-style-type: none"> - Radiolytische CH₃I-Zersetzung
Iodreaktionen mit Farbe in der Gasphase	11	<ul style="list-style-type: none"> - I₂-Ablagerung auf trockener Farbe - I₂-Ablagerung auf nasser Farbe - I₂-Resuspension von trockener Farbe - I₂-Resuspension von nasser Farbe - Chemisorption von physisorbiertem I - I₂-Ablagerung auf nasser Farbe und Abwaschen in den Sumpf - Abwaschen von Farbe in den Sumpf als I⁻ - Thermische Freisetzung von physisorbiertem I - Radiolytische CH₃I-Bildung aus physisorbiertem I - Thermische CH₃I-Bildung aus chemisorbiertem I - Radiolytische CH₃I-Bildung aus chemisorbiertem I
Iodreaktionen mit Stahl in der Gasphase	8	<ul style="list-style-type: none"> - I₂-Ablagerung auf trockenem Stahl - I₂-Resuspension von trockenem Stahl - I₂-Ablagerung auf nassem Stahl,

Teilmodell	Anzahl	Unsichere Parameter
		<ul style="list-style-type: none"> Fel₂-Bildung und Abwaschen in Sumpf - Chemisorption von physisorbiertem I₂ - Feuchteabhängigkeit der Chemisorption - Rückreaktion von Chemisorption mit zwei verschiedenen Pfaden - Abwaschen von I₂ als I⁻ in den Sumpf - Abwaschen von Fel₂ als I⁻ in Sumpf
Massentransfer Sumpf/Atmosphäre	2	<ul style="list-style-type: none"> - I₂-Massentransfer zwischen Gas und Sumpf - CH₃I-Massentransfer zwischen Gas und Sumpf
Total	93	

4.3 Quantifizierung des Kenntnisstands

Die Quantifizierung des Kenntnisstandes wurde von den folgenden Experten gemeinsam vorgenommen:

- F. Funke, AREVA NP, (gesamtes Iodmodell)
- G. Weber, GRS, (Thermohydraulik, Aerosol, einige Iod-Teilmodelle)
- M. Pelzer, GRS, (Iod/Stahl-Modell)
- W. Klein-Hessling, GRS, (Modelle zur Thermohydraulik)

Dabei wurden vorwiegend die folgenden Informationen bzw. Regeln verwendet:

- 1) Die Reaktionskonstanten zur AIM-Modellierung wurden im Allgemeinen aus Iod-Experimenten gewonnen. Die Messergebnisse streuen mehr oder weniger stark. Die Streuung ist ein Maß für die Unsicherheit der Reaktionskonstanten.
- 2) Im Zuge von Validierungsrechnungen für COCOSYS-AIM wurden oft Reaktionskonstanten variiert. Die dabei gewonnene Erfahrung ist ein Beitrag zur Quantifizierung der Unsicherheit der Reaktionskonstanten.
- 3) Drei einfache Regeln für die Beschreibung der Unsicherheit von gekoppelten Hin- und Rückreaktionen wurden aufgrund von Erfahrung mit AIM neu erstellt und sind nachfolgend beschrieben.

Regel 1

Die Reaktionskonstante der Rückreaktion (k_2 in Gl. 4-5) hat die gleiche Unsicherheitsverteilung wie die der Reaktionskonstante der Hinreaktion (k_1 in Gl. 4-5).

Begründung: Hin- und Rückreaktion werden in der Regel mit derselben Messeinrichtung untersucht. k_1 wird in der Regel aus dem Anstieg der Reaktionsprodukte (C und/oder D in Gl. 4-5) am Beginn des Versuchs ermittelt, während k_2 meist aus dem Gleichgewicht der Konzentrationen zwischen den Reaktanten A + B mit den Produkten C + D bestimmt wird.

Regel 2

Die Unsicherheiten von Hin- und Rückreaktion sind nicht miteinander korreliert. Das heißt, die Reaktionskonstanten k_1 und k_2 können unabhängig voneinander variiert werden und das Gleichgewicht zwischen den Reaktanten (A, B) und den Produkten (C, D) kann sich ändern. Bei einer vollständigen Abhängigkeit wäre das Gleichgewicht konstant.

Regel 3

Die Unsicherheit bei der Modellierung einer chemischen Reaktion wird nur durch einen einzigen unsicheren Parameter repräsentiert. D. h. Details wie z. B. die Abhängigkeit von der Temperatur (Arrhenius-Formel) oder von pH-Wert werden hier nicht separat untersucht. Solche detaillierten Untersuchungen könnten in einer Folgestudie an einer kleineren Auswahl unsicherer Parameter durchgeführt werden.

4.3.1 Thermohydraulische Parameter (Parameter 1 – 6)

Die unsicheren thermohydraulischen Parameter der COCOSYS-AIM-Rechnung zu PHEBUS FPT1 sind:

- Wandtemperaturen atmosphärischer Zonen
- Wandtemperaturen der Sumpfzone
- Wandtemperaturen des Condensers
- Charakteristische Länge
- Wärmeübergangskoeffizient
- Restkonzentration der Silberpartikel im Kondensat

Wandtemperatur atmosphärischer Zonen (Parameter 1)

Die Temperatur der Stahlwand des Behälters wurden im Versuch FPT1 kontrolliert und in der Rechnung über Tabelle vorgegeben. Die gerechnete Oberflächentemperatur an allen 7 Heatslabs weisen nur kleine Abweichungen zu den gemessenen Wandtemperaturen von maximal 1 K auf. Die Unsicherheiten werden daher mit ± 1 K Abweichung vom Referenzwert als additiver Term in Form einer Dreiecksverteilung (-1,0; 0; +1,0) festgelegt.

Wandtemperaturen der Sumpfzone (Parameter 2)

Die Abweichung der gerechneten Wandtemperatur im Sumpf vom Messwert ist noch geringer als in der Atmosphäre. Es wird daher eine engere Dreiecksverteilung (-0,5; 0; +0,5) für Werte additiv zum Referenzwert vorgegeben.

Wandtemperaturen des Condensers (Parameter 3)

Auch für den nassen und trockenen Condenser sind die Abweichungen zwischen gerechneter und gemessener Wandtemperatur etwa gleich groß wie für den Sumpf. Die vorgegeben Wandtemperaturen für den nassen und den trockenen Teil des Condensers werden daher mit der gleichen dreiecksverteilten Unsicherheit (-0,5; 0; +0,5) additiv beaufschlagt.

Charakteristische Länge (Parameter 4)

Die charakteristische Länge (HLENG) ist in COCOSYS ein Modellparameter, der den Turbulenzzustand der Atmosphäre entlang einer Struktur (Heatslab) bei freier Konvektion beschreibt /KLE 12/. Der empfohlene Wert für Reaktor Anwendungen liegt bei 0,05 m. Der Parameter wurde bereits früher in einer UaSA der ASTEC-CPA-Rechnung des He-Verteilungsversuchs THAI TH14 untersucht /GLA 08/. Dabei wurde HLENG zwischen 0,1 und 1,0 m mit einer deutlichen Auswirkung auf die Atmosphärentemperatur variiert.

Hier werden die drei diskreten Werte (0,01; 0,05; 0,5) mit den Wahrscheinlichkeiten (0,1, 0,6, 0,3) direkt für alle Heatslabs der Gasphase (Behälterwand und trockener Condenser) vorgegeben.

Wärmeübergangskoeffizient (Parameter 5)

Der Wärmeübergangskoeffizient auf der Seite der Kühlflüssigkeit für den nassen Condenser wird in der Rechnung anhand von Messwerten in Form einer Tabelle vorgegeben. Die Werte liegen zwischen 80 und 350 W/(m²K). Der Koeffizient ist bereits auf die Versuchsverhältnisse optimiert und daher ziemlich sicher. Der Unsicherheitsfaktor auf die Tabellenwerte wird im Bereich (1/1,2; 1,2) also (0,83; 1,2) gleichverteilt angenommen.

Restkonzentration der Silberpartikel im Kondensat (Parameter 6)

In COCOSYS existiert nur ein einfaches Abwaschmodell für unlösliche Aerosole. In diesem wird angenommen, dass unlösliche Aerosole in den Wasserfilme entlang der Wände nur bis zu einer vorgegebenen Restkondensation CAERES abgewaschen werden können. Ist CAERES niedrig, wird in der Rechnung viel abgewaschen, andernfalls wenig. Da das Abwaschen vom Condenser und vom elliptischen Boden in der Rechnung tendenziell unterschätzt wird, wird der Referenzwert CAERES = 0,04 kg/m³ gleichverteilt zwischen (0,01; 0,08) variiert.

4.3.2 Einspeisungen (Parameter 7 – 16)

Die zeitabhängigen Einspeiseraten für Gase und Aerosole sind aus Messwerten abgeleitet und daher unsicher. Die in der Rechnung erfassten Komponenten sind:

- Dampf
- Csl-Aerosol
- Ag-Aerosol
- AgOx-Aerosol
- Restaerosol
- I₂

Dampf-Einspeisung (Parameter 7 und 8)

Laut Testbericht /JAC 00/, Bild 5.1-15, ist die Unsicherheit der Dampfeinspeiserate ca. 12 %. Diese wird als Faktor mit logarithmisch gleichverteilter Wahrscheinlichkeit im Intervall (0.89; 1.12) berücksichtigt. Die logarithmische Gleichverteilung wird hier, wie in

vielen anderen Fällen auch, gewählt, um bei multiplikativen Korrekturfaktoren bzw. bei einem gleich großen Quotienten auf den Referenzwert die gleiche Anzahl von Stichproben unter und über dem Referenzwert zu erhalten (vgl. Kapitel 4.1.1).

Der Dampf kühlt in der Einspeiseleitung von 170 °C auf 120 °C ab und die spezifische Enthalpie sinkt dadurch von 2767 kJ/kg auf 2706 kJ/kg. Die Unsicherheit der spezifischen Enthalpie des eingespeisten Dampfes wird daher als additiver Term mit der Gleichverteilung (-61; 0) vorgegeben.

Csl-Aerosol-Einspeisung (Parameter 9 und 10)

Der weitaus größte Teil des Iods (> 98,75 %) wird als Csl ins Containment eingespeist. Die Unsicherheit der Csl-Einspeiserate wird anhand der Messwerte mit $\pm 10\%$ abgeschätzt. Die Unsicherheit wird durch einen Faktor auf den Referenzwert aus dem triangulären Unsicherheitsbereich (0,91; 1; 1,1) berücksichtigt.

Die Partikelgrößenverteilung des Csl-Aerosols wird, wie für die anderen Aerosolkomponenten, als logarithmische Normalverteilung vorgegeben. Diese ist durch den Mittelwert und die Standardabweichung definiert. Hier wird nur die Unsicherheit des Mittelwerts berücksichtigt. Sie deckt auch die potentiellen Unsicherheiten der Standardabweichung ab. Unter Einbeziehung der Erfahrung aus anderen Aerosolexperimenten wird die Unsicherheit der Partikelgröße durch einen Faktor aus der logarithmischen Dreiecksverteilung (0,83; 1; 1,2) festgelegt.

Ag-, AgO_x- und Restaerosol-Einspeisung (Parameter 11 bis 15)

Messungen zu FPT1 aber auch anderen PHEBUS-Versuchen haben gezeigt, dass durch Agglomeration die verschiedenen Aerosolkomponenten zwischen den Partikeln gut verteilt sind. Das heißt, dass die Zusammensetzung der Komponenten in jedem Partikel etwa gleich ist.

Die Unsicherheit der Einspeiseraten von Ag-, und Restaerosol ist ähnlich der des Csl-Aerosols, da sie mit der gleichen Messeinrichtung ermittelt wurde. Aus diesen Gründen werden die Unsicherheiten der Einspeiserate und der mittleren Partikelgröße für das Ag-, das AgO_x- und das Restaerosols gleich wie für Csl angenommen.

Die Einspeiserate von AgO_x wurde im Versuch nicht gemessen. Früheren Untersuchungen folgend (z. B. /GIR 04/) wurden 10 % der gesamten Silbermenge als AgO_x eingespeist. Im Sumpf wird AgO_x(w) auch radiolytisch aus Ag(w) weiter gebildet. Die Unsicherheit dieser Reaktion ist im Parameter 49 berücksichtigt. Die gesamte Unsi-

cherheit der AgO_x -Menge im Sumpf ist somit durch die Parameter 13 und 49 beschrieben.

Einspeisung von flüchtigem I_2 (Parameter 16)

Bereits zu Beginn des Tests wurde im Containment gasförmiges Iod, das wie üblich als I_2 interpretiert wurde, gemessen. I_2 beträgt 1,25 % der gesamten freigesetzten Iodmasse, der Rest ist Csl. Es ist aber unklar, ob I_2 aus dem PHEBUS-Primärkreis (Circuit) kam oder erst im Containment durch eine schnelle radiolytische Reaktion im Wasserfilm am nassen Condenser gebildet wurde. Die zweite Möglichkeit ist eine Hypothese, die zum ersten Mal ausführlich mit ASTEC-IODE analysiert wurde /BOS 12/. Diese Art der Simulation ist aber noch nicht ausgereift und wird zurzeit weder in ASTEC-IODE noch in COCOSYS-AIM bei Reaktorapplikationen eingesetzt.

Es sprechen einige Fakten und Argumente für jede der beiden Möglichkeiten (nicht gemessene I_2 -Einspeisung ins Containment, I_2 Bildung am Condenser), ein zwingender Beweis für eine Variante konnte aber bislang nicht gefunden werden. Die große Unsicherheit in der I_2 -Einspeiserate muss daher berücksichtigt werden. Wird die Einspeiserate definitionsgemäß nur auf die Freisetzung aus dem Primärkreis bezogen, kann die Rate auch gegen null gehen. Im ersten Schritt der UaSA wurde die tabellarisch vorgegebene Einspeiserate daher durch einen Faktor mit der Polygon-Verteilung (0; 1; 2 / 1; 1; 0) beaufschlagt (Abb. 4-2).

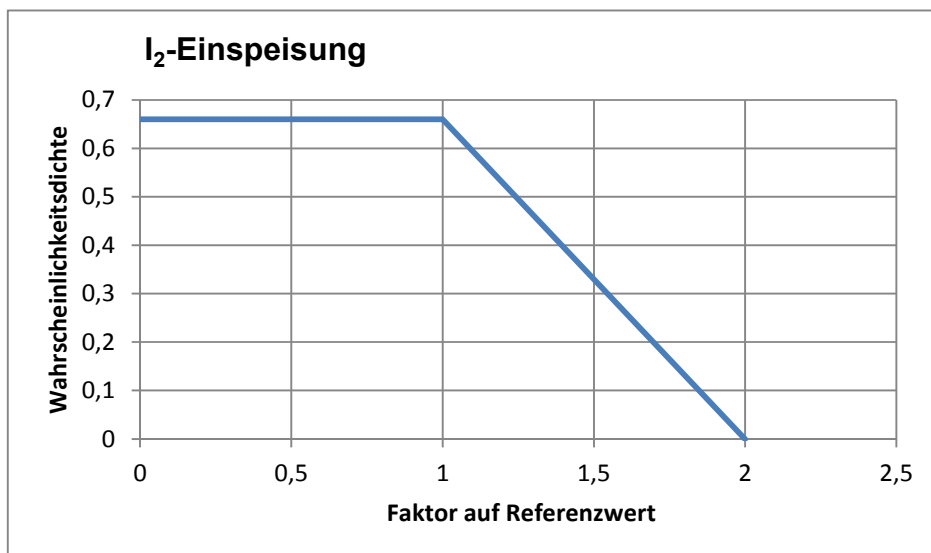


Abb. 4-2 Wahrscheinlichkeitsverteilung für Parameter 16 (I_2 -Einspeisung)

Im zweiten Schritt der UaSA wurde der Wahrscheinlichkeitsverteilung für den Parameter 16 modifiziert.

4.3.3 Aerosolparameter (Parameter 17 – 23)

Die ausgewählten unsicheren Aerosolparameter sind im Einzelnen:

- Dicke der Diffusionsgrenzschicht (DELDIFF)
- Effektive Partikeldichte (DENSTY)
- Turbulente Dissipationsrate (TURBDS)
- Dynamischer Formfaktor (CHI)
- Agglomerationsformfaktor (GAMMA)
- Partikelkollisionseffizienz (COLEFF)
- Mittlere Wasserfilmdicke (THFILM)

DELDIFF (Parameter 17)

Tendenziell wird mit COCOSYS die Aerosolabscheidung an den senkrechten Behälterwänden in den PHEBUS Tests unterschätzt. Für FPT1 wurde eine Ablagerung von 0,14 % des eingespeisten Csl berechnet, gemessen wurden dagegen ca. 5 % (JAC 00/). Eine mögliche Erklärung ist, dass die Abscheidung durch kleine atmosphärische Turbulenzen im Versuch erhöht wurde, die aber in der Rechnung nicht erfasst sind. In COCOSYS wird nur die Brown'sche Diffusion berücksichtigt. Die Abscheiderate durch Diffusion kann im Modell durch eine Verkleinerung der Grenzschichtdicke erhöht werden. Der Referenzwert (1E-4 m) wird daher durch Werte aus der Polygon-Verteilung (1E-5; 1E-4; 2E-4 / 1,0; 1,0; 0) nach unten erweitert. Die Mehrzahl der Stichprobenwerte liegt unter dem Referenzwert.

DENSTY (Parameter 18)

In COCOSYS kann nur eine einheitliche, mittlere Aerosoldichte für alle Aerosolkomponenten vorgegeben werden (Eingabegröße DENSTY). Die theoretische Dichte der aerosolförmigen Spaltprodukte, Brennstoff- und Strukturmaterialien reicht von 1,9E3 kg/m³ (Cs) bis 19,2E3 (Uran) bzw. 21,0E3 (Re) kg/m³. Berücksichtigt man die Anteile der einzelnen Elemente an der gesamten Aerosolmasse, errechnet sich eine

mittlere theoretische Dichte von ca. $7E3 \text{ kg/m}^3$. In der Aerosolrechnung wird die sogenannte effektive Dichte verwendet, die die lockere Packung der Primärpartikel und Gaseinschlüsse berücksichtigt. Der Referenzwert in der FPT1-Rechnung beträgt daher $3E3 \text{ kg/m}^3$. Der gleichverteilte Unsicherheitsbereich erstreckt sich vom Referenzwert bis zur theoretischen Dichte ($3E3$; $7E3$).

TURBDS, CHI, GAMMA und COLEFF (Parameter 19 bis 22)

Die turbulente Dissipationsrate TURBDS findet nur im hier weniger bedeutenden Scheranteil der turbulenten Agglomeration Anwendung. $1E-3 \text{ m}^2/\text{s}^2$ ist ein Standardwert, der wenig untersucht ist.

Der dynamische Formfaktor CHI beschreibt den Einfluss der Abweichung von der Kugelform der Aerosolpartikel auf die Ablagerung, vor allem bei Sedimentation. Mit dem Agglomerations-Formfaktor GAMMA wird dagegen der Einfluss der Abweichung von der Kugelform auf das Agglomerationsverhalten erfasst. Die Partikelkollisionseffizienz COLEFF ist die Wahrscheinlichkeit mit der kollidierende Partikel auch agglomeriert bleiben. Sie wird nach verschiedenen Modellen berechnet. Als Referenzfall wird das Modell nach Pruppacher-Klett (COLEFF = -1,0) verwendet. Bei COLEFF = 0,0 wird die sogenannte Fuchs-Korrelation eingesetzt.

Die Unsicherheitsverteilung dieser Aerosolparameter wird unter Heranziehen der Ergebnisse in /LAN 94/ festgelegt:

- TURBDS Referenzwert $1E-3 \text{ m}^2/\text{s}^2$; Gleichverteilung (1E-3; 1E-2); direkter Wert
- CHI Referenzwert 1,0; Dreiecksverteilung (1,0; 1,0; 1,3); direkter Wert
- GAMMA Referenzwert 1,0; Dreiecksverteilung (1,0; 1,0; 2,0); direkter Wert
- COLEFF Referenzwert -1,0; diskrete Verteilung (-1,0; 0,0 / 0,7, 0,3); direkter Wert

THFILM (Parameter 23)

THFILM ist die mittlere Wasserfilmdicke an den Wänden bei Kondensation und wird für das Abwaschen von Aerosolen verwendet. In PHEBUS FPT1 wird vom Condenser und vom elliptischen Boden abgewaschen. THFILM hat einen Einfluss auf die Abwaschgeschwindigkeit und bestimmt auch die Menge an nicht-löslichem Aerosol, die von der Wand nicht abgewaschen wird. Der Referenzwert beträgt $3,4E-4 \text{ m}$.

4.3.4 Dosisleistung (Parameter 24 und 25)

Die Dosisleistung wird bei der Berechnung der radiolytischen Reaktionen im Sumpf und in der Gasphase verwendet. In FPT1 wurde die Dosisleistung nicht direkt gemessen. Für die COCOSYS-AIM-Rechnung wird daher eine abschätzende Berechnung von IRSN mit MCNPX 2.5.0 übernommen /BOS 12/. Die Dosisleistung wurde nur zu 5 diskreten Zeitpunkten berechnet. Dazwischen wurde interpoliert. In der Atmosphäre liegt die Dosisleistung zwischen 0,2 und 0,6 Gy/s und im Sumpf zwischen 0,05 und 0,2 Gy/s. Die Unsicherheit der Dosisleistung in der Gasphase und im Sumpf wird daher wie folgt abgeschätzt:

- DOSE_ATM, CIJRATE Referenzwert Tabelle; logarithmische Gleichverteilung (0,77; 1,3); Faktor auf Referenzwert
- DOSE_SUMP, CIJRATE Referenzwert Tabelle; logarithmische Gleichverteilung (0,77; 1,3); Faktor auf Referenzwert.

4.3.5 Iodmodul-Parameter (Parameter 26 – 37)

Die sogenannten Iodmodul-Parameter sind neben den Reaktionskonstanten auch für die AIM-Rechnungen erforderlich. Dazu gehören:

- Spezifische Oberfläche der Silber- und Silberoxid-Partikel (S_{Ag})
- Minimale Wandkondensationsrate für nasse Bedingungen (ACOND)
- Mittlerer Durchmesser der IOx-Primärpartikel
- Standardabweichung des mittleren Durchmessers der IOx-Primärpartikel
- Maximal verfügbare Eisenmenge für Chemisorption auf der Stahloberfläche (FEMAX)
- Splittingfaktor für Reaktion 75 für das Iod/Stahl-Modell (C75)
- Gas- und wasserseitiger I_2 -Massentransferkoeffizient (KMTGAS, KMTWAS)
- Anteil des auf Farbe abgelagerten I_2 , der abgewaschen wird (F44)
- Stöchiometrie-Faktor für Modell der IOx-Bildung
- pH im Sumpf (PH)

- Anfangskonzentration organischer Reste im Sumpf (R), die mit Iod reagieren können.

Spezifische Oberfläche S_{Ag}

Die spezifische Oberfläche aller Silberpartikel im Sumpf wird für die Reaktionen von I_2 mit Ag und von I^- mit AgOx benötigt. Beide Reaktionen führen zu nicht-flüchtigen und schwer löslichen AgI-Partikeln. Sie sammeln sich am Boden des Sumpfes im Schlamm an.

Das Silber stammt aus zerstörten Regelstäben. Da das Silberinventar deutlich größer als das Iodinventar im Kern ist, können die beiden Reaktionen in Containment-Sümpfen eine starke Iodsenke darstellen und so den Iodquellterm erheblich reduzieren. Im FPT1-Sumpf liegt nach dem Waschen etwa 100-mal mehr Silber als Iod vor. Von der Silber/Iod-Reaktion wird auch in Analysen schwerer Reaktorunfälle Kredit genommen, d. h. die Reaktion kann den potentiellen Iodquellterm aus der Anlage erheblich reduzieren.

Im AIM-Modell sind die Iod/Silber-Reaktionen direkt proportional zur spezifischen Oberfläche S_{Ag} , d. h. mit steigendem S_{Ag} steigen auch die Reaktionsgeschwindigkeiten. Der empfohlene Wert für AIM-Rechnungen basiert auf den FPT1-Analysen und beträgt $S_{Ag} = 6E-3 \text{ m}^2/\text{g}$. Der Referenzwert in der FPT1-Rechnung ist mit $S_{Ag} = 5,7E-3 \text{ m}^2/\text{g}$ geringfügig kleiner. Dies entspricht einer mittleren Größe der Ag-Partikel im Sumpf von $98 \mu\text{m}$ (Abb. 4-3). Dabei wird berücksichtigt, dass die schweren Silberpartikel nunmehr als Hydrosol schnell auf den Sumpfboden sedimentieren und dort weiter agglomerieren. Nur noch ein Teil der Partikeloberfläche, aber nicht mehr als die geometrische Bodenfläche des Sumpfes, steht für Reaktionen zur Verfügung. Dieser Prozess ist im Detail noch nicht in AIM modelliert, er ist aber im Wert von S_{Ag} pauschal berücksichtigt.

In ASTEC-IODE wird mit $S_{Ag} = 0,3 \text{ m}^2/\text{g}$ ein deutlich größerer Wert verwendet (Abb. 4-3). Dies entspricht einer mittleren Größe der Ag-Partikel im Sumpf von $1,86 \mu\text{m}$ und ist daher etwa gleich jener des luftgetragenen Aerosols. Ein Anwachsen der Partikelgröße durch die oben genannten Prozesse wird nicht berücksichtigt. Die mit der größeren spezifischen Oberfläche in IODE berechneten Reaktionsraten sind ca. 40-mal größer als in AIM. Der mit großem S_{Ag} (IODE) ermittelte Iodquellterm ist viel kleiner als jener mit kleinem S_{Ag} (AIM) berechnete.

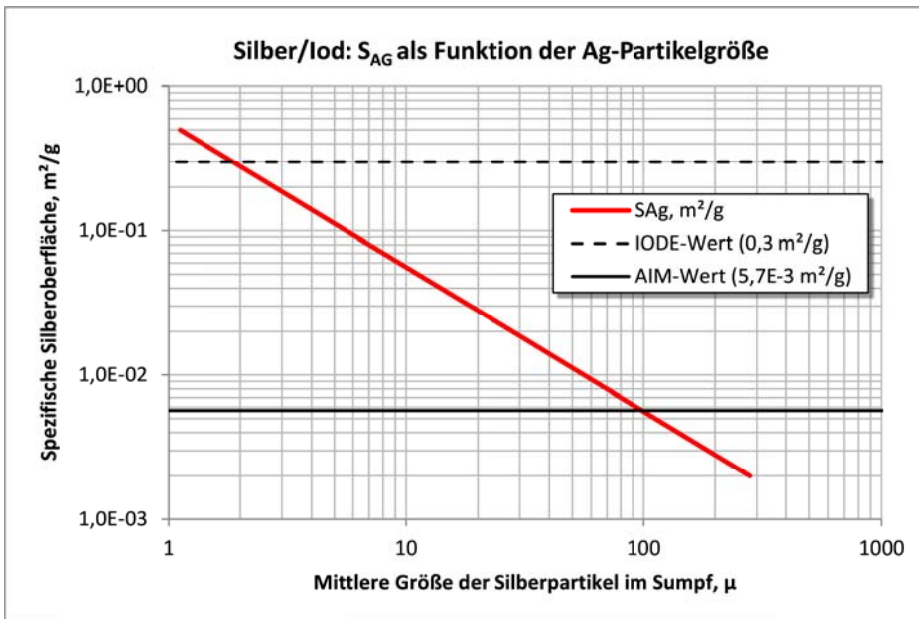


Abb. 4-3 Effektive Ag-Oberfläche als Funktion der Partikelgröße

Der Unsicherheitsbereich für den Parameter S_{Ag} des Ag-Hydrosols liegt daher zwischen den beiden Maximalwerten (Abb. 4-4), wobei der Default-Wert in AIM am wahrscheinlichsten ist.

- Spezifische Oberfläche S_{Ag} Referenzwert 5,7E-3; Dreiecksverteilung (5,7E-3, 5,7E-3, 0,3); Faktor auf Referenzwert

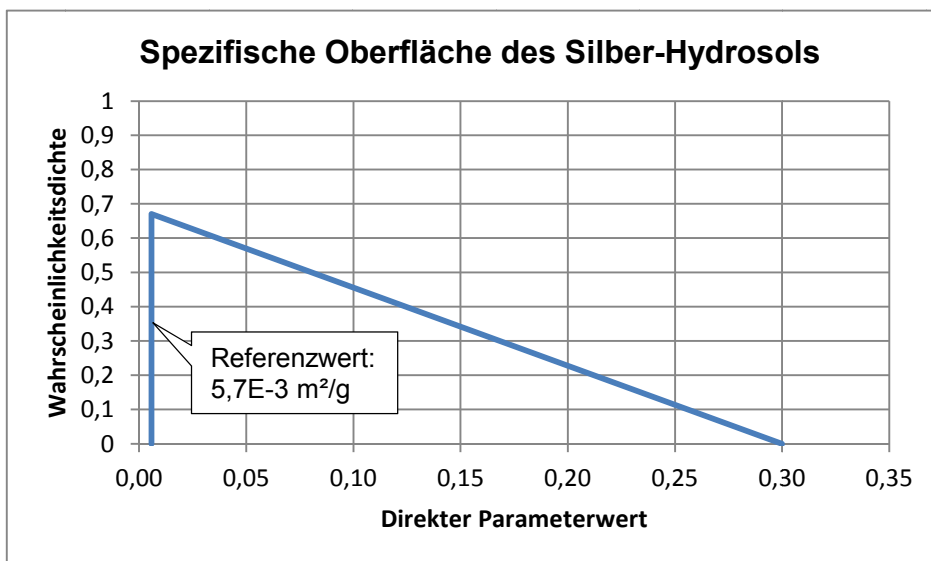


Abb. 4-4 Wahrscheinlichkeitsverteilung für Parameter 26 (Spezifische Ag-Oberfläche)

ACOND (Parameter 27)

In AIM wird zwischen trockenen und nassen Bedingungen bei der Ablagerung von Iodspezies auf Oberflächen unterschieden. Mit der vorgegebenen Wandkondensationsrate ACOND wird der Übergang zwischen trocken und nass definiert. Ist die tatsächliche Wandkondensationsrate $>$ ACOND ist die Bedingung „nass“ erfüllt.

- ACOND Referenzwert $1\text{E-}3 \text{ kg}/(\text{m}^2\text{s})$; Dreiecksverteilung (1E-4, 1E-4, 2E-3); Werte werden direkt vorgegeben

DIO3 und SIO3 (Parameter 28 und 29)

Zu der mittleren Partikelgröße und der Standardabweichung der primären IOx-Partikel gibt es zurzeit nur wenige verlässliche Messungen. Dazu gehören die aus den THAI-Versuchen Iod-13 und Iod-14. Allerdings war bei Messbeginn das Aerosol bereits etwas „gealtert“, d. h. die Partikel waren durch Agglomeration etwas angewachsen. Diese Messungen zeigten Partikelgrößen um $0,3 \mu\text{m}$. Der Referenzwert in der FPT1-Rechnung ist $0,2 \mu\text{m}$ mit einer typischen Standardabweichung von 2,0. Werte $>$ 3,0 für die Standardabweichung sind bei diesem Aerosolbildungsprozess (gas-to-particle-conversion) auszuschließen.

- DIO3 Referenzwert $2\text{E-}7 \text{ m}$; Gleichverteilung (4E-8; 5E-7); Werte werden direkt vorgegeben

SIO3 Referenzwert 2,0; Polygon-Verteilung (1,5; 2,0; 3,0 / 1,0; 1,0; 0,0); Werte werden direkt vorgegeben

FEMAX, C75 (Parameter 30 und 31)

Messungen an THAI-Stahl (AISI 316 Ti) Coupons im Rahmen des OECD-Vorhabens BIP (Behaviour of Iodine Project) zeigten erhebliche Unterschiede im I₂-Aufnahmevermögen von Stahl /BIP 11/. Anhand dieser Messungen wurde der Unsicherheitsbereich für FEMAX grob abgeleitet.

C75 ist ein Splittingfaktor für die Rückreaktion von chemisorbiertem I₂ in gasförmiges I₂ bzw. fest gebundenes, sogenanntes fixed-I.

- FEMAX Referenzwert $2\text{E-}5 \text{ mol}/\text{m}^2$; logarith. Gleichverteilung (1E-5, 4E-4); Werte werden direkt vorgegeben
- C75 Referenzwert 0,54; Dreiecksverteilung (0,15; 0,54; 0,54); Werte werden direkt vorgegeben

KMTGAS und KMTWAS (Parameter 32 und 33)

Das Sumpfwasser wird durch einen Rezirkulationsloop umgewälzt und die Atmosphäre über dem Sumpf wird durch Naturkonvektion durchmischt. Die verwendeten Default-Werte für KMTGAS und KMTWAS treffen bei diesen Verhältnissen gut zu. Das Massentransfermodell in AIM wurde unter anderem anhand der THAI-Versuche Iod-9 und Iod-23 überprüft (/WEB 09b/, /FIS 12/). Aufgrund dieser Arbeiten lassen sich folgende Unsicherheitsbereiche angeben

- KMTGAS Referenzwert 1,4E-3 m/s; Dreiecksverteilung (5E-4; 1,4E-3; 3E-3); Werte werden direkt vorgegeben
- KMTWAS Referenzwert 1E-5 m/s; Dreiecksverteilung (5E-6; 1E-5; 5E-5); Werte werden direkt vorgegeben

F44 (Parameter 34)

F44 gibt an, welcher Anteil von auf Farbe abgelagertem I₂ mit dem Wandkondensat in den Sumpf abgewaschen wird bzw. welcher Anteil adsorbiert zurückbleibt (1 - F44). Dieser Faktor wurde in Laborexperimenten bei AREVA gemessen. Die Übertragung auf andere geometrische Verhältnisse wie in PHEBUS ist mit Unsicherheiten verbunden, die berücksichtigt werden.

- F44 Referenzwert 0,68; Gleichverteilung (0,3; 0,8); Werte werden direkt vorgegeben

STOFAK (Parameter 35)

Der Stöchiometrie-Faktor STOFAK gibt die mittlere Anzahl der Ozon-Moleküle an, die mit I₂-Molekül zu einem IO_x-Molekül reagieren.

- STOFAK Referenzwert 3,9; Gleichverteilung (-0,2; 0,2); Werte werden zum Referenzwert addiert

pH des Sumpfes (Parameter 36)

Der pH des Sumpfes wird in der Rechnung anhand von Messwerten vorgegeben. Die eingesetzten zwei pH-Sensoren zeigten über den gesamten Versuchszeitraum nahezu die gleichen Werte. Nur in der letzten Phase (Chemiephase) weichen sie geringfügig voneinander ab. Entsprechend schmal wurde auch der Unsicherheitsbereich gewählt.

- pH Referenzwert Tabelle; Gleichverteilung (-0,2; 0,2); Werte werden zum Referenzwert addiert

Organisches Material R (Parameter 37)

In jedem Sumpf sind organische Substanzen zu erwarten (Auslaugung aus Farbe, Fette, etc.), die in der homogenen Phase mit Iod zu Organoiod reagieren können. Zu den Konzentrationen der organischen Stoffe existieren praktisch keine Messungen, auch nicht in FPT1. In Iod-Codes werden dementsprechend Annahmen zur Anfangskonzentration gemacht, die u. a. in AIM aus Multi-Parameter-Anpassungen an Iod-Integralversuche stammen und somit sehr unsicher sind.

- Organisches Material R Referenzwert 1E-5 mol/l; logarithmische Gleichverteilung (0,1; 10); Faktor auf Referenzwert

4.3.6 Iod-Reaktionskonstanten (Parameter 38 - 93)

Hier wird der Kenntnisstand aller unsicheren Iod-Reaktionskonstanten, die potentiell einen Einfluss auf die Simulation des Iodverhaltens im Versuch FPT1 haben, quantifiziert.

4.3.6.1 Hydrolyse im Sumpf (Parameter 38 – 42)

Die Hydrolyse gehört zu den wichtigsten Reaktionen im Reaktorsumpf. Zusammen mit der Radiolyse bestimmt sie die Konzentration der Iodspezies $I_2(w)$, $I^-(w)$, HOI und IO_3^- . In AIM wird die Hydrolyse in 2 Stufen gerechnet und ist durch 5 Einzelreaktionen modelliert. Einen wesentlichen Einfluss auf die Hydrolyse hat der pH-Wert. Bekannte Unsicherheiten betreffen unter anderem die Stärke der Abhängigkeit vom pH-Wert und die Konzentration des gelösten Luftsauerstoffs im Sumpf /WEB 09a/. Die Reaktionskonstanten der Einzelreaktionen werden pauschal mit der gleichen Unsicherheitsverteilung versehen.

Parameter 38 I_2 Hydrolyse (Schritt1 von 2), Referenzwert BAS1(11), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), mit Faktor auf Referenzwert

- Parameter 39 Rückreaktion der I_2 Hydrolyse (Schritt1 von 2), Referenzwert BAS1(12), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), mit Faktor auf Referenzwert
- Parameter 40 I_2 Hydrolyse (Schritt 2 von 2), Referenzwert BAS1(13), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), mit Faktor auf Referenzwert
- Parameter 41 Rückreaktion von I_2 Hydrolyse (Schritt 2 von 2), Referenzwert BAS1(15), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), mit Faktor auf Referenzwert
- Parameter 42 I^- -Oxidation durch gelöstes O_2 , Referenzwert BAS1(11), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), mit Faktor auf Referenzwert

4.3.6.2 Radiolyse im Sumpf (Parameter 43 – 46)

Unter Unfallbedingungen ist die Radiolyse die Hauptquelle für I_2 im Sumpf und wegen des Massentransfers auch für die Containmentatmosphäre. Die Radiolysereaktionen sind von der Dosisleistung und vom pH-Wert des Sumpfes abhängig. Vor allem die Stärke der pH-Abhängigkeit (sie wird durch die Exponenten in den Thermen $[H^+]^{N20}$ und $[H^+]^{N29}$ ausgedrückt) ist unsicher und wurde bereits zweimal anhand von Validierungsrechnungen geändert /WEB 09a/, /WEB 05/. Die Abweichungen sind in alkalischen ($pH > 7$) Sümpfen größer als in sauren. In PHEBUS FPT1 ist der Sumpf sauer.

Aufgrund der gewonnenen Erfahrung, vor allem bei der Analyse verschiedener Radiolyse-Modelle anhand von EPICUR Versuchen /PIN 05/ und /FUN 08/, werden die folgenden Unsicherheitsverteilungen gewählt

- Parameter 43 Radiolytische Bildung von $I_2(w)$ aus $I^-(w)$, Referenzwert BAS1(20), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), mit Faktor auf Referenzwert; Abb. 4-5
- Parameter 44 Rückreaktion der radiolytischen $I_2(w)$ Bildung aus $I^-(w)$, Referenzwert BAS1(21), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), mit Faktor auf Referenzwert

Parameter 45 Radiolytische $I_2(w)$ Bildung aus $IO_3^-(w)$, Referenzwert BAS1(29), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), mit Faktor auf Referenzwert

Parameter 46 Rückreaktion der radiolytischen $I_2(w)$ Bildung aus $IO_3^-(w)$, Referenzwert BAS1(21), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), mit Faktor auf Referenzwert

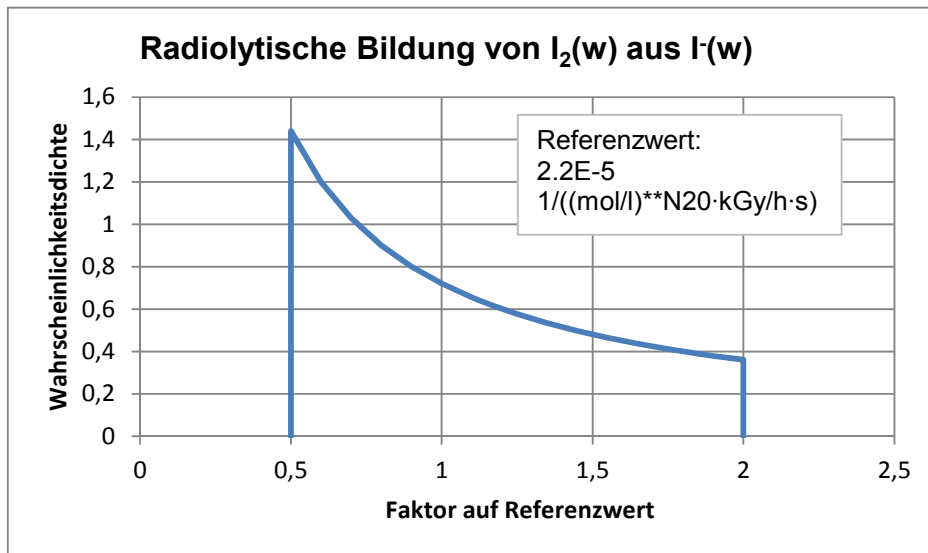


Abb. 4-5 Wahrscheinlichkeitsverteilung für Parameter 43 (Radiolytische Bildung von $I_2(w)$ aus $I^-(w)$)

4.3.6.3 Silber/Iod-Reaktion im Sumpf (Parameter 47 – 49)

Wie bereits erwähnt sind Silberpartikel aus zerstörten Regelstäben im Sumpf eine effektive Senke für I_2 . I^- reagiert mit oxidiertem Silber (Oxidschicht auf Silberpartikeln) ebenfalls zu AgI.

Die in AIM verwendeten Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten wurden aus Versuchen mit Silberfolien bei AEA Technologie /DIC 03/ und aus Versuchen mit Silberpulver bei AREVA /FUN 01/ abgeleitet. Die Unsicherheiten bei der Übertragung der Laborergebnisse auf reale Verhältnisse sind hoch, gerade weil bei der Modellierung vereinfachend davon ausgegangen wurde, dass die Partikel des Ag-Hydrosols permanent im Sumpf schwimmen und sozusagen eine gut durchmischte Suspension bilden. Die in den PHEBUS-Versuchen gemessene relativ schnelle Ablagerung auf den Boden ist nicht berücksichtigt. Diese Modellunsicherheit wird in der UaSA durch größere Unsicher-

heitsbereiche der Parameter 47 und 48 berücksichtigt. Eine weitere Modellunsicherheit betrifft die Oxidation der Silberoberfläche.

Die Unsicherheiten werden daher wie folgt festgelegt

Parameter 47 AgI(w)-Bildung aus Ag(w) + I₂(w), Referenzwert BAS1(28), logarithmische Gleichverteilung (0,1; 10,0), mit Faktor auf Referenzwert

Parameter 48 AgI(w)-Bildung aus AgOx(w) + I⁻(w), Referenzwert BAS1(56), logarithmische Gleichverteilung (0,1; 10,0), mit Faktor auf Referenzwert

Parameter 49 Bildung von AGOx(w) aus Ag(w) und O₂(w), Referenzwert BAS1(73), logarithmische Gleichverteilung (0,33; 3,0), mit Faktor auf Referenzwert.

4.3.6.4 Homogene organische Iod-Reaktionen im Sumpf, Parameter 50 – 54

In AIM ist die thermische Bildung von Organoiod im Sumpf aus I₂(w), HOI(w) und gelösten organischen Verbindungen (Öle, organische Lösungsmittel aus Farbe und Kabelisolation, etc.) empirisch modelliert. Das Modell in AIM wurde aus IMPAIR-3 /GÜN 92/ übernommen. Die Geschwindigkeitskonstanten wurden an die ACE/RTF-Versuche angepasst /GRE 95/.

Da diese Reaktionen in PHEBUS FPT1 eine eher untergeordnete Rolle spielen (kleiner Farbcoupon in Sumpf, vermutlich nur geringe Verschmutzung mit organischem Material) werden die Rückreaktionen nicht explizit erfasst. Die Unsicherheiten werden wie folgt abgeschätzt

Parameter 50 Thermische CH₃I(w)-Bildung aus I₂(w) und CH₃(w), Referenzwert BAS1(22), logarithmische Gleichverteilung (0,2; 5,0), mit Faktor auf Referenzwert

Parameter 51 Thermische CH₃I(w)-Bildung aus HOI(w) und CH₃(w), Referenzwert BAS1(40), logarithmische Gleichverteilung (0,1; 10,0), mit Faktor auf Referenzwert

Parameter 52 Radiolytische Zersetzung von $\text{CH}_3\text{I}(\text{w})$, Referenzwert BAS1(24), logarithmische Gleichverteilung (0,2; 5,0), mit Faktor auf Referenzwert

Parameter 53 Hydrolyse von $\text{CH}_3\text{I}(\text{w})$ mit H_2O , Referenzwert BAS1(30), logarithmische Gleichverteilung (0,2; 5,0), mit Faktor auf Referenzwert

Parameter 54 Hydrolyse von $\text{CH}_3\text{I}(\text{w})$ mit OH^- , Referenzwert BAS1(32), logarithmische Gleichverteilung (0,2; 5,0), mit Faktor auf Referenzwert

4.3.6.5 Iod/Farbe-Reaktionen im Sumpf (Parameter 55 – 63)

$\text{I}_2(\text{w})$ und $\text{I}^-(\text{w})$ werden an Farbflächen im Sumpf bzw. in FPT1 am Farbcoupon adsorbiert und reagieren teilweise mit dem Farbmateriale. Von I_2 -beladenen Farbflächen können $\text{I}_2(\text{w})$, $\text{I}^-(\text{w})$ und CH_3I und von I^- -beladenen $\text{I}^-(\text{w})$ und CH_3I freigesetzt werden. Diese Reaktionen hängen von der Temperatur sowie vom Fabrikat bzw. den Bestandteilen und dem Alter der Farbe ab. Die Modelle in AIM beruhen auf Experimenten unter Verwendung von Farbanstrichen, die repräsentativ für deutsche Containment-Anstriche sind und die zum Teil experimentell künstlich gealtert wurden. Die Unsicherheitsbereiche wurden anhand der Streuungen einschlägiger Messergebnisse /HEL 96/, /NEU 08/ abgeschätzt.

Parameter 55 Ablagerung von $\text{I}_2(\text{w})$ auf Farbe im Sumpf, Referenzwert BAS1(17), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), mit Faktor auf Referenzwert

Parameter 56 I_2 -Freisetzung von Farbe im Sumpf, Referenzwert BAS1(38), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), mit Faktor auf Referenzwert

Parameter 56 I_2 -Freisetzung von Farbe im Sumpf nach I_2 -Ablagerung, für $T \leq 90^\circ\text{C}$, Referenzwert BAS1(38), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), mit Faktor auf Referenzwert

Parameter 57 I_2 -Freisetzung von Farbe im Sumpf nach I_2 -Ablagerung, für $T > 90^\circ\text{C}$, Referenzwert BAS2(38), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), mit Faktor auf Referenzwert

- Parameter 58 I^- -Freisetzung von Farbe im Sumpf nach I_2 -Ablagerung, Referenzwert BAS1(69), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), mit Faktor auf Referenzwert
- Parameter 59 I^- -Ablagerung auf Farbe im Sumpf, Referenzwert BAS1(37), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), Faktor auf intern berechnete Reaktionskonstante
- Parameter 60 I^- -Freisetzung von Farbe im Sumpf nach I^- -Ablagerung, Referenzwert BAS2(19), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), Faktor auf intern berechnete Reaktionskonstante
- Parameter 61 Bildung von chemisorbiertem I^- auf Farbe im Sumpf aus physisorbiertem I^- , Referenzwert BAS1(79), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), Faktor auf Reaktionskonstante
- Parameter 62 Thermische Bildung von CH_3I auf Farbe im Sumpf, Referenzwert BAS1(39), logarithmische Gleichverteilung (0,1; 10,0), Faktor Reaktionskonstante
- Parameter 63 Radiolytische Bildung von CH_3I auf Farbe im Sumpf, Referenzwert BAS1(18), logarithmische Gleichverteilung (0,1; 10,0), Faktor auf intern berechnete Reaktionskonstante

4.3.6.6 Iod/Stahl-Reaktion im Sumpf (Parameter 64)

Gelöstes $I_2(w)$ im Sumpf lagert sich nicht dauerhaft auf Stahlflächen im Wasser ab, sondern reagiert mit dem Stahl zu Eiseniodid, das in der wässrigen Umgebung schnell dissoziiert und in Lösung geht. Im Wasser steigt deshalb die $I^-(w)$ -Konzentration an und die $I_2(w)$ -Konzentration geht zurück.

Diese Konversionsrate wurde in Laborversuchen gemessen /FUN 96/ und in AIM übernommen. Aufgrund von Analysen zum THAI-Versuch Iod-9 wurde die Konversionsrate später erheblich nach oben revidiert /WEB 09b/. Die Unsicherheitsverteilung wurde daher entsprechend breit gewählt. Die kleinen Werte (> 0.02) repräsentieren die alten

Messwerte, während die großen Werte ($0,8 < 1 < 1.2$) um den neuen Default-Wert liegen.

Parameter 64 Konversion von $I_2(w)$ zu $I(w)$ an Stahlflächen in Sumpf, Referenzwert BAS2(55), Histogramm (0,02; 0,8; 1,2; 2,0 / 0,3; 0,5; 0,2), Faktor auf intern berechnete Reaktionskonstante

4.3.6.7 Iod/Ozon-Reaktion im Gas (Parameter 65 – 71)

Durch radioaktive Strahlung werden in der Luft/Wasserdampf-Atmosphäre des Containments Radiolyseprodukte gebildet, die $I_2(g)$ zu IOx oxidieren. IOx ist im gasförmigen Zustand nicht stabil, sondern bildet unmittelbar ein Aerosol aus kleinen sogenannten Primärpartikeln. Die Gesamtheit der Radiolyseprodukte wird im Modell durch Ozon repräsentiert, da Ozon eines der Radiolyseprodukte darstellt und gleichzeitig so auch zur experimentellen Simulation von Strahlung herangezogen werden kann. In AIM ist die Bildung und Zersetzung von IOx und O_3 modelliert.

Für die Abschätzung der Unsicherheitsverteilung wurden Daten aus einer früheren Abschätzung von Unsicherheitsbereichen zu dem Iodmodell IMPAIR-3 /FUN 01/ und experimentellen sowie modelltheoretischen Arbeiten zur Iod/Ozon-Reaktion herangezogen /FUN 99a/, /DIC 03/ und /BOS 08/.

Parameter 65 Radiolytische Bildung von IOx aus I_2 und O_3 , Referenzwert BAS2(1), Gleichverteilung (1246, 4615), direkter Wert

Parameter 66 Rückreaktion der radiolytischen Bildung von IOx aus I_2 und O_3 , Referenzwert BAS2(2), Gleichverteilung ($1,1E-6$, $3,5E-6$), direkter Wert

Parameter 67 Radiolytische Bildung von O_3 , Referenzwert BAS2(71), Gleichverteilung ($3,9E-11$, $5,5E-11$), direkter Wert

Parameter 68 Radiolytische Zersetzung von O_3 , Referenzwert BAS2(72), Gleichverteilung ($2,205E-2$, $8,38E-2$), direkter Wert

Der Unsicherheitsbereich der Parameter 65 bis 68 entspricht im Prinzip den Angaben in /FUN 01/, nur dass die Bereiche für Parameter 65 und 68 wegen der hier nicht expli-

zit berücksichtigten Unsicherheit der Aktivierungsenergie erweitert wurden. Diese Unsicherheit betrifft die Temperaturabhängigkeit der Reaktionskonstanten.

Parameter 69 O₃ Abbau auf Farbe, Referenzwert BAS2(82), logarithmische Gleichverteilung (0,64, 1,56), Faktor auf Referenzwert

Parameter 70 O₃ Abbau auf Stahl, Referenzwert BAS2(83), logarithmische Gleichverteilung (0,5; 2,0), Faktor auf Referenzwert

Parameter 71 Thermischer O₃ Zerfall, Referenzwert BAS2(78), logarithmische Gleichverteilung (0,64, 1,56), Faktor auf Referenzwert

4.3.6.8 Homogene organische Reaktion im Gas (Parameter 72)

Durch radioaktive Strahlung wird Organoiod in der Gasphase wieder zersetzt. Der Unsicherheitsbereich wird wie in /FUN 01/ abgeschätzt gewählt.

Parameter 72 O₃ Abbau auf Stahl, Referenzwert BAS2(65), logarithmische Gleichverteilung (0,5, 2,0), Faktor auf Referenzwert

4.3.6.9 Iod/Farbe-Reaktion im Gas (Parameter 73 – 83)

I₂(g) lagert sich bei trockenen und bei nassen Verhältnissen (d. h. mit Wandkondensation) auf Farbe ab. Ist es nur physisorbiert, also nicht chemisch gebunden, kann es wieder in die Gasphase resuspendiert oder mit dem Wandkondensat abgewaschen werden. I₂ geht auch Reaktionen mit den Farbbestandteilen ein und ist dann fest an die Farbe gebunden (chemisorbiert). Thermisch und radiolytisch kann sowohl aus dem abgelagerten I₂ als auch aus chemisorbiertem Iod Organoiod gebildet werden.

Die Iod/Farbe-Reaktion wird in einer Reihe von experimentellen Projekten weiter untersucht. Dazu gehören THAI Iod-Versuche, das OECD-Vorhaben BIP (Behavior of Iodine Project, /BIP 11/) und das Folgevorhaben BIP-2 sowie Tests in der französischen EPICUR-Anlage /STE 11/. Diese Anstrengungen demonstrieren, dass die Reaktion noch nicht zufriedenstellend verstanden und modelliert ist.

Im PHEBUS-Versuch FPT1 wurde die französische Farbe RIPOLIN eingesetzt, während den AIM-Modellen vorwiegend Versuche mit deutscher GEHOPON-Farbe zu Grunde liegen. Beide Farbanstriche gehören zur Klasse der Epoxidharze und sind chemisch relativ ähnlich. Dennoch könnten darin Abweichungen im Verhalten begründet sein, die bisher jedoch noch nicht quantifiziert wurden. Das Farbalter ist derzeit in den AIM-Modellen nicht explizit berücksichtigt. Die THAI-Versuche wurden vorwiegend mit Farbe, die künstlich auf 15 Jahre gealtert wurde, durchgeführt. Das Alter der Farbe am FPT1-Condenser ist nicht genau bekannt, dürfte aber wesentlich geringer sein.

Die Unsicherheitsbereiche wurden in grober Anlehnung an die typische Streuung der Versuchsergebnisse abgeschätzt.

Parameter 73 I_2 -Ablagerung auf Farbe, Referenzwert BAS1(4), logarithmische Gleichverteilung (0,25; 4,0), Faktor auf Referenzwert

Parameter 74 I_2 -Resuspension von Farbe, Referenzwert BAS1(62), logarithmisch Gleichverteilung (0,25; 4,0), Faktor auf Referenzwert

Parameter 75 I_2 -Resuspension auf Farbe bei Wandkondensation, logarithmische Referenzwert BAS2(62), Gleichverteilung (0,67; 1,5), Faktor auf Referenzwert

Parameter 76 Bildung von chemisorbiertem Iod auf Farbe, Referenzwert BAS1(76), logarithmische Gleichverteilung (0,25; 4,0), Faktor auf Referenzwert

Parameter 77 Bildung von chemisorbiertem Iod auf Farbe bei Wandkondensation, Referenzwert BAS2(76), Gleichverteilung (0,25; 4,0), Faktor auf Referenzwert

Parameter 78 I_2 Transport in den Sumpf, Referenzwert BAS2(44), logarithmisch Gleichverteilung (0,25; 4,0), Faktor auf Referenzwert

Parameter 79 I^- Transport in den Sumpf, Referenzwert BAS2(9), logarithmisch Gleichverteilung (0,25; 4,0), Faktor auf Referenzwert

Parameter 80 Thermische CH_3I Freisetzung aus I_2 , Referenzwert BAS1(14), logarithmische Gleichverteilung (0,1; 10,0), Faktor auf Referenzwert

Parameter 81 Radiolytische CH_3I Freisetzung aus I_2 , Referenzwert BAS1(7), logarithmische Gleichverteilung (0,1; 10,0), Faktor auf Referenzwert

Parameter 82 Thermische CH_3I Freisetzung aus chemisorbiertem Iod (ICH_S), Referenzwert BAS1(68), logarithmische Gleichverteilung (0,1; 10,0), Faktor auf Referenzwert

Parameter 83 Radiolytische CH_3I Freisetzung aus ICH_S, Referenzwert BAS1(66), logarithmische Gleichverteilung (0,1; 10,0), Faktor auf Referenzwert

4.3.6.10 Iod/Stahl-Reaktion im Gas (Parameter 84 – 91)

In AIM ist die Iod/Stahl-Reaktion als dreistufiger Prozess modelliert. Abgelagertes I_2 reagiert mit dem Stahl zu FeI_2 , das nicht flüchtig aber wasserlöslich ist. Mit Luftsauerstoff kann FeI_2 weiter zu sogenanntem fixed-I reagieren, das nicht flüchtig, nicht wasserlöslich und vergleichsweise fest an die Stahloberfläche gebunden ist. Die Geschwindigkeit dieser Reaktion hängt stark von der Feuchte ab. Diese Abhängigkeit wird durch den Parameter FSAT repräsentiert. Bei Wandkondensation können sowohl I_2 als auch FeI_2 abgewaschen und in den Sumpf transportiert werden.

Die Iod/Stahl-Reaktion wurde in 6 THAI-Iodversuchen detailliert gemessen. Weiter wurde die $\text{I}_2(\text{g})$ -Ablagerung auf Coupon aus THAI-Stahl bei AECL im Rahmen des OECD BIP-Projekts untersucht. Das Iod/Stahl-Modell in AIM ist daher gut validiert.

Die Unsicherheit der Parameter 84 und 85 lässt sich grob aus der Streuung der Messwerte in der Untersuchung bei AECL ableiten (/BIP 11/, /SPE 12/). Berücksichtigt wird auch, dass der Behälterstahl des PHEBUS-Containments (AISI 316 L) in seiner Zusammensetzung von dem des THAI-Behälters (AISI 316 Ti) abweicht.

Parameter 84 I_2 -Ablagerung auf Stahl, Referenzwert BAS1(51), logarithmische Dreiecksverteilung (0,5; 1,0; 2,0), Faktor auf Referenzwert

Parameter 85 I_2 -Resuspension von Stahl, Referenzwert BAS1(63), logarithmische Dreiecksverteilung (0,2; 1,0; 5,0), Faktor auf Referenzwert

- Parameter 86 I_2 -Ablagerung bei Wandkondensation auf Stahl, FeI_2 -Bildung und Abwaschen in Sumpf, Referenzwert BAS1(52), logarithmische Dreiecksverteilung (0,67; 1,0; 1,5), Faktor auf Referenzwert
- Parameter 87 Bildung von chemisorbiertem Iod (ICHS) aus physisorbiertem I_2 , Referenzwert BAS1(74), logarithmische Dreiecksverteilung (0,5; 1,0; 1,5), Faktor auf Referenzwert
- Parameter 88 Feuchteabhängigkeit der Bildung von ICHS aus physisorbiertem I_2 , FSAT, logarithmische Dreiecksverteilung (0,67; 1,0; 1,33), Faktor auf Referenzwert

Die Unsicherheit der drei Parameter 89, 90 und 91 wurden anhand der Versuchsauswertungen in /SPE 12/ grob quantifiziert.

- Parameter 89 Rückreaktion zu Bildung von ICHS aus physisorbiertem I_2 , BAS1(75), Gleichverteilung ($2E-6$; $1E-5$), direkter Wert an Stelle des Referenzwerts
- Parameter 90 Abwaschen von physisorbiertem I_2 in den Sumpf, BAS2(84), logarithmische Gleichverteilung (0,2; 2,0), direkter Wert an Stelle des Referenzwerts
- Parameter 91 Abwaschen von FeI_2 als I^- in den Sumpf, BAS2(84), logarithmische Gleichverteilung (0,2; 2,0), direkter Wert an Stelle des Referenzwerts

4.3.6.11 Iod-Massentransfer zwischen Wasser und Gas (Parameter 92 und 93)

Der Massentransfer der flüchtigen Spezies I_2 , CH_3I und organischen Substanzen (R) zwischen der Gasphase und dem Sumpf spielt in PHEBUS FPT1 eine wichtige Rolle, da einige Stunden nach Versuchsbeginn die Bildung und Freisetzung von $I_2(g)$ aus dem Sumpf die dominante I_2 -Quelle in der Gasphase darstellt. Die I_2 -Freisetzung vom nassen Condenser spielt nur am Anfang des Versuchs in den Phasen mit Dampfkondensation eine Rolle. Im Modell beschreiben die Massentransferkoeffizienten KMTWAS und KMTGAS die Geschwindigkeit des Transfers und der Verteilungskoeffizient P das Konzentrationsgleichgewicht zwischen Gas- und Wasserphase.

Die Unsicherheit von KMTWAS und KMTGAS wurde bereits in Kapitel 4.3.5 (Iodmodul Parameter) festgelegt. Die Verteilungskoeffizienten, die von der Temperatur abhängen, sind aus einigen Messungen gut bekannt, z. B. /FUR 85/ und sind daher klein.

Parameter 92 Verteilungskoeffizient für I_2 zwischen Gas- und Wasserphase, $P(I_2)$, logarithmische Gleichverteilung (0,83; 1,2), direkter Wert an Stelle des Referenzwerts

Parameter 93 Verteilungskoeffizient für CH_3I zwischen Gas- und Wasserphase, $P(CH_3I)$, logarithmische Gleichverteilung (0,83; 1,2), direkter Wert an Stelle des Referenzwerts

4.4 Identifikation von Abhängigkeiten

Unter den unsicheren Parametern wurde eine einzige Abhängigkeit identifiziert. Sie betrifft die mittlere Partikelgröße der Aerosolkomponenten CsI, Silber, Silberoxid und Restaerosol. In der Referenzrechnung ist die massengemittelte Partikelgröße für alle 4 Aerosolkomponenten gleich mit 1,61 μm vorgegeben. Die FPT1-Messung zeigt, dass die Komponenten wegen der starken Agglomeration gut durchmischt waren.

Eine während des ganzen Versuches identische Entwicklung der mittleren Partikelgrößen, also eine vollständige Abhängigkeit, ist auszuschließen, da der Verlauf der Einspeiseraten wegen der unterschiedlichen Freisetzungzeiten ungleich ist. Eine vollständige Abhängigkeit der Partikelgrößen ist daher wenig wahrscheinlich. Es wurde daher eine Korrelationsmatrix mit einem einheitlichen Korrelationskoeffizienten von jeweils 0,5 erstellt:

- Mittlere Partikelgröße des eingespeisten CsI-Aerosols (Parameter 10)
- Mittlere Partikelgröße des eingespeisten Silber-Aerosols (Parameter 12)
- Mittlere Partikelgröße des eingespeisten Restaerosol-Aerosols (Parameter 15)

Silberoxidaerosol wurde in der Variationsrechnung nicht explizit erfasst, da die mittlere Partikelgröße praktisch die des Silberaerosols ist. Bei der Oxidation bildet sich nur eine dünne Oxidschicht auf den Silberpartikeln.

4.5 Zusammenfassung der unsicheren Parameter

Die oben ausführlich beschriebenen Angaben zu den unsicheren Parametern, die in den Stufen 1 und 2 der UaSA verwendet wurden, sind in Tab. 4-4 (thermohydraulische, Aerosol- und Iod-Modul-Parameter) und Tab. 4-5 (Reaktionskonstanten) übersichtlich zusammengefasst.

Tab. 4-4 Unsichere Parameter, Teil 1 thermohydraulische-, Aerosol- und Iodmodul Parameter

No.	Uncertain parameter		Reference value	Uncertainty distribution, Step 1	Representation, Step 1	Correlation, Steps 1 and 2	Uncertainty distribution, Step 2	Representation, Step 2	
	Description, dimension	Name							
A Thermal hydraulics									
1	Wall temperature of atmospheric zone; C	WALL1/TEMP2	Table, 110 to 128 C	triangular (-1.0, 0., +1.0)	additive to reference value				
		WALL2/TEMP2							
		WALL3/TEMP3							
		WALL4/TEMP2							
		WALL5/TEMP2							
		WALL6/TEMP2							
		WALL7/TEMP2							
2	Wall temperature of sump zone, C	WALL8/TEMP2	Table	triangular (-0.5, 0., +0.5)	additive				
3	Wall temperature of wet condenser, upper part, C	WALL9/TEMP2	Table	triangular (-0.5, 0., +0.5)	additive				
		WALL10/TEMP2	Table						
		WALL11/TEMP2	Table						
4	Characteristic length of structure WALL1, left side, m	HLENG (WALL1), LEFT	0.01	discrete (0.01, 0.05, 0.5 / 0.1, 0.6, 0.3)	direct				
	Characteristic length of structure WALL1, right side, m	HLENG (WALL1), RIGHT	0.01	discrete (0.01, 0.05, 0.5 / 0.1, 0.6, 0.3)	direct				
	Same for WALL2 to WALL8								
	Characteristic length of structure WALL9, left side, m	HLENG (WALL9), LEFT	0,05	discrete (0.01, 0.05, 0,5 / 0.1, 0.6, 0.3)	direct				
	Characteristic length of structure WALL9, right side, m	HLENG (WALL9), RIGHT	0.01	discrete (0.01, 0.05, 0,5 / 0.1, 0.6, 0.3)	direct				
	Characteristic length of structure WALL10, left side, m	HLENG (WALL10), LEFT	0.05	discrete (0.01, 0.05, 0,5 / 0.1, 0.6, 0.3)	direct				
	Characteristic length of structure WALL10, right	HLENG (WALL10), RIGHT	0.01	discrete (0.01, 0.05, 0,5 / 0.1,	direct				

No.	Uncertain parameter		Reference value	Uncertainty distribution, Step 1	Representation, Step 1	Correlation, Steps 1 and 2	Uncertainty distribution, Step 2	Representation, Step 2
	Description, dimension	Name						
	side, m			0.6, 0.3)				
	Characteristic length of structure WALL11, left side, m	HLENG (WALL11), LEFT	0.01	discrete (0.01, 0.05, 0.5 / 0.1, 0.6, 0.3)	direct			
5	Heat transfer coefficient, W/m2/K	ALCOND	table; 80 to 350	loguniform (0.83, 1.2)	factor			
6	Residual silver concentration in condensate, kg/m3	CAERES	0.04	uniform (0.01, 0.08)	direct			
B Injections								
7	Steam injection, mass flow rate, kg/s	STEAM_INJ CIJFLO	Table	loguniform (0.89, 1.12)	factor			
8	Steam injection, enthalpy, kJ/kg	CIJENT	Table	uniform (-61, 0.)	additive			
9	CSI injection, kg/s	I_INJ, CIJFLO	Table	logtriangular (0.91, 1., 1.1)	factor			
10	[a] CSI particle size distribution at inj., m	SWERT1 (CSI_SIZ)	1.61E-06	logtriangular (0.83, 1., 1.2)	factor	Correlation matrix between [a], [b], and [c] corr.coeff.=0.5		
11	Silver aerosol injection, kg/s	AG_INJ, CIJFLO	Table	logtriangular (0.91, 1., 1.1)	factor			
12	[b] Silver particle size distribution at inj., m	SWERT1	1.61E-06	logtriangular (0.83, 1., 1.2)	factor	corr. matrix		
13	Silver oxide init. conc. in sump	AGOX, SUMP	2.4E-4	logtriangular (0.91, 1., 1.1)	factor			
14	Residual aerosol injection, kg/s	AER_INJ2, CIJFLO	Table	logtriangular (0.91, 1., 1.1)	factor			
15	[c] Residual aerosol particle size distribution at inj., m	SWERT1	1.61E-06	logtriangular (0.83, 1., 1.2)	factor	corr.matrix		
16	I ₂ injection, mol/s	I2_INJ, CIJFLO	Table	polygon (0., 1., 2. / 1., 1., 0.)	factor		logtriangular (0.5, 1., 2.0)	factor
C Aerosol Parameters								
17	Diffusion boundary layer thickness, m	DELDIFF	1,0E-04	polygon (1.E-5, 1.E-4, 2.E-4 / 1., 1., 0.)	direct			
18	Effective aerosol density, kg/m ³	DENSTY	3.0E+03	uniform (3E3, 7E3)	direct			
19	Turbulent dissipation rate, m ² /s ³	TURBDS	1.00E-03	uniform (1.E-3, 1.E-2)	direct			
20	Dynamic particle shape factor	CHI	1.00E+00	triangular (1., 1., 1.3)	direct			
21	Agglomeration	GAMMA	1.00E+00	triangular	direct			

No.	Uncertain parameter		Reference value	Uncertainty distribution, Step 1	Representation, Step 1	Correlation, Steps 1 and 2	Uncertainty distribution, Step 2	Representation, Step 2
	Description, dimension	Name						
	particle shape factor			(1., 1., 2.)				
22	Particle collision efficiency	COLEFF	-1.00E+00	discrete (-1.0, 0.0; 0.7, 0.3)	direct			
23	Average water film thickness, m	THFILM	3.40E-04	loguniform (0.4, 2.5)	factor			
D	Dose rate							
24	Dose rate in the gas phase, kGy/h	DOSE_ATM, CIJRATE	Table	loguniform (0.77, 1.3)	factor			
25	Dose rate in the water phase, kGy/h	DOSE_SUMP, CIJRATE	Table	loguniform (0.77, 1.3)	factor			
E	Iodine module parameters							
26		S	5,70E-03	triangular (5.7E-3, 5.7E-3, 0.3)	direct		triangular (2.8E-3, 5.7E-3, 2.3E-2)	direct
27	Minimum wall condensation rate for wet conditions, kg/(m ² s)	ACOND	1.00E-04	triangular (1.E-4, 1.E-4, 2.E-3)	direct			
28	Mass median diameter of IO3- primary particles, m	DIO3	2.00E-07	uniform (4.E-8, 5.E-7)	direct			
29	Standard deviation of log-normal IO3- particle size distribution	SIO3	2	polygon (1.5, 2., 3.; 1., 1., 0.)	direct			
30	Maximum available steel for chemisorption	FEMAX	2.0E-05	loguniform (1.0E-5, 4.0E-4)				
31	Splitting factor for reaction 75	C75	0,54	triangular (0.15, 0.54, 0.54)	direct			
32	Gas side mass transfer coefficient, m/s	KMTGAS	1.4E-03	triangular (5.E-4, 1.4E-3, 3.E-3)	direct			
33	Water side mass transfer coefficient, m/s	KMTWAS	1.0E-05	triangular (5.E-6, 1.E-5, 5.E-5)	direct			
34	Fraction of deposited I2 washed down	F444	0.68	uniform (0.3, 0.8)	direct			
35	Stoichiometric factor used for O3 destruction by I2 oxidation	STOFAK	3.9	uniform (-0.2, 0.2)	additive			
36	pH in the sump	PH	Table	uniform (-0.2, +0.2)	additive			
37	Initial organic residue concentration in sump, mol/l	R	1.0E-05	loguniform (0.1, 10.)	factor			

Tab. 4-5 Unsichere Parameter, Teil 2 Reaktionskonstanten

No.	Uncertain parameter		Name	Reaction no. (back reaction)	Reference value	Dimension	Uncertainty distribution	Represented by	Uncertainty distribution	Represented by
	Reaction / Process	Chem. formulation					Step 1	Step 1	Step 2	Step 2
+37	Water phase reactions									
	Inorganic iodine hydrolysis reactions									
38	I2 hydrolysis (step 1 of 2)	$I_2 (w) + H_2O \rightarrow HOI (w) + I^- (w) + H^+$	BAS1	11 (12)	3.00E+00	1/s	loguniform (0.5,2.0)	factor		
39	Reverse of I2 hydrolysis (step 1 of 2)		BAS1	12 (11)	calc.	1/(M·M·s)	loguniform (0.5,2.0)	factor on internal variable		
40	I2 hydrolysis (step 2 of 2; HOI disproportionation ("Toth model"))	$3 HOI (w) \rightarrow IO_3^- (w) + 2 I^- (w) + 3 H^+$	BAS1	13 (15)	calc.	1/(M·s)	loguniform (0.5,2.0)	factor on internal variable		
41	Reverse of I2 hydrolysis (step 2 of 2; "Dushman reaction"; Toth model)		BAS1	15 (13)	1.10E+05	1/(M·M·M**N15·s)	loguniform (0.5,2.0)	factor		
42	I- oxidation by dissolved O2	$2 I^- (w) + 1/2 O_2 (w) + 2 H^+ \rightarrow I_2 (w) + H_2O$	BAS1	16	1.00E-07	1/(M·s)	loguniform (0.5,2.0)	factor		
	Inorganic iodine radiolysis reactions									
43	Radiolytic I2 formation from I-	$2 I^- (w) + \gamma \rightarrow I_2 (w)$	BAS1	20 (21)	2.20E-05	1/(M**N20·kGy/h·s)	loguniform (0.5, 2.0)	factor	loguniform (0.25, 4.0)	factor
44	Reverse of radiolytic I2 formation from I-		BAS1	21 (20)	1.00E-04	1/s	loguniform (0.5, 2.0)	factor		
45	Radiolytic I2 formation from IO3-	$IO_3^- (w) + \gamma \rightarrow I_2 (w)$	BAS1	29 (34)	2.20E-05	1/(M**N29·kGy/h·s)	loguniform (0.5, 2.0)			
46	Reverse of radiolytic I2 formation with IO3-		BAS1	34 (29)	1.00E-04	1/s	loguniform (0.5, 2.0)	factor		

No.	Uncertain parameter		Name	Reaction no. (back reaction)	Reference value	Dimension	Uncertainty distribution	Represented by	Uncertainty distribution	Represented by
	Reaction / Process	Chem. formulation					Step 1	Step 1	Step 2	Step 2
Silver / iodine reactions										
47	AgI formation from Ag + I ₂	I ₂ (w) + 2 Ag (w) --> 2 AgI (w)	BAS1	28	2.00E-01	m/(M·s)	loguniform (0.1, 10.0)	factor		
48	AgI formation from AgOx + I-	AgOx (w) + I- (w) --> AgI (w)	BAS1	56	2.00E+00	m/(M·s)	loguniform (0.1, 10.0)	factor		
49	Formation of AgOx by Ag oxidation	Ag(w) + O ₂ --> AgOx(w)	BAS1	73	8.70E-09	mol/(m ² ·s)	logtriangular (0.33, 3.0)	factor		
Homogeneous organic iodine reactions in the water phase										
50	Thermal CH ₃ I formation from I ₂	I ₂ (w) + 2 CH ₃ (w) --> 2 CH ₃ I (w)	BAS1	22 (23)	1.5 E+00	1/(M·s)	loguniform (0.2, 5.0)	factor		
51	Thermal CH ₃ I formation from HOI	HOI (w) + CH ₃ (w) --> CH ₃ I (w)	BAS1	40 (41)	1.0 E-01	1/(M·s)	loguniform (0.1, 10.0)	factor		
52	Radiolytic CH ₃ I destruction	2 CH ₃ I (w) + γ --> I ₂ (w) + 2 CH ₃ (w)	BAS1	24 (25)	3.00E-04	1/(kGy/h·s)	loguniform (0.2, 5.0)	factor		
53	Hydrolysis of CH ₃ I by H ₂ O	CH ₃ I (w) + H ₂ O --> I- (w) + CH ₃ OH + H+	BAS1	30 (31)	1.50E-07	1/s	loguniform (0.2, 5.0)	factor		
54	Hydrolysis of CH ₃ I by OH-	CH ₃ I (w) + OH- --> I- (w) + CH ₃ OH	BAS1	32 (33)	5.70E-05	1/s	loguniform (0.2, 5.0)	factor		
Iodine reactions with immersed painted surfaces										
55	I ₂ deposition on paint	I ₂ (w) --> I ₂ (DEP,paint,w)	BAS1	17	2.00E-06	m/s	loguniform (0.2, 5.0)	factor		
56	I ₂ dissolution from paint after I ₂ deposition	I ₂ (DEP,paint,w) --> I ₂ (w)	BAS1, T ≤ 90 °C	38	4.16E-09	1/s	loguniform (0.2, 5.0)	factor		

No.	Uncertain parameter		Name	Reaction no. (back reaction)	Reference value	Dimension	Uncertainty distribution	Represented by	Uncertainty distribution	Represented by
	Reaction / Process	Chem. formulation					Step 1	Step 1	Step 2	Step 2
57			BAS2, T > 90 °C		2.0E-6		loguniform (0.2, 5.0)			
58	I- dissolution from paint after I2 deposition	I2(DEP,paint,w) --> I-(w)	BAS1	69	8.58E-07	1/s	loguniform (0.5, 2.0)	factor		
59	I- deposition on paint	I- (w) --> I- (DEP,paint,w)	BAS1	37	calc. (calc.)	m/s	loguniform (0.5, 2.0)	factor on internally calculated reaction rate		
60	I- dissolution from paint after I- deposition	I- (DEP,paint,w) --> I- (w)	BAS1	19	calc. (calc.)	1/s	loguniform (0.5, 2.0)	factor on internally calculated reaction rate		
61	Chemisorbed I- from physisorbed I-	I- (DEP,paint,w) --> ICHS (DEP,p,w)	BAS1	79 (80)	5.00E-06	1/s	loguniform (0.5, 2.0)	factor		
62	Thermal CH3I dissolution from paint	I2 (DEP,paint,w) --> CH3I (w);	BAS1	39	1.50E-12	$1/s \cdot (m^2/mol)^{g-1}$	loguniform (0.1, 10.0)	factor		
		I- (DEP,paint,w) --> CH3I (w)								
		ICHS (DEP,paint,w) --> CH3I (w)								
63	Radiolytic CH3I dissolution from paint	I2 (DEP,paint,w) + γ --> CH3I (w);		18	3.60E-09	$1/(kGy/h \cdot s) \cdot (m^2/mol)^{h-1}$	uniform (0.1, 10.0)	factor on internally calculated reaction rate		
		I- (DEP,paint,w) + γ --> CH3I (w)								

No.	Uncertain parameter		Name	Reaction no. (back reaction)	Reference value	Dimension	Uncertainty distribution	Represented by	Uncertainty distribution	Represented by
	Reaction / Process	Chem. formulation					Step 1	Step 1	Step 2	Step 2
		ICHS (DEP,paint,w) + γ --> CH3I (w)								
Iodine reactions with immersed steel surfaces										
64	I2 conversion to I- at steel surface	I2 (w) + steel (w) --> I- (w)	BAS1	55	1.25E-07	m/s	histogram (0.02, 0.8, 1.2,2.0; 0.3,0.5, 0.2)	factor		
Gas phase reactions										
Iodine/ozone reaction										
65	Formation of IO3-(g) by reaction of I2 and O3	I2 (g) + O3 --> IO3- (g)	BAS1	1	2.40E+03	1/(M·s)	uniform (1246, 4615)	direct		
66	Radiolytic destruction of IO3-(g)	2 IO3- (g) + γ --> I2 (g)	BAS1	2	2.30E-06	1/(kGy/h·s)	uniform (1.1E-6, 3.5E-6)	direct		
67	Radiolytic O3 formation	atmosphere + γ --> O3 (g)	BAS1	71 (72)	4.70E-11	M/(kGy/h·s)	uniform (3.9E-11, 5.5E-11)	direct		
68	Radiolytic O3 decay	O3 (g) + γ --> O2	BAS1	72 (71)	4.30E-02	1/(kGy/h·s)	uniform (2.205E-2, 8.38E-2)	direct		
69	O3 decomposition on painted surfaces	O3 (g) --> -	BAS1	82	1.27E-05	m/s	loguniform (0,64, 1.56)	factor		
70	O3 decomposition on steel surfaces	O3 (g) --> -	BAS1	83	1.46E-05	m/s	loguniform (0,5, 2.0)	factor		
71	Thermal O3 decay	O3 (g) --> O2	BAS1	78	3.00E-04	1/s	loguniform (0.64, 1.56)	factor		
Homogeneous organic iodine reactions in the gas phase										
72	Radiolytic CH3I decomposition	CH3I (g) + γ --> ½ I2 (g) + CH3 (g)	BAS1	65 (67)	1.64E-04	1/(kGy/h·s)	loguniform (0.5, 2.0)	factor		

No.	Uncertain parameter		Name	Reaction no. (back reaction)	Reference value	Dimension	Uncertainty distribution	Represented by	Uncertainty distribution	Represented by
	Reaction / Process	Chem. formulation					Step 1	Step 1	Step 2	Step 2
Iodine reactions with painted surfaces exposed to the gas phase										
73	I2 deposition on <u>dry</u> and <u>wet</u> paint	I2 (g) --> I2 (DEP,paint,g)	BAS1	4 (62)	4.00E-03	m/s	loguniform (0.25, 4.0)	factor		
74	I2 resuspension from <u>dry</u> and <u>wet</u> paint	I2 (DEP,paint,g) --> I2 (g)	BAS1	62 (4)	5.00E-09	1/s	loguniform (0.25, 4.0)	factor		
75			BAS2		8.80E-08	1/s	loguniform (0.67, 1.5)	factor		
76	Physisorbed I2 into chemisorbed iodine	I2 (DEP,paint,g) --> ICHS (DEP,p,g)	BAS1	76 (77)	1.00E-05	1/s	loguniform (0.25, 4.0)	factor		
77			BAS2		1.00E-05		loguniform (0.67, 1.5)	factor		
78	I2 transport to wet paint and subsequent wash-down to sump as I2	I2 (g) --> I2 (DEP,paint,g) --> I2 (w)	BAS2	44	3.10E-03	m/s	loguniform (0.25, 4.0)	factor		
79	Wash-down from paint to sump as I- in condensing conditions	I2 (DEP,paint,g) --> I- (w)	BAS2	9	2.70E-07		loguniform (0.25, 4.0)	factor		
80	Thermal CH3I release from physisorbed iodine	I2 (DEP,paint,g) --> CH3I (g)	BAS1	14	1.50E-12	1/s·(m ² /mol) ^{g-1}	loguniform (0.1, 10.0)	factor		
81	Radiolytic CH3I release from physisorbed iodine	I2 (DEP,paint,g) + γ --> CH3I (g)	BAS1	7	3.60E-09	1/(kGy/h·s) · (m ² /mol) ^{h-1}	loguniform (0.1, 10.)	factor		
82	Thermal CH3I release from chemisorbed iodine	ICHS (DEP,paint,g) --> CH3I (g)	BAS1	68	1.50E-12	1/s·(m ² /mol) ^{g-1}	loguniform (0.1, 10.0)	factor		
83	Radiolytic CH3I release from chemisorbed iodine	ICHS (DEP,paint,g) + γ --> CH3I (g)	BAS1	66	3.60E-09	1/(kGy/h·s) · (m ² /mol) ^{h-1}	loguniform (0.1, 10.)	factor		

No.	Uncertain parameter		Name	Reaction no. (back reaction)	Reference value	Dimension	Uncertainty distribution	Represented by	Uncertainty distribution	Represented by
	Reaction / Process	Chem. formulation					Step 1	Step 1	Step 2	Step 2
Iodine reactions with steel surfaces exposed to the gas phase										
84	I2 deposition on dry steel	I2 (g) --> I2 (DEP,steel,g)	BAS1	51 (63)	2.6E-03 (0)	m/s	logtriangular (0.5, 1.0, 2.0)	factor		
85	Resuspension from dry steel	I2 (DEP,steel,g) --> I2 (g)	BAS1	63 (51)	1.5E-04 (0)	1/s	logtriangular (0.2, 1.0, 5.0)	factor		
86	I2 deposition on wet steel, FeI2 formation, and wash-down to sump as I-	I2 (g) --> I- (w)	BAS2	52	calc. (1.35E-03)	m/s	logtriangular (0.67, 1.0, 1.5)	factor		
87	Physisorbed I2 into chemisorbed iodine	I2 (DEP,s,g) --> FEI2 (DEP,s,g)	BAS1	74 (75)	1.3E-04 (0)	1/s	logtriangular (0.5, 1.0, 1.5)	factor		
88			F.SAT		f(rh)		logtriangular (0.67, 1.0, 1.33)	factor		
89	Reverse of reaction 74 with two different ways	FEI2 (DEP,s,g) --> I2 (g) ; FEI2 (DEP,s,g) --> fixed-I	BAS1	75 (74)	4.60E-06	1/s	uniform (2.0E-6, 1.0E-5)	direct		
90	Wash-down of I2 (DEP,steel,g) to sump as I- in condensing conditions	I2 (DEP,s,g) --> I- (w)	BAS2	84	1.00E-04	1/s	loguniform (0.2, 2.0)	factor		
91	Wash-down of FEI2 (DEP,steel,g) to sump as I- in condensing conditions	FEI2 (DEP,s,g) --> I- (w)	BAS2	85	1.00E-04	1/s	loguniform (0.2, 2.0)	factor		

No.	Uncertain parameter		Name	Reaction no. (back reaction)	Reference value	Dimension	Uncertainty distribution	Represented by	Uncertainty distribution	Represented by
	Reaction / Process	Chem. formulation					Step 1	Step 1	Step 2	Step 2
Mass transfer between gas and water phases										
92	I2 transfer through the interface sump - gas	$I_2 (w) \rightleftharpoons I_2 (g)$	P(I2)	35	calc.		loguniform (0.83, 1.2)	factor		
93	CH3I and CH3 transfer through the interface sump - gas	$CH_3I (w) \rightleftharpoons CH_3I (g)$; $CH_3 (w) \rightleftharpoons CH_3 (g)$	P(CH3I)	36	calc.		loguniform (0.83, 1.2)	factor		

4.6 Auswahl von Ergebnisvariablen

Die Ergebnisvariablen wurden im Wesentlichen nach ihrer Relevanz für den Iodquellterm ausgewählt. Dieser wird aus den luftgetragenen Iodspezies im Containment gebildet und hängt vom zeitlichen Verlauf des Leckage-Massenstroms ab. Da am PHEBUS-Containment keine Leckage auftrat, wird die maximal freisetzbare Iodmenge, das ist die gesamte luftgetragene Iodmenge, als zusätzliche Ergebnisvariable eingeführt. Die ausgewählten Variablen gliedern sich in:

- a) alle Iodspezies, die im Containment luftgetragen sind (I_2 , CH_3I , IOx und CsI)
- b) alle Spezies im Sumpf
- c) alle auf Oberflächen abgelagerten Iodspezies
- d) einige Aerosolvariablen
- e) einige thermohydraulische Variablen
- f) maximal freisetzbare Iodmenge (Berechnung s. unten)

Tab. 4-6 zeigt die ausgewählten Ergebnisvariablen. Die angegebene Priorität für die Auswertung entspricht weitgehend den Gruppen (a), (b) und (c)+(d)+(e). Im Schritt 1 der UaSA wurden nicht alle Variablen ausgewertet.

Tab. 4-6 Ausgewählte Ergebnisvariablen für UaSA Step 1 und 2

No.	Variable	Dim.	Zone	Location	Output/plot variable in COCOSYS-AIM output file	Priority	Step 1	Step 2
Iodine in gas phase								
1	I_2 concentration in gas	mol/l	JC45	mid of vessel	AFP 'AEICOZ(I2,JC45)'	1	x	x
2	CH_3I concentration in gas	mol/l	JC45	mid of vessel	AFP 'AEICOZ(CH3I,JC45)'	1	x	x
3	IOx concentration in gas	mol/l	JC45	mid of vessel	AFP 'AEICOZ(IOX,JC45)'	1	x	x
4	O_3 concentration in gas	mol/l	JC45	mid of vessel	AFP 'AEICOZ(O3,JC45)'	3	x	x
Deposited iodine in gas phase								
5	CsI concentration on wet condenser	mol/m ²	JCWET	wet condenser	AFP 'AEICOZ(CSI_PAINT,JCWET)'	3	x	x
6	I_2 concentration on wet condenser	mol/m ²	JCWET	wet condenser	AFP 'AEICOZ(I2_PAINT,JCWET)'	3	x	x

No.	Variable	Dim.	Zone	Location	Output/plot variable in COCOSYS-AIM output file	Priority	Step 1	Step 2
7	CsI concentration on dry condenser	mol/m ²	JCDRY	dry condenser	AFP 'AEICOZ(CSI_PAINT,JDRY)'	3	x	x
8	I ₂ concentration on dry condenser	mol/m ²	JCDRY	dry condenser	AFP 'AEICOZ(I2_PAINT,JCDRY)'	3		x
9	I ₂ concentration on steel walls	mol/m ²	JC45	mid of vessel	AFP 'AEICOZ(FEI2,JC45)'	3		x
10	FeI ₂ concentration on steel walls	mol/m ²	JC45	mid of vessel	AFP 'AEICOZ(I2_STEEL,JC45)'	3		x
11	Fixed-I concentration on steel walls	mol/m ³	JC45	mid of vessel	AFP 'AEICOZ(I2_FIXED,JC45)'	3		x
Iodine in Sump								
12	I ₂ concentration in sump	mol/l	JC9	sump	AFP 'AEICOS(I2,JC9)'	2	x	x
13	I ⁻ concentration in sump	mol/l	JC9	sump	AFP 'AEICOS(I-,JC9)'	2	x	x
14	HOI concentration in sump	mol/l	JC9	sump	AFP 'AEICOS(HOI,JC9)'	2		x
15	Ag mass in sump	mol	JC9	sump	AFP 'AEIMMS(AG,JC9)'	2	x	x
16	AgO _x mass in sump	mol	JC9	sump	AFP 'AEIMMS(AGOX,JC9)'	2	x	x
17	AgI mass in sump	mol	JC9	sump	AFP 'AEIMMS(AGI,JC9)'	2	x	x
18	Total iodine mass in sump	g	JC9	sump	AFP 'SUMIS(JC9)'	3		x
Aerosol								
19	CsI aerosol concentration	kg/m ³	C5	mid of vessel	AFP 'AECON(CSI,C5)'	2	x	x
20	CSI deposited on vertical walls	kg/m ²	C5	mid of vessel	AFP 'DEARRY(CSI,VERT_WALLS,C5)'	3	x	x
21	Mass median diameter of total aerosol	m	C5	mid of vessel	AFP 'DMM(C5)'	3	x	x
Thermal hydraulics								
22	Gas temperature	°C	C5	mid of vessel	RALOC 'ZTEMP(GAS,C5)'	3	x	x
23	Relative humidity	%	C5	mid of vessel	RALOC 'ZSATUR(GAS,C5)'	3	x	x
24	Gas velocity	m/s	Junction C5C7A	mid of vessel	ATMOS_JUN 'VELO(C5C7A)'	3	x	x
25	Sump water temperature	°C	C9	sump	RALOC 'ZTEMP(FLUID,C9)'	3		x
26	Total pressure	bar	C5	mid of vessel	RALOC 'ZTOPRE(GAS,C5)'	3		x
27	Condensation rate on wet condenser	kg/s	Heat slab WALL10	wet condenser, lower part	RALOC 'HGCWAT(LEFT,WALL10)'	3		x
Derived variable								
28	Maximum releasable iodine	g	all	---	calculated	1		x

Die abgeleitete Ergebnisvariable Nr. 28 ist die maximal freisetzbare Iodmenge I_{\max} in Gramm. Sie berechnet sich aus den Konzentrationen der Spezies I₂, CH₃I, IO_x und der

CsI-Aerosolkonzentration in der Gasphase (Gl. 4-7). In der AIM-Rechnung wird generell nur die Iodmasse bilanziert. Dies gilt auch für die Spezies CH₃I und IOx. Im CsI-Aerosol, das im Modul AERIKA berechnet wird, ist dagegen die Cs-Masse berücksichtigt.

$$I_{max} = V \left[I_2 \cdot M(I) \cdot 2 + CH_3I \cdot M(I) + IOx \cdot M(I) + CsI \frac{M(I)}{M(Cs)+M(I)} \right] \quad \text{Gl. 4-7}$$

M(I) und M(Cs) sind die molekularen Massen von Iod und Cäsium. V ist das Container-Volumen.

4.7 Ergebnis des ersten Schritts der UaSA

Anhand der Angaben zu den unsicheren Parametern (Wahrscheinlichkeitsverteilungen und Abhängigkeiten) werden über Zufallsauswahl 208 alternative Vektoren von Parameterwerten gewonnen. Mit jedem dieser 208 Parametervektoren wird eine Rechnung mit COCOSYS-AIM durchgeführt. Die 208 Ergebnisdatensätze werden mit dem Programm SUSA für die in Tab. 4-6 aufgelisteten Ergebnisvariablen ausgewertet und die Ergebnisse graphisch dargestellt als

- alternative Verläufe aller 208 Rechnungen (Variationsrechnungen) und der Referenzrechnung

Die Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse (Kapitel 4.1.2) zur Ermittlung der Rangfolge der einzelnen Parameterunsicherheiten zur Unsicherheit der jeweiligen Ergebnisvariablen umfassen die graphische Darstellung als

- zeitabhängige Sensitivitätsindizes (Rang-Korrelationskoeffizienten)

Von den 208 Rechenläufen bricht keiner ab, was auf eine gewisse numerische Robustheit von COCOSYS-AIM schließen lässt.

4.7.1 Iodquelltermrelevante Variable (UaSA, Schritt 1)

Die direkt für den Iodquellterm relevanten Ergebnisvariablen sind die Konzentrationen von I₂, CH₃I, IOx und CsI in der Atmosphäre.

4.7.1.1 Molekulares Iod im Gas

In Abb. 4-6 sind die 208 alternativen Verläufe und der Referenzlauf (rot) der $I_2(g)$ -Konzentration eingezeichnet. Die Ergebnisse streuen stark, vor allem in Richtung kleiner Konzentrationen. Die Streubreite aller Läufe zeigt maximale Abweichungen vom Referenzwert von (Faktoren 0,01 / 4,0). Die Abweichungen beginnen mit der Iod-Einspeisung und erstrecken sich über den ganzen Versuch.

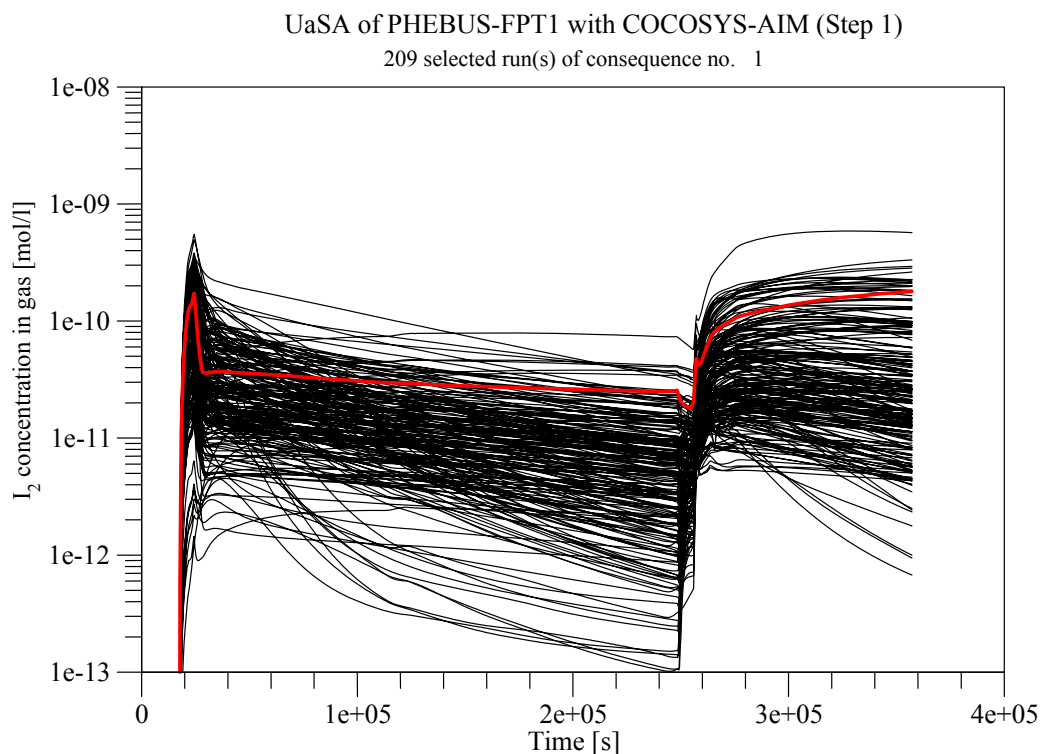


Abb. 4-6 I_2 -Konzentration im Gas, UaSA Schritt 1, Variationsläufe

Die Abb. 4-7 zeigt die gewonnenen Sensitivitätsindizes in Form des Rang-Korrelationskoeffizienten (RCC) für die $I_2(g)$ -Konzentration. In Tab. 4-7 sind die zugeordneten unsicheren Parameter und die Richtung des RCC angegeben. Ein positives Vorzeichen bedeutet, dass mit zu- oder abnehmenden Werten des unsicheren Parameters die Ergebnisgröße ebenfalls zu- oder abnimmt. Ein negatives Vorzeichen bedeutet, dass sich diese Ausrichtung umdreht (siehe auch Kapitel 4.1.2)

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 1)
 I_2 concentration in gas
 consequence no. 1 , sample size= 208

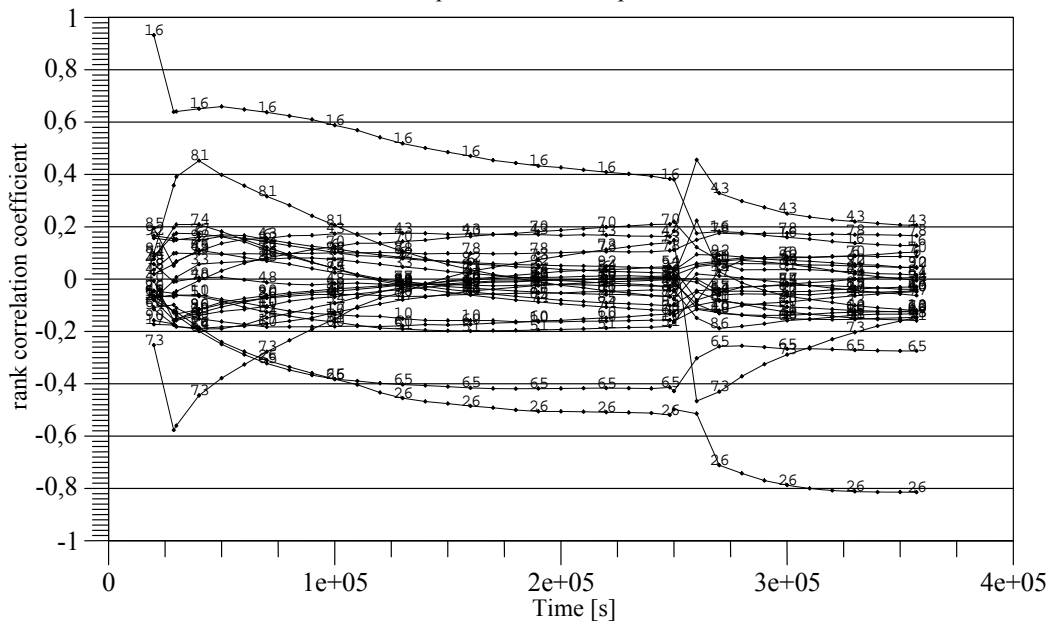


Abb. 4-7 I_2 im Gas, UaSA Schritt 1, Sensitivitäten

Bei der Auswertung werden im Allgemeinen zwei Zeitabschnitte unterschieden (a) die Versuchsphasen vor dem Abwaschen bei ca. $t = 2,5E5$ s. Sie umfasst die Bündelzerstörung, die SP-Freisetzung und den Aerosolabbau und den ersten Teil der Iodchemiephase mit relativ geringer Iodkonzentration im Sumpf und (b) die Iodchemiephase nach dem Abwaschen. In letzterer sind die Iodkonzentration aber auch die Silber- und die Silberoxidkonzentration im Sumpf deutlich höher. In diesem zweiten Abschnitt haben daher die Reaktionen im Sumpf einen stärkeren Einfluss auf den Quellterm als im ersten Abschnitt.

Für zwei Sensitivitäten ist der Absolutwert mit $RCC > 0,6$ auffallend hoch:

- Par.-Nr. 16, die I_2 -Einspeiserate und
- Par.-Nr. 26, die spezifische Oberfläche der Ag- bzw. AgOx-Partikel

Tab. 4-7 Sensitivitäten der Ergebnisvariable I₂(g)-Konzentration

Versuchs- teil	Parame- ter Nr. *	Unsicherer Parameter	RCC
Vor Abwa- schen des elliptischen Bodens (t = 0 bis 2,5E5 s)	16	I ₂ -Einspeiserate	+
	26	Spezifische Oberfläche der Silber- und Silberoxid- Partikeln im Sumpf, m ² /g	-
	65	Bildung von IOx(g) durch I ₂ /O ₃ -Reaktion	-
	73	I ₂ -Ablagerung auf trockene und nasse Farbe	-
	81	Radiolytische CH ₃ I Freisetzung aus physisorbier- tem Iod auf Farbe	+
Nach Ab- waschen (t > 2,5E5 s)	26	Spezifische Oberfläche der Silber- und Silberoxid- Partikel im Sumpf, m ² /g	-
	43	Radiolytische I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	+
	65	Bildung von IOx(g) durch I ₂ /O ₃ -Reaktion	-
	73	I ₂ Ablagerung auf trockene und nasse Farbe	-
*grau: RCC > 0,6			

Die in der Tabelle dargestellten sensitiven Parameter werden nachfolgend diskutiert.

I₂-Einspeiserate (Parameter 16)

Die I₂-Einspeiserate aus dem Circuit in das Containment hat von Beginn des Versuchs bis zum Abwaschen einen starken Einfluss auf die Unsicherheit von I₂(g). Dieses Ergebnis überrascht, da bislang angenommen wurde, dass bereits kurz nach der Einspeisung die radiolytischen Prozesse im Sumpf die I₂(g)-Konzentration bestimmen. Hier hat aber die Ungenauigkeit der Einspeiserate eine viel längere Wirkung auf die Ungenauigkeit des Iodquellterms (hier sind es 3 Tage) als erwartet.

Die zu Grunde liegende Wahrscheinlichkeitsverteilung für die I₂-Einspeiserate enthält wegen der großen experimentellen Unsicherheit auch den Fall, dass überhaupt kein I₂ aus den Circuit in das Containment eingespeist wird (Kapitel 4.3.2.). Diese Annahme muss im Hinblick auf den langanhaltenden Einfluss der I₂-Einspeiserate auf die quelltermrelevanten Ergebnisvariablen neu überdacht werden. Auch überdeckt der dominante Einfluss der unsicheren I₂-Einspeiserate andere wichtige Einflüsse. Aus diesen Gründen werden für den Schritt 2 der UaSA die Unsicherheitsangaben der I₂-Einspeiserate überarbeitet.

Spezifische Oberfläche der Ag- und AgOx-Partikel im Sumpf (Parameter 26)

Für die spezifische Silberoberfläche (S_{Ag}) ist $RCC < 0$. Das bedeutet, dass mit kleiner werdendem S_{Ag} die $I_2(g)$ -Konzentration im Containment ansteigt, da weniger Iod mit $Ag(w)$ im Sumpf reagiert und daher mehr I_2 in den Gasraum entweichen kann.

S_{Ag} ist in der Zeit nach dem Abwaschen ($t > 2,5E5$ s) dominant und bestimmt die Unsicherheit von $I_2(g)$ wesentlich. Durch das Abwaschen steigen die Csl-Menge und die Silbermenge im Sumpf stark an.

Die starke Abhängigkeit der $I_2(g)$ -Konzentration von S_{Ag} wird auch durch Parameterrechnungen mit COCOSYS-AIM zu PHEBUS FPT1 bestätigt. Die Größe der Silberpartikel wurde in PHEBUS nicht gemessen und die Abschätzungen schwanken stark (/KLE 10/ und /BOS 12/). Entsprechend weit wurde auch der Unsicherheitsbereich von S_{Ag} gewählt. In S_{Ag} ist implizit berücksichtigt, dass die Ag- und AgOx-Partikel schnell auf den Boden des Sumpfes sinken und S_{Ag} aus Geometrie Gründen und durch Agglomeration stark reduziert wird. In der ursprünglichen Wahrscheinlichkeitsverteilung sind diese Effekte nicht berücksichtigt. Anhand der neuen Ergebnisse scheint diese Annahme nicht mehr weiter gerechtfertigt. Die Quantifizierung der Unsicherheit von S_{Ag} wird daher im Schritt 2 der UaSA überarbeitet.

4.7.1.2 Organoiod im Gas

Für Organoiod (CH_3I) ist die Streuung der alternativen Konzentrationsverläufe (Abb. 4-8) qualitativ ähnlich wie für $I_2(g)$ und beträgt maximal (Faktoren 0,01 / 4,0). Das ist plausibel, da Organoiod vorwiegend aus auf Farbe abgelagertem I_2 gebildet wird. Das Ergebnis des Referenzlaufs wird öfter und stärker unterschätzt als überschätzt. Abb. 4-9 zeigt die Sensitivitätsindizes für die berechnete CH_3I -Konzentration und die entsprechenden unsicheren Eingabeparameter.

Die I₂-Einspeiserate (Par. 16) hat vor dem Abwaschen, ähnlich wie für I₂(g), auch auf die Unsicherheit von CH₃I(g) einen starken Einfluss. Gleiches gilt für S_{Ag} (Par. 26) nach dem Abwaschen. Dieser Zusammenhang ist plausibel, da CH₃I vorwiegend radiolytisch aus auf Farbe abgelagertem I₂ entsteht. Darüber hinaus tragen auch die unsicheren Parameter 73, 81 und 72 zur Unsicherheit der berechneten CH₃I-Konzentration stark bei.

Tab. 4-8 Sensitivitäten der Ergebnisvariable CH₃I-(g)-Konzentration

Versuchsphase	Parameter Nr. *	Unsicherer Parameter	RCC
Vor Abwaschen des elliptischen Bodens (t = 0 bis 2,5E5 s)	16	I ₂ -Einspeiserate	+
	73	I ₂ -Ablagerung auf trockener und nasser Farbe	+
	81	Radiolytische CH ₃ I-Freisetzung aus physisorbiertem Iod auf Farbe	+
Nach Abwaschen (t > 2,5E5 s)	26	Spezifische Oberfläche der Silber- und Silberoxid-Partikel im Sumpf, m ² /g	-
	72	Radiolytische CH ₃ I-Zersetzung	-
*grau: RCC > 0,6			

4.7.1.3 IOx-Aerosol im Gas

Für das feindisperse Aerosol IOx (AIM-intern auch als Iodat, IO₃⁻(g), bezeichnet) ist die Streuung der alternativen Konzentrationsverläufe (Abb. 4-10) ähnlich wie für I₂(g) und CH₃I(g) und beträgt maximal (Faktoren 0,01 / 4,0). Dies ist plausibel, da IOx radiolytisch aus I₂(g) gebildet wird. Abb. 4-11 zeigt die Sensitivitätsindizes für die berechnete CH₃I-Konzentration.

Tab. 4-9 zeigt die für die Unsicherheit von IOx relevanten unsicheren Eingabeparameter. Die I₂-Einspeiserate (Par. 16) hat vor dem Abwaschen wie auf I₂(g) auch auf IOx einen starken Einfluss. Gleiches gilt für S_{Ag} (Par. 26) nach dem Abwaschen. IOx entsteht durch Oxidation von I₂ mit Ozon. In diese Reaktion gehen die Parameter 24 und 70 unmittelbar ein.

Tab. 4-9 Sensitivitäten der Ergebnisvariable IOx(g)-Konzentration

Versuchsphase	Parameter Nr. *	Unsicherer Parameter	RCC
Bis Abwaschen des elliptischen Bodens (t = 0 bis 2,5E5 s)	16	I ₂ -Einspeiserate	+
	26	Spezifische Oberfläche von Silber- und Silberoxid-Partikeln im Sumpf, m ² /g	-
	73	I ₂ -Ablagerung auf trockene und nasse Farbe	-
	81	Radiolytische CH ₃ I Freisetzung aus physisorbiertem Iod auf Farbe	+
Nach Abwaschen (t > 2,5E5 s)	24	Dosisleistung in der Gasphase, kGy/h	+
	26	Spezifische Oberfläche der Silber- und Silberoxid-Partikel im Sumpf, m ² /g	-
	28	Massengemittelter Durchmesser der IO ₃ ⁻ -Primärpartikel, m	+
	43	Radiolytische I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	+
	70	O ₃ -Zersetzung an Stahloberflächen	-
	73	I ₂ -Ablagerung auf trockene und nasse Farbe	-
* grau: RCC RCC > 0,6			

4.7.1.4 Csl-Aerosol im Gas

Die Streuung der alternativen Verläufe der berechneten Csl-Aerosolkonzentration ist erheblich geringer als jene der bisher diskutierten Iodspezies in der Gasphase (I₂(g), CH₃I(g) und IOx(g)). Abb. 4-12 zeigt die Ergebnisse der Variationsläufe. Bis zur Konzentration von 1,0E-7 kg/m³ beträgt die maximale Abweichung nur die Faktoren (0,5 / 2,0). Danach wird sie größer, doch trägt Csl dann nur noch unwesentlich zum Quellterm bei. In der Folge ist die IOx-Aerosolkonzentration deutlich höher.

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 1)

209 selected run(s) of consequence no. 19

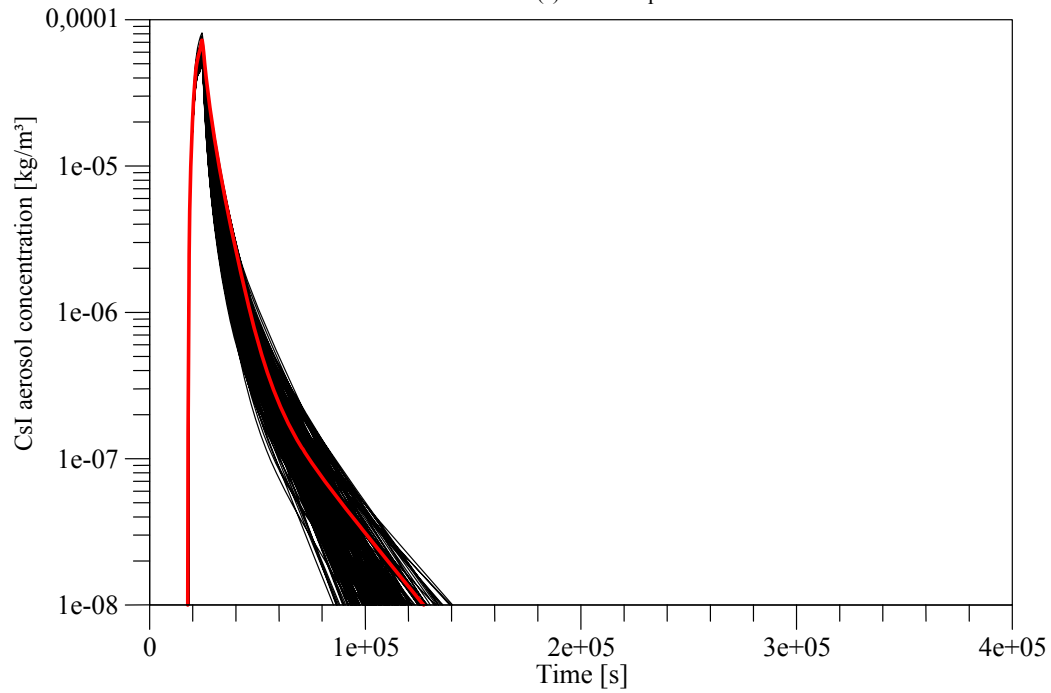


Abb. 4-12 CsI-Aerosol, UaSA Schritt 1, Variationsläufe

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 1)

CsI aerosol concentration

consequence no. 19, sample size= 208

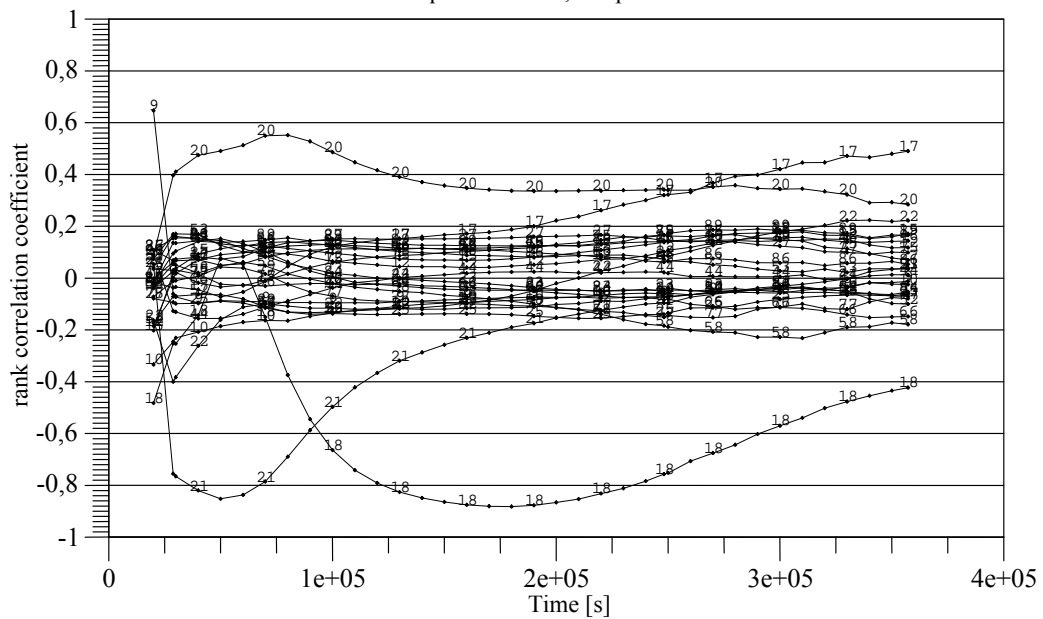


Abb. 4-13 CsI-Aerosol, UaSA Schritt 1, Sensitivitäten

In Tab. 4-10 sind die unsicheren Eingabe- und Modellparameter mit dem größten Einfluss auf die Unsicherheit der Csl-Konzentration zusammengefasst. Die beiden Formfaktoren, die Grenzschichtdicke und die effektive Materialdichte sind Größen, die nicht direkt gemessen werden können und daher meist in Parameterrechnungen angepasst werden. Das Ergebnis überrascht daher nicht.

Die beiden Formfaktoren wurden bereits in einer früheren UaSA zu einer FIPLOC-Rechnung (Vorläufercode von COCOSYS) zum trockenen Aerosolverhalten im Versuch VANAM M2 als einflussreiche unsichere Parameter identifiziert /LAN 94/.

Tab. 4-10 Sensitivitäten der Ergebnisvariable Csl-Aerosolkonzentration

Versuchsphase	Parameter Nr. *	Unsicherer Parameter	RCC
Ganzer Versuch	17	Diffusionsgrenzschichtdicke	+
	18	Effektive Aerosolmaterialdichte, kg/m ³	-
	20	Dynamischer Formfaktor	+
	21	Agglomerationsformfaktor	-
* grau: RCC > 0,6			

4.7.2 Weitere Variable (UaSA, Schritt 1)

Es wurden noch die folgenden Ergebnisvariablen analysiert:

- Molekulares Iod im Sumpf, I₂(w)
- Iodid im Sumpf, I⁻(w)
- Silberiodid im Sumpf, AgI(w)

Molekulares Iod im Sumpf (Abb. 4-14, Abb. 4-15)

Die Streubreite der berechneten I₂(w)-Konzentration ist sehr groß (Abb. 4-14), vor allem unterhalb des Referenzlaufs. Dort erstreckt sich das Unsicherheitsband über bis zu 4 Größenordnungen. Über dem Referenzlauf beträgt die Unsicherheit maximal einen Faktor 1,5. Der wesentliche Einfluss kommt von Parameter 26, der spezifischen Oberfläche der Ag- und AgOx-Partikel. Einen geringeren Einfluss hat Parameter 33, der wasserseitige I₂-Massentransferkoeffizient.

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 1)

209 selected run(s) of consequence no. 12

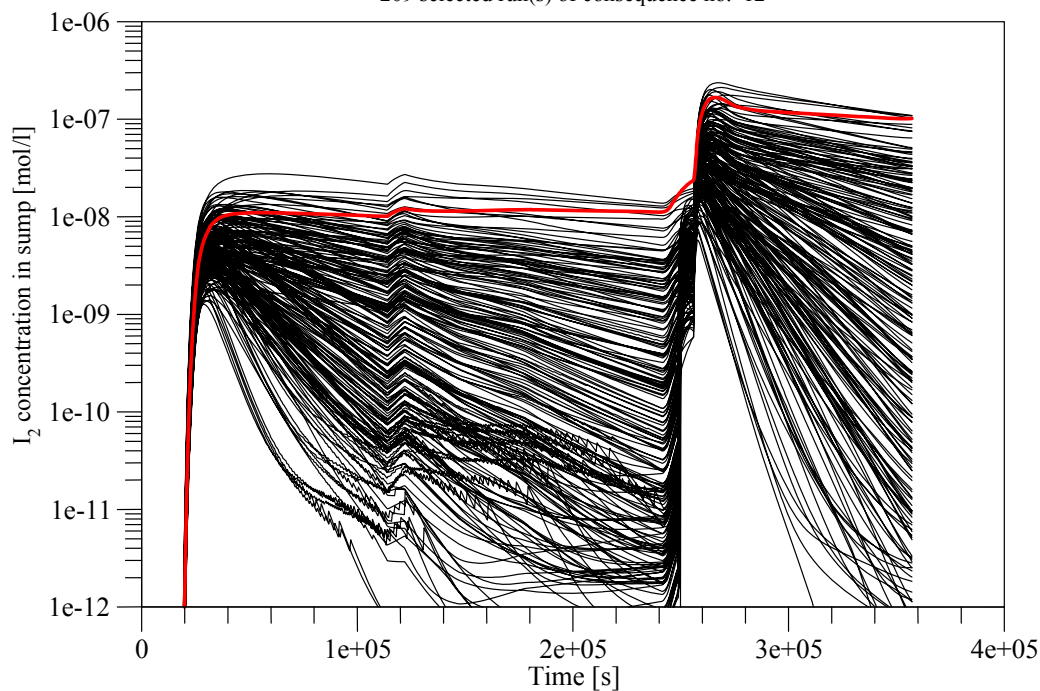


Abb. 4-14 I₂ im Sumpf, UaSA Schritt 1, Variationsläufe

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 1)

I₂ concentration in sump

consequence no. 12 , sample size= 208

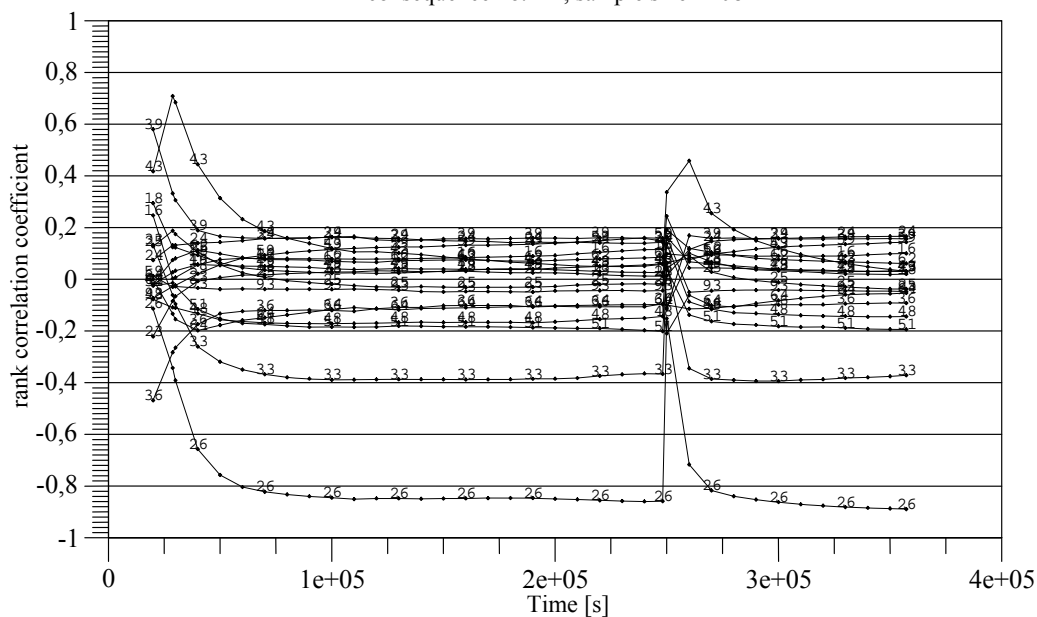


Abb. 4-15 I₂ im Sumpf, UaSA Schritt 1, Sensitivitäten

Iodid im Sumpf (Abb. 4-16, Abb. 4-17)

Die Streuung der alternativen Rechenergebnisse für $I^-(w)$ ist, ähnlich wie für $I_2(w)$, extrem groß und beträgt maximal 4 Größenordnungen. Nur unmittelbar nach der I_2 -Einspeisung und nach dem Abwaschen ist sie klein und nimmt dann kontinuierlich zu. Der Grund ist der Gleiche wie bereits für $I_2(w)$ beschrieben. Alle Verläufe liegen unterhalb des Referenzergebnisses, d. h. mit allen Parametervariationen werden nur kleinere $I^-(w)$ -Konzentrationen berechnet. Den größten Einfluss auf die Unsicherheit von $I^-(w)$ hat wieder Parameter 26, die spezifische Oberfläche der Silberpartikel, gefolgt von Parameter 33, dem wasserseitigen Massentransferkoeffizienten.

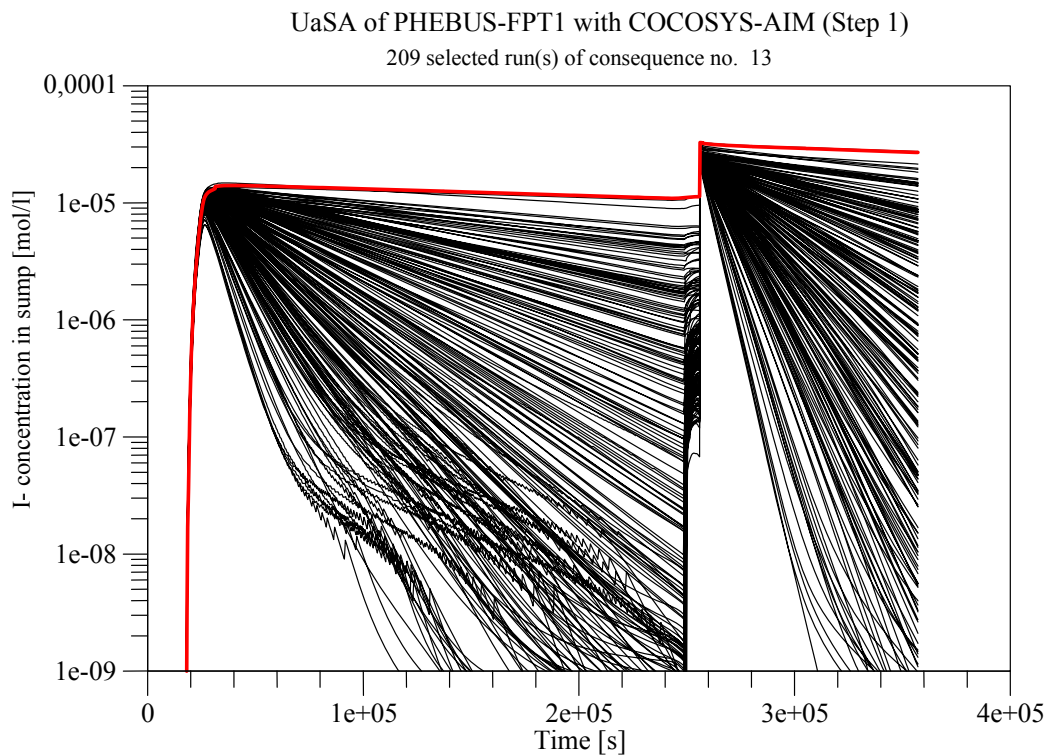


Abb. 4-16 I^- im Sumpf, UaSA Schritt 1, Variationsläufe

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 1)

I⁻ concentration in sump

consequence no. 13 , sample size= 208

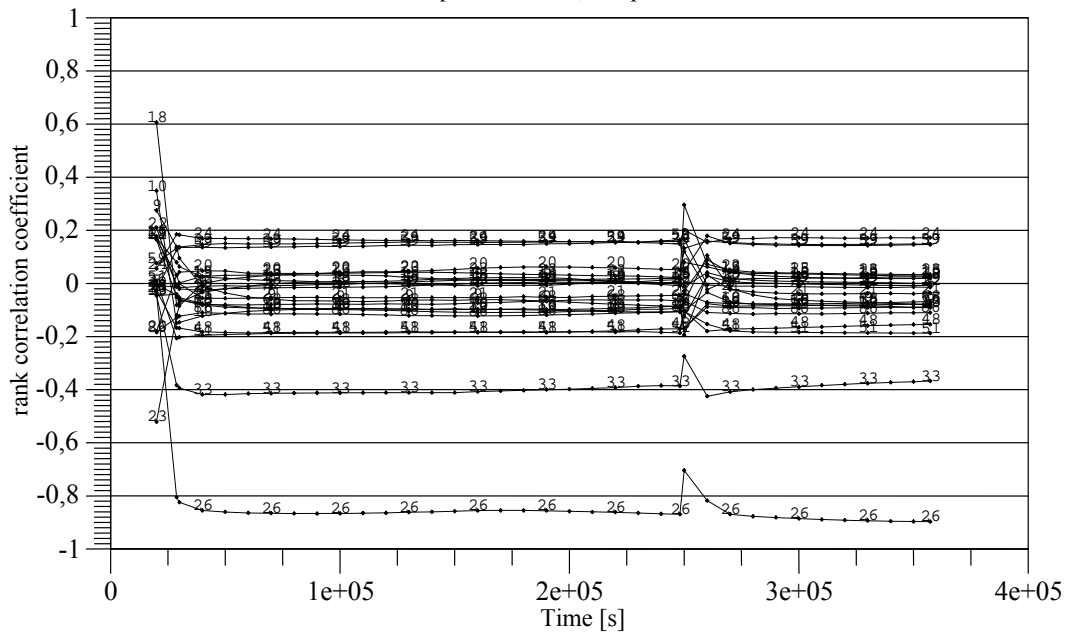


Abb. 4-17 I⁻ im Sumpf, UaSA Schritt 1, Sensitivitäten

Silberiodid im Sumpf (Abb. 4-18, Abb. 4-19)

Die Streuung der alternativen Rechenergebnisse für AgI(w) ist außergewöhnlich. Alle Resultate der Variationsrechnung liegen mindestens einen Faktor 2 über dem des Referenzlaufs. Nach oben hin ist die AgI-Menge mit 2,2E-3 mol bzw. 6E-3 mol nach dem Abwaschen durch die gesamte zur Verfügung stehende Iodmenge (I⁻ + I₂) im Sumpf begrenzt. In einige Rechnungen ist diese schon nach 4E4 s erreicht. In diesem Fall ist alles zur Verfügung stehendes Iod in AgI umgesetzt. Den mit Abstand größten Einfluss auf die Unsicherheit von AgI(w) hat wieder Parameter 26, die spezifische Oberfläche der Silberpartikel. Es folgen Parameter 33, dem wasserseitigen Massentransferkoeffizienten, und die Csl-Einspeiserate (Parameter 9).

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 1)

209 selected run(s) of consequence no. 17

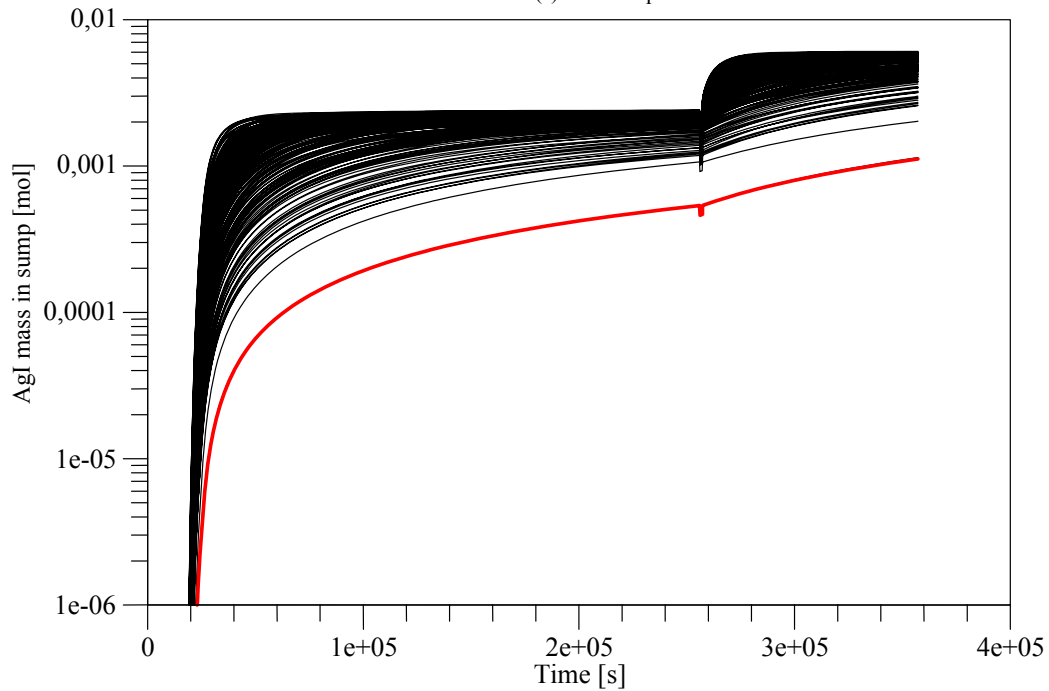


Abb. 4-18 Silberiodid im Sumpf, UaSA Schritt 1, Variationsläufe

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 1)

AgI mass in sump

consequence no. 17 , sample size= 208

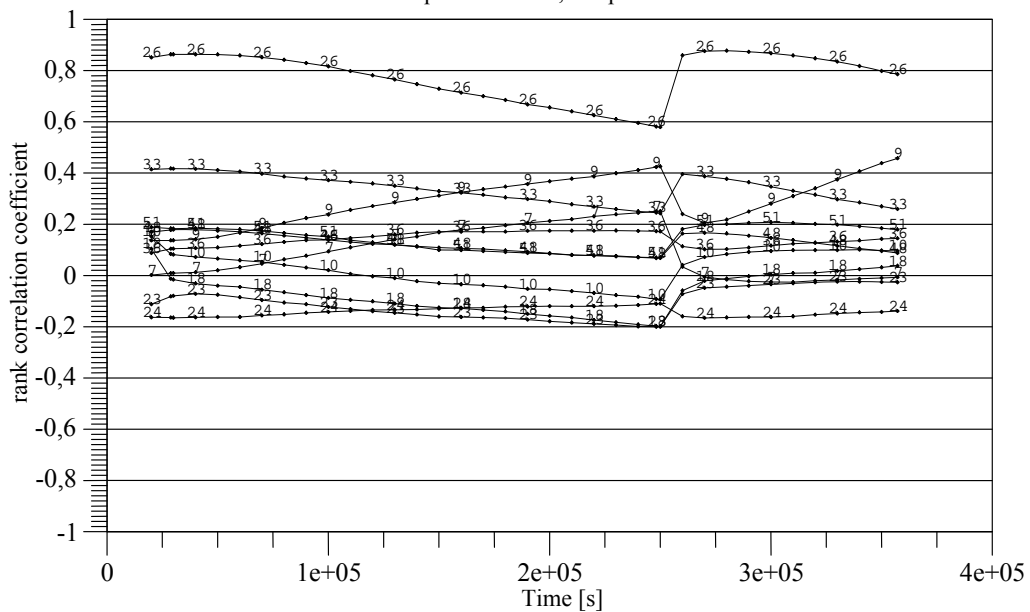


Abb. 4-19 Silberiodid im Sumpf, UaSA Schritt 1, Sensitivitäten

Tab. 4-11 Sensitivitäten der Ergebnisvariablen $I_2(w)$, $I(w)$ und $AgI(w)$

Parameter Nr.	Unsicherer Parameter	Ergebnisvariable *	RCC
9	Csl-Einspeiserate	AgI(w)	+
26	Spezifische Oberfläche von Silber- und Silberoxid-Partikeln im Sumpf, m^2/g	$I_2(w)$	-
		$I(w)$	-
		AgI(w)	+
33	Wasserseitiger I_2 -Massentransferkoeffizient	$I_2(w)$	-
		$I(w)$	-
		AgI(w)	+

* grau: $|RCC| > 0,6$

4.7.3 Zusammenfassung und Konsequenz aus Schritt 1 der UaSA

In Tab. 4-12 sind alle identifizierten unsicheren Parameter, die eine Wirkung auf die für den Quellterm relevanten Iodspezies haben, zusammengestellt. Die Ergebnisvariable Csl-Aerosol ist nicht aufgenommen, da seine Unsicherheit vergleichsweise gering ist. Ein unsicherer Parameter hat oft auf mehrere Ergebnisvariable Einfluss. Sehr ausgeprägt ist der Einfluss von **Parameter 26**, der spezifischen Oberfläche der Silberpartikel im Sumpf (S_{Ag}). Von seiner Unsicherheit wird nicht nur die Unsicherheit von $I_2(w)$, $I(w)$ und $AgI(w)$ im Sumpf, sondern auch die von $I_2(g)$, $CH_3I(g)$ und $IOx(g)$ in der Gasphase stark beeinflusst. In der Referenzrechnung ist am Ende des Versuches ca. 1/5 des Iods als AgI gebunden. In vielen Variationsrechnungen ist dagegen das gesamte Iod bereits vorzeitig umgesetzt. Der Grund für diese beschleunigte AgI -Reaktion sind erheblich größere S_{Ag} -Werte als in der Referenzrechnung. Im zweiten Schritt der UaSA werden daher die Unsicherheitsangabe zum Parameter 26 (S_{Ag}) überarbeitet.

Auch **Parameter 16**, die I_2 -Einspeiserate, zeigt einen starken Einfluss auf $I_2(g)$, $CH_3I(g)$ und $IOx(g)$. Auffallend ist auch, dass die Unsicherheit der I_2 -Einspeiserate einen langanhaltenden Einfluß auf die quelltermrelevanten Iod-Ergebnisvariablen hat. Dieser Einfluss reicht stets bis zur Washdown-Phase (Abb. 4-7 und Abb. 4-11) und im Fall von $CH_3I(g)$ sogar bis an das Ende des Versuches (Abb. 4-9). Bislang wurde davon

ausgegangen, dass das Iodverhalten unter PHEBUS-Bedingungen bestenfalls in den ersten Stunden durch die I₂-Freisetzung aus dem Primärkreis bestimmt werden kann, dann aber von der I₂-Freisetzung aus dem Sumpf dominiert wird.

Überträgt man dieses neue Ergebnis auf Reaktorfälle, hat die I₂-Freisetzung aus dem Primärkreislauf eine viel längere Wirkung auf den Iodquellterm aus der Anlage als bisher vermutet. Der Genauigkeit der I₂-Freisetzungsrates (in der Regel < 5% der gesamten Iodfreisetzung) kommt daher nunmehr eine deutlich stärkere Bedeutung zu.

Wie im Kapitel 4.7.1.1 beschrieben, ist die Annahme einer geringen oder gar keiner I₂-Freisetzung aus dem PHEBUS-Circuit im Hinblick auf das UaSA-Ergebnis (lang anhaltender Einfluss der I₂-Einspeisung) ohne eine starke alternative I₂-Quelle im Containment nicht länger zu rechtfertigen. Eine wirkungsvolle Quelle ist das am nassen Condenser radiolytisch gebildete I₂ (Abschnitt 4.3.2). Diese I₂-Produktion ist aber mit den Modellen in COCOSYS-AIM derzeit nicht hinreichend genau zu beschreiben und stellt daher keine Modellalternative dar. Aus diesen Gründen wird im Schritt 2 der UaSA die Unsicherheit der I₂-Einspeiserate überarbeitet.

Weiter haben die Parameter 73 (I₂-Ablagerung auf trockener und nasser Farbe) und 81 (radiolytische I₂-Bildung aus physisorbiertem Iod auf Farbe) einen deutlichen Einfluss auf die Unsicherheit der Iodspezies I₂(g), CH₃I(g) und IOx. Dieses Ergebnis ist nachvollziehbar und es besteht kein Grund, die Wahrscheinlichkeitsangaben für diese Parameter im Schritt 2 zu ändern.

Tab. 4-12 Unsichere Parameter mit Einfluss auf die quelltermrelevanten Spezies I₂(g), RI(g), IOx (UaSA Schritt 1)

Par. Nr.	Unsicherer Parameter	Beeinflusste Ergebnisvariable **	Modellteil	Anmerkungen
16	I ₂ -Einspeisung	I ₂ (g), CH ₃ I(g), IOx	AIM, Eingabe	
24	Dosisleistung im Gas	IOx	AIM, Eingabe	
28	Massengemittelter Durchmesser der IOx-Primärpartikel	IOx	AIM, Eingabe	
26	Spezifische Oberfläche der	I ₂ (g), CH ₃ I(g), IOx, I ₂ (w), I-(w), Ag(w),	AIM, Eingabe	Iod/Silber-Reaktion im Sumpf

Par. Nr.	Unsicherer Parameter	Beeinflusste Ergebnisvariable **	Modellteil	Anmerkungen
	Ag- und AgOx-Partikel im Sumpf	AgOx(w), AgI(w)		
43	Radiolytische I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	I ₂ (g), I ₂ (w)	AIM, Reaktionskonstante	Radiolyse im Sumpf
65	IOx(g)-Bildung aus I ₂ and O ₃	I ₂ (g)	AIM, Reaktionskonstante	Iodine/Ozon
70	O ₃ -Zersetzung an Stahloberflächen	IOx	AIM, Reaktionskonstante	Iodine/Ozon
72	Radiolytische CH ₃ I- Zersetzung	CH ₃ I(g)	AIM, Reaktionskonstante	Radiolyse im Gas
73	I ₂ Ablagerung auf trockener und nasser Farbe	I ₂ (g), CH ₃ I(g), IOx, I ₂ (w)	AIM, Reaktionskonstante	Trockene und nasse I ₂ /Farbe-Reaktion
81	Radiolytische CH ₃ I-Bildung aus physisorbiertem Iod auf Farbe	I ₂ (g), CH ₃ I(g)	AIM, Reaktionskonstante	Radiolyse auf Farbe
* grau: RCC > 0,6; ** fett direkt quelltermrelevante Variable				

4.7.4 Änderungen an den Unsicherheitsangaben für Schritt 2 der UaSA

Aus beschriebenen Gründen werden für den Schritt 2 der UaSA die Unsicherheitsangaben der beiden unsicheren Parameter geändert:

- I₂-Einspeisung, Parameter 16
- Spezifische Oberfläche der Silberpartikel, Parameter 26

Weiter wurden die Angaben zur Radiolyse im Sumpf modifiziert. Vier Reaktionen sind davon betroffen:

- Radiolytische I₂-Bildung aus I⁻ im Sumpf, Parameter 43
- Rückreaktion zur radiolytischen I₂-Bildung aus I⁻ im Sumpf, Parameter 44
- Radiolytische I₂-Bildung aus IO₃⁻ im Sumpf, Parameter 45

- Rückreaktion zur radiolytischen I_2 -Bildung aus IO_3^- im Sumpf, Parameter 46

Die geänderten Wahrscheinlichkeitsparameter sind in Tab. 4-4 bzw. in Tab. 4-5 eingetragen. Die Änderungen betreffen ausschließlich die angeführten Werte. Alle anderen Angaben werden aus Schritt 1 übernommen. Die Begründungen für diese Änderungen sind im Folgenden zusammengefasst.

I_2 -Einspeisung (Parameter 16)

In PHEBUS FPT1 konnte kein I_2 in der Primärkreisleitung vor dem Eintritt ins Containment (Point G) gemessen werden. Für Containment-Rechnungen gibt es daher prinzipiell zwei Modellalternativen (a) Verwendung der Einspeiserate, die anhand des Containment-Inventars von IRSN abgeschätzt wurde. Das ist der herkömmliche Weg, der in fast allen Interpretationen von FPT1 und auch in der COCOSYS-AIM-Referenzrechnung verwendet wird. (b) Keine I_2 -Einspeisung, dafür Berechnung der Freisetzung von radiolytisch gebildetem I_2 aus dem Wasserfilm am Condenser. Die Alternative (b) ist derzeit mit COCOSYS-AIM nicht möglich und sollte daher nicht, wie im Schritt 1 indirekt geschehen, in der Wahrscheinlichkeitsverteilung des Parameters 16 berücksichtigt werden.

Der Unsicherheitsbereich der I_2 -Einspeiserate wird daher im 2. Schritt der UaSA verringert. Es wird bezüglich der Herkunft des I_2 (circuit, wet condenser) nicht mehr unterschieden.

Spezifische Oberfläche der Silberpartikel (Parameter 26)

Im Schritt 1 der UaSA schloss die Unsicherheitsverteilung für den Parameter 26 den Default-Wert für das französische Iodmodell IODE ein. Dieser Wert ($0,3 \text{ m}^2/\text{g}$) ist wesentlich größer als der AIM-Wert ($5,7\text{E}-3 \text{ m}^2/\text{g}$). Es gibt für S_{Ag} generell keine Messungen. S_{Ag} kann daher nur vage abgeschätzt werden. Es hat aber einen starken Einfluss auf $I_2(w)$ und damit auf $I_2(g)$.

Die Default-Werte für AIM und IODE sind codespezifisch, da sie auf das jeweilige Modell abgestimmt sind. Es macht daher keinen Sinn, den S_{Ag} -Wert aus IODE auch in der Unsicherheit des Parameters 26 zu berücksichtigen. D. h. die Unsicherheitsverteilung von S_{Ag} wird im 2. Schritt entsprechend verringert.

Radiolytische I₂-Bildung aus I⁻ im Sumpf (Parameter 43 - 46)

Die AIM-Reaktion Nr. 20 (radiolytische I₂-Bildung aus I⁻) beschreibt die Hauptquelle von I₂ im Sumpf. Sie hängt unter anderem vom pH-Wert bzw. der Wasserstoffionenkonzentration H⁺ ab (H⁺)^{N20}. Die Unsicherheit des Exponenten N20 ist bislang nicht im Parameter 43 berücksichtigt.

N20 (und auch N29) wurde vor einigen Jahren von 0.5 auf 0.2 reduziert, da I₂(g) im Internationalen Standardproblem ISP-41 Follow up/Phase2 mit AIM systematisch überschätzt wurde. Die Wirkung dieser Änderung auf die I₂-Bildung ist vom pH-Wert abhängig. Die berechnete radiolytische Bildungsrate wird durch die oben genannte Änderung reduziert: bei pH = 6 um den Faktor 0,5, bei pH = 5 um den Faktor 0,25 und bei pH = 4 um den Faktor 0,125. Diese Modifikation erfolgte in der Version AIM F-1. Unklar ist, ob sie in AIM-3 wegen anderer Änderungen noch in vollem Umfang gerechtfertigt ist. Daher wird die Unsicherheit des Parameters 43 von loguniform (Faktoren 0,5 / 2,0) auf loguniform (Faktoren 0,25 / 4,0) vergrößert (Details s. Tab. 4-5).

Die Wahrscheinlichkeitsverteilungen der **Parameter 44, 45 und 46** werden aus dem gleichen Grund wie für Parameter 43 angepasst.

4.8 Ergebnis des zweiten Schritts der UaSA

Im Schritt 2 der UaSA wurden die Angaben von 6 der 93 unsicheren Parameter aus Schritt 1 wie beschrieben revidiert. Über Zufallsauswahl wurden wieder 208 alternative Vektoren von Parameterwerten gewonnen und damit je eine Rechnung mit COCOSYS-AIM durchgeführt. Drei der Läufe brachen wegen numerischer Probleme vorzeitig ab. Sie konnten nachgeholt werden, nachdem lediglich der maximale Systemzeitschritt (HMM) von 50 s auf 10 s reduziert wurde. Modelländerungen waren nicht erforderlich. Auch hier erwies sich COCOSYS-AIM-3 als numerisch robust.

Die 208 Ergebnisdatensätze enthalten die Resultate der in Tab. 4-6 (Schritt 2) aufgelisteten Ergebnisvariablen. Die Ergebnisse der Analyse sind wieder graphisch dargestellt als alternative Rechenergebnisse, zweiseitige statistische (95%/95%)-Toleranzgrenzen und zeitabgängige Sensitivitätsindizes.

4.8.1 Relevante Variablen für den Iodquellterm

$I_2(g)$, $CH_3I(g)$, $IOx(g)$ und CsI sind die für den Iodquellterm relevanten Ergebnisvariablen. Sie werden im Folgenden ausführlich diskutiert. Zusätzlich wurde die maximal freisetzbare Iodmenge (Variable 28), die in Kapitel 4.6 näher beschrieben ist, ausgewertet.

4.8.1.1 Molekulares Iod im Gas

In Abb. 4-20 sind die 208 alternativen Verläufe der $I_2(g)$ -Konzentration mit dem Referenzlauf (rot) dargestellt. Die Streuung (Faktoren 0,17 / 5,0) ist jetzt, vor allem zu kleinen Werten hin, deutlich geringer als im Schritt 1 der UaSA, in dem sie (Faktoren 0,01 / 4,0) betrug. Siehe dazu auch Abb. 4-6. Wie die Toleranzgrenzen (Abb. 4-21) zeigen, streuen die Verläufe weitgehend symmetrisch um die Referenzkurve. Diese Veränderung ist im Wesentlichen auf die modifizierte Wahrscheinlichkeitsverteilung der Parameter 16 (I_2 -Einspeisung) und 26 (Spez. Oberfläche der Silberpartikel) zurückzuführen. Die Abweichungen zum Referenzlauf treten unmittelbar nach der Einspeisung auf und bleiben dann bis zum Ende des Versuchs nahezu konstant, d. h. im Plot laufen die I_2 -Konzentrationskurven parallel. Es stellt sich zwischen dem gasförmigen I_2 , dem abgelagerten I_2 und dem im Sumpf gelösten I_2 ein Konzentrations-Gleichgewicht ein.

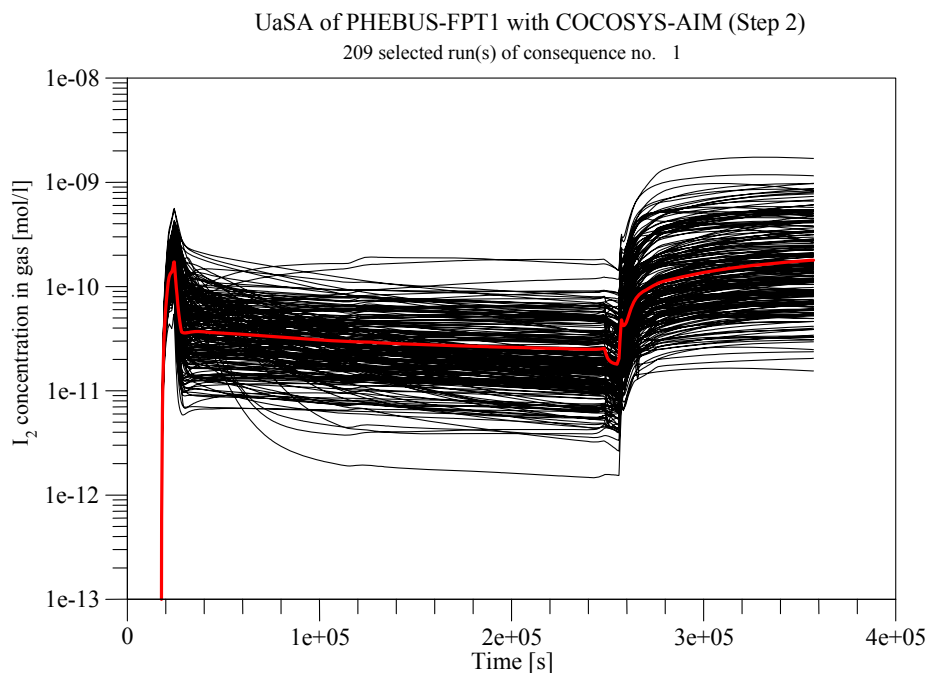


Abb. 4-20 I_2 -Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

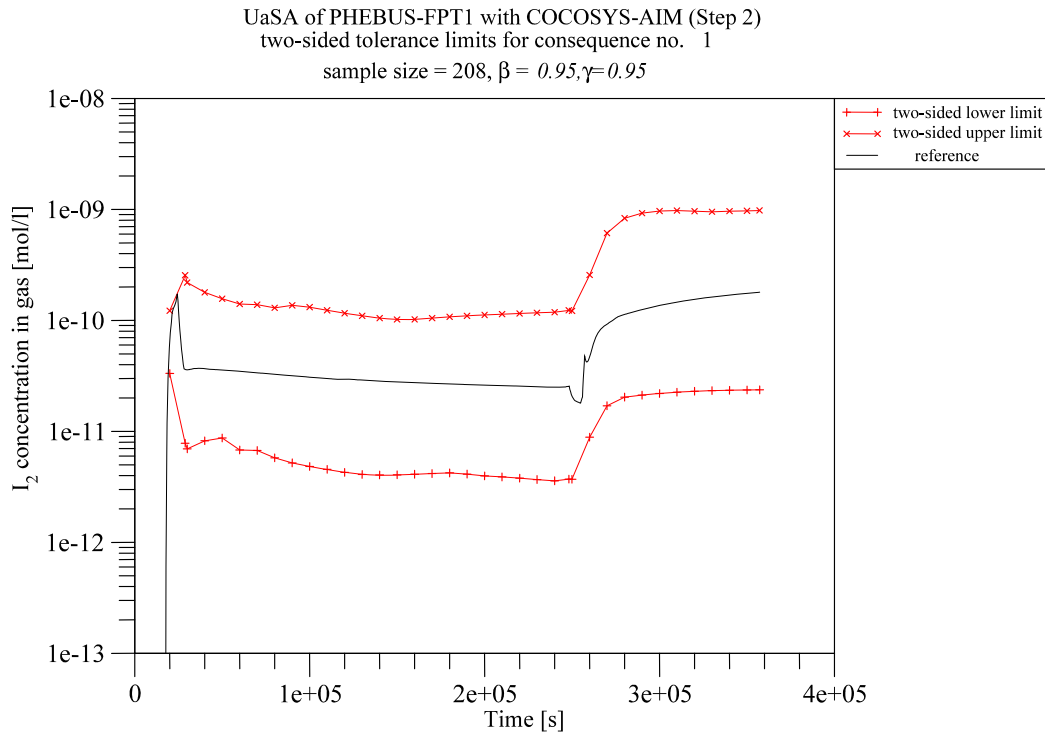


Abb. 4-21 I₂-Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Toleranzgrenzen

Die Abb. 4-22 zeigt die berechneten Sensitivitätsindizes in Form des Rang-Korrelationskoeffizienten (RCC) für die I₂(g)-Konzentration.

In Tab. 4-13 sind die den Sensitivitätsindizes zugeordneten unsicheren Parameter und die Richtung des RCC angegeben. Die größten Absolutbeträge des RCC haben Parameter 43 (radiolytische Bildung von I₂ aus I⁻ im Sumpf) und 73 (I₂-Ablagerung auf trockener und nasser Farbe). Beide Resultate sind plausibel. Für Parameter 43 wurde die Unsicherheit im Schritt 2 der UaSA vergrößert (Kapitel 4.7.4). Der Einfluss der Unsicherheit von Parameter 43 steigt im Verlauf des Tests allmählich an, da die Konzentration des eingespeisten (und nicht radiolytisch gebildeten) I₂ durch Ablagerung und andere Reaktionen zurückgeht. Parameter 73 ist während der Einspeisung und bis etwa $t = 1,5E5$ s sowie nach dem Abwaschen relevant, also zu jenen Zeiten, in denen in Sumpf und in der Gasphase die I₂-Konzentration erhöht ist.

Der Parameter 33 (wasserseitiger I₂-Massentransferkoeffizient) beschreibt die Geschwindigkeit, mit der I₂ aus dem Wasser in die Gasphase übergeht und umgekehrt. Parameter 65 (Bildung von IOx durch I₂/O₃-Reaktion) beschreibt die Oxidation von I₂(g) zu IOx. Mit zunehmender Reaktionsgeschwindigkeit sinkt die I₂(g)-Konzentration (Parameter 65).

Der positive RCC für den Parameter 81 (radiolytische CH₃I-Freisetzung aus physisorbiertem Iod auf Farbe) unmittelbar nach der Einspeisung lässt sich wie folgt erklären. Bei trockenen Verhältnissen erhöht eine schnelle CH₃I-Freisetzung aus der Farbe die Menge an CH₃I im Gas. Über eine radiolytische Reaktion (Tang und Castleman) entsteht aus CH₃I wieder I₂. Der RCC ist daher positiv. Bei nassen Verhältnissen ist die Situation ähnlich, nur wird zusätzlich physisorbiertes I₂ von der Wand in den Sumpf abgewaschen.

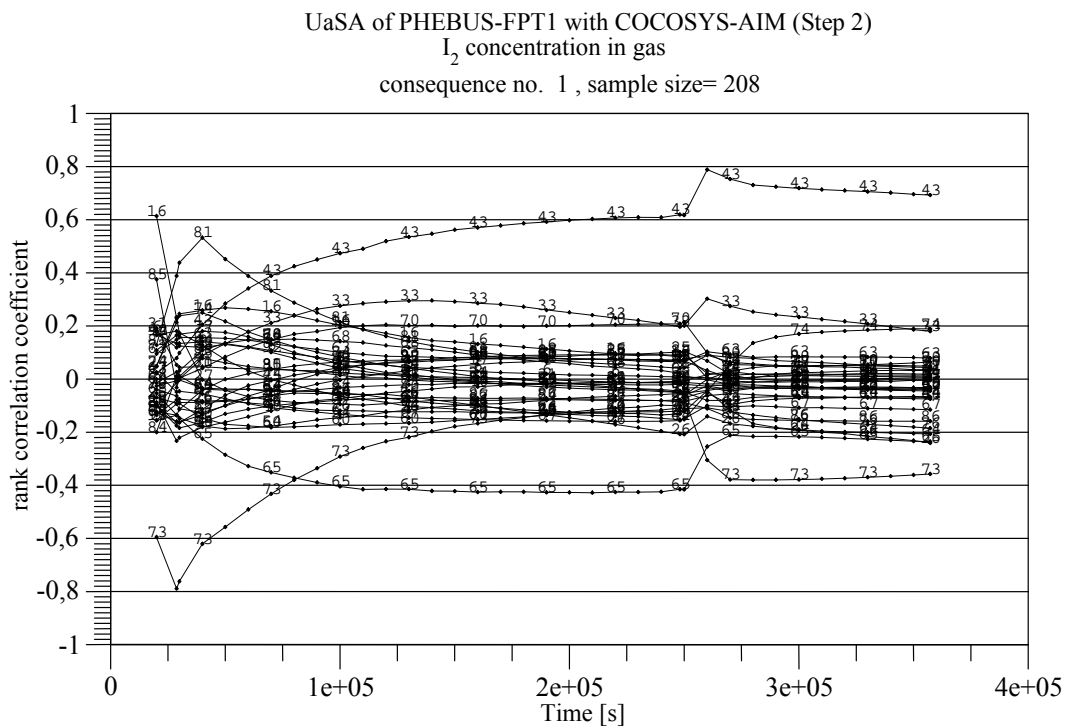


Abb. 4-22 I₂-Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten

Tab. 4-13 Sensitivitäten der Ergebnisvariable I₂(g)-Konzentration, UaSA Schritt 2

Versuchs- teil	Parame- ter Nr. *	Unsicherer Parameter	RCC
Vor Abwa- schen des elliptischen Bodens (t = 0 bis 2,5E5 s)	33	Wasserseitiger I ₂ -Massentransferkoeffizient	+
	43	Radiolytische I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	+
	65	Bildung von IOx durch I ₂ /O ₃ -Reaktion	-
	73	I ₂ Ablagerung auf trockene und nasse Farbe	-
	81	Radiolytische CH ₃ I Freisetzung aus physisorbier- tem Iod auf Farbe	+

Versuchs- teil	Parame- ter Nr. *	Unsicherer Parameter	RCC
Nach Ab- waschen (t > 2,5E5 s)	33	Wasserseitiger I ₂ -Massentransferkoeffizient	+
	43	Radiolytische I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	+
	73	I ₂ Ablagerung auf trockener und nasse Farbe	-
* grau: RCC RCC > 0,6			

4.8.1.2 Organoiod im Gas

Die alternativen Verläufe der berechneten CH₃I-Konzentration in der Gasphase streuen etwas weiter als die für I₂(g) (Abb. 4-23). Die Toleranzgrenzen (Abb. 4-24) haben vor dem Abwaschen des elliptischen Bodens eine maximale Abweichung von (Faktoren 0,17 / 20) und danach (Faktoren 0,14 / 7,0) von der Referenzkurve. Wie bei der I₂(g)-Konzentration verläuft die Mehrzahl der Kurven parallel, was auf einen geringen oder gar keinen Abbau hinweist. Nur etwa 15 Ergebniskurven zeigen nach der Iod-Einspeisung einen starken CH₃I Abbau. Dieser ist offensichtlich die Folge von radiolytischer Zersetzung. Diese Reaktion ist die einzige in AIM-3 modellierte CH₃I-Abbaureaktion.

Abb. 4-25 zeigt die sensitiven Parameter von CH₃I(g). Am Anfang des Versuches und nach dem Abwaschen ist Parameter 81, das ist die radiolytische CH₃I-Freisetzung aus physisorbiertem Iod auf Farbe, dominant, da die Dosisleistung hoch ist und daher am farbbeschichteten Condenser viel CH₃I radiolytisch entsteht. Eine Vergrößerung der radiolytischen I₂-Bildung aus I⁻ im Sumpf und die I₂-Ablagerung auf trockener und nasser Farbe (Parameter 43 und 73) führen zu einem Anstieg der abgelagerten I₂-Menge und damit der CH₃I-Konzentration. Durch die radiolytische Zersetzung von CH₃I verringert sich die CH₃I-Konzentration (Parameter 72).

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

209 selected run(s) of consequence no. 2

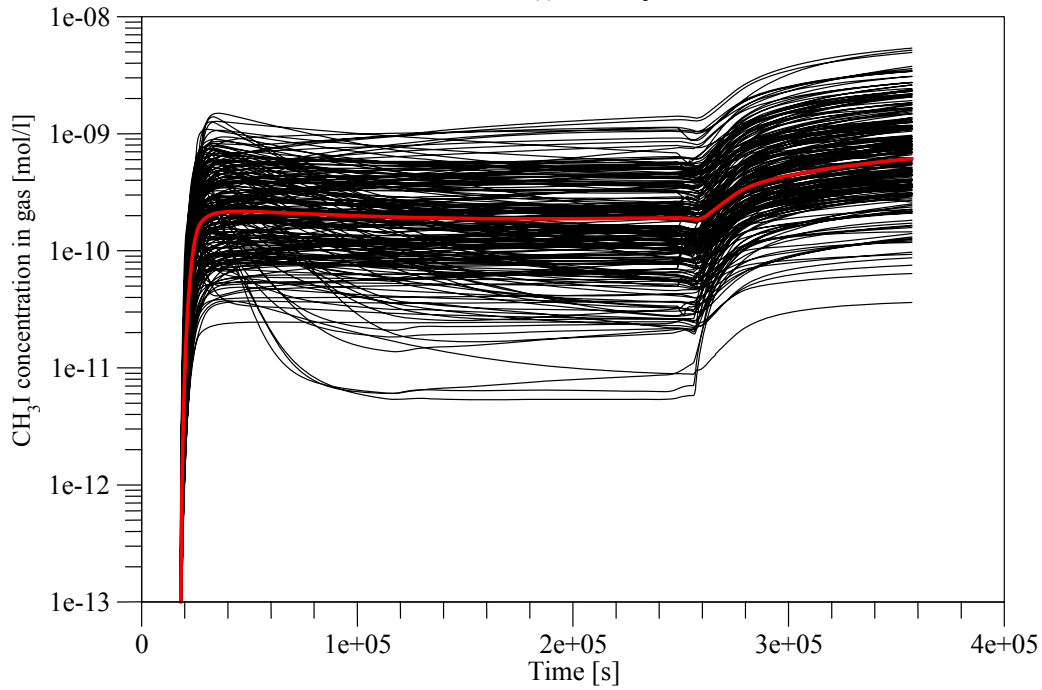


Abb. 4-23 CH_3I -Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

two-sided tolerance limits for consequence no. 2

sample size = 208, $\beta = 0.95, \gamma = 0.95$

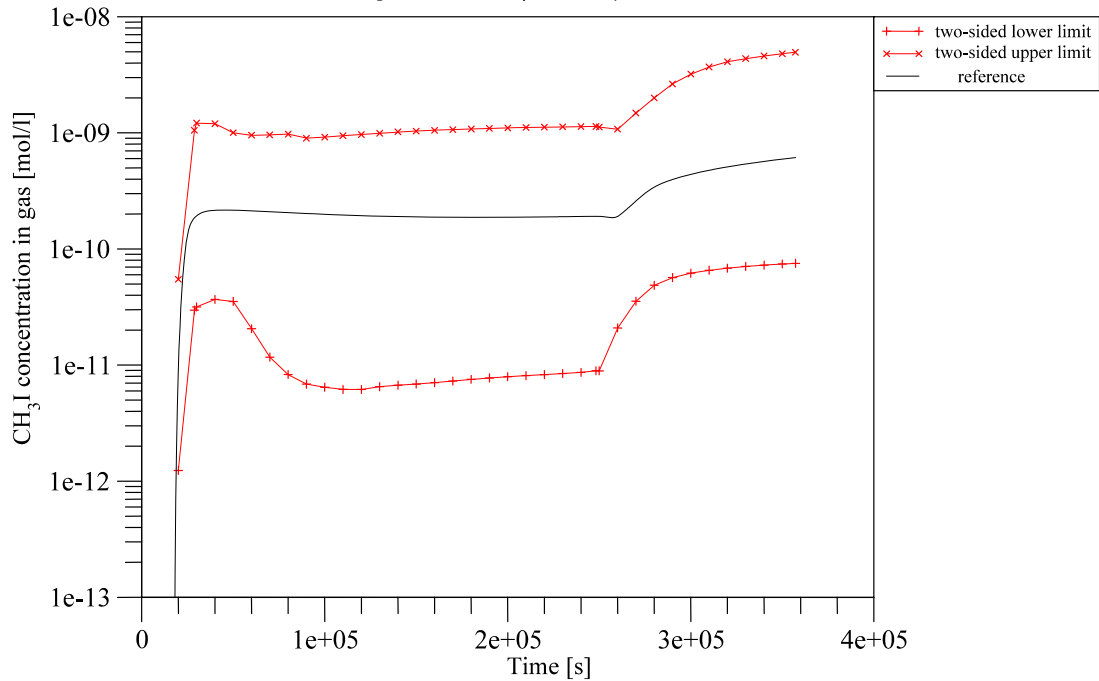


Abb. 4-24 CH_3I -Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Toleranzgrenzen

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)
 CH₃I concentration in gas
 consequence no. 2, sample size= 208

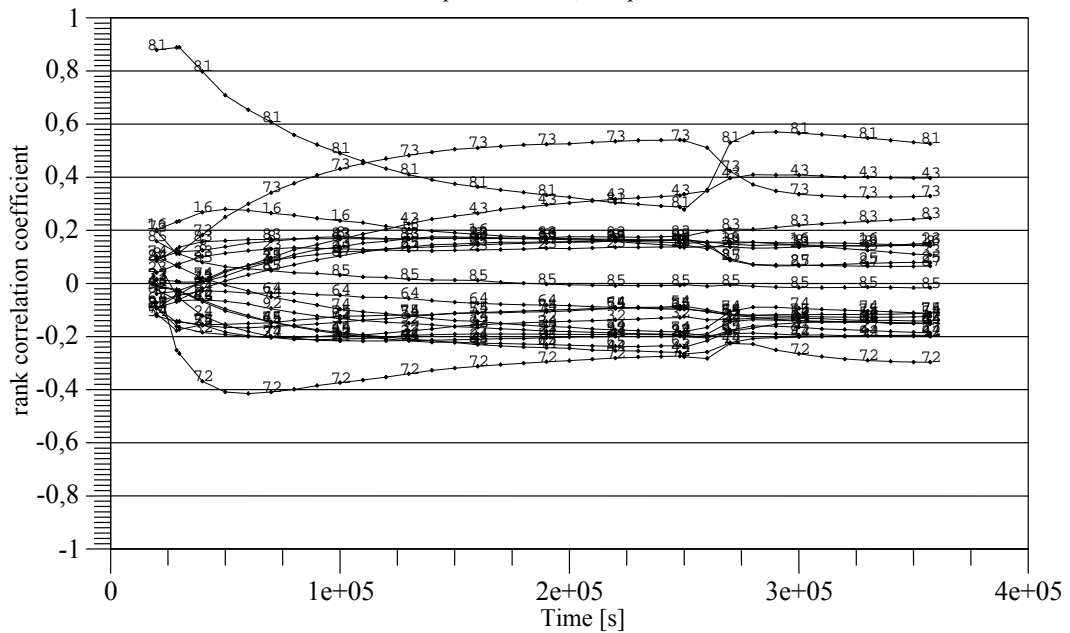


Abb. 4-25 CH₃I-Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten

Tab. 4-14 Sensitivitäten der Ergebnisvariable CH₃I(g)-Konzentration, UaSA Schritt 2

Versuchs- teil	Parame- ter Nr. *	Unsicherer Parameter	RCC
Vor und nach Ab- waschen des ellipti- schen Bod- dens	43	Radiolytische I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	+
	72	Radiolytische Zersetzung von CH ₃ I im Gas	-
	73	I ₂ -Ablagerung auf trockener und nasser Farbe	+
	81	Radiolytische CH ₃ I-Freisetzung aus physisorbier- tem Iod auf Farbe	+
* grau: RCC > 0,6			

4.8.1.3 IOx-Aerosol und Ozon im Gas

Die 208 alternativen Verläufe der IOx-Konzentration und die Toleranzgrenzen sind in Abb. 4-26 und Abb. 4-27 wiedergegeben. Das Toleranzband um den Referenzlauf ist nach oben hin schmaler als nach unten (Faktoren 0,1 / 5). Die Sensitivitäten (Abb. 4-28) sind in Tab. 4-15 zusammengefasst.

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

209 selected run(s) of consequence no. 3

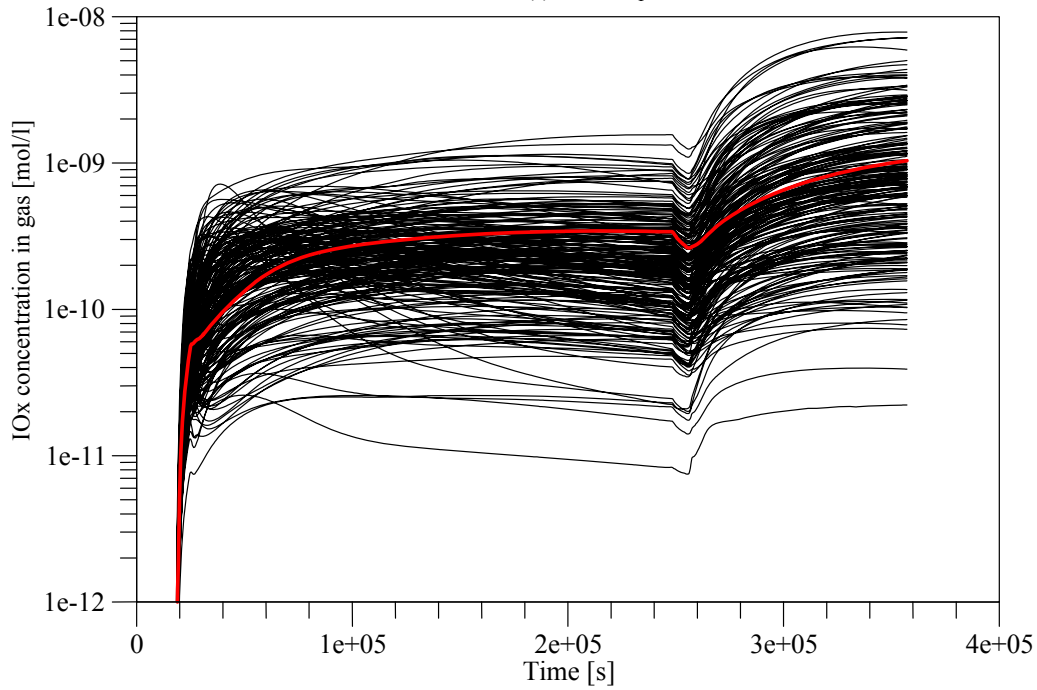


Abb. 4-26 IOx-Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

two-sided tolerance limits for consequence no. 3

sample size = 208, $\beta = 0.95, \gamma = 0.95$

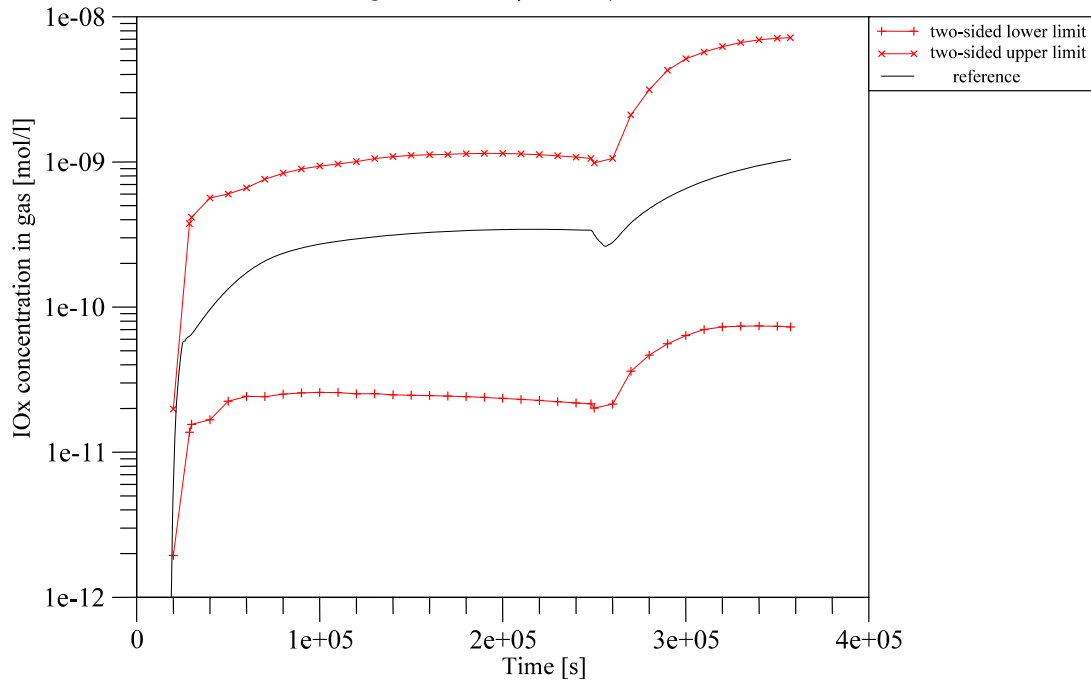


Abb. 4-27 IOx-Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Toleranzgrenzen

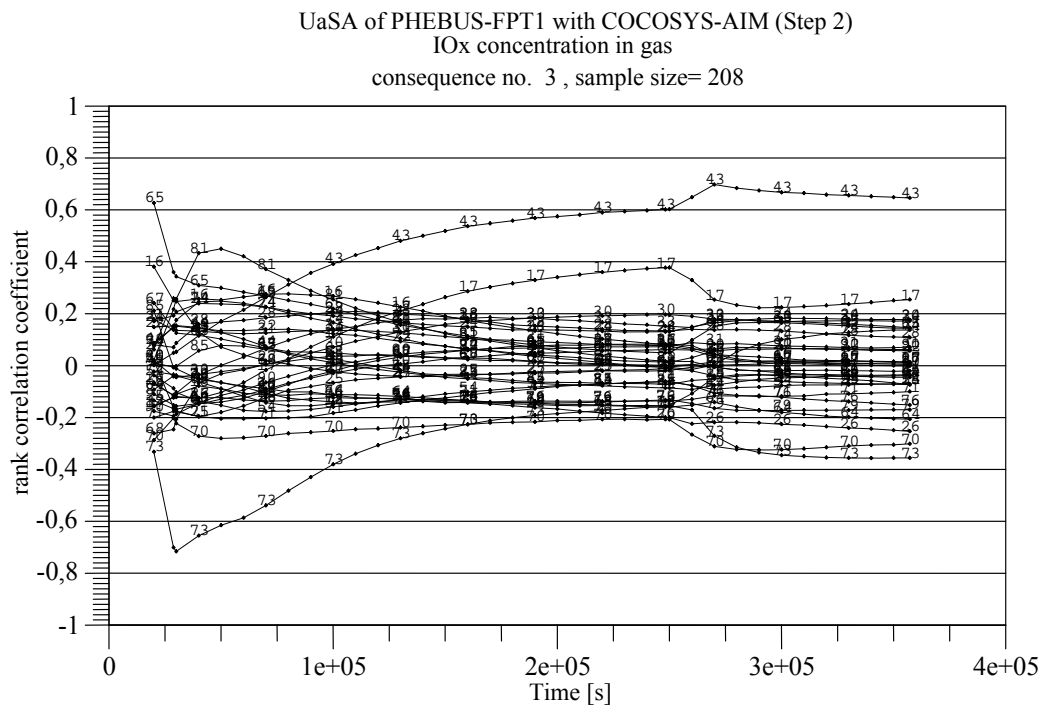


Abb. 4-28 IOx-Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten

IOx wird mit Ozon aus $I_2(g)$ gebildet. Dies erklärt den starken Einfluss der Parameter 43 (wasserseitiger I_2 -Massentransferkoeffizient) und 70 (O_3 Zersetzung an Stahloberflächen) auf die Unsicherheit der berechneten IOx-Konzentration. Plausibel ist auch der negative RCC für Parameter 73 (I_2 Ablagerung auf trockener und nasser Farbe). Das positive RCC-Vorzeichen von Parameter 81 (radiolytische CH_3I Freisetzung aus physisorbiertem Iod auf Farbe) lässt sich analog zu $I_2(g)$ in Kapitel 4.8.1.1 erklären. Über die Tang/Castleman-Reaktion entsteht aus CH_3I radiolytisch $I_2(g)$ und daraus weiter IOx.

Die Streuung der alternativen Ergebnisse der Ozon-Konzentration (Abb. 4-29 und Abb. 4-30) ist mit (Faktoren 0,5 / 2.0) vergleichsweise eng. In Abb. 4-31 und Tab. 4-15 sind die Sensitivitäten dargestellt bzw. die Ergebnisse zusammengefasst. Parameter 70 (O_3 -Zersetzung an Stahloberflächen) hat den stärksten Einfluss auf die Unsicherheit der berechneten O_3 -Konzentration. Mit zunehmender Zersetzung sinkt die O_3 -Konzentration (Tab. 4-15). Auch die Auswirkung der Unsicherheit der anderen drei Parameter 24 (Dosisleistung im Gas; pos. RCC), 67 (radiolytische O_3 -Bildung; pos. RCC) und 68 (radiolytische O_3 -Zersetzung; neg. RCC) auf die O_3 -Konzentration ist plausibel.

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

209 selected run(s) of consequence no. 4

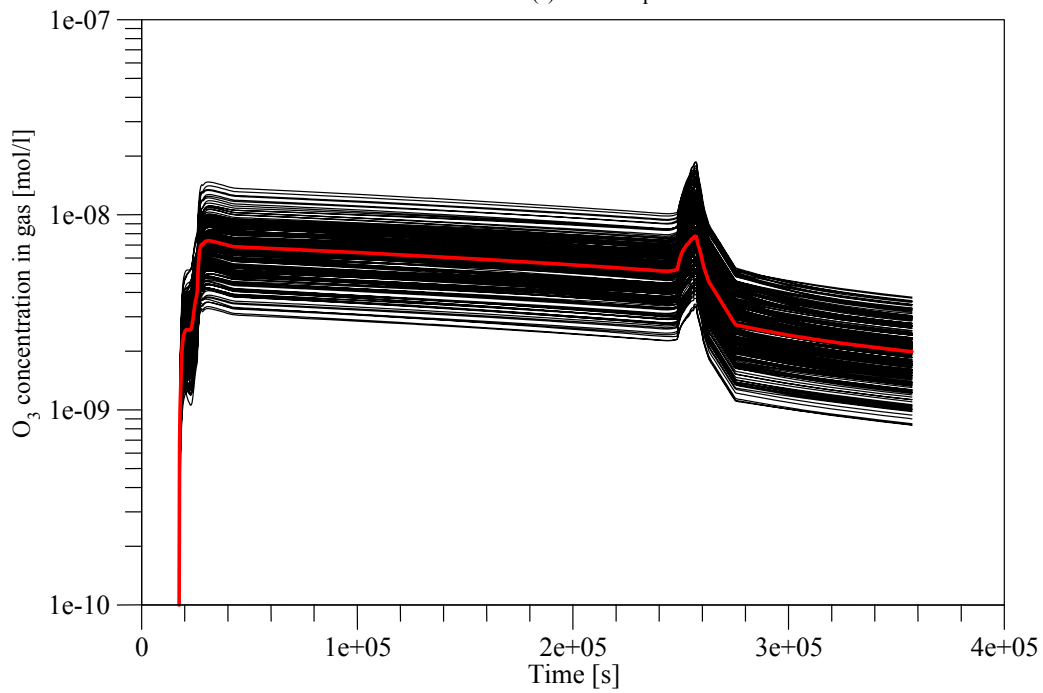


Abb. 4-29 O₃-Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

two-sided tolerance limits for consequence no. 4

sample size = 208, $\beta = 0.95, \gamma = 0.95$

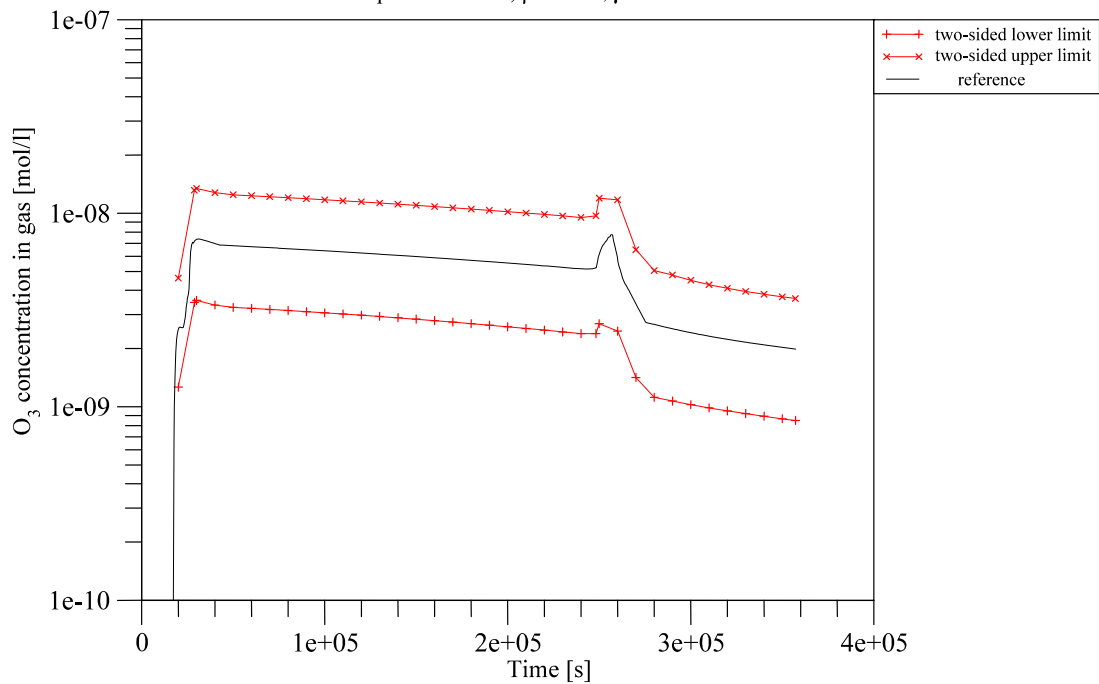


Abb. 4-30 O₃-Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Toleranzgrenzen

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)
O₃ concentration in gas
consequence no. 4 , sample size= 208

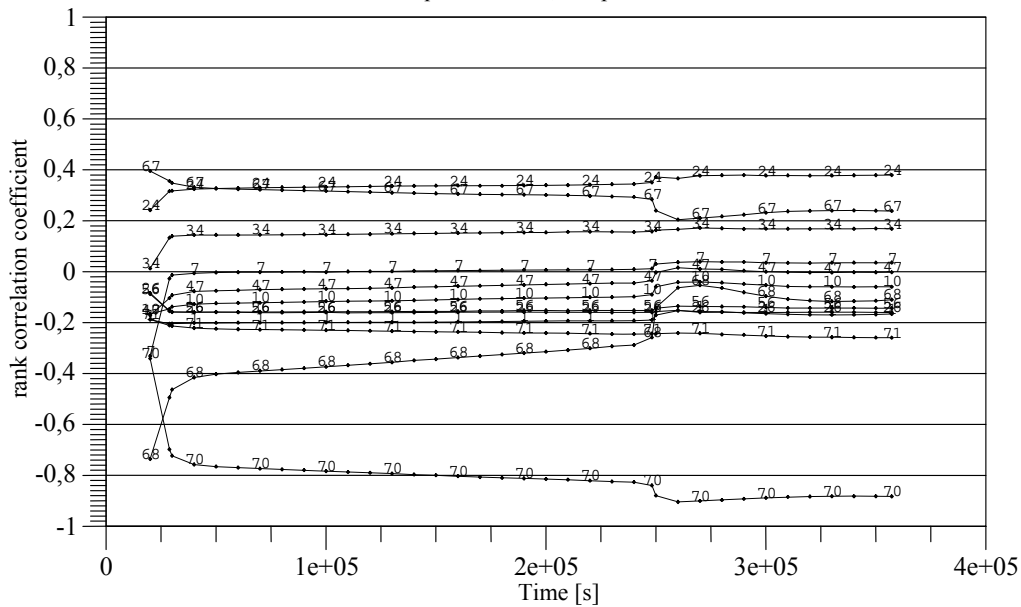


Abb. 4-31 O₃-Konzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten

Tab. 4-15 Sensitivitäten der Ergebnisvariablen IOx-Konzentration und O₃(g)-Konzentration, UaSA Schritt 2

Ergebnisvariable	Parameter Nr. *	Unsicherer Parameter	RCC
IOx-Konzentration	17	Diffusionsgrenzschichtdicke	+
	43	Radiolytische I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	+
	70	O ₃ -Zersetzung an Stahloberflächen	-
	73	I ₂ -Ablagerung auf trockener und nasser Farbe	-
	81	Radiolytische CH ₃ I-Freisetzung aus physisorbiertem Iod auf Farbe	+
O ₃ -Konzentration	24	Dosisleistung im Gas	+
	67	Radiolytische O ₃ -Bildung	+
	68	Radiolytische O ₃ -Zersetzung	-
	70	O ₃ -Zersetzung an Stahloberflächen	-

* grau: |RCC| > 0,6

4.8.1.4 Csl-Aerosol und MMD im Gas

Die alternativen Verläufe der Csl-Konzentration sind in Abb. 4-32 und die Sensitivitäten in Abb. 4-33 dargestellt.

Das Unsicherheitsband der berechneten Csl-Aerosolkonzentration ist, verglichen mit jenen der Iodvariablen, eng und asymmetrisch um den Referenzverlauf (Faktoren 0,5 / 1,7). Zu berücksichtigen ist, dass Csl-Konzentrationen $< 1\text{E-}7 \text{ kg/m}^3$ nur unwesentlich zum Iodquellterm beitragen. Der massengemittelte Partikeldurchmesser (MMD) des gesamten Aerosols nimmt ab diesem Zeitpunkt ab (Abb. 7-1 im Anhang).

Die Parameter 18 (effektive Aerosolmaterialdichte) und 21 (Agglomerationsformfaktor der Partikel) haben den stärksten Einfluss auf die Unsicherheit der Csl-Aerosolkonzentration (Tab. 4-16). Die Materialdichte beeinflusst die Sedimentationsgeschwindigkeit und damit die Konzentration des luftgetragenen Csl. Der Agglomerations- und der dynamische Formfaktor beeinflussen das Partikelwachstum und damit auch Sedimentationsgeschwindigkeit und Csl-Konzentration. In der zweiten Versuchshälfte gewinnt zunehmend Parameter 17 (Diffusionsgrenzschichtdicke) an Bedeutung, doch ist die Csl-Konzentration bereits verschwindend niedrig.

Die Sensitivitäten des massengemittelten Durchmessers für das gesamte Aerosol sind in Abb. 7-2 dargestellt und in Tab. 4-16 zusammengefasst. Der MMD des gebildeten IOx-Primäraerosols (Parameter 28) bestimmt in der zweiten Versuchshälfte den MMD des gesamten Aerosols. Die eingegebene Aerosolmaterialdichte (Parameter 18) hat vor allem auf die Sedimentationsgeschwindigkeit Einfluss. In einem polydispersen Aerosol werden die großen Partikel schneller als die kleinen abgelagert. Dadurch verschiebt sich die Partikelgrößenverteilung zu kleineren Partikeln hin und der MMD wird kleiner. Bei einer hohen Materialdichte erfolgt die Verschiebung der Verteilung schneller als bei einer niedrigen. Dies erklärt den negativen Rang-Korrelationskoeffizienten für die Materialdichte (Parameter 18).

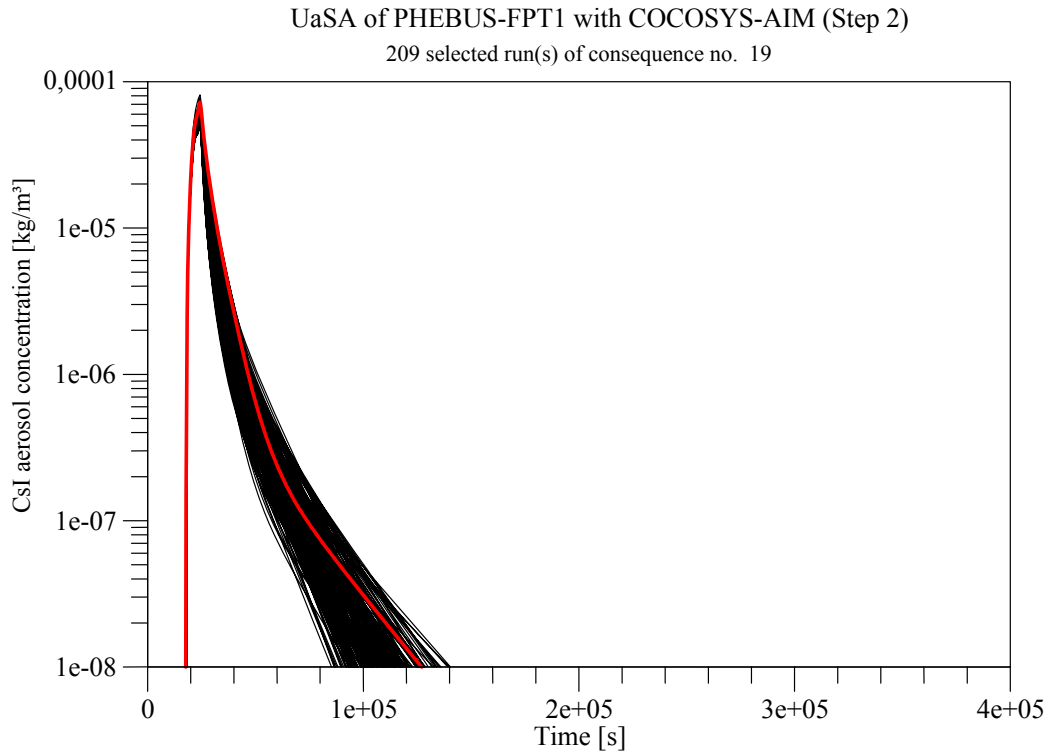


Abb. 4-32 CsI-Aerosolkonzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

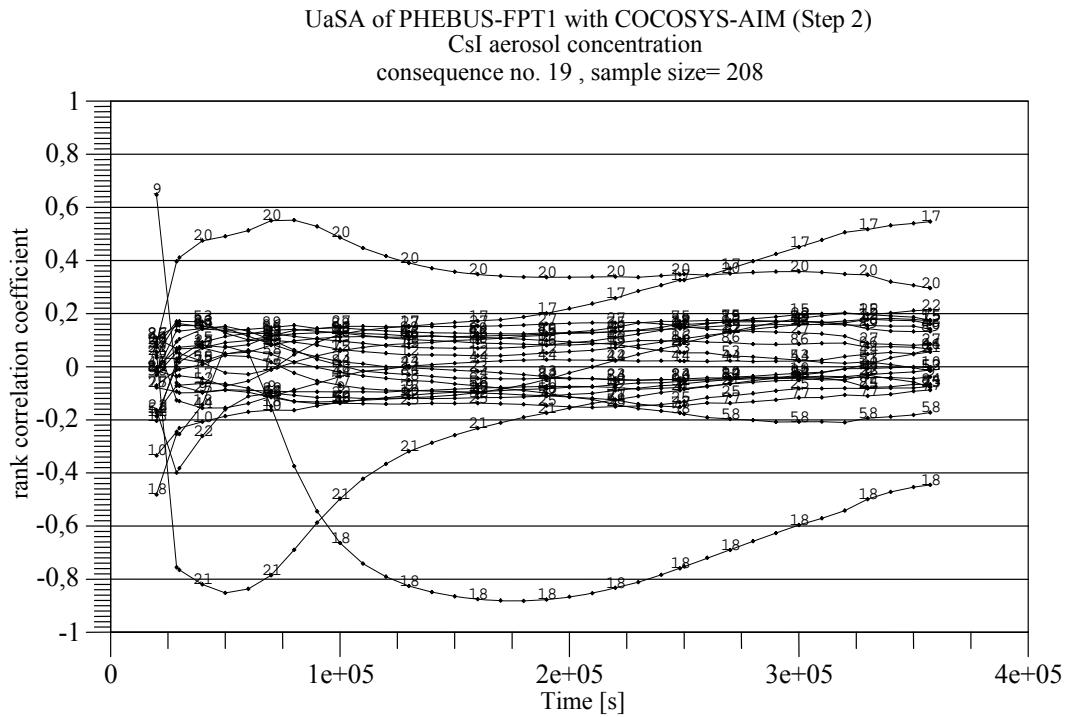


Abb. 4-33 CsI-Aerosolkonzentration im Gas, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten

Tab. 4-16 Sensitivitäten der Ergebnisvariable Csl-Aerosolkonzentration und mittlerer Partikeldurchmesser des gesamten Aerosols, UaSA Schritt 2

Ergebnisvariable	Parameter Nr. *	Unsicherer Parameter	RCC
Csl-Konzentration	17	Diffusionsgrenzschichtdicke	+
	18	Effektive Aerosolmaterialdichte	-
	20	Dynamischer Formfaktor der Partikel	+
	21	Agglomerationsformfaktor der Partikel	-
MMD des gesamten Aerosols	18	Effektive Aerosolmaterialdichte	+
	28	Massengemittelter Durchmesser der IOx Primärpartikel	+
* grau: RCC > 0,6			

4.8.1.5 Maximal freisetzbare Iodmenge

Die maximal freisetzbare Iodmenge aus dem Containment an die Umgebung (I_{\max}) setzt sich aus den flüchtigen Iodspezies I_2 und RI, dem feindispersen Aerosol IOx und dem Aerosol Csl zusammen. I_{\max} stellt quasi den maximal möglichen Iodquellterm aus der Anlage dar, der natürlich rein theoretisch ist, da das PHEBUS-Containment dicht war. Abb. 4-34 zeigt die alternativen Resultate um den Referenzlauf. Am ersten Tag bis ca. $t = 8E4$ s setzt sich I_{\max} praktisch nur aus Csl zusammen. Der höchste Wert beträgt 0,4 g Iod, etwa die Hälfte der insgesamt ins Containment freigesetzten Menge (0,72 g). Erst später, wenn sich das Csl-Aerosol weitgehend abgelagert hat, wird I_{\max} aus I_2 , CH_3I und IOx gebildet. I_{\max} ist jetzt mit Werten um 1 mg deutlich niedriger.

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

209 selected run(s) of consequence no. 28

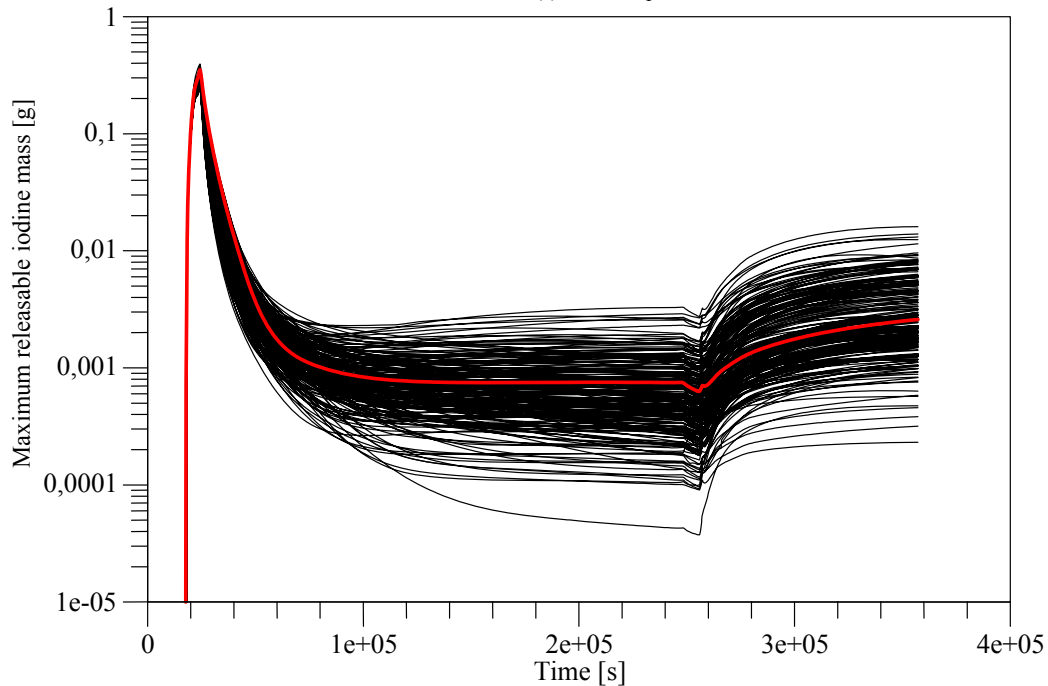


Abb. 4-34 Maximal freisetzbare Iodmenge, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

Die zweiseitigen statistischen (95%,95%)-Toleranzgrenzen für I_{\max} sind in Abb. 4-35 dargestellt. Die Unsicherheit des Ergebnisses ist stark von der Zeit abhängig. Am ersten Tag ist nur das CsI-Aerosol relevant. Die Rechenergebnisse weisen eine geringe und asymmetrische Streuung auf. Bei $t = 2E4$ s (5,5 h) beträgt sie (Faktoren 0,3 / 1,3). Nach dem Übergang zu den anderen Iodspezies wird die Streuung von I_{\max} erheblich größer. Bei $2E5$ s (55 h) beträgt sie (Faktoren 0,14 / 3,5). Nach dem Abwaschen des elliptischen Bodens ändern sich die Toleranzgrenzen etwas. Sie liegen bei $t = 3,2E5$ s (89 h) mit (Faktoren 0,16 / 5,3) um den Referenzwert.

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)
 two-sided tolerance limits for consequence no. 28
 sample size = 208, beta = 0.95, gamma = 0.95

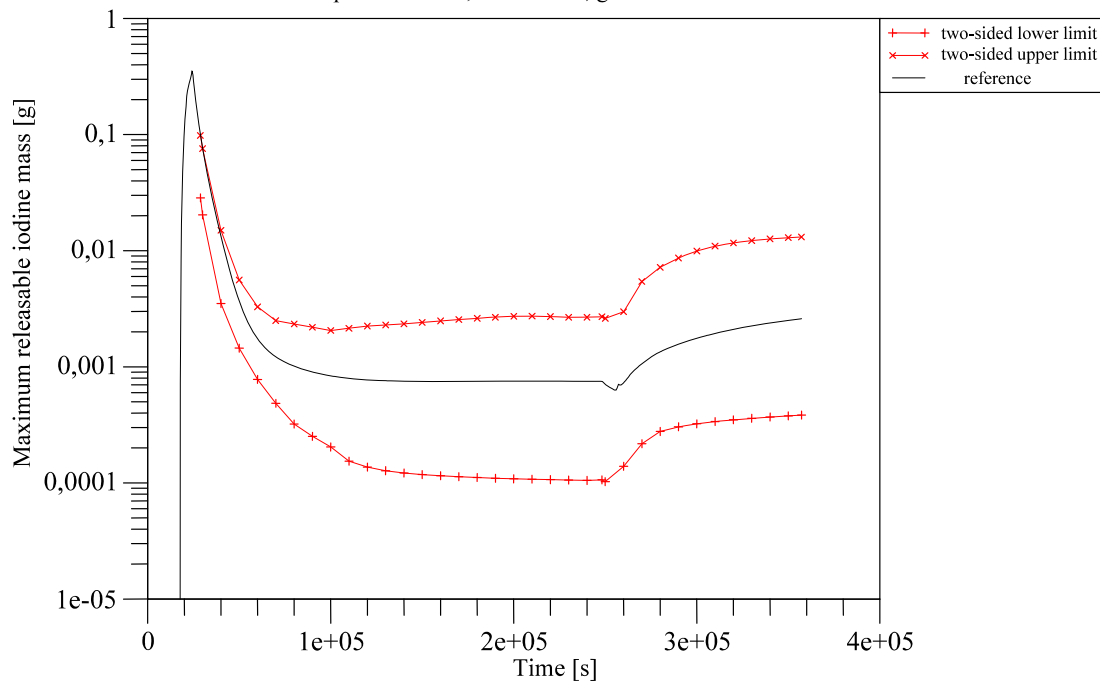


Abb. 4-35 Maximal freisetzbare Iodmenge, UaSA Schritt 2, Toleranzgrenzen

In Abb. 4-36 sind die Sensitivitätsindizes für die maximal freisetzbare Iodmenge dargestellt und in Tab. 4-17 sind die wichtigsten unsicheren Parameter und das Vorzeichen des Rang-Korrelationskoeffizienten (RRC) aufgelistet. In der sogenannten Aerosolphase haben naturgemäß unsichere Parameter der Aerosolrechnung den stärksten Einfluss auf die Unsicherheit der maximal freisetzbaren Iodmasse. Es sind dies der dynamische Formfaktor (Parameter 20) und der Agglomerationsformfaktor (Parameter 21). Ein steigender dynamischer Formfaktor reduziert die Sedimentationsgeschwindigkeit und verstärkt I_{\max} , der RRC ist daher positiv. Ein steigender Agglomerationsformfaktor bzw. eine steigende Kollisionseffizienz (Parameter 22) verstärken die Agglomeration und damit die Sedimentation der Partikel, I_{\max} wird reduziert. Am Anfang der Aerosolphase haben auch die Unsicherheiten der Einspeiserate (Parameter 9), der mittleren Partikelgröße des eingespeisten Aerosols (Parameter 10) und der Diffusionsgrenschichtdicke (Parameter 18) vorübergehend Einfluss auf I_{\max} .

In der Phase des flüchtigen Iods hat vor allem die Unsicherheit von Parameter 43, (radiolytische I_2 -Bildung aus I^- im Sumpf) Einfluss auf die Unsicherheit von I_{\max} . Das im Sumpf gebildete I_2 gelangt über Massentransfer in die Gasphase und erhöht I_{\max} . Der I_2 -Massentransfer wird in AIM durch das sogenannte 2-Film-Modell mit dem wassersei-

Tab. 4-17 Sensitivitäten der Ergebnisvariable „Maximal freisetzbare Iodmenge“, Ua-SA Schritt 2

Versuchsteil	Param. Nr. *	Unsicherer Parameter	RCC
Aerosolphase (t = 0 bis 5E4 s)	9 **	Csl-Einspeiserate	+
	10	Massengemittelter Partikeldurchmesser des Csl-Aerosols	-
	18	Diffusionsgrenzschichtdicke	-
	20	Dynamischer Formfaktor der Aerosolpartikel	+
	21	Agglomerationsformfaktor der Aerosolpartikel	-
	22	Kollisionseffizienz der Partikel	-
	81	Radiolytische CH ₃ I Freisetzung aus physisorbiertem Iod auf Farbe in der Gasphase	+
Phase des flüchtigen Iods vor Abwaschen des elliptischen Bodens (t = 5E4 bis 2,5E5 s)	16	I ₂ -Einspeiserate	+
	33	Wasserseitiger I ₂ -Massentransferkoeffizient	+
	43	Radiolytische I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	+
	81	Radiolytische CH ₃ I Freisetzung aus physisorbiertem Iod auf Farbe in der Gasphase	+
Phase des flüchtigen Iods nach Abwaschen (t > 2,5E5 s)	33	Wasserseitiger I ₂ -Massentransferkoeffizient	+
	43	Radiolytische I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	+
	64	I ₂ (w)-Konversion zu I ⁻ (w) an der Stahloberfläche	-
	81	Radiolytische CH ₃ I Freisetzung aus physisorbiertem Iod auf Farbe in der Gasphase	+
* grau: RCC > 0,6; ** nur kurz zu Versuchsbeginn einflussreich			

4.8.2 Weitere Iodvariablen

Im Mittelpunkt der Auswertung stehen quelltermrelevante Iod-Ergebnisvariablen. Dennoch sind auch die Ergebnisse der abgelagerten und im Sumpf gelösten Iodspezies für die Modellentwicklung von Interesse. Abgelagertes und gelöstes Iod beeinflusst die Konzentration von flüchtigem Iod in der Gasphase über verschiedene Reaktionen. Es werden daher auch die folgenden Ergebnisvariablen analysiert:

- Abgelagerte Iodspezies Csl und I₂ am trockenen und nassen Teil des farbgeschichteten Condensers
- Abgelagerte Iodspezies I₂ und FeI₂ an den Stahlwänden des Behälters
- Csl an den vertikalen Behälterwänden
- Gelöste Iodspezies I₂, I⁻, HOI im Sumpf

- Ungelöste Spezies Ag, AgOx, AgI und das Gesamtiod im Sumpf

Aus Gründen der Übersichtlichkeit sind alle Abbildungen zu diesen Ergebnisvariablen im Kapitel 7 „Weitere Abbildungen“ am Ende des Berichts wiedergegeben.

4.8.2.1 Iod am Condenser

Das CsI-Aerosol wird in FPT1 durch Diffusiophorese in der kurzen Phase mit Wandkondensation am nassen Condenser abgelagert. Am trockenen Condenser erfolgt die Ablagerung durch Brown'sche Diffusion. Die trocken abgelagerte CsI-Menge beträgt nur etwa 2 % der nass abgelagerten Menge. Die Aerosolablagerungen werden in COCOSYS mit dem Aerosolmodell AERIKA gerechnet.

Die Unsicherheit der CsI-Konzentration am nassen Condenser beträgt vor dem Abwaschen bei $t = 2,5E5$ s maximal (Faktoren 0,05 / 4,0) und ist nach dem Abwaschen extrem breit (Faktoren $< 0,01$ / 20), (Abb. 7-3). Am trockenen Teil ist das Unsicherheitsband dagegen unterhalb der Referenzrechnung enger (Faktoren 0,4 / 5,0) (Abb. 7-5).

Der Parameter mit dem weitaus größten Einfluss auf die Unsicherheit der berechneten CsI-Konzentration am nassen Condenser ist die mittlere Wasserfilmdicke (Parameter 23), (Abb. 7-4 und Tab. 4-18). Mit abnehmender Dicke nimmt auch die abgelagerte (gelöste) CsI-Menge ab. Für die Ablagerung am trockenen Condenser ist der weitaus relevanteste Parameter die Diffusionsgrenzschichtdicke (Parameter 17), (Abb. 7-6). Eine Reduktion verstärkt die Ablagerung durch Diffusion, der RCC ist negativ. Diffusion ist auf trockenen vertikalen Wänden oder an der Decke der einzige wirksame Aerosol-Ablagerungsmechanismus.

Die Unsicherheit der I_2 -Konzentration am nassen Condenser beträgt vor dem Abwaschen maximal (Faktoren $< 0,001$ / 7,0) und nach dem Abwaschen (Faktoren 0,02 / 7,0), (Abb. 7-7). Am trockenen Teil ist das Unsicherheitsband sehr ähnlich (Abb. 7-9), da die Ablagerungsgeschwindigkeit auf trockener and nasser Farbe gleich groß ist und abgelagertes I_2 nur für kurze Zeit abgewaschen wird.

Die Parameter mit dem größten Einfluss auf die Unsicherheit der berechneten abgelagerte I_2 -Menge am nassen und trockenen Condenser sind die gleichen (Abb. 7-8, Abb. 7-10 und Tab. 4-18). Es sind die radiolytische I_2 -Bildung aus I^- im Sumpf (Parameter 43), die I_2 -Ablagerung auf trockener und nasser Farbe (Parameter 73) und die radioly-

tische CH₃I-Freisetzung aus physisorbiertem Iod auf Farbe (Parameter 81). Der Zusammenhang der ersten beiden Parameter mit der abgelagerten I₂-Menge ist naheliegend. Beim Prozess der CH₃I-Freisetzung ist der Vorgang komplexer. Abgelagertes I₂ steht gewöhnlich mit dem luftgetragenen im Gleichgewicht. Wird abgelagertes I₂ durch die Reaktion mit organischem Material „verbraucht“, steht insgesamt weniger I₂ zur Verfügung und auch die Menge des abgelagerten I₂ geht zurück.

Tab. 4-18 Sensitivitäten der Ergebnisvariablen Csl und I₂ am nassen und trockenen Condenser, UaSA Schritt 2

Ergebnisvariable	Parameter Nr. *	Unsicherer Parameter	RCC
Csl-Konzentration am nassen Condenser	23	Mittlere Wasserfilmdicke	+
	53	Hydrolyse von CH ₃ I durch H ₂ O	+
Csl-Konzentration am trockenen Condenser	17	Diffusionsgrenzschichtdicke	-
	21	Agglomerationsformfaktor	-
I ₂ -Konzentration am nassen Condenser	43	Radiolytische I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	+
	73	I ₂ -Ablagerung auf trockene und nasse Farbe	+
	81	Radiolytische CH ₃ I Freisetzung aus physisorbiertem Iod auf Farbe	-
I ₂ -Konzentration am trockenen Condenser	43	Radiolytische I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	+
	73	I ₂ -Ablagerung auf trockener und nasser Farbe	+
	81	Radiolytische CH ₃ I-Freisetzung aus physisorbiertem Iod auf Farbe	-

* grau: |RCC| > 0,6

4.8.2.1.1 I₂, FeI₂ und fixed-I an der Stahlwand und Csl-Aerosol an vertikalen Wänden

Die alternativen Verläufe des adsorbierten molekularen Iods auf Stahl, I₂(ads,st), streuen mit (Faktoren 0,12 / 8,0) um den Referenzwert (Abb. 7-11). Die Breite der Streuung ist vor und nach dem Abwaschen des elliptischen Bodens ähnlich. Die Verteilung der alternativen Ergebniskurven für FeI₂ auf Stahl ist dagegen oberhalb des Referenzverlaufs deutlich breiter als darunter (Faktoren 0,5 / 30), (Abb. 7-13). Eine ähnliche asymmetrische Verteilung um den Referenzwert bilden die fixed-I-Resultate (Faktoren 0.3 /

10). Fixed-I kann nicht abgebaut, sondern nur aufgebaut werden. Die fixed-I-Konzentration am Stahl steigt daher kontinuierlich an.

Die Unsicherheit von $I_2(\text{ads, st})$ wird vor allem durch die unsicheren Parameter Ablagerungs- und Resuspensionsrate von I_2 auf Stahl (Parameter 84 und 85) hervorgerufen, wobei letztere einen stärkeren Einfluss hat. Weiter spielt bei der Berechnung von $I_2(\text{ads, st})$ die I_2 -Konzentration im Gas eine Rolle, die von der radiolytischen I_2 -Bildung im Sumpf aufgebaut (Parameter 43) wird und bei der IOx-Bildung (Parameter 65) abgebaut wird (Abb. 7-12, Tab. 4-19).

Die zur Verfügung stehende Menge an reaktionsfähigem Eisen auf der Stahloberfläche (Parameter 30) hat den größten Einfluss auf die Unsicherheit der FeI_2 und fixed-I-Konzentration. Durch Verschmutzung, Rost etc. können Teile der Oberfläche passiviert werden. Diese stehen dann für Chemisorption nicht mehr zur Verfügung. Für fixed-I ist zusätzlich der Parameter 89, das ist die Reaktion von FeI_2 mit Luftsauerstoff, von Bedeutung (Abb. 7-14, Abb. 7-16, Tab. 4-19).

Die Aerosolablagerung an vertikalen Wänden erfolgt im trockenen Fall nur durch Diffusion. Die Unsicherheit der Diffusionsgrenzschichtdicke (Parameter 17) hat daher den größten Einfluss auf die Unsicherheit der berechneten Ablagerung (Tab. 4-19). Dazu kommt der Agglomerationsformfaktor, der Einfluss auf die Partikelgrößenverteilung und damit auf den Anteil kleiner Partikel hat (vgl. Tab. 4-10). Durch Diffusion werden vor allem kleine Partikel (Abb. 7-18, Tab. 4-19) abgelagert.

Tab. 4-19 Sensitivitäten der Ergebnisvariablen I_2^- , FeI_2^- , fixed-I und Csl-Ablagerung auf Stahlwänden

Ergebnisvariable	Parameter Nr. *	Unsicherer Parameter	RCC
I_2 -Konzentration am Stahl	43	Radiolytische I_2 -Bildung aus I^- im Sumpf	+
	65	IOx-Bildung aus $I_2(g)$ and O_3	-
	84	I_2 -Ablagerung auf trockenem Stahl	+
	85	I_2 -Resuspension von trockenem Stahl	-
FeI_2 -Konzentration am Stahl	30	Zur Chemisorption verfügbare Stahlmenge an der Oberfläche	+
Fixed-I-	30	Zur Chemisorption verfügbare Stahlmenge an der Oberfläche	+

Ergebnisvariable	Parameter Nr. *	Unsicherer Parameter	RCC
Konzentration am Stahl	89	Reaktion von chemisorbiertem I ₂ zu physisorbiertem I ₂ und fixed-I	+
Csl-Aerosolkonzentration an vertikalen Wänden	21	Agglomerationsformfaktor	-
	17	Diffusionsgrenzschichtdicke	-
* grau: RCC > 0,6			

4.8.2.2 I₂⁻, I⁻, HOI-Konzentration im Sumpf

Von Interesse sind hier vor allem die drei löslichen Iodspezies I₂(w), I⁻(w) und HOI(w) im Sumpf. Die alternativen Verläufe dieser drei Ergebnisvariablen zeigen ein unterschiedliches Bild. I₂(w) wird im Sumpf durch verschiedene Reaktionen auf- und aber auch abgebaut. Weiter stellt sich zwischen I₂(w) und anderen Spezies ein Konzentrationsgleichgewicht ein. Dieses wird beim Abwaschen durch den Eintrag von Csl-Aerosol, das schnell zu I⁻ und Cs⁺ dissoziiert, gestört. Das Unsicherheitsband der Rechenergebnisse um den Referenzwert liegt bei (Faktoren 0,05 / 4,0), (Abb. 7-19). Für HOI(w) ist die Situation ähnlich, nur dass die HOI(w)-Konzentration durch die kontinuierliche Abnahme des pH-Werts von 5,6 am Anfang des Versuchs auf 4,5 am Ende zurückgeht (Faktor 0,125 / 6,0), (Abb. 7-23).

Durch chemische Reaktion wird I⁻(w) nur abgebaut, vor allem durch die Reaktion mit Silber. Die Unsicherheit der berechneten I⁻-Konzentration nimmt daher mit der Zeit zu. Vor dem Abwaschen auf maximal (Faktoren 0,1 / 1,05) und nach dem Abwaschen, bei dem wieder viel neues I⁻ (über Csl-Abwaschen) in den Sumpf gelangt, auf (Faktoren 0,2 / 1,05), (Abb. 7-21).

Den größten Einfluss auf die Unsicherheit der I₂(w)-Konzentration hat die radiolytische I₂-Bildung aus I⁻ im Sumpf und die Rückreaktion (Parameter 43 und 44), (Abb. 7-20). Weiter haben zwei Abbaureaktionen einen mäßigen Einfluss (|RCC| < 0,3). Die spezifische Oberfläche der Silberpartikel (Parameter 26) spielt, wie bereits im Schritt 1 der UaSA, noch immer eine Rolle, obwohl sie für den Schritt 2 reduziert wurde. Die I₂(w)-Konversion an der Stahloberfläche zu I⁻(Parameter 64) hat ebenso einen Einfluss auf I₂(w). Mit steigender Konversionsgeschwindigkeit nimmt die I₂(w)-Konzentration ab.

Vor allem die Silber/Iod-Reaktion trägt zur Unsicherheit von I-(w) bei. Die Reaktionsrate wächst mit steigender Oberfläche der Silberpartikel (Parameter 26) und mit dem wasserseitigen Massentransferkoeffizienten (KMTWAS, Parameter 33). Der KMTWAS beschreibt den I₂-Transport durch die Wasserschicht um die Silberpartikel und ist Teil der Formel für die Silber/Iod-Reaktionsrate.

HOI(w) entsteht durch Hydrolyse aus I₂(w) im Sumpf. Die Unsicherheit von HOI hängt im Wesentlichen von der Unsicherheit der Parameter 36, 43, 44 und 64 ab (Abb. 7-24). Zusätzlich hat die Rückreaktion der radiolytischen I₂-Bildung aus I- im Sumpf (Parameter 39) einen Einfluss auf das HOI(w)-Ergebnis.

4.8.2.3 Ag-, AgOx- und AgI-Konzentration im Sumpf

Die Streubreite der berechneten Ag(w)-Masse im Sumpf ist bereits vor dem Abwaschen gering (Faktoren 0,2 / 1,4), da nur ein kleiner Teil der gesamten Ag-Masse zu AgOx bzw. weiter zu AgI reagiert. Nach dem Abwaschen ist sie noch etwas geringer (Abb. 7-25).

Auch die Streubreite der berechneten AgOx-Masse ist mit (Faktoren 0,77 / 1,3) vergleichsweise gering (Abb. 7-27).

Für AgI(w) streuen die alternativen Verläufe oberhalb des Referenzlaufs stärker als die unterhalb (Faktoren 0,77 / 5,0). Das liegt vor allem an der asymmetrischen Unsicherheitsverteilung der beiden wichtigsten Parameter (26 Spezifische Oberfläche der Silberpartikel und 33 Wasserseitiger Massentransferkoeffizient), deren Werte öfter über als unter den Referenzwerten liegen.

4.8.2.4 Gesamte Iodmenge im Sumpf

Die gesamte Iodmenge im Sumpf besteht aus der gesamten eingespeisten Iodmenge (0,72 g) minus dem luftgetragenen und abgelagerten Iod im Gasraum. Die Iodmenge im Gasraum ist vergleichsweise klein. Die Streuung der alternativen Rechenergebnisse für die gesamte Iodmenge im Sumpf ist daher gering (Abb. 7-31).

Auf die Unsicherheit des Ergebnisses haben vor allem die unsichere CsI-Einspeiserate (Parameter 9) und die unsichere Dampfeinspeiserate (Parameter 7) Einfluss (Abb.

7-32). Die Dampfeinspeiserate kontrolliert das Abwaschen von abgelagertem CsI am Condenser in den Containmentsumpf.

Tab. 4-20 Sensitivitäten der Ergebnisvariablen $I_2(w)$, $I^-(w)$, $HOI(w)$, $Ag(w)$, $AgOx$, $AgI(w)$ und des gesamten Iods im Sumpf, UaSA Schritt 2

Ergebnisvariable	Parameter Nr. *	Unsicherer Parameter	RCC
I ₂ -Konzentration im Sumpf	26	Spezifische Oberfläche der Silberpartikel im Sumpf	-
	43	Radiolytische I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	+
	44	Rückreaktion der radiolytischen I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	-
	64	I ₂ (w)-Konversion zu I ⁻ (w) an der Stahloberfläche	-
I ⁻ -Konzentration im Sumpf	9	CsI-Einspeisung	+
	26	Spezifische Oberfläche der Silberpartikel im Sumpf	-
	33	Wasserseitiger Massentransferkoeffizient	-
HOI-Konzentration im Sumpf	36	pH-Wert im Sumpf	+
	43	Radiolytische I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	+
	39	Rückreaktion der I ₂ -Hydrolyse im Sumpf (Schritt 1 von 2)	-
	44	Rückreaktion der radiolytischen I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	-
	64	I ₂ -Konversion aus I ⁻ an der Stahloberfläche	-
Ag-Konzentration im Sumpf	7	Dampfeinspeiserate	
	11	Ag-Einspeiserate	+
	18	Effektive Aerosolmaterialdichte	+
	21	Agglomerationsformfaktor	+
AgOx-Konzentration im Sumpf	13	AgOx-Einspeiserate	+
AgI-Konzentration im Sumpf	26	Spezifische Oberfläche der Silberpartikel im Sumpf	+
	33	Wasserseitiger Massentransferkoeffizient	+
	48	AgI-Bildung aus AgOx + I ⁻	+
Gesamte Iodmenge im Sumpf	7	Dampfeinspeiserate	+
	9	CsI-Einspeiserate	+

Ergebnisvariable	Parameter Nr. *	Unsicherer Parameter	RCC
	10	Mittlere Partikelgröße des eingespeisten CsI-Aerosols	-
	23	Mittlere Wasserfilmdicke	-
	28	Mittlere Partikelgröße des IOx-Primär-aerosols	-
* grau: RCC > 0,6			

4.8.3 Thermohydraulische Variable

Die Thermohydraulik im PHEBUS-Versuch FPT1 ist vergleichsweise einfach, da die Atmosphäre des 10 m³ großen Containments stets homogen durchmischt ist und die Behälterwände, der Condenser und der Sumpf auf bestimmten Temperaturen gehalten werden. Die ermittelten relativ kleinen Unsicherheiten der thermohydraulischen Variablen sind daher PHEBUS-spezifisch und können nicht verallgemeinert werden.

Dennoch ist der Verlauf der alternativen Resultate für die folgenden Ergebnisvariablen graphisch dargestellt:

- Gastemperatur (Abb. 7-33)
- Relative Feuchte (Abb. 7-34)
- Gasgeschwindigkeit (Abb. 7-35)
- Sumpfwassertemperatur (Abb. 7-36)
- Gesamtdruck (Abb. 7-37)
- Kondensationsrate am Condenser (Abb. 7-38)

Für alle Variablen streuen die alternativen Resultate nur geringfügig um den Referenzwert. Z. B. ist die Streuung der Gastemperatur die meiste Zeit (- 1,3 °C / + 0,2 °C), nur unmittelbar vor dem Abwaschen bei $t = 2,5E5$ s beträgt sie (- 3,5 °C / + 0,2 °C).

Auf die Auswertung der Sensitivitäten für die thermohydraulischen Ergebnisvariablen wird verzichtet, da die Streuung der Daten sehr gering ist, die Erfassung der thermohydraulischen unsicheren Parameter wegen der Aufgabenstellung (Iodverhalten) unvollständig ist und die Ergebnisse aufgrund der thermohydraulischen Besonderhei-

ten des Versuches nicht direkt auf Unfallrechnungen für reale Anlagen übertragbar sind.

4.8.4 Überblick über die Ergebnisse der UaSA, Schritt 2

Tab. 4-21 gibt einen Überblick über die in Schritt 2 der UaSA gewonnenen Unsicherheitsaussagen in Form der (95%,95%)-Toleranzgrenzen. Die angegebenen Quotienten und Faktoren sind nur ein grobes Maß für die Toleranzgrenzen unterhalb und oberhalb der Referenzkurve. Sie sind Mittelwerte über den Versuchszeitraum und dienen einem schnellen qualitativen Vergleich der Unsicherheiten.

Bis auf das Csl-Aerosol haben alle quelltermrelevanten Iodspezies in der Gasphase einen relativ großen Unsicherheitsbereich. Für die mit COCOSYS-AIM berechneten Konzentrationen der quelltermrelevanten Iodspezies außer Csl wird der Bereich durch einen Quotienten bzw. Faktor 7,0 um das Referenzergebnis markiert. Kleiner ist nur der Unsicherheitsbereich für die berechnete Csl-Konzentration im Containment.

Noch größer sind die Unsicherheitsbereiche für abgelagertes I_2 und Csl am nassen Condenser. Ebenfalls groß ist die Unsicherheit von I_2 und I^- im Sumpf. Einen relativ kleinen Unsicherheitsbereich weisen Ag, AgOx und AgI im Sumpf auf.

Die Größe des Unsicherheitsbereichs für die maximal freisetzbare Iodmenge (I_{max}) ändert sich mit der Zeit. In der Anfangsphase besteht I_{max} im Wesentlichen aus Csl-Aerosol und der Unsicherheitsbereich von I_{max} ist vergleichsweise schmal. Später, wenn die flüchtigen Iodspezies I_{max} dominieren, wächst der Unsicherheitsbereich von I_{max} an.

I_{max} repräsentiert den potentiellen Iodquellterm aus der Anlage. Die typische Unsicherheit des mit AIM berechneten Iodquellterms mit vorwiegend flüchtigen Iodspezies liegt daher bei (Quotient 7 / Faktor 5) um den Referenzwert. Bei einem Quellterm mit viel Csl-Aerosol, das in COCOSYS mit dem Modell AERIKA gerechnet wird, ist der Unsicherheitsbereich mit (Quotient 3,1 / Faktor 1,3) erwartungsgemäß deutlich schmaler.

Tab. 4-21 Typischer Unsicherheitsbereich der 208 alternativen Verläufe von Ergebnisparametern für den Schritt 2 der UaSA

Phase / Ort	Ergebnisvariable	(95%, 95%)-Toleranzgrenzen Quotient / Faktor zum Referenzwert *		Anmerkungen	
		Vor Abwaschen t < 2,5E5 s	Nach Abwaschen t ≥ 2,5 E5 s		
Im Gas	I ₂ (g)	6,0 / 5,0		Direkt quelltermrelevante Spezies	
	CH ₃ I(g)	6,0 / 20	7,0 / 7,0		
	IOx	10,0 / 4,0			
	CsI-Aerosol	2,0 / 1,7			
	Max. freisetzbare Iodmenge, I _{max}	Aerosolphase 3,1 / 1,3 Phase mit flüchtigem Iod 7 / 3,5	6 / 5,3		Vergleichbar mit dem Iodquellterm in Reaktoranalysen
	O ₃ (g)	2,0 / 2,0			
Am Condenser	CsI-Condensernass	20,0 / 4,0	>100 / 20	Große Unsicherheit	
	CsI-Condensertrocken	2,5 / 5,0			
	I ₂ -Condensernass	> 1000 / 7,0	50 / 7,0	Große Unsicherheit	
	I ₂ -Condensertrocken	> 1000 / 7,0	50 / 7,0	Große Unsicherheit	
An der Stahlwand	I ₂ (ads)-Stahl	8,0 / 8,0			
	FeI ₂	2,0 / 30			
	fixed-I	3,0 / 10			
Im Sumpf	I ₂ (w)	10,0 / 3,0			
	I ⁻ (w)	10,0 / 1,05	5,0 / 1,05	Unsicherheit kontinuierlich zunehmend	
	HOI(w)	0,125 / 6,0			
	Ag(w)	5,0 / 1,4			
	AgOx	1,3 / 1,3			
	AgI(w)	1,3 / 5,0			
*) untere Grenze = Referenzwert / Q; obere Grenze = Referenzwert * F					

In Tab. 4-22 sind alle unsicheren Parameter zusammengefasst, die einen Einfluss auf die Unsicherheit der verschiedenen Ergebnisvariablen haben. Die quelltermrelevanten Variablen sind gekennzeichnet. Auch die Variable „Maximal freisetzbare Iodmenge“ (I_{\max}) ist eingetragen. Ebenso sind die Module angegeben, in denen die unsicheren Parameter Verwendung finden. THY ist das Thermohydraulikmodul und AERIKA das Aerosolmodell im Aerosol- und Spaltprodukt-Modul AFP.

Mit Ausnahme von Variable 16 (I_2 -Einspeiserate) werden alle unsicheren Parameter von 1 bis 23 im Aerosolmodell AERIKA verwendet und haben daher nur Einfluss auf die gerechneten Aerosolkonzentrationen im Containment. Nur der Rang-Korrelationskoeffizient (RCC) des Parameters 21 (Agglomerationsformfaktor der Aerosolpartikel) hat temporär einen Wert $RCC > 0,6$.

Von den im eigentlichen Iodmodell AIM verwendeten unsicheren Parametern haben nur 9 einen direkten Einfluss auf die Unsicherheit von mindestens einer quelltermrelevanten Ergebnisvariablen. Nur 3 davon haben einen Rang-Korrelationskoeffizienten, der temporär einen Wert $|RCC| > 0,6$ hat (Parameter 43, 73 und 81). Der Einfluss der Parameterunsicherheiten auf die Unsicherheit der berechneten Iodspezies und die des fiktiven Quellterms I_{\max} ist etwas unterschiedlich. So haben einige Parameter, die für einzelne Iodspezies wichtig sind, auf die Unsicherheit von I_{\max} keinen nennenswerten Einfluss. Das sind die Parameter 65, 70 und 72. Parameter 73 würde formal auch dazugehören, hat aber eine Sonderstellung.

Wie in den Abb. 4-22 und Abb. 4-28 zu erkennen ist, hat der unsichere Parameter 73 am Anfang des Versuches einen erheblichen Einfluss auf die Unsicherheit der berechneten $I_2(g)$ - und IOx-Konzentrationen. In beiden Fällen ist $|RCC| > 0,6$. Dieser temporäre Einfluss ist verständlich, da das ins Containment freigesetzte I_2 schnell auf den trockenen und nassen Farboberflächen abgelagert wird. Zu dieser Zeit wird aber I_{\max} vom CsI-Aerosol dominiert und Parameter 73 scheint sich daher nicht als unsicherer Parameter von I_{\max} bezüglich der Modellunsicherheit auszuwirken. Da sich in anderen Szenarien der Zeitablauf und damit die Zusammensetzung von I_{\max} verändern kann, ist es sinnvoll, Parameter 73 in der Liste wichtiger unsicherer Parameter zu belassen.

Tab. 4-22 Alle unsicheren Parameter mit Einfluss auf die Unsicherheit der Ergebnisvariablen in der UaSA, Schritt 2

Par. Nr. *	Unsicherer Parameter	Beeinflusste Ergebnisvariable **	Modul
7	Dampf-Einspeiserate	Ag(w)	THY
9	CsI-Einspeisung	$\Gamma(w)$, I_{\max}	AFP/ AERIKA
10	Massengemittelter Partikeldurchmesser des CsI-Aerosols	I_{\max}	AFP/ AERIKA
11	Ag-Einspeiserate	Ag(w)	AFP/ AERIKA
13	AgOx-Einspeiserate	AgOx(w)	AFP/ AERIKA
16	I ₂ -Einspeiserate	I_{\max}	AIM
17	Diffusionsgrenzschichtdicke	IOx , CsI(ae) , CsI-Wd	AFP/ AERIKA
18	Effektive Aerosolmaterialdichte	CsI(ae) , CsI-trCd, Ag(w), I_{\max}	AFP/ AERIKA
20	Dynamischer Formfaktor der Partikel	CsI(ae), I_{\max}	AFP/ AERIKA
21	Agglomerationsformfaktor der Partikel	CsI(ae) , CsI-trCd, CsI-Wd, Ag(w), I_{\max}	AFP/ AERIKA
22	Kollisionseffizienz der Partikel	I_{\max}	AFP/AERIKA
23	Mittlere Wasserfilmdicke	CsI-naCd	AFP/ AERIKA
24	Dosisleistung im Gas	O ₃ (g)	AIM
26	Spezifische Oberfläche der Silberpartikel im Sumpf	I ₂ (w), $\Gamma(w)$, AgI(w)	AIM
30	Zur Chemisorption verfügbare Stahlmenge an der Oberfläche	FeI ₂ , fixed-I	AIM
33	Wasserseitiger I ₂ -Massentransferkoeffizient	I₂(g) , $\Gamma(w)$, AgI(w), I_{\max}	AIM
39	Rückreaktion der I ₂ -Hydrolyse im Sumpf (Schritt 1 von 2)	HOI(w),	AIM
43	Radiolytische I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	I₂(g) , CH ₃ I(g), IOx , I ₂ -trCd, I ₂ -naCd, I ₂ -St, I ₂ (w), HOI(w), I_{\max}	AIM
44	Rückreaktion der radiolytischen I ₂ -Bildung aus I ⁻ im Sumpf	I ₂ (w), HOI(w),	AIM
48	AgI-Bildung aus AgOx + I ⁻	AgI(w)	AIM
53	Hydrolyse von CH ₃ I durch H ₂ O	CsI-naCd	AIM

Par. Nr. *	Unsicherer Parameter	Beeinflusste Ergebnisvariable **	Modul
64	I ₂ (w)-Konversion zu I ⁻ (w) an der Stahloberfläche	I ₂ (w), HOI(w), I _{max}	AIM
65	Bildung von IOx(g) aus I ₂ and O ₃	I ₂ (g), I ₂ -St	AIM
67	Radiolytische O ₃ -Bildung	O ₃ (g)	AIM
68	Radiolytische O ₃ -Zersetzung	O ₃ (g)	AIM
70	O ₃ -Zersetzung an Stahloberflächen	IOx, O ₃ (g)	AIM
72	Radiolytische CH ₃ I- Zersetzung	CH ₃ I(g)	AIM
73	I ₂ -Ablagerung auf trockener und nasser Farbe	I ₂ (g), IOx, I ₂ -trCd, I ₂ -naCd	AIM
81	Radiolytische CH ₃ I-Bildung aus physisorbiertem Iod auf Farbe	I ₂ (g), CH ₃ I(g), I ₂ -trCd, I ₂ -naCd, I _{max}	AIM
84	I ₂ -Ablagerung auf trockenem Stahl	I ₂ -St	AIM
85	I ₂ -Resuspension von trockenem Stahl	I ₂ -St	AIM
89	Reaktion von chemisorbiertem I ₂ zu physisorbiertem I ₂ und fixed-I	Fixed-I	AIM
* grau: RCC > 0,6; ** fett direkt quelltermrelevante Ergebnisvariable			

5 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

Es wurde eine Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse (UaSA) zur Simulation des Iodverhaltens im Containment unter Unfallbedingungen in 2 Schritten durchgeführt. Als Referenzlauf diente eine COCOSYS-AIM-Nachrechnung des PHEBUS-Versuchs FPT1. Von den insgesamt 93 berücksichtigten unsicheren Parametern sind 56 Iod-Reaktionskonstante. Eine vergleichbare Studie ist auch mit anderen Iodmodellen nicht bekannt.

Die 208 Variationsrechenläufe für die Studie konnten ohne nennenswerte Schwierigkeiten durchgeführt werden. Lediglich bei 3 Läufen musste der Systemzeitschritt reduziert werden. Dies zeugt von einer hohen numerischen Robustheit von COCOSYS-AIM, da viele Iod-Eingabe- und Modellparameter in einem weiten Bereich variiert wurden. Das chemisch-physikalische Ergebnis aller Rechenläufe ist plausibel.

Die Studie wurde in zwei Schritten durchgeführt. Im ersten Schritt wurden die Unsicherheiten der quelltermrelevanten Ergebnisvariablen vor allem durch zwei unsichere Parameter dominiert: (1) die $I_2(g)$ -Einspeiserate vom Kühlkreislauf ins Containment und (2) die spezifische Oberfläche der Silberpartikel im Sumpf (S_{Ag}), ein Parameter des Iod/Silber-Modelles. Für den zweiten Schritt wurden daher die Unsicherheitsbereiche für die $I_2(g)$ -Einspeiserate und S_{Ag} reduziert und für vier Parameter des Radiolysemodells im Sumpf erweitert. Auf diese Weise konnten weitere unsichere Parameter mit deutlichem Einfluss auf die Unsicherheit des Iodquellterms erfasst werden.

Die Ergebnisvariable „Maximal freisetzbare Iodmenge“ (I_{max}) umfasst die flüchtigen Iodspezies I_2 und RI, das feindisperse Aerosol IOx und das Aerosol Csl. I_{max} stellt ein Maß für den potentiellen Iodquellterm aus der Anlage dar. Die typische Unsicherheit des mit AIM berechneten späten Iodquellterms mit vorwiegend flüchtigen Iodspezies liegt bei (Quotient 7,0 / Faktor 5,0) um den Referenzwert. Bei einem frühen Iodquellterm mit viel Csl-Aerosol, das in COCOSYS mit dem Modell AERIKA gerechnet wird, ist der Unsicherheitsbereich mit (Quotient 3,1 / Faktor 1,3) erwartungsgemäß schmaler.

Generell sind die ermittelten Unsicherheiten für die quelltermrelevanten Iodspezies deutlich größer als die der thermohydraulischen und Aerosolergievariablen. Die gewonnenen Unsicherheitsaussagen beziehen sich auf das Iodmodell, die Wechselwirkung mit anderen COCOSYS-Modellen (Thermohydraulik, Aerosolverhalten) aber auch die Unsicherheit von Messgrößen, die in der Rechnung verwendet wurden. Nicht

erfasst ist die Rückhaltung der Iodspezies auf einem Leckagepfad und in den Filtern einer Venting-Strecke, da das PHEBUS-Containment dicht war. Die selektive Rückhaltung der Iodspezies auf einem Pfad bzw. in den Filtern einer Venting-Strecke kann die Unsicherheiten und Sensitivitäten eines potentiellen Quellterms ändern.

Zu berücksichtigen ist, dass einige Ergebnisse der COCOSYS-AIM-Referenzrechnung bereits deutlich von den Messergebnissen abweichen. So wurde die gemessenen $I_2(g)$ -Konzentration um einen Faktor 0.2 unterschätzt und liegt somit außerhalb des ermittelten (95%/95%)-Toleranzbereichs für $I_2(g)$, (vgl. Abb. 3-3 und Abb. 4-21). Ein möglicher Grund ist eine im Modell und daher auch in der UaSA nicht erfasste Reaktion. In Frage kommt die radiolytische Zersetzung von abgelagertem CsI-Aerosol in flüchtiges $I_2(g)$ und CsOH. Diese Reaktion wurde erstmals im OECD STEM Projekt /STE 11/ gemessen. Details liegen noch nicht vor. Die Messergebnisse aller anderen quelltermrelevanten Iodspezies liegen innerhalb der ermittelten Toleranzbereiche.

Die Sensitivitätsaussagen zeigen, dass nur wenige unsichere Parameter zur Unsicherheit der wesentlichen Ergebnisvariablen beitragen. Auf die iodquelltermrelevanten Ergebnisvariablen $I_2(g)$, CH_3I , IOx-Aerosol und I_{max} , aber ohne Berücksichtigung des CsI-Aerosols, haben insgesamt sieben unsichere Parameter aus AIM einen Einfluss. Davon haben nur drei ein hohes Sensitivitätsmaß (Rang-Korrelationskoeffizient $> 0,6$). Dazu kommen zwei Parameter, die das Sensitivitätsergebnis im Schritt 1 der UaSA dominierten. Die wesentlichen unsicheren Parameter des Iodmodells AIM sind daher:

- Reaktionskonstante für die radiolytische I_2 -Bildung aus I^- im Sumpf
- Reaktionskonstante für die I_2 -Ablagerung auf trockener und nasser Farbe
- Reaktionskonstante für die radiolytische CH_3I -Bildung aus physisorbiertem Iod auf Farbe
- Spezifische Oberfläche der Ag- und AgOx-Partikel im Sumpf (aus Schritt 1)
- I_2 -Einspeiserate aus dem Kühlkreislauf ins Containment (aus Schritt 1).

Die I_2 -Einspeiserate ins Containment ist eine AIM-Eingabegröße, die aus FPT1-Messwerten abgeleitet wurde. Die I_2 -Einspeiserate hat in den Variationsrechnungen einen unerwartet langen (fast 3 Tage) Einfluss auf die Unsicherheit den Iodquellterms. Dies hat auch auf Unfallanalysen von realen Anlagen Konsequenzen. Die Iod-Freisetzung wird dort von Kernzerstörungscodes, wie z. B. ATHLET-CD, gerechnet. Das bedeutet, dass die Speziation des freigesetzten Iods mit gas- und aerosolförmigen

Anteilen sehr genau gerechnet werden muss. Die Bedeutung der I_2 -Einspeiserate ins Containment für den Quellterm wird bei Reaktor Anwendungen noch stärker werden, wenn der Anteil an gasförmigem Iod über dem in PHEBUS FPT1 (1,25 %) liegt, wie z. B. in FPT3 (bis 80%), der mit einem anderen Steuerstabmaterial gefahren wurde.

Die auffälligsten unsicheren Parameter des Aerosolmodells AERIKA sind:

- Agglomerations- und dynamischer Formfaktor der Aerosolpartikel
- Kollisionseffizienz der Aerosolpartikel.

Da die Unsicherheit des berechneten Aerosolverhaltens in Containment und des Aerosoliods im potentiellen Quellterm verhältnismäßig klein ist, sind unmittelbar keine Modellverbesserungen an AERIKA notwendig.

Alle anderen Parameter sind Bestandteile von Iod-Einzelmodellen in AIM. Zur Verbesserung der Aussagefähigkeit muss daher in der Regel das ganze Einzelmodell überarbeitet werden. Im Fall der radiolytischen I_2 -Bildung im Sumpf müssen z. B. auch die pH-Abhängigkeit sowie die Rückreaktion in die Modellverbesserung mit einbezogen werden.

In FPT1 wurde das Iodverhalten unter realitätsnahen Bedingungen aber mit vereinfachter Geometrie und Thermohydraulik gemessen. Wesentliche Parameter des PHEBUS-Containments, wie das Gas- und Sumpfvolumen oder die Farboberfläche, sind nach einem französischen 900 MWe DWR skaliert. Bei der Simulation des Iodverhaltens für andere vergleichbare Anlagen ist daher mit ähnlichen Ergebnissen zu rechnen, nur werden die Unsicherheiten einiger thermohydraulischer Parameter (Temperatur, relative Feuchte, atmosphärische Massenströme) einen stärkeren Einfluss auf das Iodergebnis haben. In einem Benchmark, der im Rahmen von SARNET2 zu den THAI-Mehrraumversuchen Iod-11 und Iod-12 durchgeführt wurde, hatten vor allem die lokal unterschiedliche relative Feuchte und die Atmosphärenströme zwischen den Räumen und damit indirekt die Wahl der Containment-Nodalisierung einen ausgeprägten Einfluss auf das Iodergebnis gezeigt /WEB 12/.

Für einen gezielten Abbau der Unsicherheiten im Iodmodell AIM ist es erforderlich, die folgenden Teilmodelle zu überarbeiten:

1. Iod/Silber-Reaktion im Sumpf inklusive der spezifischen Oberfläche der Ag- und AgOx-Partikel, die sich mit dem Absetzverhalten der Silberpartikel ändert.

2. Radiolytische I_2 -Bildung aus I^- im Sumpf inklusive pH-Abhängigkeit und Rückreaktion unter Einbeziehung der I_2 -Bildung aus $IO_3^-(w)$.
3. I_2 -Ablagerung auf / Resuspension von trockener Farbe und auf Farbe bei Wandkondensation inklusive Abwaschen in den Sumpf.
4. Radiolytische CH_3I -Bildung aus physisorbiertem Iod auf Farbe unter trockenen und nassen Bedingungen unter Einbeziehung der Bildung aus chemisorbiertem Iod.

Prinzipiell besteht auch ein hoher Einfluss durch I_2 -Einspeiserate vom Kühlkreislauf ins Containment. Diese wird in Anwendungsrechnungen von Codes wie z. B. ATHLET-CD berechnet und ist kein Bestandteil des Iodmodells AIM.

Eine Voraussetzung für eine erfolgreiche Überarbeitung dieser Teilmodelle sind zudem neue, belastbare experimentelle Daten.

Da die **Iod/Silber-Reaktion im Sumpf** weitgehend unabhängig von radioaktiver Strahlung im Sumpf ist, kann die Reaktion unter realistischen Bedingungen in der THAI-Anlage untersucht werden. Darüber hinaus spielt auch eine belastbare Beschreibung des Aerosoltransports im Primärsystem und im Containment (z. B. Abwaschen von Ag-Partikeln von Wänden und Böden sowie die Rückhaltung in Pfützen) eine Rolle. Abwaschversuche wurden in der THAI-Anlage bereits durchgeführt, weitere mit Silber sind geplant.

Zur **radiolytischen I_2 -Bildung aus I^- im Sumpf** existieren Daten aus aktuellen EPICUR-Experimenten, aber auch aus älteren Versuchen, wie z. B. von AEA, die mit AIM noch genauer ausgewertet werden. Auch ein Vergleich der Radiolyse-Ergebnisse mit Resultaten der mechanistischen Codes LIRIC oder INSPECT wäre zielführend.

Zur **I_2 -Ablagerung auf / Resuspension von trockener Farbe** und zur **radiolytischen CH_3I -Bildung aus physisorbiertem Iod auf Farbe** sind neue Daten aus Experimenten der OECD-Vorhaben BIP-2 (Behaviour of Iodine Project) und STEM (Source Term Evaluation and Mitigation) zu erwarten. Für die I_2 -Ablagerung bei Wandkondensation wurde anhand von THAI-Versuchen ein neues Modell entwickelt, das in COCOSYS-AIM integriert werden soll.

Für Unfallrechnungen mit COCOSYS kann die **I_2 -Einspeiserate** ins Containment als Ergebnis von Kernzerstörungs- und Kühlkreislaufrechnungen vorgegeben werden. Bis-

herige Annahmen, wie z. B. $< 5\%$ des Iods sind gasförmig, reichen für Anwendungen im Reaktorfall nicht mehr aus. Vielmehr ist eine belastbare Präzisierung der I_2 -Einspeiserate in das Containment erforderlich. Die zu erwartenden Ergebnisse aus den entsprechenden o. g. internationalen Untersuchungsprogrammen zur Bildung von flüchtigem Iod im Primärsystem (z. B. CHIP (IRSN), und EXSI (VTT)) sind künftig in der Modellierung zu berücksichtigen.

Insgesamt bestätigt und quantifiziert die Unsicherheits- und Sensitivitätsstudie zum Iodmodell AIM in COCOSYS die anhand von Versuchsnachrechnungen und Parameterstudien schon lange vermuteten, noch bestehenden großen Ungenauigkeiten der Iod-Simulation im Containment und insbesondere der Berechnung des potentiellen Iodquellterms an die Umgebung. Die Studie zeigt aber auch, dass durch neue experimentelle Daten und einer gezielten Weiterentwicklung von wenigen Iod-Einzelmodellen diese Unsicherheiten effizient reduziert werden können.

6 Literatur

- /ALL 08/ Allelein, H.-J., Arndt, S., Klein-Hessling, W., Schwarz, S., Spengler, C., Weber, G.
"COCOSYS Status of development and validation of the German containment code system", Nucl. Eng. Des., 238 (4), p. 872-889 (2008)
- /BIP 11/ OECD-NEA, "OECD/NEA Behaviour of Iodine Project", <http://www.oecd-nea.org/jointproj/bip.html> (2011)
- /BOS 08/ Bosland, L., Funke, F., Girault, N., Langrock, G.
"PARIS project Radiolytic oxidation of molecular iodine in containment during a nuclear reactor severe accident; Part 1. Formation and destruction of air radiolysis products - Experimental results and modelling", Nucl. Eng. and Des. 238 (2008) 3542-3550
- /BOS 12/ Bosland, L., Weber, G., Klein-Hessling, W., Girault, N., Clement, B.
„Modelling and interpretation of iodine behaviour in PHEBUS FPT-1 containment with ASTEC and COCOSYS codes”, Nuclear Technologies 177, 36-62 (Jan. 2012)
- /CHE 12/ Chevalier-Jabet, K., Cousin, F., Cantrel, L., Seropian, C.
„Source term assessment with ASTEC and associated uncertainty analysis using SUNSET tool”, 5th European Review Meeting on Severe Accident Research (ERMSAR-2012), Cologne (Germany), March 21-23, 2012
- /DIC 03/ Dickinson, S., Baston, G.M.N., Sims, H.E., Funke, F., Cripps, R., Bruchertseifer, H., Jäckel, B., Güntay, S., Glänneskog, H., Liljenzin, J.O., Cantrel, L., Kissane, M.P., Krausmann, E., Rydl, A.
"ICHEMM Final Synthesis Report", 5th Euratom Framework Programme 1998-2002, Key Action Nuclear Fission, SAM-ICHEMM-D021 (March 2003)
- /FIS 12/ Fischer, K., Weber, G., Funke, F., Langrock, G.
„Experimental Determination and Analysis of Iodine Mass Transfer Coefficients from THAI Test Iod-23”, 5th European Review Meeting on Severe Accident Research (ERMSAR-2012), Cologne (Germany), March 21-23, 2012

- /FUN 01/ Funke, F.
 "Verbesserung und Erweiterung der Iod-Modellierung für IMPAIR und COCOSYS mit Stand 2001", FANP NT2/2001/183, AREVA Erlangen (April 2001)
- /FUN 08/ Funke, F.
 "Testing of the empirical inorganic iodine radiolysis model in AIM using data from the EPICUR tests S1-3, S1-4, S1-5 and S1-11", AREVA NP NTCR-G/2008/en/0154A (April 2008)
- /FUN 96/ Funke, F. et al.
 "Iodine-steel reactions under severe accident conditions in light-water reactors", Nucl. Eng. & Des. 166 (1996) 357-365
- /FUN 99a/ Funke, F., Zeh, P., Hellmann, S.
 "Radiolytic oxidation of molecular iodine in the containment atmosphere", OECD Workshop on Iodine Aspects of Severe Accident Management, Vantaa, Finland, May 18 – 20, 1999,
- /FUN 99b/ Funke, F., Zeh, P., Greger, G.-U., Hellmann, S.
 "Theoretische und experimentelle Untersuchungen zum Verhalten des Iods bei auslegungsüberschreitenden Ereignissen Flüchtiges Iod", Final Report of a project funded by the Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie (BMBF) in the frame of the Reactor Safety Research program under no. 1501023 (Aug. 1999)
- /FUR 85/ Furrer, M., Cripps, R.C., Gubler, R.
 „Measurement of the Iodine Partition Coefficient“, Nucl. Technol., 70, 290-293 (1985)
- /GIR 04/ Girault, N. et al.
 PHEBUS FP containment interpretation circle; FPT-1 final interpretation report, IRSN Note technique DPAM/SEMIC/04-06 (Oct. 2004)

- /GLA 05/ Glaeser, H., Hora, A., Krzykacz-Hausmann, B., Skorek, T.
 „Aussagesicherheit von ATHLET-Rechenprogrammergebnissen für eine deutsche Referenz-DWR-Anlage mit 200%-Bruch im kalten Strang“, GRS-A-3279 (Juli 2005)
- /GLA 08/ Glaeser, H., Krzykacz-Hausmann, B., Luther, W., Schwarz, S., Skorek, T.
 Methodenentwicklung und exemplarische Anwendungen zur Bestimmung der Aussagesicherheit von Rechenprogrammergebnisse, GRS-A-3443 (November 2008)
- /GRE 95/ Greger, G.-U., Funke, F., Bleier, A., Hellmann, S., Beuerle, M.
 "Theoretische und experimentelle Untersuchungen zum Verhalten des Iods bei auslegungsüberschreitenden Ereignissen Organoiod, Iod/Silber-Reaktion, Iod/Eisen-Reaktion. Teil 3 Iod/Silber-Reaktion“, Abschlussbericht Forschungsprogramm Reaktorsicherheit Vorhaben BMFT 1500823 (September 1995)
- /GÜN 92/ Guntay, S., Cripps, R.
 "IMPAIR-3 A Computer Program to Analyze the Iodine Behaviour in Multi-compartments of a LWR Containment", PSI-Bericht Nr. 128, Paul Scherrer Institut, Würenlingen, Switzerland (1992)
- /GUT 70/ Guttman, I.
 Statistical tolerance regions, classical and Bayesian. Griffin, London 1970
- /HEL 96/ Hellmann, S., Funke, F., Greger, G.-U., Bleier, A., Morell, W.
 "The reaction between iodine and organic coatings under severe PWR accident conditions - an experimental parameter study", OECD Workshop on the Chemistry of Iodine in Reactor Safety, PSI, Würenlingen, Switzerland, June 10 - 12, 1996
- /HOF 93/ Hofer, E.
 „Probabilistische Unsicherheitsanalyse von Ergebnissen umfangreicher Rechenmodelle“, GRS-A-2002 (Januar 1993)

- /HOF 99/ Hofer, E.
 "Sensitivity analysis in the context of uncertainty analysis for computationally intensive models", Computer Physics Communications 117 (1999) 21-34
- /IMA 85/ Iman, R.L., Shortencarier, M.J., Johnson, J.D.
 "A FORTRAN77 Program and User's Guide for the Calculation of Partial Correlation and Standardized Regression Coefficients", NUREG/CR-4122, SAND85-0044 (June 1985)
- /JAC 00/ Jacquemain, D., Bourdon, S., Bremaecker, A., Barrachin, M.
 "FPT-1 final report", CEA/IPSN/DRS/SEA/PEPF - rapport SEA 1/100 - Report PHEBUS FP IP/00/479 (2000)
- /KLE 10/ Klein-Heßling, W., Arndt, S., Erdmann, W., Luther, W., Nowack, H., Reinke, N., Schramm, B., Schwarz, S., Spengler, C., Stewering, J., Weber, G.
 „Gezielte Validierung von COCOSYS und ASTEC sowie generische Anwendungsrechnungen mit diesen Rechenprogrammen“, GRS-A-3489 (2010)
- /KLE 12/ Klein-Heßling, W. et al.
 "COCOSYS V2.4 User's Manual", Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Köln, Juli 2012
- /KLO 99/ Kloos, M., Hofer, E.
 "SUSA - PC, A Personal Computer version of the program system for uncertainty and sensitivity analysis of results from computer models, Version 3.2, User's Guide and Tutorial", GRS, Garching, Germany (August 1999)
- /KRU 58/ Kruskal, W. H.
 Ordinal Measures of Association. J. Amer. Statist. Assoc. 53, Dec. 1958, 814-861
- /KRZ 01/ Krzykacz-Hausmann, B.
 "Epistemic Sensitivity Analysis based on the Concept of Entropy", Proceedings of SAMO 2001, Third International Symposium on Sensitivity Analysis of Model Output. Madrid, June 18-20, 2001

- /KRZ 88/ Krzykacz, B.
 „MEDUSA 01 – Ein Programm zur Generierung von “Simple Random”- und
 “Latin Hypercube” Stichproben für Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen
 von Ergebnissen umfangreicher Rechenmodelle; GRS-A-1496 (1988)
- /KRZ 90a/ Krzykacz, B.
 “EQUUS, A Computer Program for the Derivation of Empirical Uncertainty”,
 Statements on Results from Large Computer Models, GRS-A-1720 (1990)
- /KRZ 90b/ Krzykacz, B.
 “SAMOS, A Computer Program for the Derivation of Sensitivity Measures
 of Results from Large Computer Models”, GRS-A-1700 (1990)
- /KRZ 94/ Krzykacz, B., Hofer, E., Kloos, M.
 “A software system for probabilistic uncertainty and sensitivity analysis of
 results from computer models”, Proceedings of PSAM-II, San Diego, Cali-
 fornia, U.S.A., March 20-25, 1994
- /LAN 94/ Langhans, J., Friederichs, H.G., Hofer, E., Krzykacz, B., Weber, G.
 “Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse zum Aerosolmodell im FIPLOC-M,
 Teil 1 Trockenes Aerosolverhalten im VANAM-Experiment M2“, GRS-A-
 2183 (1994)
- /LAN 05/ Langrock, G.
 "PARIS - Overview of the experimental results", 1st meeting of the Interna-
 tional Source Term Chemistry Interpretation Circle (ISTP-CHEMIC), Aix-en-
 Provence, October 20, 2005
- /NEU 08/ Neumeister, M.
 "Iod-Ablagerung auf Farboberflächen in wässriger Phase", Diplomarbeit an
 der Georg-Simon-Ohm-Hochschule Nürnberg, März 2008
- /PIN 05/ Pinkert, A.
 „Validierung und Verbesserung der Modellierung der Iod Radiolyse in
 schweren Kernkraftwerksstörfällen“, Diplomarbeit an der Friedrich-
 Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg, März 2008

- /SAL 00/ Saltelli, A., Chan, K., Scott, E. M.
(eds) Sensitivity Analysis, J. Wiley & Sons (2000)
- /SPE 12/ Spengler, C., Arndt, S., Bakalov, I., Band, S., Eckel, J., Klein-Hessling, W.,
Nowack, H., Pelzer, M., Reinke, N., Sievers, J., Sonnenkalb, M., Weber, G.
„Weiterentwicklung der Rechenprogramme COCOSYS und ASTEC“, GRS-
A- 3654 (2012)
- /STE 11/ OECD-NEA, “OECD/NEA Source Term Evaluation and Mitigation (STEM)
Project”, <http://www.oecd-nea.org/jointproj/stem.html> (2011)
- /WEB 05/ Weber, G.
"Weiterentwicklung und Validierung des Iodmodells AIM-F2 in COCOSYS
Intensivierte Validierung der Rechenprogramme COCOSYS und ASTEC",
GRS-A-3299 (2005)
- /WEB 09a/ Weber, G., Funke, F.
"Description of the iodine model AIM-3 in COCOSYS", GRS-A-3508 (2009)
- /WEB 09b/ Weber, G., Bosland, L., Glowa, G., Funke, F., Kanzleiter T.
"ASTEC, COCOSYS, and LIRIC Interpretation of the Iodine Behaviour in
the Large-Scale THAI Test Iod-9", ICONE-17, Brussels, Belgium, July 12-
16, 2009
- /WEB 12/ Weber, G., Herranz, L.E., Bendiab, M., Fontanet, J., Funke, F., Gonfiotti,
B., Ivanov, I., Krajewski, S., Manfredini, A., Paci, S., Pelzer, M., Sevón, T.
"SARNET2 WP8 Benchmark on THAI multi-compartment iodine tests – Re-
sults for test Iod-11", 5th European Review Meeting on Severe Accident
Research (ERMSAR-2012), Cologne, Germany, March 21-23, 2012

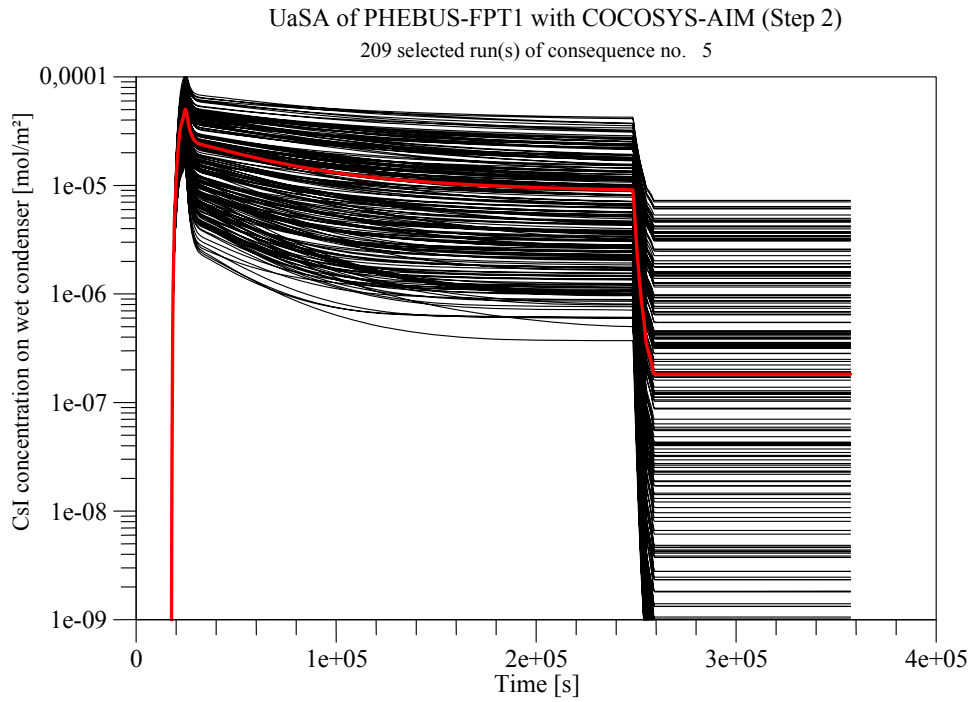


Abb. 7-3 CsI-Aerosolkonzentration am nassen Condenser, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

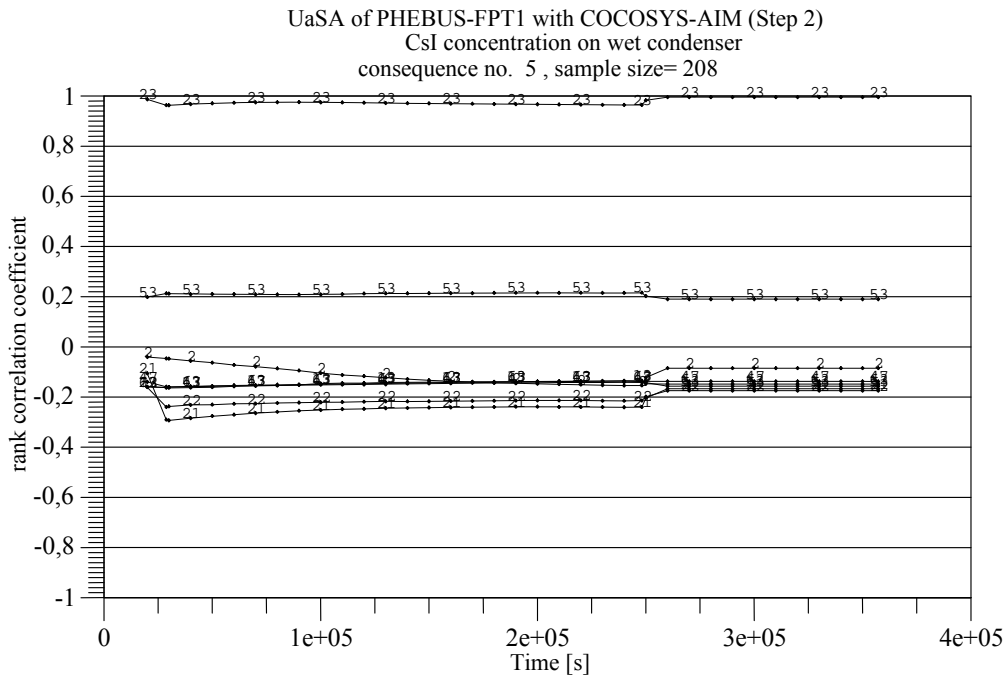


Abb. 7-4 CsI-Aerosolkonzentration am nassen Condenser, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten

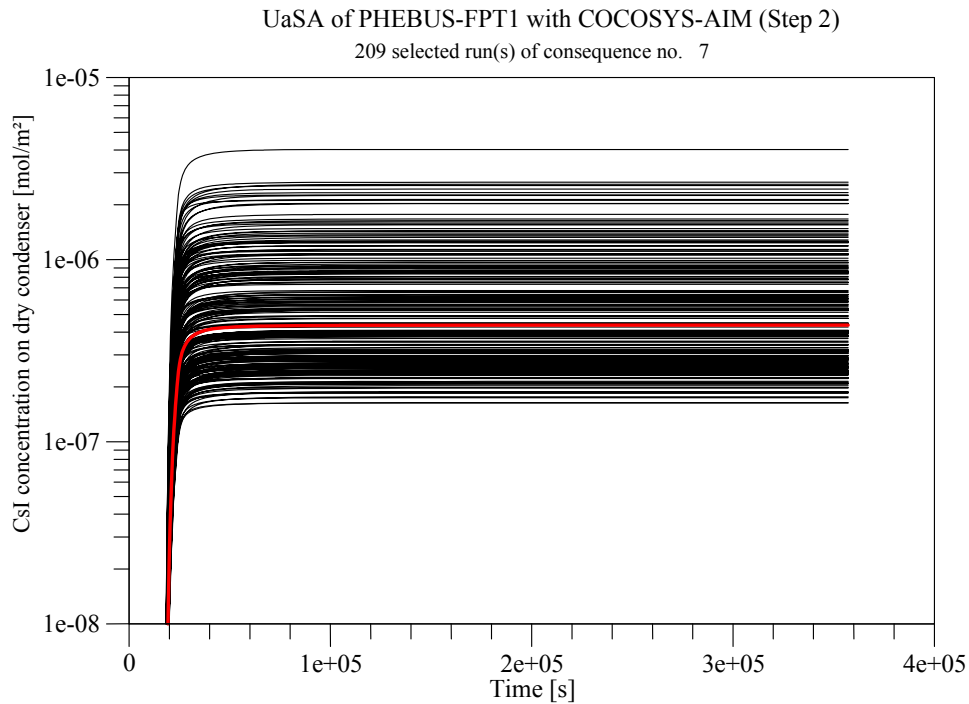


Abb. 7-5 Csl-Aerosolkonzentration am trockenen Condenser, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

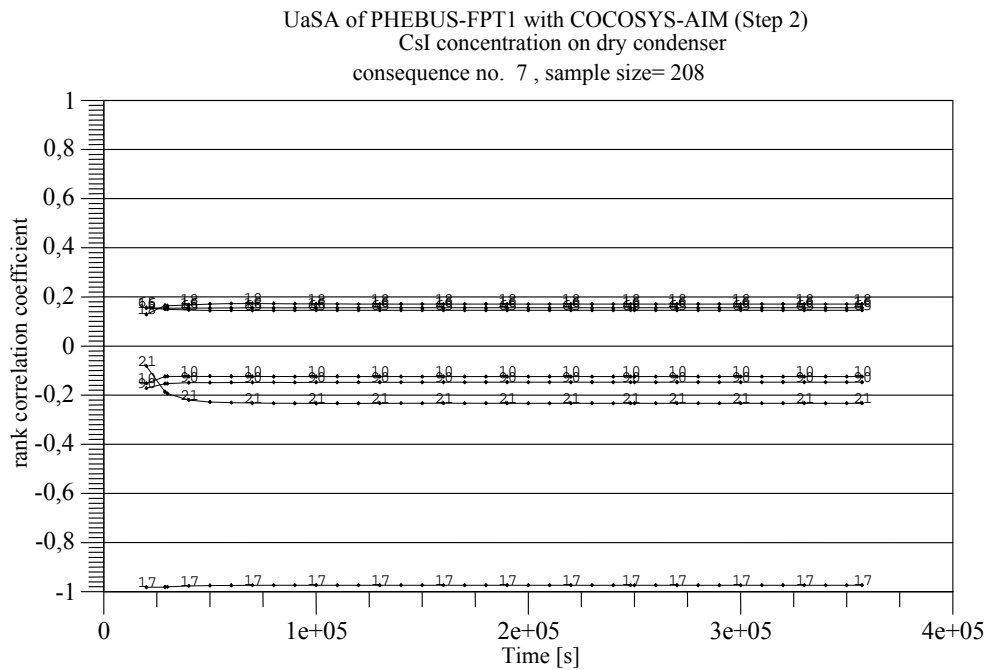


Abb. 7-6 Csl-Aerosolkonzentration am trockenen Condenser, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten

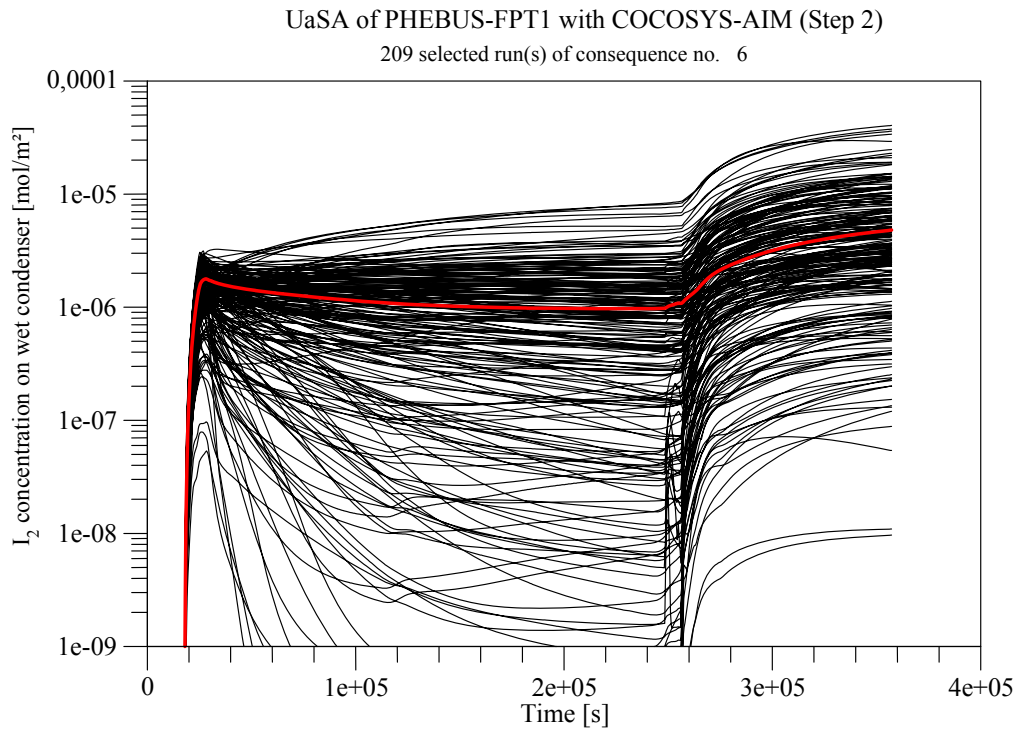


Abb. 7-7 I₂-Aerosolkonzentration am nassen Condenser, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

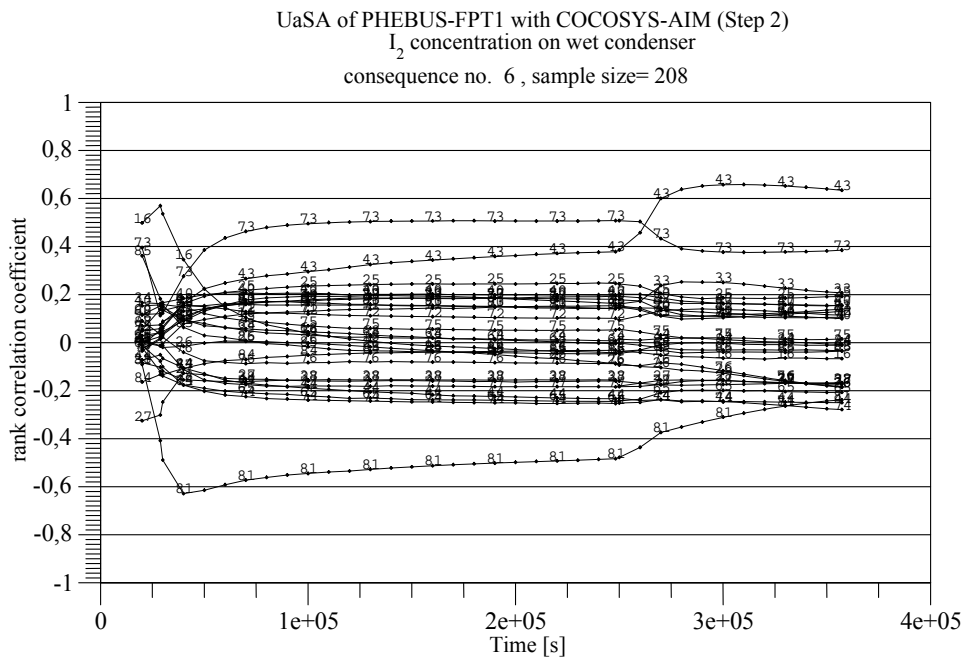


Abb. 7-8 I₂-Aerosolkonzentration am nassen Condenser, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten

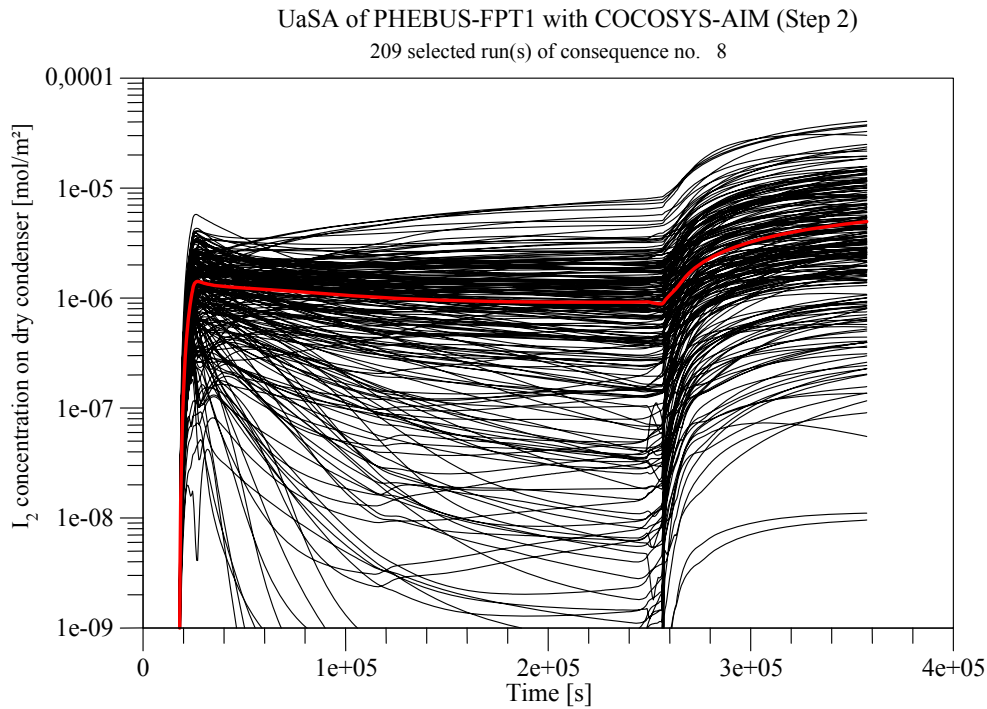


Abb. 7-9 I₂-Aerosolkonzentration am trockenen Condenser, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

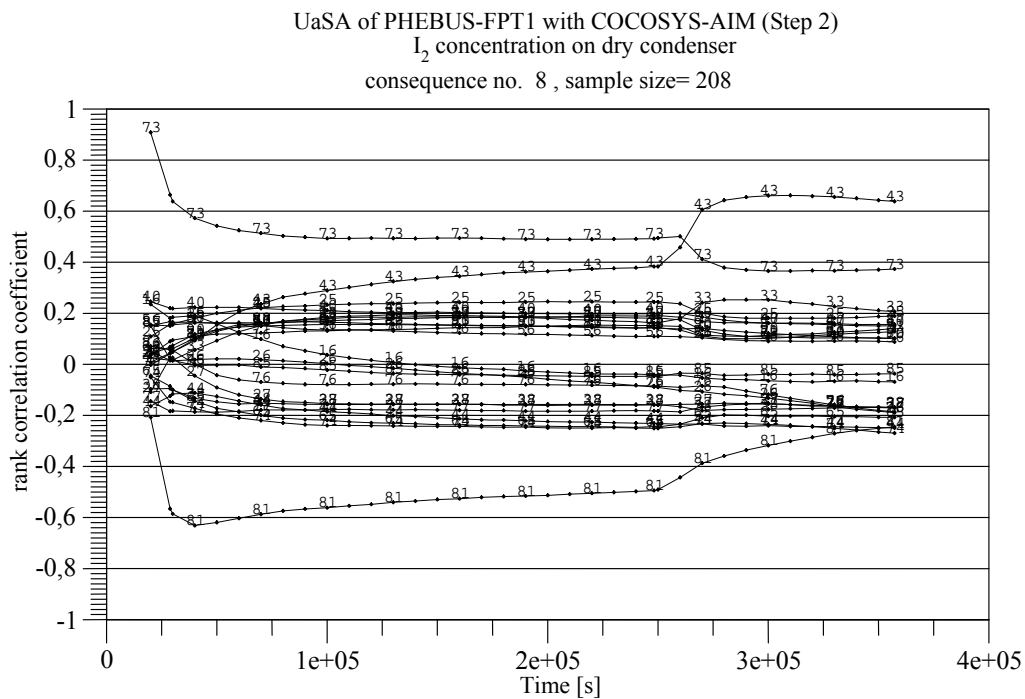


Abb. 7-10 I₂-Aerosolkonzentration am trockenen Condenser, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

209 selected run(s) of consequence no. 10

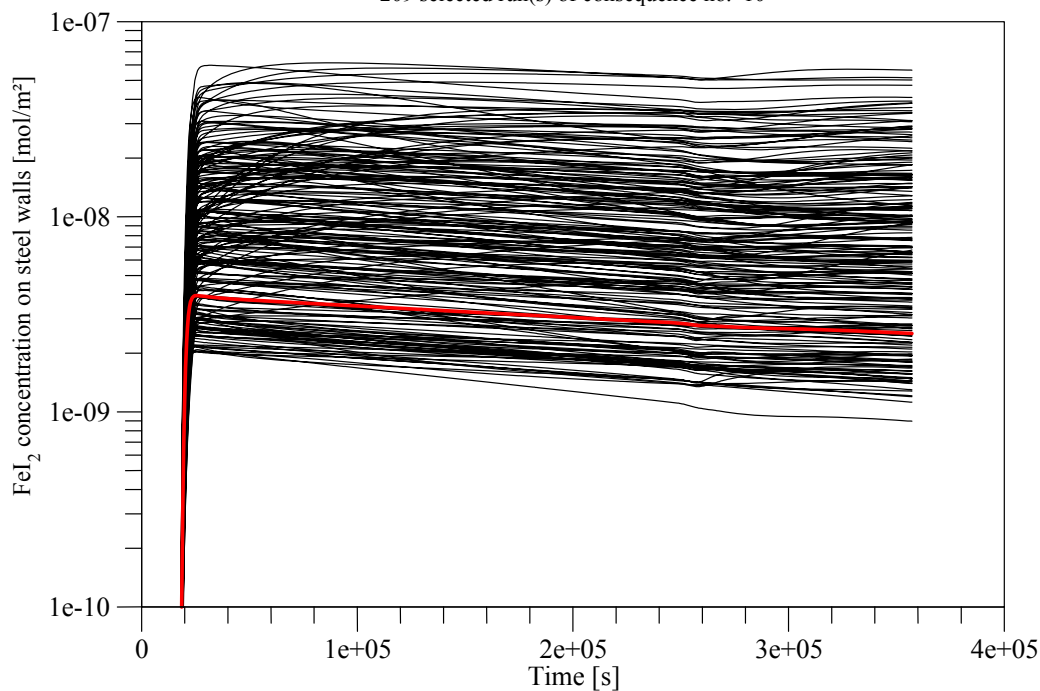


Abb. 7-13 Fe₂-Konzentration an der Stahlwand, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

Fe₂ concentration on steel walls

consequence no. 10 , sample size= 208

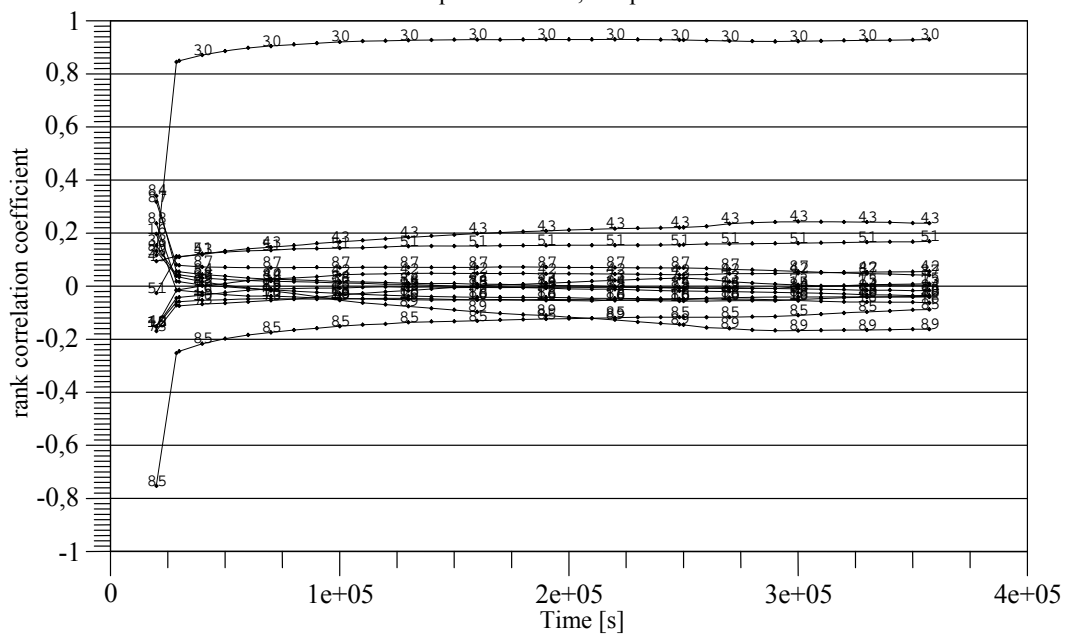


Abb. 7-14 Fe₂-Konzentration an der Stahlwand, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten

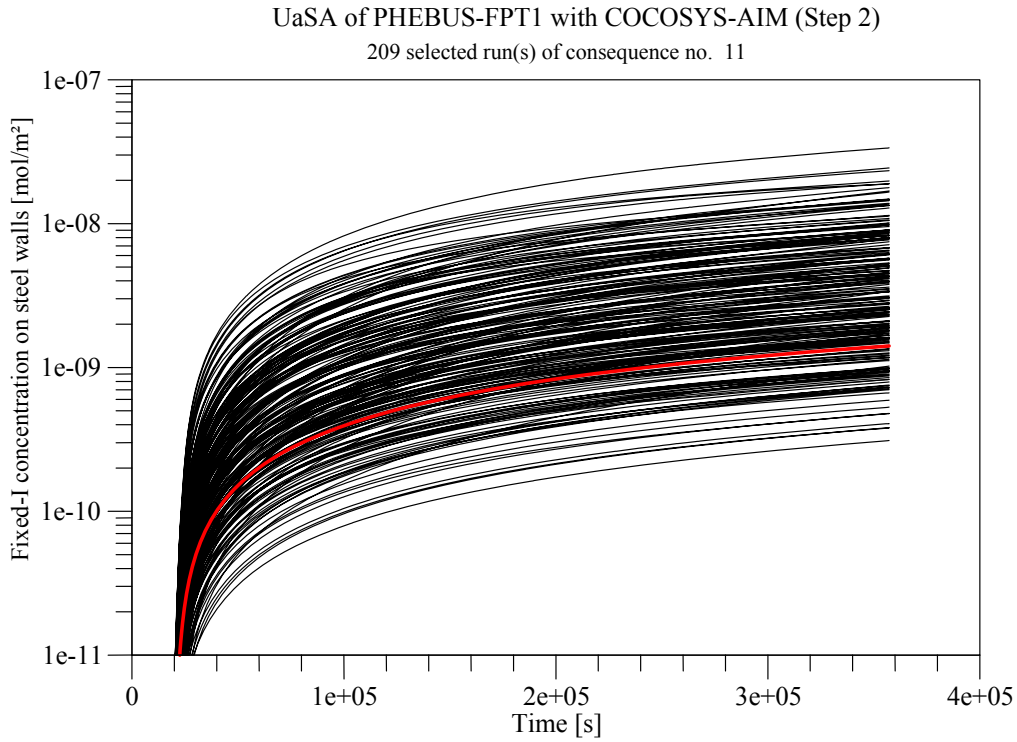


Abb. 7-15 Fixed-I-Konzentration an der Stahlwand, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

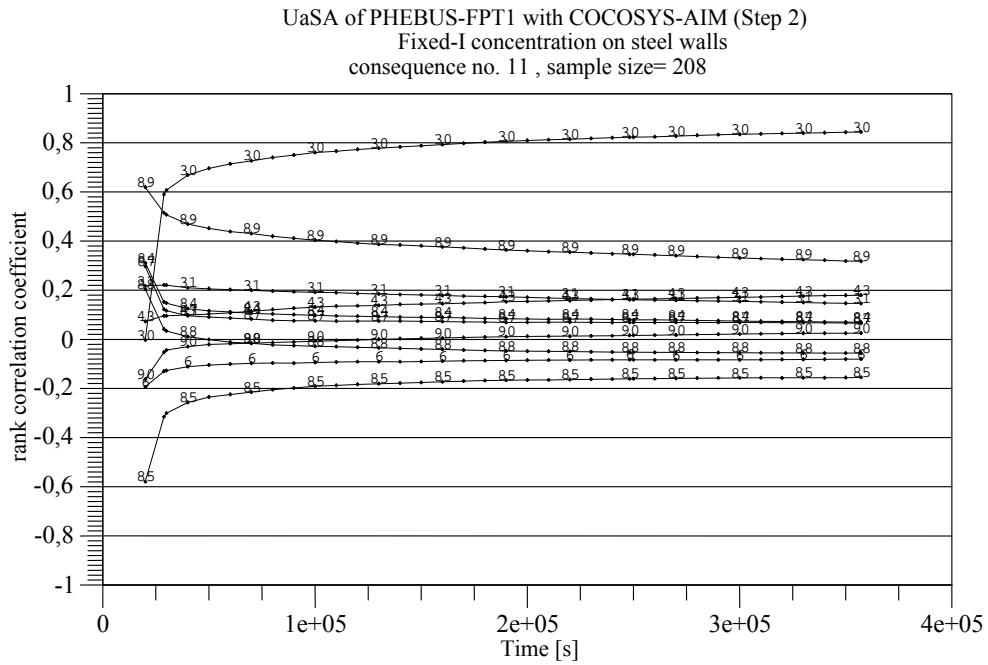


Abb. 7-16 Fixed-I-Konzentration an der Stahlwand, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten

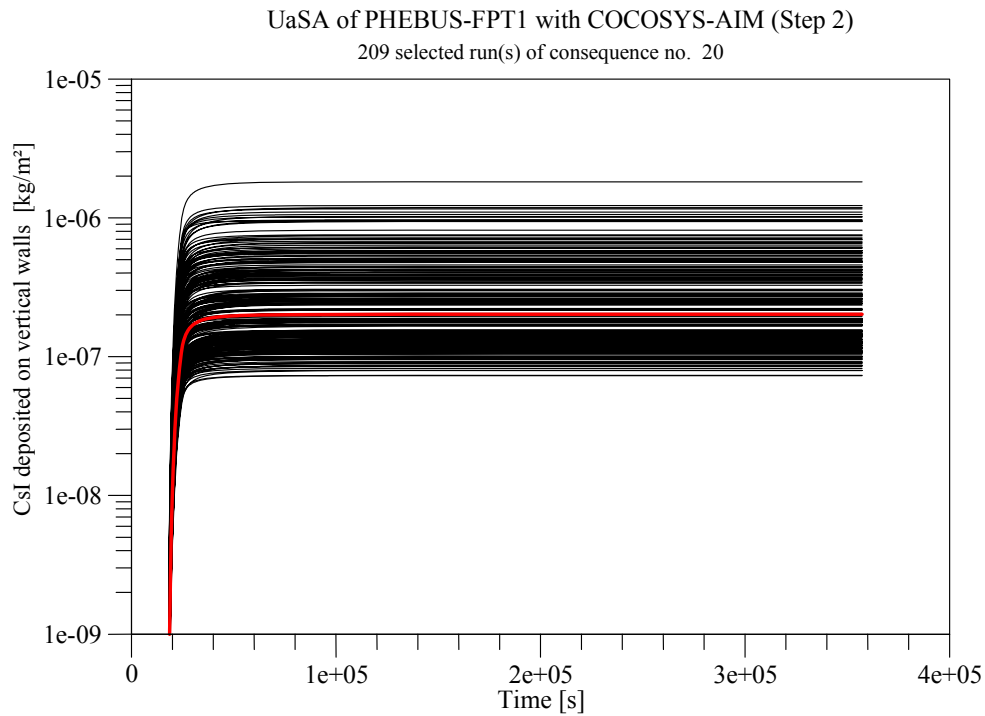


Abb. 7-17 CsI-Konzentration an vertikalen Wänden, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

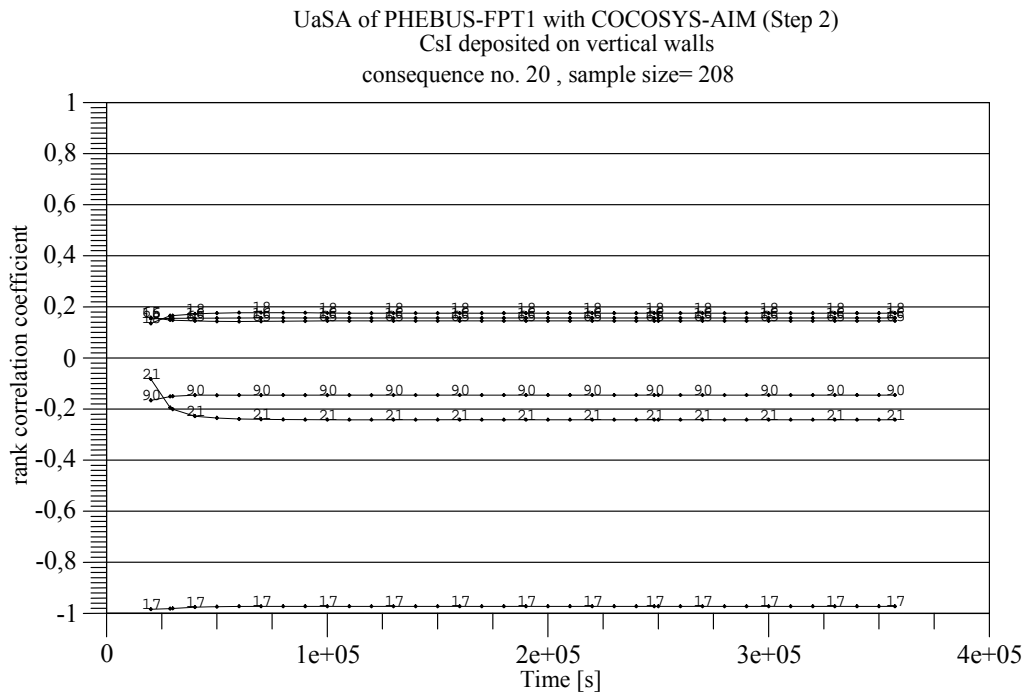


Abb. 7-18 CsI-Konzentration an vertikalen Wänden, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten

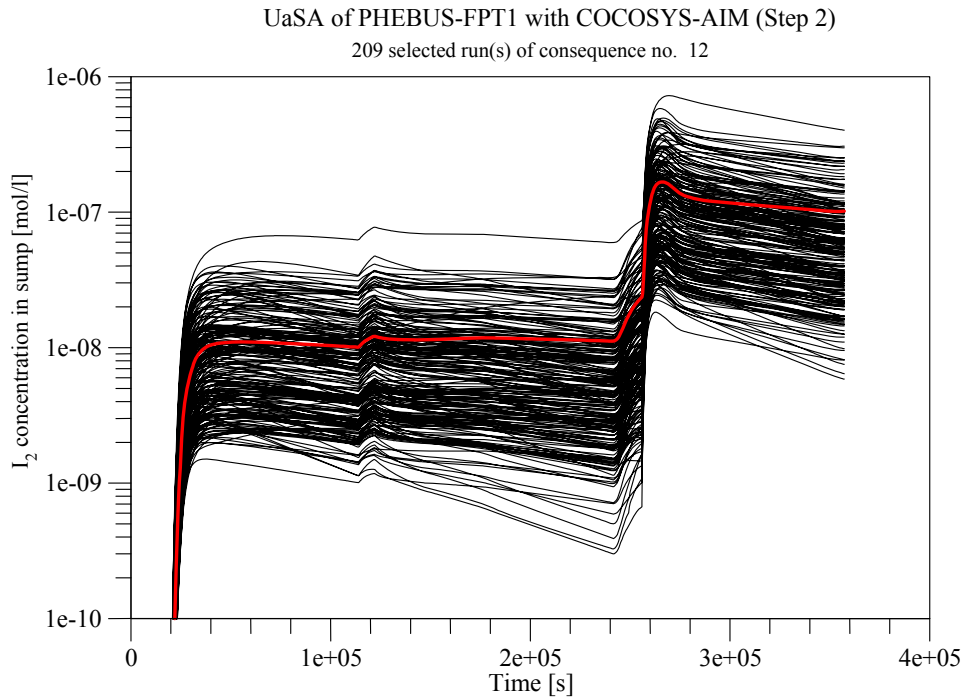


Abb. 7-19 I_2 -Konzentration im Sumpf, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

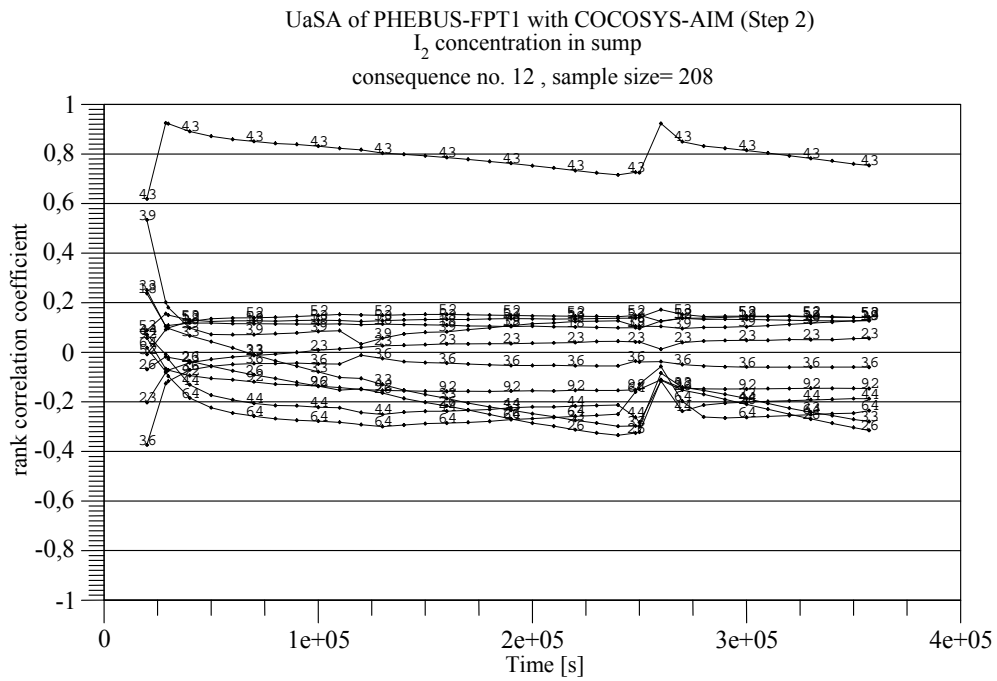


Abb. 7-20 I_2 -Konzentration im Sumpf, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

209 selected run(s) of consequence no. 13

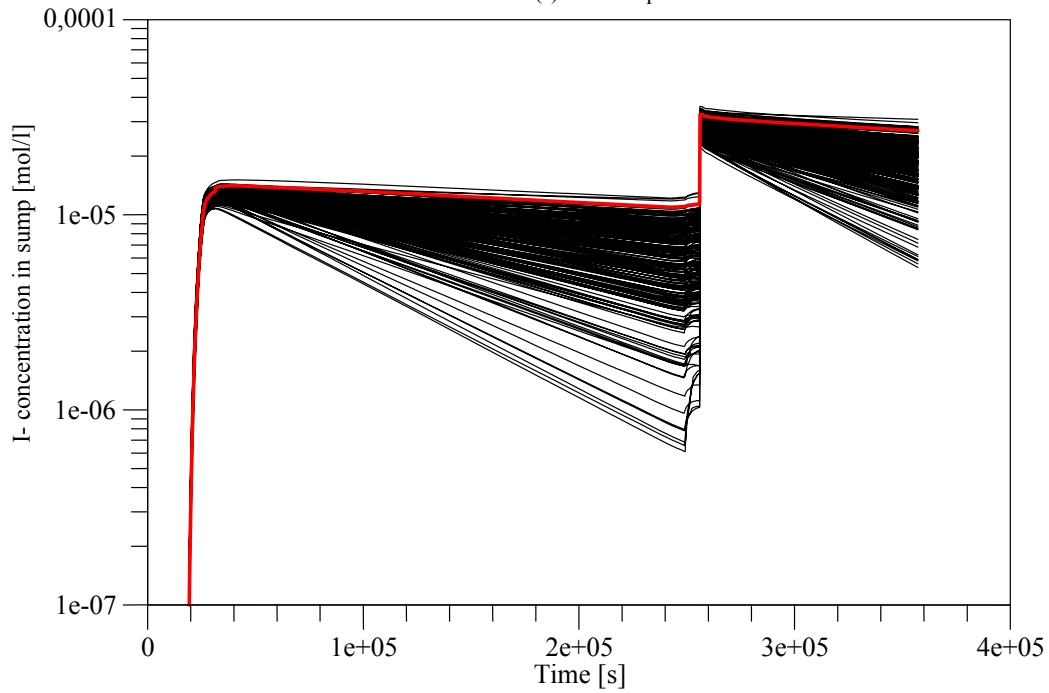


Abb. 7-21 I-Konzentration im Sumpf, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

I- concentration in sump

consequence no. 13 , sample size= 208

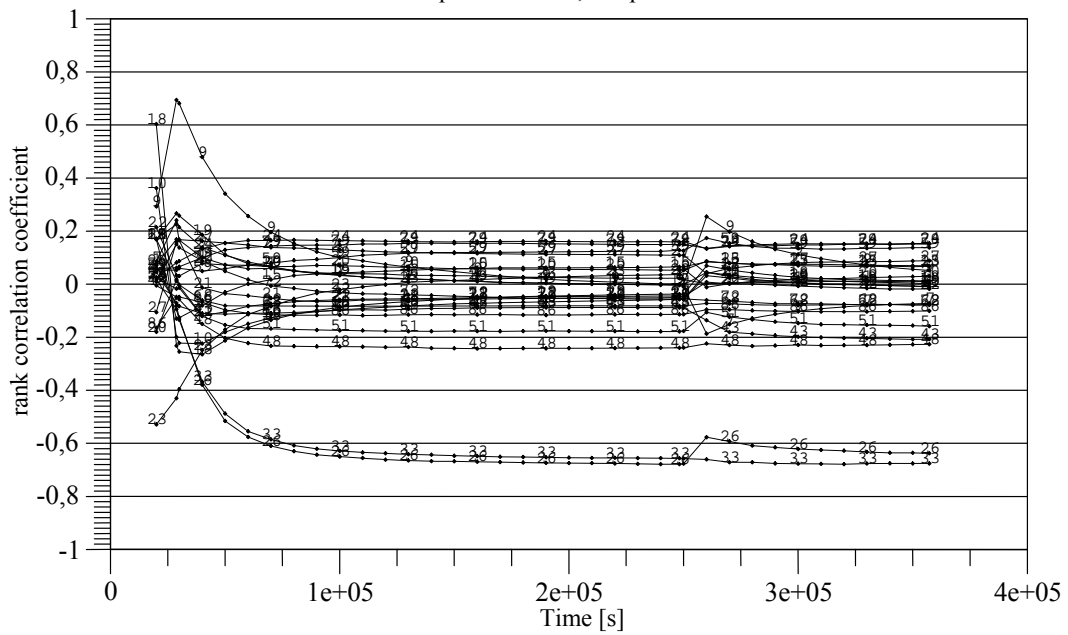


Abb. 7-22 I-Konzentration im Sumpf, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

209 selected run(s) of consequence no. 15

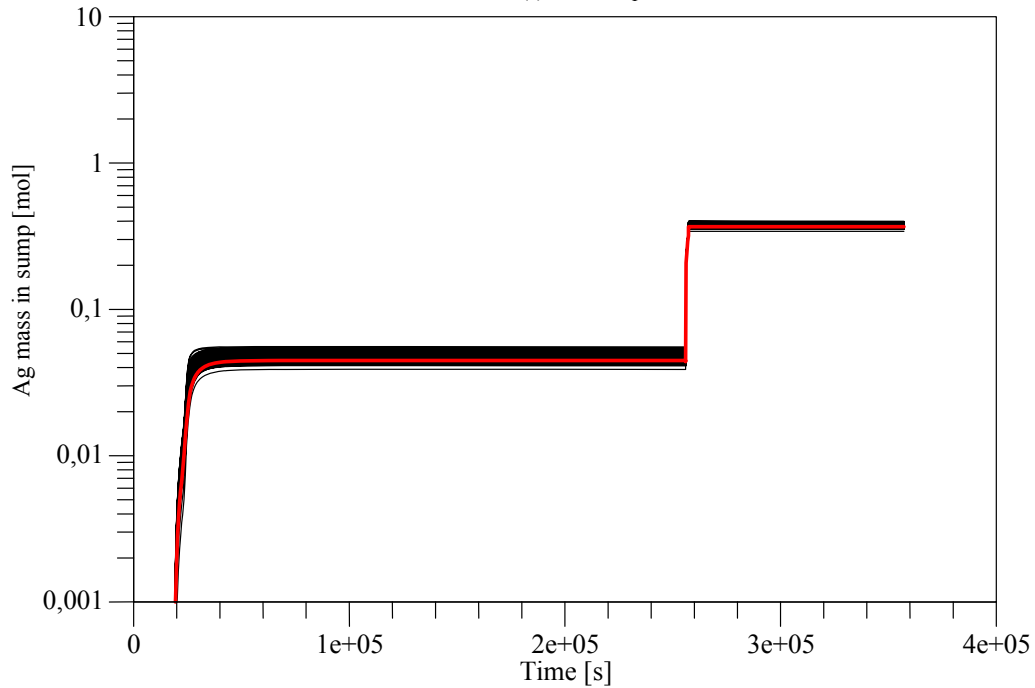


Abb. 7-25 Ag-Masse im Sumpf, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

Ag mass in sump

consequence no. 15 , sample size= 208

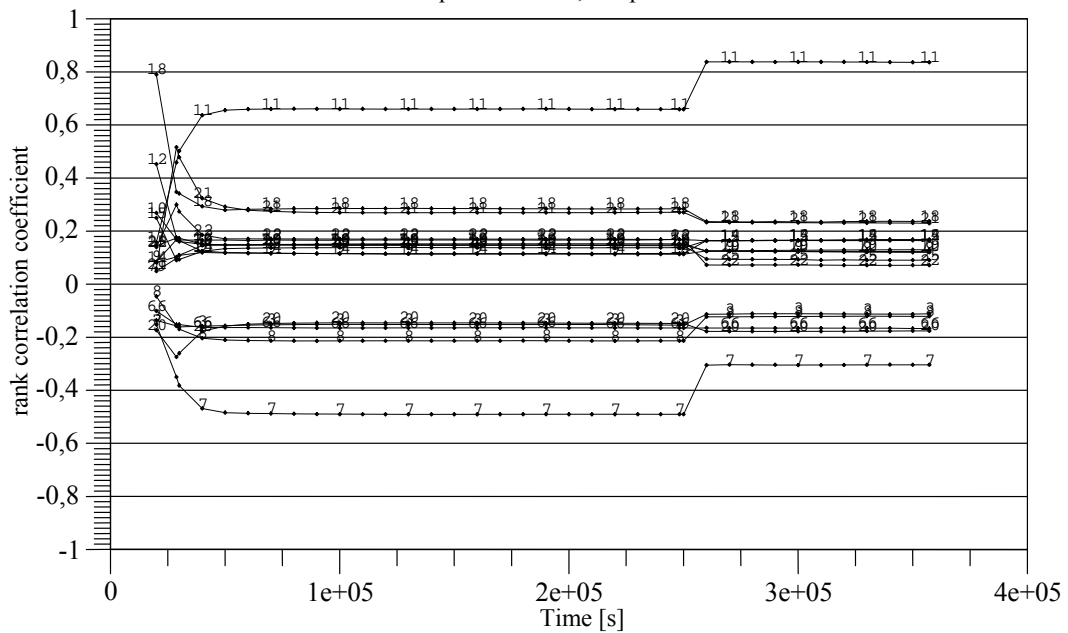


Abb. 7-26 Ag-Masse im Sumpf, UaSA Schritt 2, Sensitivitäten

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

209 selected run(s) of consequence no. 22

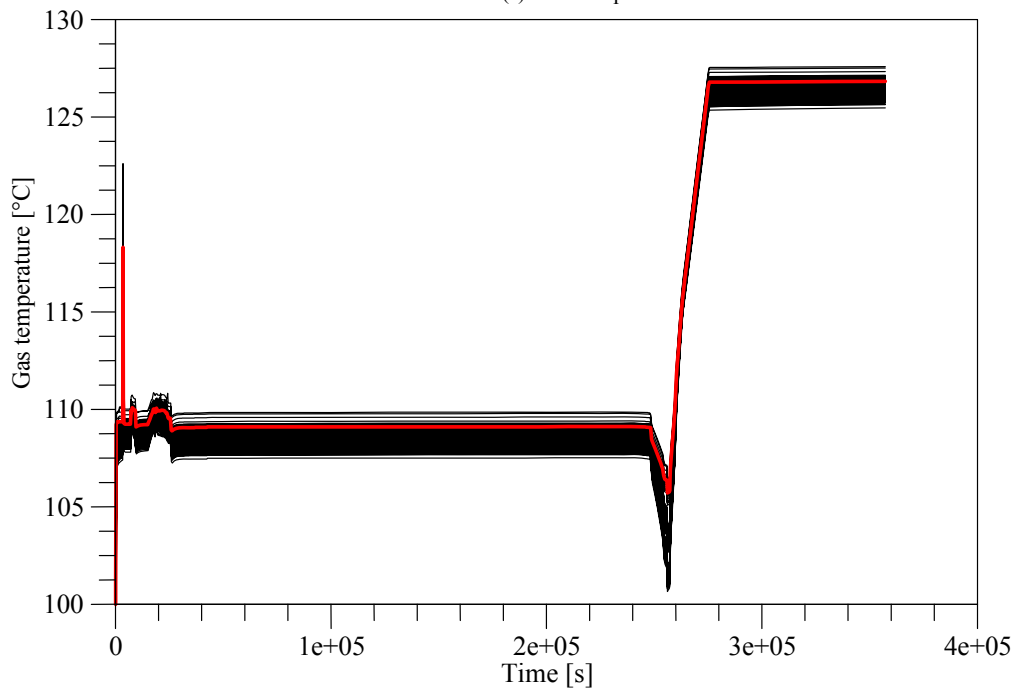


Abb. 7-33 Gastemperatur, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

209 selected run(s) of consequence no. 23

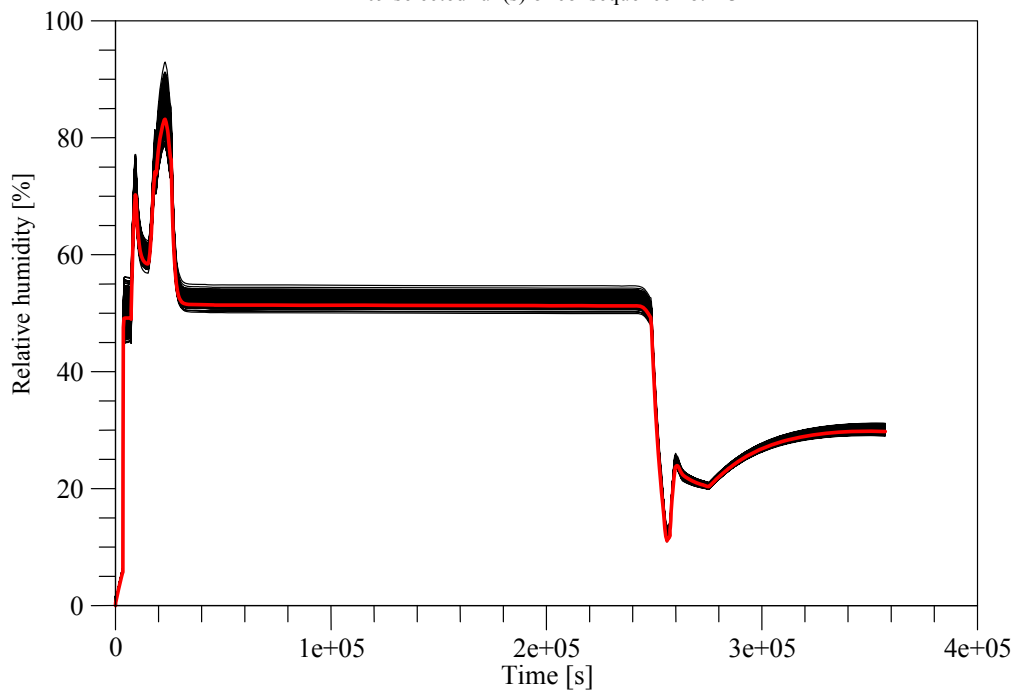


Abb. 7-34 Relative Feuchte, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

209 selected run(s) of consequence no. 24

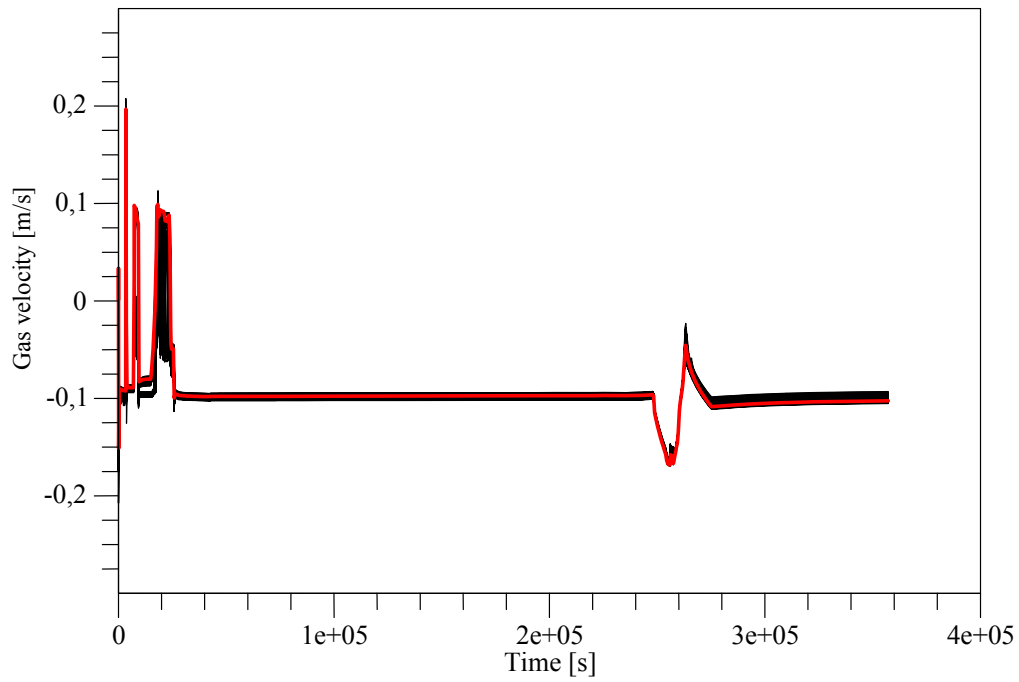


Abb. 7-35 Gasgeschwindigkeit, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

UaSA of PHEBUS-FPT1 with COCOSYS-AIM (Step 2)

209 selected run(s) of consequence no. 25

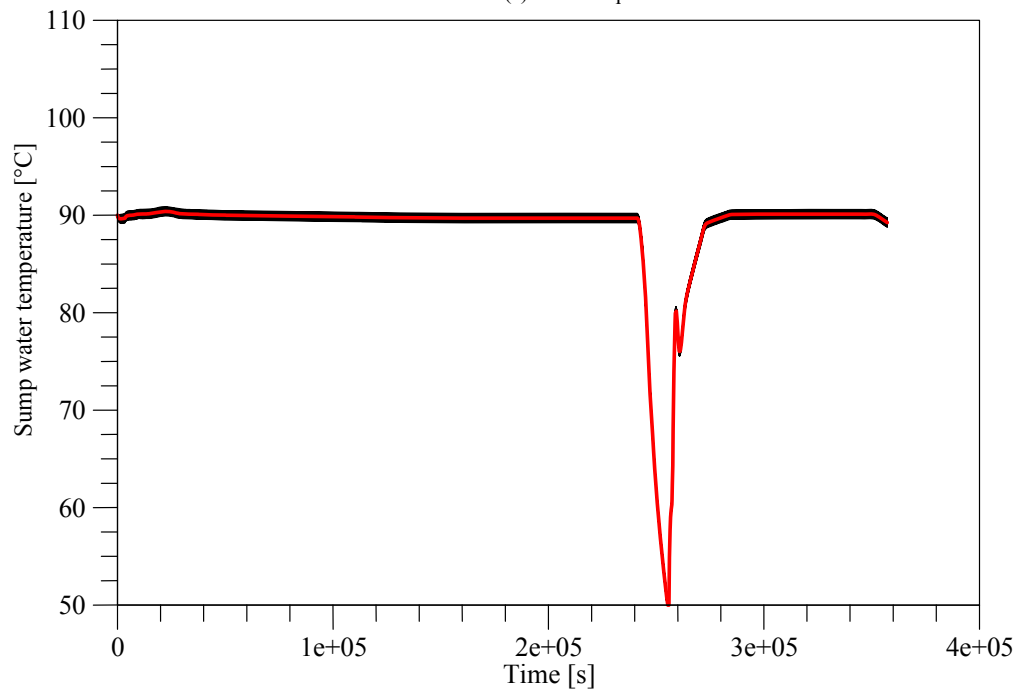


Abb. 7-36 Sumpfwassertemperatur, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

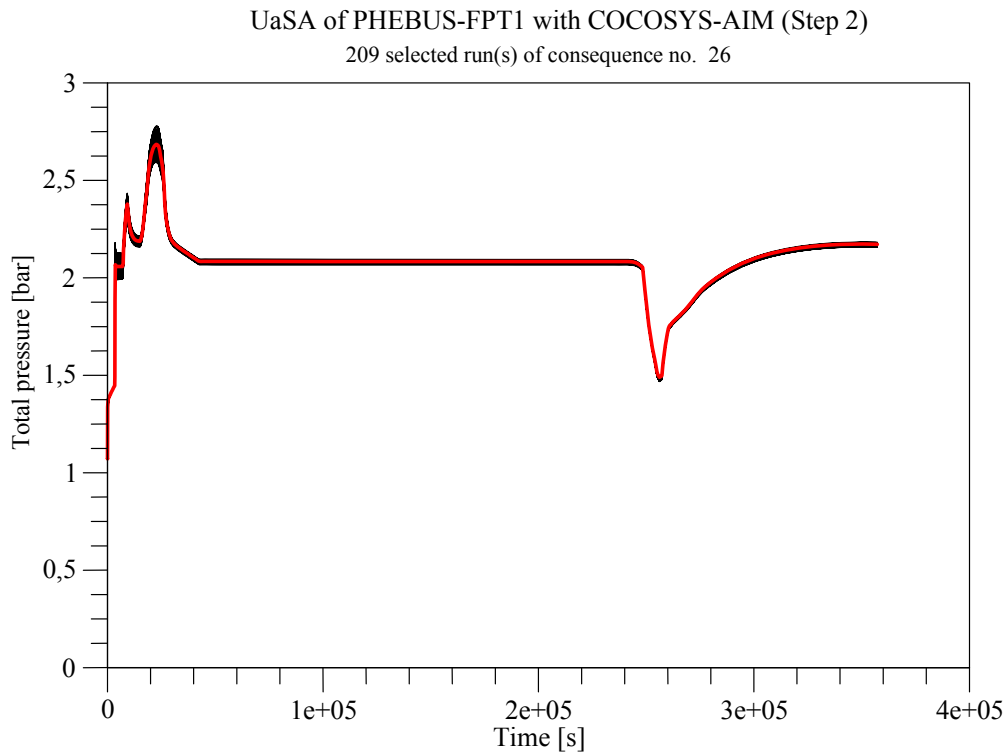


Abb. 7-37 Gesamtdruck, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

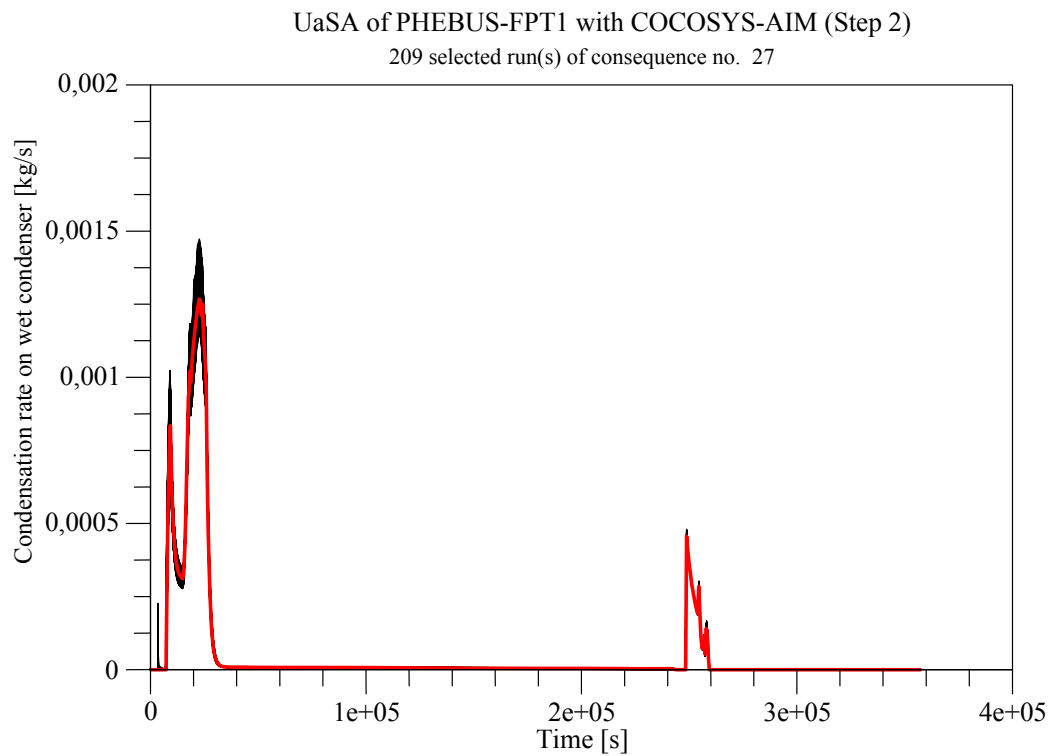


Abb. 7-38 Kondensationsrate am nassen Condenser, UaSA Schritt 2, Variationsläufe

8 Verteiler

		Exemplare gedruckte Form	Exemplare pdf
BMWi			
Referat III B 4		1 x	
GRS-PT/B			
Internationale Verteilung	(FIZ)	40 x	
Projektbegleiter	(dre)	3 x	1 x
AREVA NP Erlangen			
Hr. Dr. Harald Dimmel- meier			1 x
Hr. Dr. Ing. Mohammed Bendaib			1 x
Hr. André Fargette			1 x
Hr. Dr. Jürgen Eyink			1 x
Hr. Dr. Volker Lansmann			1 x
Hr. Dr. Peter Volkholz			1 x
Hr. Dr. Gert Langrock			1 x
Hr. Dr. Friedhelm Funke (Autor)		3 x	1 x
Becker Technologies Eschborn			
Hr. Gerhard Poss		1 x	
Hr. Dr. Martin Freitag			1 x
Ruhr-Universität Bochum			
Hr. Prof. Dr. Marco Koch (LEE)		1 x	

		Exemplare gedruckte Form	Exemplare pdf
RWTH Aachen			
Hr. Prof. Dr. Hans-Josef Allelein (LRST)		1 x	
Fr. Sara Krajewski (LRST)			1 x
GRS			
Geschäftsführung	(stj, wfp)		je 1 x
Bereichsleiter	(erv, prg, rot, som, stc, ver, zir)		je 1 x
Abteilungsleiter	(som, luw)		je 1 x
Projektleiter	(klh)		1x
Projektbetreuung	(bar, bna)		je 1 x
Informationsverarbeitung	(nit)		1 x
Autoren	(krb, weg)	1 x + 3 x	je 1 x
Bibliothek	(Köln)	1 x	
Gesamtauflage		Exemplare	55

**Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) mbH**

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

Forschungszentrum
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