C. D. Andriesse

De remtest: onderzoek van de verspreiding van radioactiviteit bij een ernstig reactorongeluk

De aanvaardbaarheid van kernenergie hangt opvallend samen met het oordeel over veiligheid. Aldus een conclusie van de Brede Maatschappelijke Discussie (1). In het Eindrapport van de stuurgroep der discussie is echter niet meer dan een enkele bladzijde aan de veiligheidsargumentatie gewijd. Deze onevenredigheid van belang en aandacht wordt versterkt door het ontbreken van een eigen toetsing van die argumentatie. Dit had gekund door bij voorbeeld een oordeel te vragen van onderzoekers die zich nog niet eerder aan conclusies hebben verbonden. Het Eindrapport verwijst alleen naar bevindingen van de Commissie Reactorveiligheid (2), die inhouden dat in het verleden de omvang van de ernstigste reactorongelukken is overschat. Onvermeld blijft dat volgens sommigen ook in het ergst denkbare geval het aantal slachtoffers klein zal zijn (3).

Dat het Eindrapport op dit belangrijke punt niet heeft bijgedragen aan een consensus, mag blijken uit het oordeel van de volksvertegenwoordiger J. de Waart (PvdA), die schrijft: 'Ook al is de kans op een groot ongeluk klein, de gevolgen ervan kunnen zó afschuwelijk zijn dat zo'n kleine kans een onaanvaardbaar risico oplevert' (Volkskrant, 22 mei 1984). Daarom is het zinvol om opnieuw de studie aan de orde te stellen van de grootste lozingen van radioactieve stoffen uit een kernreactor, die bij een ongeluk zouden kunnen optreden. Zoals bekend, kunnen deze stoffen door hun stralingsgiftigheid slachtoffers maken onder de omwonenden. Dit artikel gaat in op recent onderzoek, waarvan het bestaan twee jaar geleden is aangeduid (4).

Het eind maart 1979 opgetreden ongeluk met de TMI-2 kernreactor bij Harrisburg heeft, behalve zorg en angst, ook kennis en inzicht opgeleverd over de toedracht van een ongeluk waarbij de reactorkern tot smeltens toe oververhit raakt. De eersten die hieruit in het openbaar conclusies trokken waren Levenson en Rahn (5). Zij leverden een reeks kwalitatieve argumenten, die aantoonden dat de veiligheidsstudies van de Amerikaanse Nuclear Regulatory Commission (NRC) (6) en, in het voetspoor daarvan enkele Europese instanties, bij het schatten van de mogelijke lozingen aan de pessimistische kant waren.
Hierna is veel onderzoek op gang gekomen van de chemische en fysische remmen op de verspreiding van radioactieve stoffen (de splijtingsprodukten van uranium). Momenteel zijn dat ruim honderd projecten, waarvan er hier slechts twee zullen worden besproken. Veel van deze 'remtests' vinden plaats binnen het door de NRC gecoördineerde Severe Accident Research Plan (7), dat in 1986 zal worden afgesloten en waarin ook Nederland op bescheiden schaal deelneemt. Intussen heeft ECN reeds, op verzoek van de nationale overheid, voorlopige conclusies getrokken (8), waarover elders is gepubliceerd (9), en deze conclusies zijn verwerkt in de bevindingen van de Commissie Reactorveiligheid (2).

TABEL I

In de loop der jaren geschatte fractie van de in een reactorkern aanwezige stoffen die bij het ergste ongeluk wordt geloosd (gegeven is de negatieve logarithme op basis van 10; een 1 betekent dat 1/10 wordt geloosd, een 2 dat 1/100 wordt geloosd, enz.)

		Kr Xe	*(CH_3) −I*	*Br I*	*Rb Cs*	*Te Sb*	*Sr Ba*	*Mo Te Ru Rh*	*Overige (vooral zeldzame aarden)*
1975	(ref. 6)	0,0	2,2	0,4	0,4	0,5	1,3	1,3	2,3
1982	(ref. 2)	0.05	–	2,2	4,3	4,5	5,2	5,7	6,4
1984		0	5	3	4	4	6	6	7

Een onderdeel van het Severe Accident Research Plan bestaat uit het doorrekenen van ongeluksscenario's door Battelle's Memorial Institute (Columbus, Ohio) met hulp van gedetailleerde mechanistische codes op basis van de nieuw verworven kennis (10). Dit rekenwerk vormt de basis van het standpunt dat de NRC aan het eind van dit jaar over de bronterm zal innemen, na een evaluatie daarvan door een commissie van de Amerikaanse natuurkundige vereniging (APS). Belangrijk nieuw materiaal is ook bijeengebracht door het kernenergieagentschap van de OESO (Parijs) (11).

Bronterm

Het woord bronterm is de vakterm voor de fractie van de in een reactorkern aanwezige radioactieve stoffen, die in het ergste geval, na doordringing van de om die kern aanwezige fysieke barrieres, in de omgeving kan worden geloosd. Deze fractie hangt af van de chemische en fysische aard van de stoffen. In tabel I is een overzicht gegeven van de fracties die voor en na het ongeval bij Harrisburg zijn geschat. De meest recente komt voor rekening van de auteur.

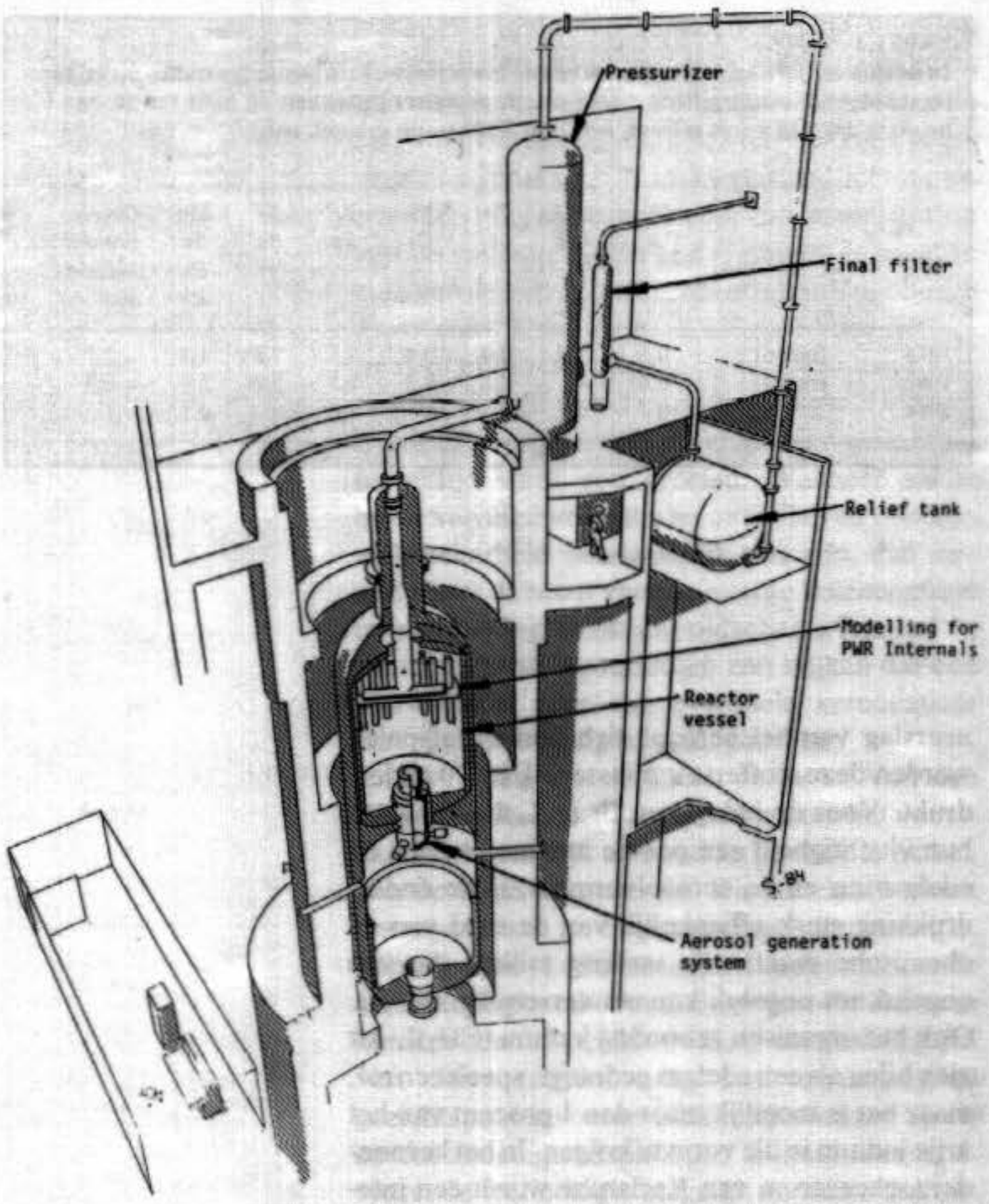
Wat in deze schattingen is gebeurd, is dat alle fracties zijn verkleind, met uitzondering van die voor de edelgassen, die zich moeilijk laten tegenhouden. Aanzienlijke reducties worden verwacht voor de reactieve stoffen, als de veiligheidsomhulling nog geruime tijd na een kernsmelting intact blijft. De Commissie Reactorveiligheid stelt die op minstens een dag (2). Hiermee is het volle pond gegeven aan eerdere berekeningen (12), waarbij is aangetoond dat de omhulling niet door inwendige explosies doorbroken kan worden.

De in de vijf rechtse kolommen van tabel I genoemde stoffen zijn aerosolvormers. Door de lange tijd waarin de processen voor afzetting en neerslag van het aerosol zich kunnen afspelen worden deze stoffen tot minstens 1/10000 onderdrukt. Voor de halogenen Br en I, die vanwege hun vluchtigheid een positie innemen tussen de edelgassen en de aerosolvormers, is de onderdrukking sterk afhankelijk van de aard van de chemische reacties in waterig milieu, die van ongeluk tot ongeluk kunnen verschillen (4, 11). Ook het organisch gebonden jodium (CH_3)I, dat zich bijna als een edelgas gedraagt, speelt een rol, maar het is moeilijk meer dan 1 procent van het vrije jodium in die vorm te krijgen. In het kernonderzoekcentrum van Karlsruhe wordt een interessant verspreidingsmodel van jodium in een omhulling ontwikkeld (J. P. Hosemann, K. H. Neeb, J. Wilhelm: Vortrag Jahrestagung Kerntechnik, Berlijn 15/6-1983), dat als regel reducties tot minstens 1/1000 oplevert. Maar het laatste woord is hierover niet gezegd.

Maakt men alle lozingen tien keer zo klein als in 1975 nog werd geschat (met uitzondering van die der edelgassen), dan daalt het maximum aantal directe slachtoffers van het ergst denkbare ongeluk van duizenden tot tientallen (3). Deze getallen gelden voor een 1000 MWe kernreactor op te voorziene vestigingsplaatsen in Nederland. Hierbij past de opmerking dat de nog maar onlangs gepubliceerde berekening van Smit et al. (13) nog gebaseerd is op de bronterm van 1975 en dus tot grote aantallen slachtoffers moest besluiten.

Nu de Commissie Reactorveiligheid heeft vastgesteld dat de ergste lozingen meer dan tien keer zo klein zijn, heeft ook de Gezondheidsraad kunnen concluderen dat de gevolgen daarvan geen grote omvang zullen hebben (14). Deze conclusie heeft echter alleen betrekking op de extreme ongevalscategorie KE.

Door gebrek aan informatie over korte-termijn retentieprocessen heeft de Commissie Reactor-



Figuur 1. Schematisch overzicht van de installatie voor experimenten met aerosoltransport in Marviken (Zweden).

veiligheid gemeend dat voor de minder ernstige lozingscategorie KM geen grotere retentie in rekening kan worden gebracht dan waartoe zij in 1975 besloot. Dit type ongeluk zou volgens de Gezondheidsraad nog steeds ernstige gevolgen kunnen hebben. In dit perspectief zullen nu twee experimenten ter nadere bepaling van de bronterm worden besproken.

Marviken

Bezien we de bronterm in detail, dan moet onderscheid worden gemaakt tussen de verspreiding van radioactieve stoffen in a) de splijtstof, b) het reactorvat en het primaire koelcircuit, en c) de veiligheidsomhulling. De aerosolprocessen en de jodiumverspreiding, die voor c) van belang zijn, werden al aangestipt. Gewezen kan nog worden op de aerosolexperimenten te Frankfurt en Hanford in ruimten die voor een reactoromhulling representatief zijn. Over a) zal het slot van dit artikel gaan. Hier gaat het over b), een onderzoeksgebied dat nog maar net is betreden. In de klassieke Amerikaanse veiligheidsstudies (6) speelden het reactorvat en het (doorbroken veronderstelde) primaire koelcircuit geen rol bij het wegvangen van de radioactieve stoffen. Zoals eerder beschreven (4), moet echter veel uitzakking van het kernsmeltingsaerosol in juist deze omgeving worden verwacht, omdat de dichtheid daar zo groot is. In het tegenwoordige rekenwerk van Battelle (10) wordt dit ook gevonden, vooral in het bovenplenum van het reactorvat.

De door Battelle gebruikte rekencode dient echter experimenteel getoetst te worden. Daarvoor is een experiment opgezet in het Zweedse Marviken, waar een representatief reactorsysteem op volle schaal aanwezig is. Dit experiment (1982 - 1985) behelst zes tests, nu voor de helft gedaan, die een breed spectrum van mogelijke ongelukscondities bedekken. Het experiment wordt in een internationaal samenwerkingsverband uitgevoerd, waarin de mede-initiatiefnemer KEMA voor ongeveer 5 procent deelneemt; de resultaten zijn het eigendom van de financiers. De publikatie van de gemeten retenties zal na het afronden van het complete programma plaatsvinden.

Figuur 1 toont het Marviken-systeem. Men ziet een reactorvat, met onderin een aerosolgenerator en bovenin een binnenwerk, dat uitmondt in een (incompleet) koelcircuit met drukhouder, afblaastank en filter. De aerosolgenerator bestaat uit een aantal plasmatoortsen (totaal thermisch vermogen 5 MW) waarin poeders worden verdampt bij temperaturen boven 3500°C. Deze poeders bestaan uit mengsels van CsOH, CsI en Te (fissium, de vluchtigste splijtingsprodukten vertegenwoordigend, maar dan in niet-radioactieve toestand) en van Ag, (B_2O_3), Mn en ZrO_2 (corium, de vluchtigste kernconstructiematerialen representerend). Ze worden in het plasma gebracht met een draaggas en tevens wordt stoom toegevoerd. Na de verdamping van de poeders condenseren de dampen reeds op korte afstand van de toortsen tot een aerosol, dat zich door het systeem verspreidt. Om dichtheden in de orde van 1 kilogram per kubieke meter te bereiken, zoals gewenst, is veel poeder nodig: van zilver bij voorbeeld ruim 200 kilogram per test!

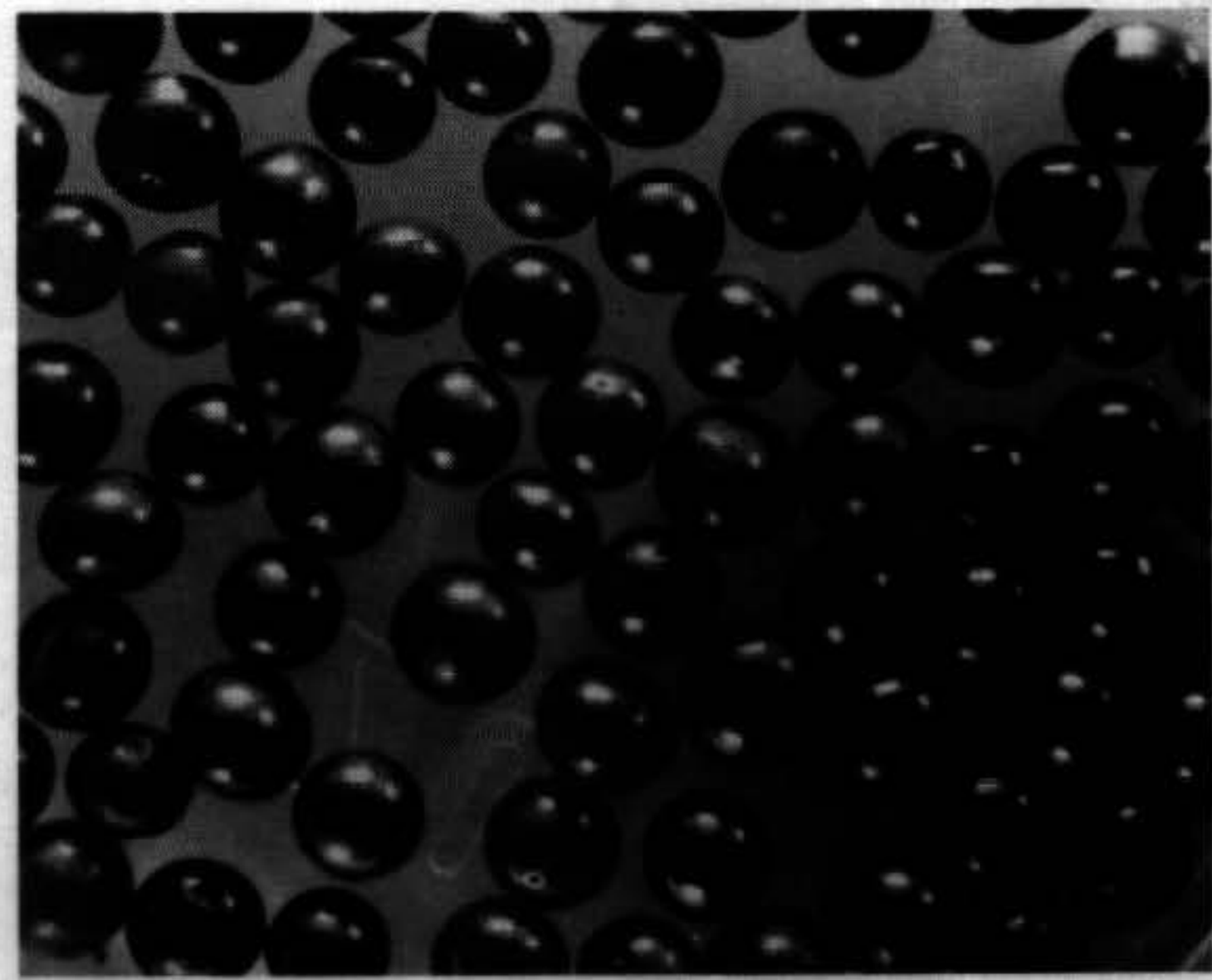
De wanden van het reactorvat en de andere onderdelen worden op representatieve temperaturen gebracht en ze bevatten op ruim tien posities een groot aantal aerosoldetectoren, waarin de opgevangen deeltjes op grootte en samenstelling worden onderzocht. Tevens worden na iedere test alle wanden schoon gemaakt, zodat de balans kan worden opgemaakt tussen de massa van ingebrachte poeders en de massa van het op de verschillende plaatsen neergeslagen aerosol. Deze balans blijkt in de praktijk redelijk te kloppen. Van de resultaten kan nu alleen gezegd worden dat de deeltjesgrootte vele micrometers blijkt te zijn: groter dan verwacht en daarom een onverwachte versnellende factor in de processen die

het naar een veiligheidsomhulling ontsnapte aerosol zullen doen neerslaan.
Tot nu toe is niet gebleken dat de resultaten voor de retentie strijdig zijn met de voorspellingen van Battelle's rekencode, die er op neer komen dat het reactorvat en het primair koelcircuit het kernsmeltingsaerosol voor ten minste 90 procent kunnen vasthouden. Dus, reeds zonder veiligheidsomhulling zou men in tabel I voor de aerosolvormers (de vijf rechtse kolommen) een getal moeten invullen dat groter is dan 1. Dit onderstreept het buitengewoon grote conservatisme van de 1975-bronterm. Maar de veiligheidsomhulling zorgt voor de grootste retentie – dat is precies het doel ervan, ook als zij na verloop van tijd kapot zou gaan.

Bij de Sizewell-hearings over de voorgenomen bouw van een drukwaterreactor in Engeland is gesproken over een ongeluksverloop, waarbij de veiligheidsomhulling nauwelijks een rol speelt. Door een verondersteld falen van de isolatieafsluiters van het noodkoelsysteem zou in een vroege fase van het kernsmeltingsongeluk een opening naar de bijgebouwen kunnen ontstaan. Dan treden de bijgebouwen op als een aerosolfilter met zeer grote, vochtige oppervlakken, voorafgegaan door een met stoom gevulde veiligheidsomhulling. Hierin kan gemakkelijk nog eens 90 procent van het aerosol worden vastgehouden. Voor dit weinig waarschijnlijke verloop zou men in tabel I voor de aerosolvormers een getal moeten invullen dat groter is dan 2. De door de Commissie Reactorveiligheid (2) nog niet herziene lozingscategorie KM heeft trekken van dit ongeluksverloop. Voor een realistische schatting van de desbetreffende bronterm zijn de experimenten in Marviken en, in mindere mate, die in Hanford onontbeerlijk.

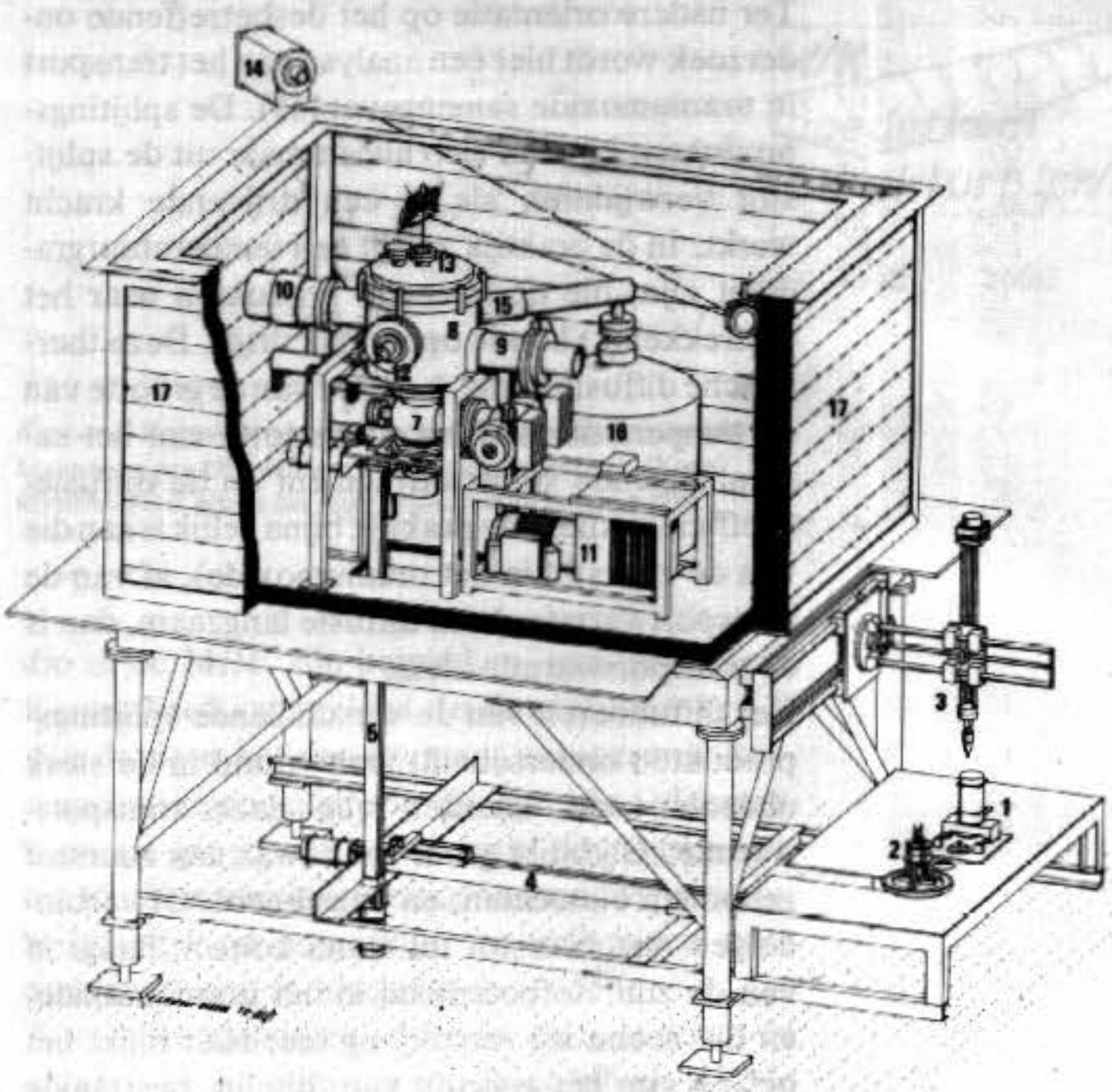
KEMA-onderzoek

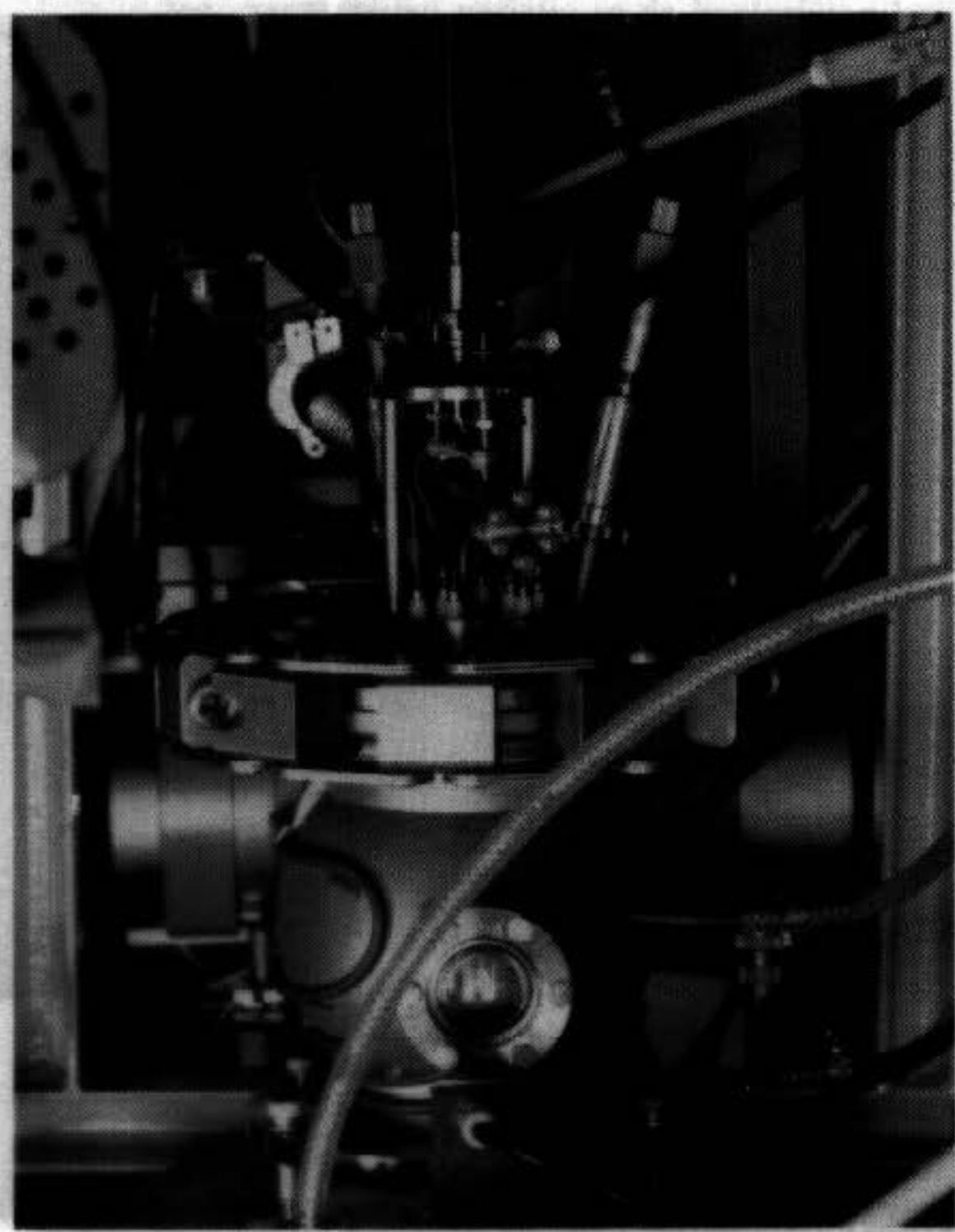
Geldt voor het bovenstaande onderzoek, en veel andere soortgelijke experimenten, dat men het gebruik van radioactieve stoffen kan vermijden, toch kan dat niet altijd. Als de wijze waarop de stoffen in de splijtstof ontstaan belangrijk is voor hun aanvankelijke transport, dan moet men dit transport bestuderen in bestraalde, radioactieve splijtstof. Zo'n studie vergt echter kostbare maatregelen om de onderzoeker tegen straling te beschermen: afscherming en afstandsbediening. Kan splijtstof splijtingsprodukten vasthouden, ook al is zij tot smeltens toe verhit? Dat kan inderdaad. Duurt de gesmolten toestand enkele uren, zeg 10^4 seconden, en stroomt van een bepaald element bij die temperatuur minder dan 10^{-5} per seconde naar buiten, dan wordt zelfs onder deze extreme omstandigheden meer dan 90 percent van dit element vastgehouden.



Figuur 2. Bolletjes van gesinterd uranumoxide met een doorsnede van ongeveer 1 millimeter, gemaakt met KEMA's sol-gel proces.

Figuur 3. Schematisch overzicht van de installatie voor het karakteriseren van de uitstroming van splijtingsprodukten uit oververhitte splijtstof (KEMA). Legenda: 1 capsulesnijder – 2 Knudsenoven – 3 manipulator – 4 horizontaal transport – 5 verticaal transport – 6 vacuümafsluiter – 7 recipiënt Knudsenoven – 8 recipiënt massafilter – 9 quadrupool massafilter – 10 turbomoleculaire pomp – 11 voorvacuümpomp – 12 uitvoerpositie gekoelde trefplaat – 13 venster voor pyrometer – 14 pyrometer – 15 gammadetector – 16 Dewarvat voor gammadetector – 17 afscherming.





Figuur 4. Gezicht op de buitenkant van de Knudsenoven met de verhitte gloeidraad achter het venster.

Zo'n effect kan optreden voor de elementen in de rechtse drie kolommen van tabel I. Om dit te onderzoeken moeten de chemische en fysische omstandigheden die het transport van de splijtingsprodukten in uraniumoxide bepalen, goed worden nagebootst. Dit is alleen mogelijk bij bestraalde en dus radioactieve splijtstof.

Ter nadere oriëntatie op het desbetreffende onderzoek wordt hier een analyse van het transport in uraniumoxide samengevat (15). De splijtingsprodukten kunnen zich alleen maar uit de splijtstof verwijderen als er een drijvende kracht werkt. In de praktijk zal dit een temperatuurgradiënt zijn, die de (meeste) produkten naar het (betrekkelijk) koude oppervlak drijft. Deze thermische diffusie hangt, behalve van de grootte van de temperatuurgradiënt, de grootte van het samenhangende splijtstoffragment en de diffusiecoëfficiënt (die in de praktijk bijna gelijk is aan die van de zuurstof in het uraniumoxide), af van de transportwarmte. Is de diffusie langzaam, dan is de transportwarmte klein.

Het diffunderen van de verschillende splijtingsprodukten onderscheidt zich vooral in de sterk uiteenlopende waarden van deze transportwarmte. Hij blijkt groot voor zwak aan zuurstof gebonden elementen, en omgekeerd. Of verbindingen met zuurstof tot stand komen, hangt af van de zuurstofpotentiaal in het uraniumoxide, en die neemt bij versplijting toe. Hier blijkt het belang van het gebruik van feitelijk bestraalde splijtstof.

Thermodynamische berekeningen suggereren dat de overgangsmetalen Mo, Tc, Ru en Rh zich niet aan zuurstof binden; ze neigen tot precipiteren in sterke intermetallische verbindingen (16). Met dit afwijkende gedrag zijn de overgangsmetalen zeer moeilijk uit de splijtstof te verwijderen, ook als deze zou smelten. Vrijwel alle andere splijtingselementen vormen echter oxiden, die soms tot vorming van verbindingen aanleiding geven zoals Cs_2UO_4 of Cs_2MoO_4. Het is de moeite waard om de systematiek van hun diffusiegedrag te onderzoeken en die te betrekken op de systematiek van hun oxiden.

Om het onderzoek te kunnen uitvoeren is gekozen voor zeer kleine hoeveelheden splijtstof, zodat de radioactiviteit na bestraling hanteerbaar zal zijn. Figuur 2 toont bolletjes van uraniumoxide van ongeveer 1 millimeter doorsnede, die zijn vervaardigd met KEMA's sol-gel proces (17). Enkele op rondheid en diameter geselecteerde bolletjes zullen gedurende 1985 en 1986 worden bestraald in de Hoge Flux Reactor te Petten. Aangezien ze verrijkingsgraden hebben die oplopen tot 20 procent in uranium-235, zullen ze in de daar beschikbare fluxdichtheid snel, binnen een maand, verspleten kunnen worden tot een niveau dat oploopt tot 4 procent van het uranium. Op deze wijze wordt een goede benadering verkregen van de langdurig bestraalde splijtstof in een vermogensreactor.

Na bestraling zullen de bolletjes een radioactiviteit hebben van maximaal 10 curie; ze worden in een speciaal vervoersvat naar een KEMA-laboratorium te Arnhem gebracht. Daar is nu de analyse-apparatuur in opbouw waar de figuren 3 en 4 een beeld van geven.

Wat gedaan wordt is globaal het volgende. De bolletjes worden stuk voor stuk overgebracht in een oventje, dat door een elektronenbombardement uit een gloeidraad kan worden verhit tot 3000°C. Dit oventje bevat een cel van zirconiumoxide, de zogenaamde Knudsencel, die het bolletje omsluit en een kleine opening heeft. Uit die opening stroomt de damp van splijtingsprodukten, die het bolletje bij verhitting zullen verlaten, in een omgeving van hoog vacuüm naar de ionenkamer van een massafilter (een quadrupool-spectrometer) en vervolgens naar een gekoelde trefplaat, waarvan het gammaspectrum wordt opgenomen. Dit maakt het mogelijk om de chemische samenstelling van de dampstroom te meten en tegelijk (iets van) de isotopensamenstelling te bepalen.

Thans wordt de analyse-apparatuur getest en wordt de radiologische hulpapparatuur (met robots en afstandsbesturing) opgebouwd. De analyse-apparatuur zal radioactief besmet raken en zal na afloop grotendeels als radioactief afval

worden behandeld. Na elke proef zal bovendien de trefplaat moeten worden vervangen. Dit project is eind 1982 begonnen en zal waarschijnlijk in 1987 worden afgesloten.

Ten slotte

Hier zijn slechts twee projecten besproken van de ruim honderd die momenteel lopen om de bronterm goed in kaart te brengen. De inzichten die daarbij ontstaan versterken tot nog toe de stelling van Levenson en Rahn dat er belangrijke natuurlijke remmen bestaan op de verspreiding van radioactiviteit bij een ernstig reactorongeluk.

Referenties:

1 Eindrapport Maatschappelijke Discussie Energiebeleid, 1984.
2 Commissie Reactorveiligheid: Advies over de gewijzigde inzichten inzake de consequenties van ernstige reactorongevallen, Den Haag 1982.
3 Eendebak, B. Th., Energiespectrum **10** (1981) 257.
4 Andriesse, C. D., Energiespectrum **11** (1982) 80.
5 Levenson, M., F. Rahn, Nuclear Technology **53** (1981) 99.
6 Reactor Safety Study (WASH-1400), NUREG 75/014, 1975.
7 Larkins, J. T., M. A. Cunningham, Nuclear Power Plant - Severe Accident Research Plan, NUREG-0900, 1983.
8 Bustraan, M., R. J. Heijboer, L. G. J. Janssen, J. N. T. Jehee, A. R. Krähe, G. Prins, J. E. Speelman, J. F. van de Vate, De bronterm bij ernstige reactorongevallen, ECN-83-122.
9 Bustraan, M., Nederlands Tijdschrift voor Natuurkunde **A49** (1983) 130.
10 Gieseke, J. A., P. Cybulskis, R. S. Denning, M. R. Kuhlman, K. W. Lee, Radionuclide release under specific LWR accident conditions, Battelle Columbus, Ohio, 1983.
11 Abbey, F. **et. al.**, Nuclear aerosols in reactor safety - a supplementary state-of-the-art report, NEA/OECD, 1983.
12 Steam explosions in light water reactors, Swedish ministry of industry Ds I, 1981.
13 Smit, W. A., G. W. M. Tiemessen, R. Geerts, Wetenschappelijke raad voor het regeringsbeleid **V31**, Staatsuitgeverij, 1982.
14 De bronterm van kerncentrales en de volksgezondheid. Gezondheidsraad 1984/21.
15 Andriesse, C. D., R. H. J. Tanke, Nuclear Technology **65** (1984) 415.
16 Olander, D. R., Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements, US Department of energy technical information center, 1976.
17 Kanij, J. B. W., Elektrotechniek **51** (1973) 26.