



Gesellschaft für Anlagen-  
und Reaktorsicherheit  
(GRS) mbH

Experimentelle  
Untersuchungen zum  
Verhalten von Brennstäben  
mit hohem Abbrand bei  
mechanischen  
Unfallbelastungen beim  
Transport

Abschlussbericht des  
Forschungsvorhabens  
3606R02558

Eugen Schrödl  
Wenzel Brücher  
Wolfgang Koch <sup>1)</sup>  
Viktor Ballheimer <sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> Fraunhofer Institut für Toxikologie  
und Experimentelle Medizin ITEM,  
Hannover

<sup>2)</sup> BAM Bundesanstalt für  
Materialforschung und  
-prüfung, Berlin

März 2010

Auftragsnummer: 854520

**Anmerkung:**

Das diesem Bericht zugrunde liegende FE-Vorhaben 3606R02558 wurde im Auftrag des Bundesministers für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit durchgeführt. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt beim Auftragnehmer.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers übereinstimmen.



## Kurzfassung

In diesem Forschungsvorhaben wurde das mechanische Brennelementverhalten unter postulierten Unfallbedingungen beim Transport im Hinblick auf das Deformations-, Bruch- und Freisetzungsverhalten von repräsentativen Brennstabproben mit hohem Abbrand betrachtet. Ein Ziel dieses Vorhabens war die Entwicklung und Erprobung einer Apparatur für die experimentellen Untersuchungen des Verhaltens von Brennstabsegmenten unter unfalltypischen mechanischen Biegebelastungen. Die ebenfalls geplante Durchführung von Versuchen mit abgebrannten Brennstäben konnte wegen fehlender Finanzierung nicht erreicht werden.

Mit der von Fraunhofer ITEM entwickelten Apparatur wurden Brennstababschnitte von 25 cm Länge aus Surrogatmaterialien durch Biegung bei statischer oder dynamischer Kraftereinleitung reproduzierbar belastet. Es wurden zeitlich hoch aufgelöst die integralen mechanischen Kenngrößen, Reaktionskraft und Durchbiegung des Probekörpers, aufgezeichnet sowie die Massenfreisetzung nach Stabbruch vollständig charakterisiert. Zur Interpretation der Versuchsergebnisse wurden von der BAM zusätzlich numerische Analysen durchgeführt, die im Rahmen dieses Vorhabens einen unterstützenden Charakter hatten.

Die Erprobung der Versuchsapparatur erfolgte mit inaktiven Brennstababschnitten aus frischem, pilgerhartem und im Labor hydriertem Hüllrohrwerkstoff aus Zircaloy-2. Zur Simulation des Hüllrohrinventars wurden Füllungen mit Sinterkeramik-Tabletten aus  $Y_2O_3$  und  $ZrO_2$  sowie  $Al_2O_3$  als Surrogat verwendet. Unter dynamischen Belastungen wurde bei den weniger duktilen Hüllrohrmaterialien nach relativ großen plastischen Verformungen immer ein komplettes Hüllrohrversagen induziert, bei einer Durchbiegung im Bereich von 20 bis 40 mm. Ein Massenäquivalent von maximal einer Tablette des Brennstoffsurrogats (ca. 3 g) wurde beim Versagen von hydrierten Hüllrohren unter dynamischer Belastungsform freigesetzt. Die luftgetragene Staubmenge betrug weniger als 10 Milligramm.

Das beobachtete Versagen bei großen plastischen Verformungen der verwendeten Ersatzmaterialien wird auf Grund bekannter empirischer Daten für hoch bestrahlte Brennstäbe nicht erwartet. Die Messergebnisse hinsichtlich des Austritts von groben Fragmenten des Hüllrohrinventars werden aufgrund der fehlenden Pellet-Hüllrohr-Bindung und des vorhandenen Spaltes zwischen dem Hüllrohr und den Pellets in den Proben, was diesen Austritt nach dem Bruch der Probe begünstigt, als konservativ abdeckend angesehen.

## Abstract

The research project was directed to consider the mechanical behavior of fuel elements under postulated transport accident conditions with respect to deformation, break, and release of representative fuel rods with high burn-up. A goal of the project was construction and testing of an apparatus designed to investigate the behavior of fuel rod segments under mechanical bending loads typical for a transport accident. Due to unresolved financing issues, tests with irradiated fuel rods after high burn-up could not be performed.

The apparatus constructed by Fraunhofer ITEM was applied with reproducible performance in bending tests of fuel rod segments of 25 cm length using surrogate material by means of static and dynamic application of force. Tests were performed by recording the integral mechanical parameters like force of reaction and deformation of the test specimen with high time resolution and by full characterization of mass release after breach of the fuel pin. Interpretation of the test results was performed with the assistance of numerical simulations performed by BAM which were supposed as a support in conductance of the project.

Proving the performance of the apparatus tests were performed with fresh, high-strength ("pilgerhart" i.e. without annealing), and in laboratory hydrated cladding material of Zircaloy-2. The simulation of cladding inventory used sintered ceramic pellets from  $Y_2O_3$ ,  $ZrO_2$  and also  $Al_2O_3$  as surrogate. In all tests with dynamic force application the less ductile cladding materials experienced a complete break of the fuel rodlets showing relative large plastic deformations in the range of 20 to 40 mm. The mass release of fuel surrogate material after a rod failure in dynamic tests was about the mass of a pellet (~3 g). The suspended aerosol mass was below 0.01 g.

The observed failure at large plastic deformations is not expected for fuel rods after high burn-up, thus test results in that respect are not considered to be representative for high burn-up fuel rods. The measured mass release of coarse inventory fragments is considered to represent a conservative upper bound, because the release process is fostered by the lack of pellet-cladding interactions and the gap between pellet and cladding in the test specimen.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung .....</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Stand von Wissenschaft und Technik.....</b>	<b>4</b>
2.1	Hüllrohrwerkstoffe.....	5
2.2	Einfluss der Neutronenbestrahlung auf mechanische Kenngrößen.....	7
2.2.1	Elastische Eigenschaften.....	7
2.2.2	Festigkeits- und Verformungskennwerte.....	8
2.3	Mechanische Brennstabbelastungen .....	12
2.3.1	Mechanische Belastung des Brennstabs bei einem Transportunfall .....	12
2.3.2	Innendruck durch Spaltgasfreisetzung im Brennstab .....	13
2.3.3	Hüllrohrspannung der Brennstäbe während der Trockenlagerung .....	15
2.4	Einfluss von Hydriden auf die Duktilität von Hüllrohrmaterial .....	16
2.4.1	Untersuchung der Hüllrohrversprödung durch Wasserstoff von Arsène et al.....	18
2.4.2	Untersuchungen in Zugversuchen durch Chu et al. ....	20
2.4.3	Untersuchungen mit Ringdruckversuchen durch Daum et al.....	31
2.4.4	Neuere Untersuchungen durch Daum et al.....	40
2.4.5	Untersuchungen mit Ringdruckversuchen durch Aomi et al. ....	45
2.4.6	Zusammenfassung zum Einfluss der Hydride .....	53
2.5	Ergebnisse des Workshops .....	57
2.5.1	Test program for structural behaviour of mock-up fuel rodlets under transportation accident conditions (Eugen Schrödl, GRS).....	58
2.5.2	Test apparatus – Set-up and performance (Wolfgang Koch, ITEM) .....	59
2.5.3	Mechanical safety analysis strategy for high-burnup spent fuel under accident transport conditions: Approach and experimental basis (Frank Koch, BAM) .....	60
2.5.4	Behaviour of LWR spent nuclear fuel under transport accident conditions (Sarah Forgeaud, IRSN) .....	60
2.5.5	Fission gas release (Christophe Getrey, IRSN) .....	61
2.5.6	Safety of fuel handling in the fuel cycle facilities and laboratories (Marc Phillippe, IRSN) .....	61

2.5.7	Mechanical characteristics of fuel rods in transport conditions (Jean Desquines, IRSN).....	62
2.5.8	Mechanical integrity testing of fuel claddings (Johannes Bertsch, PSI)....	62
2.5.9	Review of EPRI's research program on the structural behavior of high-burnup spent fuel subjected to transportation accidents – Relevance to GRS' project (Joe Rashid, ANATECH) .....	63
2.5.10	US testing program for hydride reorientation effects in spent fuel (Robert Einziger, US NRC) .....	64
2.5.11	Alterations in the mechanic properties of zirconium alloys and fuel due to the operating time in the reactor associated with a burn-up higher than 50 GWd/ t HM (Astrid Jussofie, GNS) .....	64
2.5.12	Mechanical testing of irradiated cladding (Slava Grigoriev, Studsvik).....	65
2.5.13	Abschlussdiskussion und Fazit .....	65
2.6	Zusammenfassung und Bewertung.....	67
<b>3</b>	<b>Versuchsplanung.....</b>	<b>70</b>
3.1	Diskussion der Einflussgrößen.....	70
3.2	Matrix der Versuche mit Surrogatmaterial .....	78
3.3	Aufbau der Versuchsapparatur .....	81
3.4	Erprobung der Versuchsapparatur .....	83
3.5	Planung der Messungen .....	83
<b>4</b>	<b>Durchführung und Ergebnisse der Versuche .....</b>	<b>84</b>
4.1	Probenmaterial .....	84
4.2	Untersuchungsprogramm .....	86
4.3	Ergebnisse.....	87
4.4	Diskussion .....	96
<b>5</b>	<b>Versuchsnachrechnungen .....</b>	<b>97</b>
5.1	Vereinfachte Analyse der Brennstabbeanspruchung .....	98
5.2	Finite-Elemente-Analysen der Biegeversuche .....	100
5.3	Ergebnisse der Versuchsnachrechnungen und zusätzliche Auswertungen.....	102

6	Zusammenfassung .....	104
7	Literaturverzeichnis.....	109
8	Abbildungsverzeichnis.....	113
9	Tabellenverzeichnis.....	117
10	Verteiler .....	119

## **Anhänge**

**Anhang A: Abschlussbericht des Fraunhofer ITEM zum Teilprojekt  
„Experimentelle Untersuchungen zum Verhalten von Brennstäben  
mit hohem Abbrand bei mechanischer Unfallbelastung (SR 2558)“**

**Anhang B: Abschlussbericht der BAM zum Teilprojekt  
„Numerische Untersuchungen im Rahmen des Vorhabens SR 2558“**





# 1 Einleitung

Zur Optimierung der Wirtschaftlichkeit von Kernkraftwerken mit Leichtwasserreaktoren (LWR) wurden in der Vergangenheit zunehmend höhere Abbrände des Brennstoffs realisiert. Dabei haben sich die mittleren Abbrände von Brennelementen kommerzieller Leistungsreaktoren bezogen auf die eingesetzte Schwermetallmasse (SM) von etwa 30 - 40 MWd/kg SM auf über 50 MWd/kg SM erhöht. Weitere Steigerungen der Batch-Abbrände bis etwa 70 MWd/kg SM werden angestrebt.

Die damit verbundenen längeren und höheren Materialbelastungen der Brennstäbe (BS) durch Bestrahlung und Korrosion verbunden mit Hüllrohr-Oxidation, Hydrid-einlagerungen im Hüllrohr, Brennstoffschwellung, Spaltgasbildung etc. bedingen eine Beeinträchtigung der Werkstoffeigenschaften des Brennstoffs und des Hüllrohrmaterials. Bei potentiellen Transport- und Handhabungsunfällen von Transport- und Lagerbehältern (TLB) mit abgebrannten Brennelementen könnte sich dadurch das Risiko einer aus Kritikalitätsgesichtspunkten unerwünschten Brennstabdeformation oder Freisetzung von Kernbrennstoff aus beschädigten Hüllrohren erhöhen.

Bei den Untersuchungen zum Verhalten von Brennelementen unter transportunfalltypischen Belastungen lag der experimentelle Fokus jedoch bisher meist auf den Hüllrohereigenschaften, während der Einfluss des Brennstoffs vernachlässigt oder nur vereinfacht berücksichtigt wurde. Nicht nur im Hinblick auf eine potentielle Freisetzung von Brennstoff, sondern auch hinsichtlich seiner Materialeigenschaften sowie der Hüllrohr-Brennstoff-Wechselwirkung kommt dem Brennstoff jedoch nach Einschätzung vieler Experten eine entscheidende Rolle zu. Geeignete experimentelle Untersuchungen für Brennstäbe mit hohem Abbrand bei gleichzeitiger Berücksichtigung des Brennstoffs sind bisher nicht frei verfügbar. Solche Experimente sind jedoch eine wichtige Voraussetzung für ausreichend belastbare numerische Analysen zur Bewertung des Verhaltens von Brennelementen mit hohem Abbrand bei mechanischen Unfallbelastungen.

Das Vorhaben 3606R02558 hatte daher zu Beginn das Ziel, ein experimentelles Untersuchungsprogramm zu konzipieren und durchzuführen, um

- das Deformations-, Bruch- und Freisetzungsverhalten von repräsentativen Brennstabproben mit hohem Abbrand (> 50 MWd/kg SM) unter transportunfalltypischen mechanischen Lasteinwirkungen zu bestimmen und

- die erforderlichen Basisdaten und Informationen bereitzustellen, die zum Verifizieren bzw. Kalibrieren der für weiterführende Transportsicherheitsuntersuchungen eingesetzten Analyseverfahren (FE-Methoden oder sonstige Verfahren) zum strukturmechanischen Verhalten hochabgebrannter Brennstäbe unter Unfallbelastungen herangezogen werden können.

Das Vorhaben enthielt dementsprechend zunächst neben der Entwicklung und Erprobung einer für bestrahlte und unbestrahlte Proben geeigneten Versuchsapparatur auch den Übergang zu einem Versuchsprogramm unter Verwendung von unbestrahlten und bestrahlten Brennstabsegmenten. Da die für die letztgenannten „heißen“ Versuche notwendige Fremdfinanzierung jedoch im Projektverlauf nicht erreicht werden konnte, musste das Vorhaben um diesen Projektteil gekürzt werden.

Die wesentliche Veränderung der ursprünglichen Vorhabensziele resultierte aus der Beschränkung des experimentellen Teils auf unbestrahlte Hüllrohr- und Brennstoff-Surrogatmaterialien. Teilweise kompensierend wirkte hier der verstärkte Austausch von international verfügbaren experimentellen und theoretischen Erkenntnissen. Mit diesen Änderungen wurden in dem Vorhaben schließlich folgende Ziele verfolgt:

- Entwicklung eines Versuchskonzeptes zur Untersuchung des Verformungs-, Bruch- und Freisetzungsverhaltens von hoch abgebrannten Brennstabsegmenten in einer heißen Zelle,
- Experimentelle Bestimmung des Verformungs-, Bruch- und Freisetzungsverhaltens von gefüllten inaktiven Brennstabhüllrohrproben zur angenäherten Abbildung von Brennstäben mit hohem Abbrand unter unfalltypischen Lasteinwirkungen,
- Sichtung und Diskussion des internationalen Erkenntnisstandes zum mechanischen Verhalten von hochabgebranntem Brennstoff bei Unfallbeförderungsbedingungen zur Optimierung der Experimente und zur Beurteilung der Übertragbarkeit der Versuchsergebnisse mit inaktiven Proben,
- Bereitstellung von experimentell gewonnenen Basisdaten und Informationen zur Weiterentwicklung, Kalibrierung und Validierung von Analyseverfahren für weiterführende Transportsicherheitsuntersuchungen zum strukturmechanischen Verhalten von Brennelementen bzw. Brennstäben (BE / BS) unter Unfallbelastungen.

Die numerischen Analysen zu der Phase der „kalten“ Versuche haben im Wesentlichen einen unterstützenden Charakter für die Experimente.

Das Untersuchungsprogramm wurde unter Leitung der GRS in Zusammenarbeit mit dem Fraunhofer Institut für Toxikologie und Experimentelle Medizin (Fraunhofer ITEM, Hannover) und der Bundesanstalt für Materialforschung und –prüfung (BAM, Berlin) ausgeführt. Desweiteren waren die Gesellschaft für Nuklear-Service mbH (GNS, Essen) und AREVA-NP (Erlangen) in beratender bzw. fördernder Funktion oder als Auftragnehmer am Vorhaben beteiligt. Das Institut für Transurane (ITU, Karlsruhe) war in der Anfangsphase des Vorhabens beteiligt, solange das Versuchsprogramm auch auf die Verwendung von bestrahlten Brennstabsegmenten ausgerichtet war.

Aus der oben genannten Zielsetzung des Vorhabens ergeben sich folgende wesentliche Arbeitspunkte:

- Konzeption, Realisierung und Kalterprobung einer Versuchsapparatur zur Analyse des Verformungs- Bruch- und Freisetzungsverhaltens von inaktiven Brennstabproben als Prototyp für gleichartige Versuche mit aktiven, hochabgebrannten Brennstababschnitten,
- vertiefte Recherche des Standes von W&T und Erkenntnisaustausch mit internationalen Experten zur Optimierung des Versuchsaufbaus und der Versuchsmatrix sowie Diskussion der Versuchsergebnisse und des internationalen Kenntnisstandes bei einem Workshop,
- Durchführung von statischen und dynamischen Versuchen zum Verformungs- Bruch- und Freisetzungsverhaltens von inaktiven Brennstabproben mit Surrogatmaterial,
- Auswertung der Versuche zur Bereitstellung von Basisdaten für die Weiterentwicklung, Kalibrierung und Validierung von Analyseverfahren,
- Ableitung von Schlussfolgerungen zur Übertragbarkeit der Ergebnisse auf das mechanische Verformungs- und Freisetzungsverhalten von Brennstäben mit hohem Abbrand.

## 2 Stand von Wissenschaft und Technik

Die folgenden Darstellungen geben zusammenfassend Ergebnisse zum Stand von W&T aus dem Zwischenbericht des Vorhabens wieder /SCH 08/ (Kapitel 2.1 bis 2.3) und enthalten weiterhin Ergebnisse einer vertiefenden Literaturanalyse zum Einfluss von Hydriden auf die Duktilität von Hüllrohren (Kapitel 2.4) sowie Ergebnisse eines Workshops „Behaviour of LWR Spent Nuclear Fuel under Transport Accident Conditions“, der mit Beteiligung von internationalen Experten am 4. und 5. Dezember 2008 beim Fraunhofer ITEM in Hannover abgehalten wurde (Kapitel 2.4.6).

Der vorliegenden Bericht knüpft an eine vorangegangene Untersuchung „SR 2497 Erfassung, Bewertung und Fortentwicklung der sicheren Beförderung radioaktiver Stoffe „Mechanische Unfallbelastungen beim Transport von frischen und abgebrannten Brennelementen“ /LAN 05/ an, in dem der Kenntnisstand zur Belastung und zum Struktur- und Bruchverhalten von frischen und abgebrannten Brennelementen bei potentiellen Transportunfällen zusammengetragen wurde. Zur Beurteilung des Struktur- und Bruchverhaltens der Brennelemente wird in Übereinstimmung mit den Auslegungsanforderungen für Typ B-Versandstücke der internationalen Transportvorschriften ein Fall aus 9 m Höhe auf ein unnachgiebiges Fundament unterstellt. Für die Beanspruchung der Brennelemente im Zusammenhang mit einer Beschädigung der Brennstabhüllrohre und einer Freisetzung des Brennstoffes erweist sich der Mantelaufprall als die ungünstigste Fallposition.

Die gegenwärtigen gesetzlichen Regelungen bezüglich Lagerung und Transport von abgebranntem Kernbrennstoff dienen in erster Linie dazu, den Zustand der Unterkritikalität aufrechtzuerhalten und sicherzustellen, dass die Strahlendosis unterhalb der gesetzlichen Grenzwerte liegt, dass die Transport- und Lagerbehälter für abgebrannten Kernbrennstoff eine adäquate Einschließung und Rückhaltung darstellen und der Brennstoff rückholbar ist.

Mit zunehmendem Entladeabbrand wird das Hüllrohrmaterial des abgebrannten Brennstoffs empfindlicher gegen sprödes Brechen unter normalen Bedingungen oder postulierten Unfallbedingungen bei Handhabung, Lagerung und Transport des abgebrannten Kernbrennstoffs.

Der Einfluss von Wasserstoff und Hydriden auf die Stoffeigenschaften von Zirkonium und zirkoniumreichen Legierungen wurde wegen der herausragenden Bedeutung der

Zirkoniumlegierungen als Hüllrohrwerkstoff in wassergekühlten Kernreaktoren schon seit langem untersucht und z. B. im Übersichtsartikel von Northwood und Kosasih /NOR 83/ dargestellt, wobei dort insbesondere der schädliche Effekt von radial orientierten Hydriden im Prozess des HIDC (hydrogen-induced delayed cracking) herangezogen wurde, um die Leckagen von Druckröhren in den CANDU-Reaktoren Pickering Block 3 und Block 4 im August 1974 zu erklären.

Hydridausscheidung, Korrosion (d. h. Wandstärkeverringern) und Strahlenschädigung aus dem Reaktoreinsatz verringern die Duktilität und Schlagfestigkeit des Brennstabhüllrohrs. Die mutmaßlich stärksten Schädigungen können bei der Beladung von Transport- und Lagerbehältern im Abklingbecken und der anschließenden Trocknung auftreten, in dem sie zu thermomechanischen Bedingungen führen, die die Bildung von radialen Hydriden fördern sowie Duktilität und Schlagfestigkeit der Hüllrohre reduzieren und somit das Hüllrohr empfindlicher gegen Spröbruch bei einem Behälterfall bei der Handhabung oder bei einem hypothetischen Unfall machen. Dies trifft insbesondere auf die Spätphase der Trockenlagerung zu, wenn die Temperaturen unterhalb der Spröd-Duktil-Übergangstemperatur von Zirkoniumhydrid (ductile-to-brittle transition temperature, DBTT) erwartet werden und die Temperaturen sich in einem Bereich befinden, in dem mehr Wasserstoff als Hydrid abgeschieden wird als bei den vergleichsweise hohen Temperaturen in der Anfangsphase der Trockenlagerung.

## **2.1 Hüllrohrwerkstoffe**

Legierungen auf der Basis von Zirkonium (Zr) haben sich als Hüllrohrwerkstoff für Leichtwasserreaktoren (LWR) durchgesetzt, weil sich ausgehend von dessen sehr niedrigem Wirkungsquerschnitt für die Reaktion mit thermischen Neutronen durch weiterentwickelte Legierung mit Spuren von Zinn, Eisen, Chrom, Nickel oder Niob und dem mechanisch-thermischen Produktionsverfahren die steigenden Anforderungen hinsichtlich Korrosionsbeständigkeit und Integrität erfüllen ließen /SCH 08/.

Die nickelhaltige Legierung Zircaloy-2 (Zry-2) bildet auch heute für Siedewasserreaktoren (SWR) das übliche Basismaterial. Zum Schutz gegen Hüllrohrschäden durch PCI (Pellet Cladding Interaction) wurden Hüllrohre mit einer dünnen Beschichtung der Innenoberfläche (Liner) mit reinem Zirkonium-Metall und später durch mit Eisen legiertem Zirkonium versehen und einem „Low-Temperature-Process“ (LTP) unterzogen. Als Alternative zu dem Liner-Hüllrohr, entwickelte Siemens (heute AREVA-NP) das LTP-2-

Material, ein LTP-Hüllrohr mit schärferer radialer Textur und kleinerem Korn, das gegen PCI widerstandsfähiger sein soll als ein LTP-Nichtliner-Hüllrohr. Um die Korrosionsbeständigkeit bei hohem Abbrand zu verbessern, hat Framatome ANP das LTP-PGP+-Material mit etwas größeren Sekundärphasenpartikeln eingeführt. „PGP+“ steht für „optimised particle growth parameter“ bei der Wärmebehandlung im Herstellungsprozess /SCH 08/.

Bei der Entwicklung von Hüllrohrmaterialien mit verbesserten Korrosionseigenschaften für Druckwasserreaktoren (DWR) wurde von Siemens zunächst Zircaloy-4 (Zry-4) durch geringeren Gehalt an Sn und erhöhtem Gehalt an Fe und Cr optimiert. Ende der 80iger Jahre entwickelte Siemens und etwas später ABB (heute: Westinghouse Electric Sweden) das Duplex-Konzept (DX), bei dem die Hüllrohrwand aus zwei Lagen bestand: Ein innerer Zylinder aus Zircaloy-4 wurde in inniger Verbindung mit einer äußeren Lage (etwa 100 µm dick) aus korrosionsresistentem Material aus ELS (extra low Sn) umgeben. In Deutschland sind sowohl Duplex-Hüllrohre von Siemens (Areva) wie auch ABB (Westinghouse) im Einsatz. Bei Brennstababbränden bis hin zu Werten zwischen 55 und 60 MWd/kg U wurden von Siemens die optimierten Zry-4-Hüllrohre PCA-2a- und PCA-2b-Vollrohre (Prime Candidate Alloy PCA) eingesetzt. Für noch höhere Abbrände wurden Duplex-Rohre bevorzugt. Das DX ELS0.8b-Hüllrohr ist seit 1989 im Einsatz. Mit dem DX D4-Rohr, einer Weiterentwicklung, können Brennstab-Abbrände im Bereich 70 MWd/kg U realisiert werden. Für noch höhere Abbrände wurden moderne Hochleistungshüllrohre als Zirconium-Eisen-Niob-Legierung (wie M5<sup>TM</sup> von AREVA-NP oder ZIRLO von Westinghouse) entwickelt und verstärkt verwendet /SCH 08/.

Neben den Legierungsbestandteilen hat auch der Herstellungsprozess einen großen Einfluss auf die Hüllrohreigenschaften, wobei die Wärmebehandlung des Hüllrohrs von wesentlicher Bedeutung ist. Eine Wärmebehandlung ist nach jedem einzelnen Schritt der Kaltverformung (Pilgerverfahren nach Mannesmann) erforderlich, um die eingebrachte Kaltverfestigung zu beseitigen und die plastischen Eigenschaften wieder herzustellen. Nach dem letzten Pilgerschritt der Kaltverformung wird mit dem Abschlussglühen durch Glüh Temperatur und Glühdauer das Material spannungsarm gegläht oder rekristallisiert, wodurch die mechanischen und korrosiven Eigenschaften des Hüllrohrs festgelegt werden. Eine Glühbehandlung bei 550 - 600 °C über etwa 4 Stunden führt zu einem voll rekristallisierten Hüllrohr (recrystallized anneal, RXA), in dem der ursprüngliche Gefügestand wiederhergestellt ist. Mit einer geringeren Glüh Temperatur von etwa 480 °C erreicht man ein spannungsarm geglähtes kaltverformtes

Hüllrohr (cold worked stress relief anneal, SRA), das eine höhere Festigkeit (Streckgrenze, Zugfestigkeit) besitzt als das rekristallisierte Rohr /FOU 07/, /LEM 94/.

## 2.2 Einfluss der Neutronenbestrahlung auf mechanische Kenngrößen

Die mechanischen Eigenschaften des Hüllrohrwerkstoffs Zircaloy werden im Reaktorbetrieb in erster Linie durch die Bestrahlung mit schnellen Neutronen ( $E > 1 \text{ MeV}$ ) und durch Korrosion beeinflusst. Die integrale Fluenz energiereicher Neutronen ( $E > 1 \text{ MeV}$ ) steht in direktem Zusammenhang mit dem Abbrand des Kernbrennstoffs. Nachfolgend wird für LWR-Reaktoren eine Neutronenfluenz von  $2,1 \text{ E}24 \text{ n}\cdot\text{m}^{-2}$  äquivalent zu einem Abbrand von  $1 \text{ MWd/kg SM}$  verwendet. Der Mechanismus der Strahlenschädigung besteht darin, dass durch Stoß der schnellen Neutronen mit Zirconium-Atomkernen des Kristallgitters durch Energieübertragung Zr-Atome ihren ursprünglichen Gitterplatz verlassen und mit der übertragenen Rückstoßenergie von maximal  $44 \text{ keV}$  weitere Gitteratome stoßen können. Dieser Vorgang kann zu einer Kaskade von Stoßprozessen führen, in dem mehrere Hundert Leerstellen im Kristallgitter und Atome auf Zwischengitterplätzen (Frenkel-Paare) entstehen und dabei ein Gebiet hoher Versetzungsdichte erzeugen. Abschätzungen zur Effizienz geben an, dass im Hüllrohrmaterial eines DWR bei einer Fluenz von  $1,0 \text{ E}25 \text{ n}\cdot\text{m}^{-2}$  (Abbrand ca.  $5 \text{ MWd/kg SM}$ ) im Mittel jedes Atom zwei Versetzungen (displacements per atom, dpa) erlebt hat. Dies zeigt aber auch, dass bei Temperaturen von etwa  $300 \text{ °C}$  im Reaktor gleichzeitig auch durch Rekombination viele der strahlungsbedingt entstandenen Fehlstellen im Kristallgitter wieder neu besetzt werden und somit ein Ausglühen stattfindet /LEM 94/.

### 2.2.1 Elastische Eigenschaften

Der Elastizitätsmodul  $E$  oder E-Modul (engl. Young's modulus) ist die Steigung des linearen Abschnitts eines Spannungs-Dehnungsdiagramms. Die Querkontraktionszahl oder Poisson-Zahl (Poisson's ratio)  $\nu$  ist definiert als Verhältnis aus relativer Dickenänderung  $\Delta D / D$  zur relativen Längenänderung  $\Delta L / L$  im linear-elastischen Bereich bei einachsigen Zugversuch.

Der E-Modul und die Querkontraktionszahl sind für unbestrahlte und bestrahlte Hüllrohre kaum verschieden. Nach /FOU 07/ ist bei  $20 \text{ °C}$  der E-Modul für Zry-4  $97 \text{ GPa}$  und  $74 \text{ GPa}$  bei  $400 \text{ °C}$ . Für die Abhängigkeit von der absoluten Temperatur wird die Beziehung  $E \text{ (MPa)} = 114800 - 59,9 \times T \text{ (K)}$  angegeben. Bei rekristallisierten Zirconium-

legierungen, wie M5, wird ein etwas geringerer Wert erwartet als bei spannungsfrei geglähtem Material. Für beide Materialarten wird eine Querkontraktionszahl im Bereich von 0,3 bis 0,4 erwartet.

## 2.2.2 Festigkeits- und Verformungskennwerte

Auf die Festigkeits- und Verformungseigenschaften, Streckgrenze  $R_e$  (yield stress, YS), Zugfestigkeit  $R_m$  (ultimate tensile strength, UTS) und Bruchdehnung  $A$  (ultimate elongation, UE) wirkt die Bestrahlung verhärtend: Streckgrenze und Zugfestigkeit nehmen zu und Bruchdehnung nimmt ab (Abb. 2.1). Bei Temperaturerhöhung wiederum nehmen die Streckgrenze und die Zugfestigkeit ab und die Bruchdehnung zu.

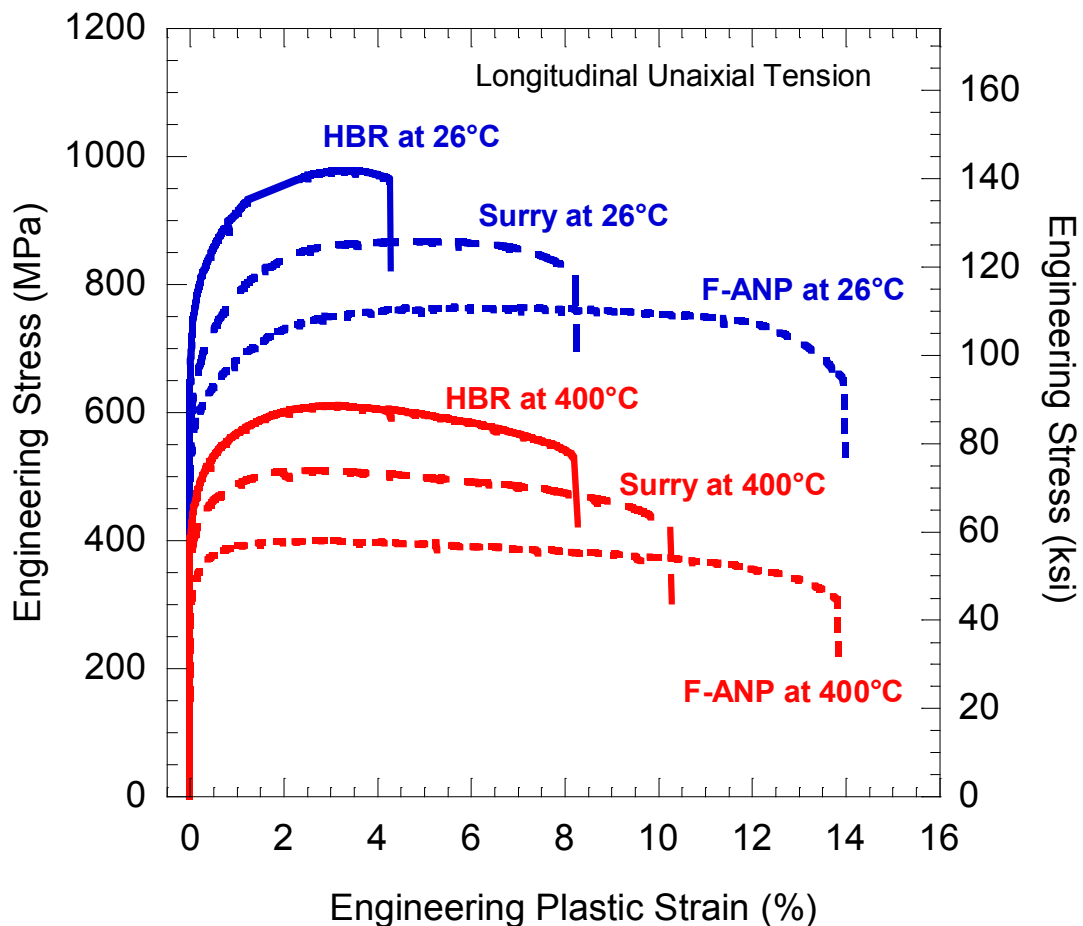


Abb. 2.1 Spannungs-Dehnungs-Diagramm von Zry-4 im Bereich der plastischen Verformung: Unbestrahlt (F-ANP), niedriger Abbrand (Surry 36 MWd/kgU), hoher Abbrand (HBR 67 MWd/kgU), Temperatur: RT (26 °C), 400 °C /BIL 05/



### 2.2.2.1 Streckgrenze

Bei Werkstoffen ohne ausgeprägte Streckgrenze wird Fließen durch eine Spannung bei einer festgelegten bleibenden Dehnung beschrieben. Diese Ersatzstreckgrenze oder Dehngrenze (yield strength, YS) ist eine praktische Näherung der Elastizitätsgrenze und wird aus dem Spannungs-Dehnungs-Diagramm bestimmt. Sie ist die Spannung am Schnittpunkt der Spannungs-Dehnungskurve mit einer Linie, die parallel zum geraden Anteil dieser Kurve verläuft und um einen vorgegebenen Dehnungswert verschoben ist. Für Metalle wird üblicherweise ein Versatz (Offset) von 0,2% angegeben (0,2%-Dehngrenze  $R_{p0,2}$ ), d. h. der Schnittpunkt der Offset-Linie mit der Achse für 0-Spannung liegt bei einer Dehnung von 0,2%. Für Kunststoffe beträgt der Versatz in der Regel 2%.

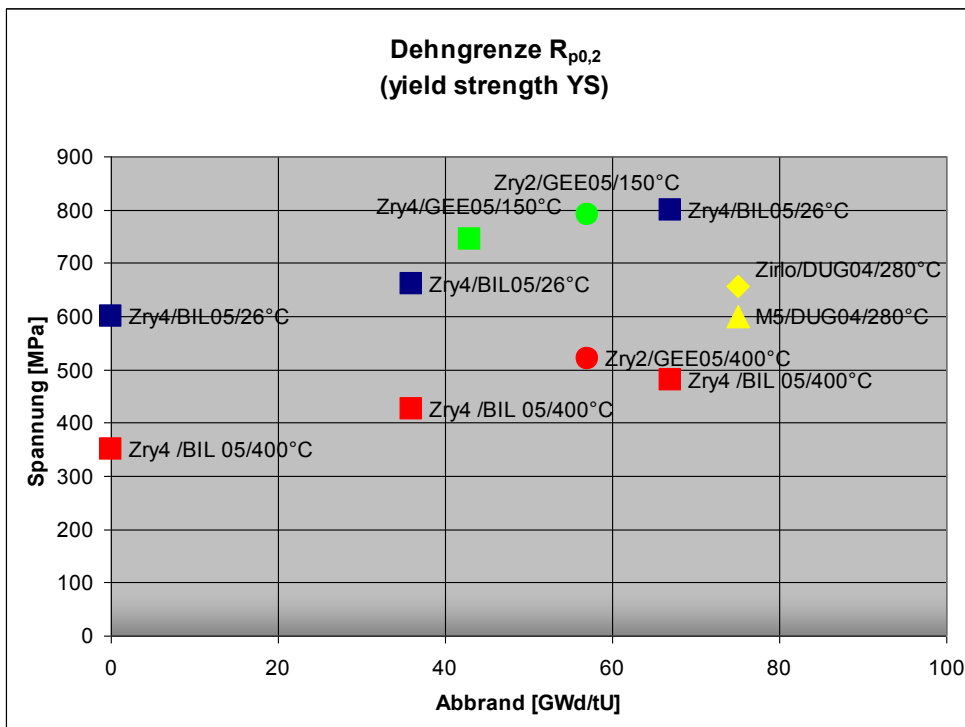


Abb. 2.2 Vergleich von experimentellen Dehngrenzen  $R_{p0,2}$  in Abhängigkeit von Temperatur und Abbrand /SCH 08/

Für verschiedene Hüllrohrmaterialien sind in Abb. 2.2 experimentelle Werte der 0,2%-Dehngrenze  $R_{p0,2}$  als Streckgrenze bei verschiedenen Abbränden und Temperaturen vergleichend wiedergegeben. Zumindest für Zry-4 lässt sich eine Zunahme der Streckgrenze mit wachsendem Abbrand entsprechend der Daten in Abb. 2.1 feststellen, gleichermaßen für Raumtemperatur und mit abgesenkten Werten bei 400 °C. Für die

Hüllrohrwerkstoffe Zry-2, Zirlo und M5 liegen zu wenige Daten vor, um eine derartige Bewertung machen zu können.

### 2.2.2.2 Zugfestigkeit

Die Zugfestigkeit  $R_m$  (ultimate tensile strength, UTS) ist die Spannung, die im Zugversuch aus der maximal erreichten Zugkraft bezogen auf den ursprünglichen Querschnitt der Probe errechnet wird.

Für verschiedene Hüllrohrmaterialien sind in Abb. 2.3 experimentelle Werte der Zugfestigkeit bei verschiedenen Abbränden und Temperaturen vergleichend wiedergegeben. Zumindst für Zry-4 lässt sich eine Zunahme der Zugfestigkeit mit wachsendem Abbrand entsprechend der Daten in Abb. 2.1 feststellen, gleichermaßen für Raumtemperatur und mit abgesenkten Werten bei 400 °C. Für den Hüllrohrwerkstoff Zry-2 erkennt man bei Raumtemperatur eine starke Zunahme bei kleinem Abbrand und nach 20 MWd/kg U einen deutlich schwächeren Anstieg, was dem in der Literatur angesprochenen Plateau entspricht /LEM 94/.

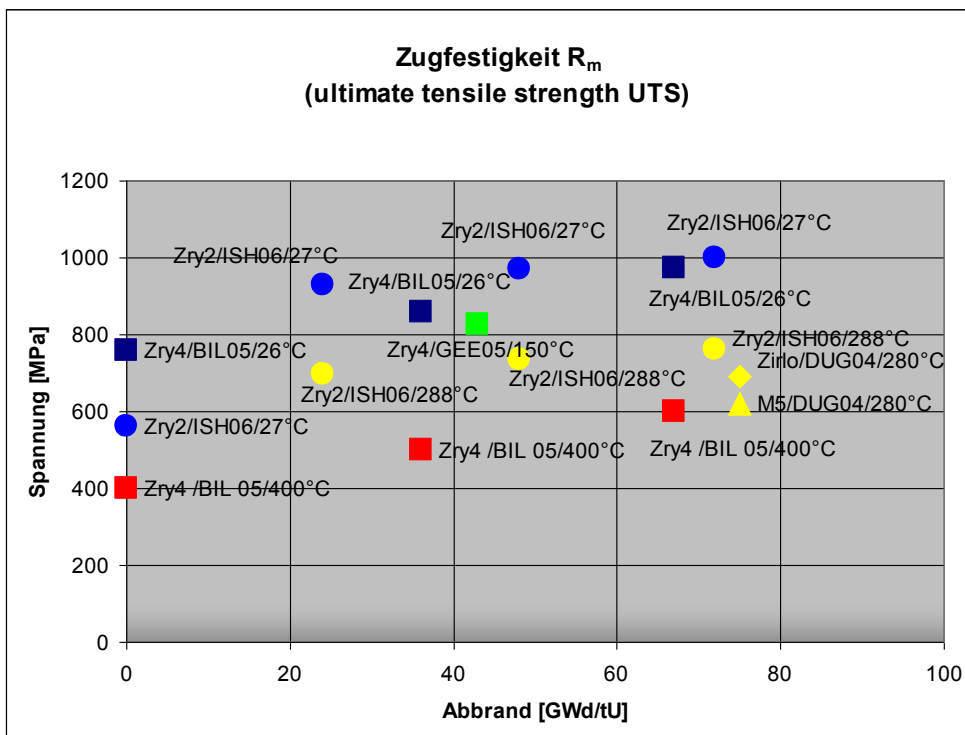


Abb. 2.3 Vergleich von experimentellen Zugfestigkeiten  $R_m$  in Abhängigkeit von Temperatur und Abbrand

### 2.2.2.3 Bruchdehnung

Die Bruchdehnung ( $A$ ) gibt die bleibende Verlängerung der Probe nach dem Bruch, bezogen auf die Anfangsmesslänge  $L_0$ , an. Sie charakterisiert die Verformungsfähigkeit eines Werkstoffes. Infolge der örtlich begrenzten Einschnürung ist die Bruchdehnung  $A$  abhängig von der Anfangsmesslänge  $L_0$ . Um vergleichbare Werte für die Bruchdehnung zu erhalten, werden für Zugversuche Proportionalstäbe verwendet, d.h. Proben, bei denen die Anfangsmesslänge  $L_0$  zum Ausgangsquerschnitt  $S_0$  in festem Verhältnis steht. Bei Rundproben wird die Bruchdehnung meist mit  $A_5$  oder  $A_{10}$  angegeben. Der Index bezieht sich auf das Verhältnis der Anfangsmesslänge  $L_0$  zum Anfangsdurchmessers  $d_0$ .

In den Abb. 2.4 und Abb. 2.5 sind für Zry-2 und Zry-4 bei Raumtemperatur und höheren Temperaturen unterhalb 400 °C Bruchdehnungen von unbestrahltem und bis auf etwa 70 MWd/kg U bestrahltem Hüllrohr wiedergegeben. Bei beiden Hüllrohrtypen nimmt die Bruchdehnung mit steigendem Abbrand ab. Der Rückgang der Duktilität ist besonders markant für rekristallisationsgeglühtes Zry-2 bei Raumtemperatur, bei dem die hohe plastische Verformbarkeit des unbestrahlten Materials (25 %) in der Anfangsphase der Bestrahlung sehr stark und mit zunehmender Bestrahlung auf etwa 3 % bei 70 MWd/kg U langsamer abnimmt. Für das spannungsarm geglühte Zry-4 ist der Strahlungseinfluss auf die Bruchdehnung durch den Rückgang von 14 auf 4 % bei Raumtemperatur eher linear und teilweise durch die höhere anfängliche Versetzungsdichte überlagert /LEM 94/.

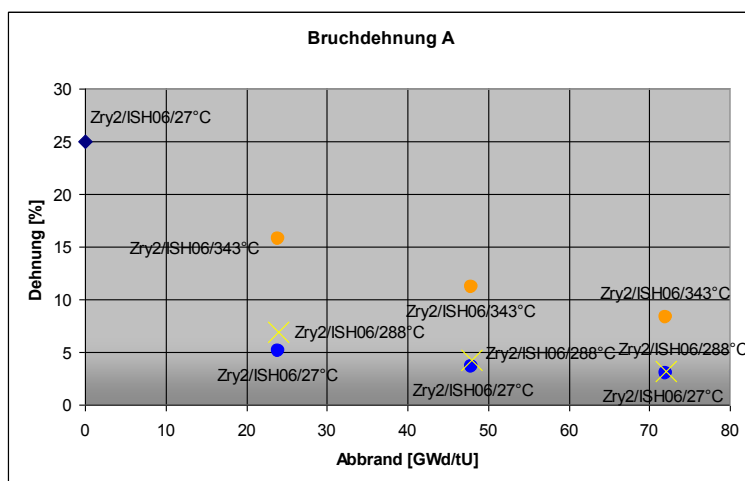


Abb. 2.4 Bruchdehnung A von Zircaloy-2 gemessen bei verschiedenen Abbränden und Temperaturen /SCH 08/

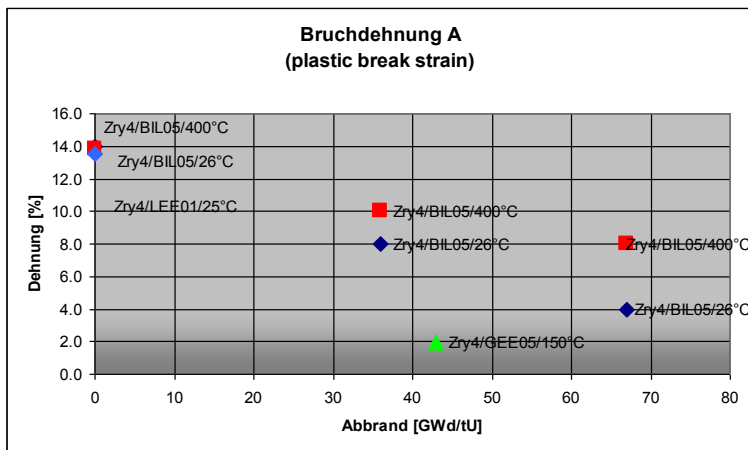


Abb. 2.5 Bruchdehnung A von unbestrahltem und bestrahltem (36, 43, 67 MWd/kgU) Zircaloy-4 bei 26 °C und 400 °C /SCH 08/

## 2.3 Mechanische Brennstabelastungen

### 2.3.1 Mechanische Belastung des Brennstabs bei einem Transportunfall

In der Quelltermstudie /SAN 92/ sind drei Versagensmodi bei mechanischer Belastung von Brennstäben unterschieden worden, wobei nach Abb. 2.6 (A) ein transversaler Riss in Umfangsrichtung, (B) ein vollständiger Bruch in einer Querschnittsfläche oder (C) ein longitudinaler Riss entlang einer Mantellinie auftritt. Die Versagensmodi A und B werden bei einer Biegebelastung mit dominierender axialer Zugspannung erwartet, während der Versagensmodus C durch eine Quetschlast mit vorwiegend tangentialer Spannung durch Stab-Stab- oder Stab-Wand-Wechselwirkung hervorgerufen wird. Die Versagensmodi A und B sind im Gegensatz zu C von der Existenz radialer Hydride unbeeinflusst /RAS 04/. Der Versagensmodus C wird in /RAS 04/ als wahrscheinlich beherrschend bei einem mechanischen oder thermischen Unfall angesehen. Im Rahmen dieses Vorhabens wird auf Grund höherer Relevanz hinsichtlich eines Spaltstoffaustritts das Brennstabverhalten unter Biegebeanspruchung (Versagensmoden A und B) betrachtet (vgl. Anhang B).

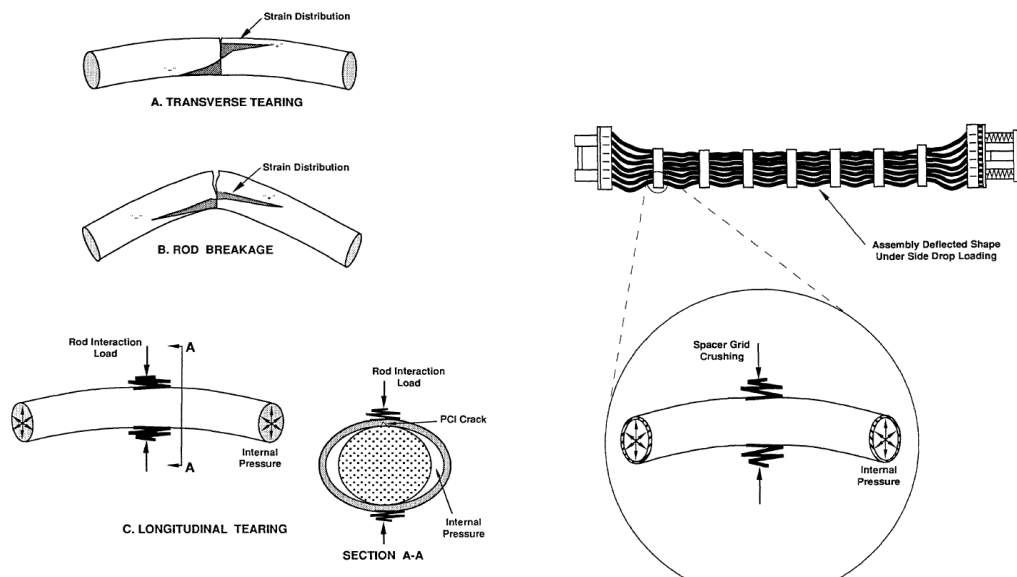


Abb. 2.6 Versagensmodi für Hüllrohre (links) und Beispiel für Modus C (rechts) nach /SAN 92/

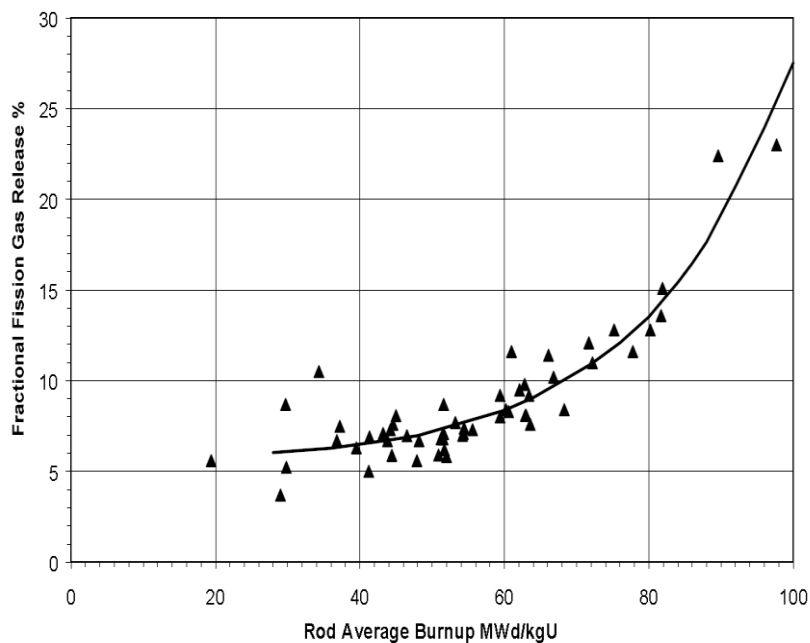
### 2.3.2 Innendruck durch Spaltgasfreisetzung im Brennstab

Die Ermittlung der Freisetzung von Spaltgasen (Xe und Kr) aus der Brennstoffmatrix in das freie Volumen von Brennstäben erfolgte in einem Untersuchungsprogramm von Siemens an einzelnen Brennstäben mit Anfangsanreicherung von 3,5 bis 4,2 Gew.-% U-235, die aus Brennelementen vom Typ 15x15 aus einem kommerziellen Druckwasserreaktor (DWR) stammen /MAN 00/. Dabei wurden in bis zu neun Bestrahlungszyklen mittlere Stababbrände von 98 MWd/kgU erreicht, was einem Peak-pellet-Abbrand von 102 MWd/kgU entspricht. Die Abbrandhistorie und typische lineare Stableistungen (linear heat generation rates, LHGR) wurden für die gesamte maximale Bestrahlungsdauer angegeben (s. Tab. 2.1).

**Tab. 2.1**

**Kumulativer mittlerer Abbrand und mittlere lineare Stableistung**

Cycle	Cycle Average LHGR W/cm	Cumulative Average Burnup MWd/kgU
1	270 - 340	15 - 19
2	260 - 290	29 - 37
3	210 - 230	41 - 48
4	180 - 200	51 - 59
5	170 - 180	60 - 67
6	160 - 170	71 - 72
7	150 - 160	78 - 82
8	140	90
9	140	98



**Abb. 2.7**

**Freisetzungsanteile für Spaltgase aus DWR-Brennstäben mit Anfangsanreicherung von 3,5 bis 4,2 Gew.-% U-235 als Funktion des mittleren Stababbrands /MAN 00/**

Nach jedem Betriebszyklus wurden einzelne Stäbe entnommen und im Labor einer Detailuntersuchung unterzogen. Bei der Messung der Spaltgasfreisetzung wurde der nach dem Anbohren des Hüllrohrs in einer vakuumdichten Expansionskammer entstehende Druck gemessen und durch Massenspektrometrie die Isotopenzusammensetzung bestimmt. Die Ergebnisse der Untersuchungen zeigen bis zum

Abbrand von 50 MWd/kgU einen näherungsweise linearen Anstieg auf bis zu 7 % des Spaltgasinventars. Bei höheren Abbränden steigt der Freisetzunganteil der Spaltedelgase exponentiell an und erreicht bei 100 MWd/kgU nahezu 28 % (s. Abb. 2.7).

Untersuchungen der Spaltgasfreisetzung bei Abbränden bis maximal etwa 55 MWd/kgSM für Kernbrennstoff aus  $UO_2$  und MOX in Frankreich bestätigen i. W. diese Ergebnisse (Abb. 2.8) /BLA 00/. Die höhere Spaltgasfreisetzung bei MOX-Brennstäben gegenüber  $UO_2$ -Brennstäben wurde darauf zurückgeführt, dass in erster Linie deren lineare Wärmeerzeugungsrates bei vergleichbarem Abbrand höher war und in geringerem Maße durch abweichende spezifische physikalische Eigenschaften des MOX-Brennstoffs (thermische Leitfähigkeit, Mikrostruktur) bedingt sei.

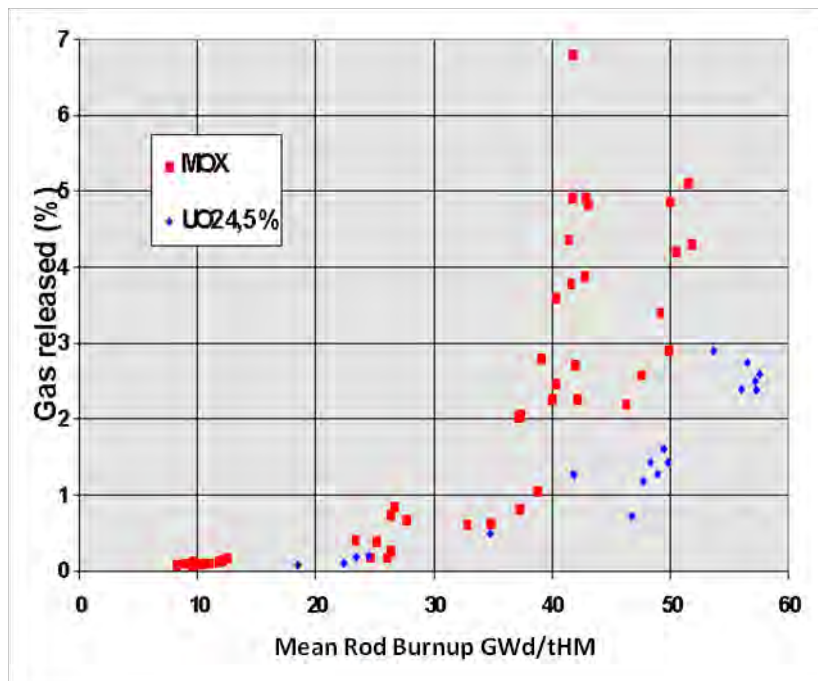


Abb. 2.8 Spaltgasfreisetzung aus Brennstäben mit Brennstofftabletten aus MOX oder  $UO_2$  mit 4,5 % Anfangsanreicherung U-235 nach maximal 4 Zyklen bei linearer Stableistung von 130 – 170 W/cm /BLA 00/

### 2.3.3 Hüllrohrspannung der Brennstäbe während der Trockenlagerung

Maßgeblich für die Bildung radial orientierter Hydridausscheidungen sind, abgesehen von der Wasserstoffkonzentration im Hüllrohr, die Hüllrohrtemperatur bei Beginn der Trockenlagerung und die Umfangsspannung am Ende der Trockenlagerung. Im Rahmen der Modellentwicklung für EPRI wurde von /JAM 05/ der Verlauf der Umfangs-

spannung in einem Zircaloy-4 Hüllrohr mit einer Anfangstemperatur von 400 °C und 150 MPa Umfangsspannung während der 40-jährigen Lagerzeit berechnet (Abb. 2.9). Der Wert von 150 MPa Umfangsspannung entspricht einem Brennstabinnendruck bei Entladung, der sich am oberen Ende des Variabilitätsbereichs befindet /JAM 05/. In Abb. 2.9 wird neben der konstanten Spannung, der abnehmende Spannungsverlauf bei sinkender Temperatur ohne Kriechen und mit Kriechen des Hüllrohrs dargestellt. Entsprechend dieser Analyse ist bei thermisch hoch beanspruchten Brennstäben zum Ende einer 40-jährigen Lagerzeit mit einer Umfangsspannung zu rechnen, die in dem Bereich von 90 – 110 MPa liegt, der auch in anderen Analysen für eine Radialhydridausscheidung als erforderlich angesehen wird.

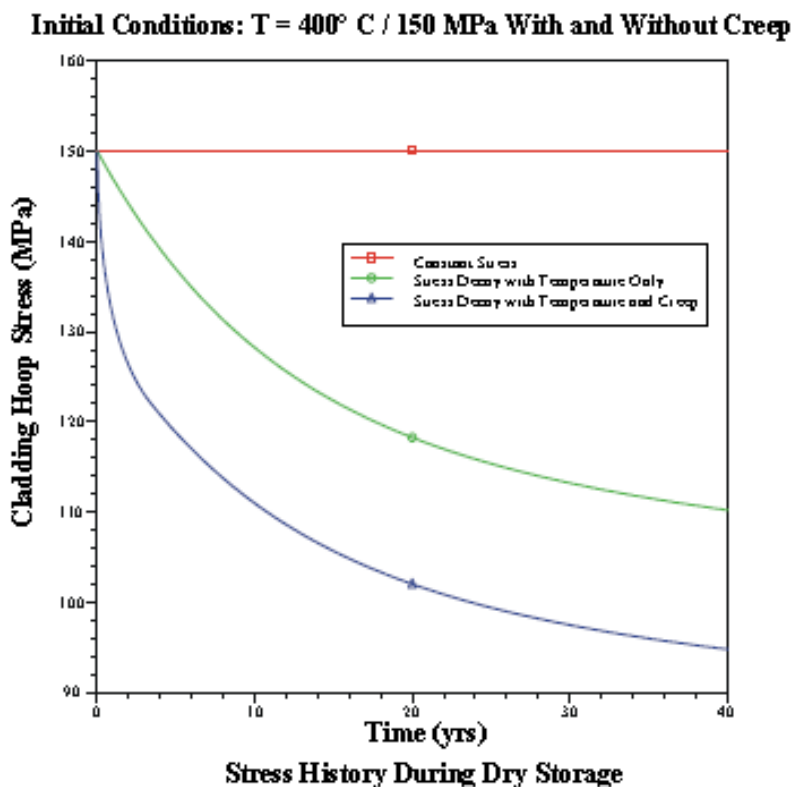


Abb. 2.9 Berechnete Hüllrohrspannung während der Trockenlagerung bei hypothetischer konstanter Temperatur (rot), tatsächlich sinkender Temperatur (grün) und bei zusätzlich modelliertem Hüllrohrkriechen (blau) /JAM 05/

## 2.4 Einfluss von Hydriden auf die Duktilität von Hüllrohrmaterial

Wasserstoff wird vom Hüllrohrmaterial während des Betriebs im Reaktor als Folge der wasserseitigen Oxidation des Hüllrohres durch das Kühlmittel aufgenommen. Die che-



mische Reaktion zwischen dem Zirconium des Hüllrohres und dem Wasser des Kühlmittels lautet:  $\text{Zr} + 2 \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{ZrO}_2 + 4 \text{H}^\cdot$ . Das Wasserstoffradikal wird dabei atomar in das Kristallgitter aufgenommen, wobei der Anteil des aufgenommenen Wasserstoffs, bezeichnet als Pickup-Faktor, zwischen 15 % für Zry-4 und 7,3 % für M5 in DWR-Hüllrohren liegt /FOU 07/. Der vom Hüllrohr aufgenommene Wasserstoff ist entweder im Kristallgitter gelöst oder nach Überschreitung der Löslichkeitskonzentration als Ausscheidung in Form von Hydridplättchen metallographisch sichtbar. Hydridausscheidungen erfolgen bevorzugt nahe der äußeren (kälteren) Oberfläche des Hüllrohres.

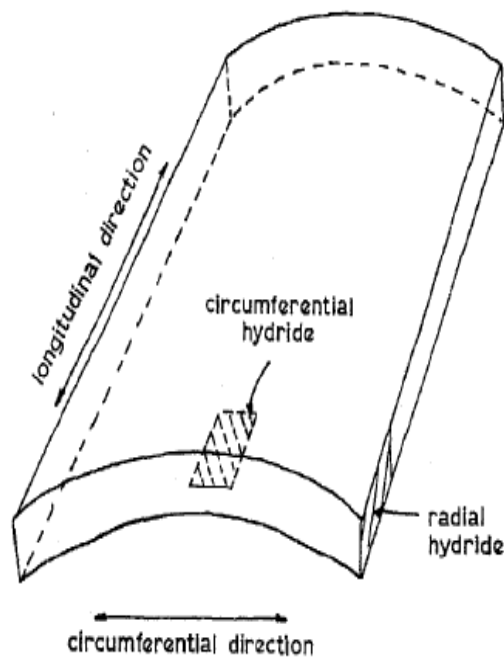


Abb. 2.10 Ausschnitt eines Hüllrohres mit schematischer Darstellung von umfangsorientierter oder radialer Hydridausscheidung /NOR 83/

Aufgrund der verwendeten Kaltverarbeitungsverfahren werden die Zirconiumhydride bevorzugt in einer umfangsorientierten Form abgeschieden (Abb. 2.10), wobei bis zu einer Konzentration von bis zu 500 ppm Gewichtsanteil Wasserstoff (H) für die mechanischen Festigkeitseigenschaften bei einer Umfangsspannung durch den betrieblichen Innendruck keine nennenswerten Nachteile entstehen. Durch die Wärmebehandlung am Ende der Rohrfertigung und ungünstige betriebliche Umstände bedingt, kann die Hydridablagerung auch in der radial orientierten Form erfolgen, die die Zugfestigkeit in Umfangsrichtung erheblich reduziert /NOR 83/.

Die mechanischen Eigenschaften von Zircaloy-Hüllrohren können durch die Anwesenheit von Hydriden nachteilig beeinflusst werden, insbesondere wenn sie in den Hüllrohren in radialer Richtung orientiert sind, d. h. sogenannte radiale Hydride bilden. Die Bildung von radialen Hydriden steht in enger Beziehung mit Herstellungsgeschichte, Textur und mechanischer Spannung. Um eine genügende Duktilität zu bewahren, so dass plastische Verformungen während des Reaktoreinsatzes - unter dem Aussen- druck des Kühlmittels und dem mit zunehmendem Abbrand steigenden Innendruck aus der Spaltgasfreisetzung - keinen Integritätsverlust bewirken, wird das Zircaloy-Hüllrohr unter genau kontrollierten Bedingungen hergestellt, die sicher stellen sollen, dass sich nur umfangsorientierte Hydrid-Plättchen während des Reaktoreinsatzes entwickeln können. Es können jedoch Radialhydride durch einen Prozess der Umorientierung gebildet werden, wenn Probestücke unter Spannung ausgehend von den Temperaturen, bei denen Hydride im Festkörper gelöst sind, abgekühlt werden. Oftmals sind Zircaloy Hüllrohre einem größeren internen Druck unterworfen und nehmen mit zunehmendem Abbrand und zunehmender wasserseitiger Oxidation einen höheren Wasserstoffgehalt an. Die erhöhte Umfangsspannung macht diese Hydride empfindlicher gegen Spannungsreorientierung, wenn das Hüllrohr eine Temperaturveränderung während des Reaktorbetriebes oder unter trockenen Lagerbedingungen erfährt. Aus diesem Grund sind die Faktoren, welche die bevorzugte Orientierung der Hydridausscheidung und die Effekte der Radialhydride auf die Integrität der Hüllrohrmaterialien festlegen, extensiv untersucht worden.

#### **2.4.1 Untersuchung der Hüllrohrversprödung durch Wasserstoff von Arsène et al.**

In einer Folge von drei Veröffentlichungen /ARS 03/ sind wichtige Unterschiede bei der Wasserstoffversprödung von rekristallisierten und spannungsarm geglühten Hüllrohrwerkstoffen beobachtet worden.

Abb. 2.11 zeigt den relativ geringen Einfluss bei zunehmendem Wasserstoffgehalt auf die Zugfestigkeit (UTS) von rekristallisiertem und spannungsarm geglühtem Zircaloy bei Raumtemperatur (20 °C) und bei 300 °C ansteigt /ARS 03/. Es wird deutlich, dass durch die erhöhte Temperatur eine Abnahme der Zugfestigkeit von etwa 200 MPa bewirkt wird, während die Zunahme der Zugfestigkeit bei einem Anstieg der Wasserstoffkonzentration von 0 auf 1000 ppm bzw. 2000 ppm wesentlich kleiner (im Bereich von etwa 50 MPa) bleibt. Rekristallisiertes Zircaloy hat bei beiden Temperaturen eine um

ungefähr 200 MPa geringere Zugfestigkeit als spannungsarm geglühtem Zircaloy. Der Einfluss der Hydrierung auf die Streckgrenze bei Raumtemperatur ist vernachlässigbar gering.

Deutliche Unterschiede im Duktil-Spröd-Übergang durch steigenden Wasserstoffgehalt zeigt die Bruchverformung von rekristallisiertem im Vergleich zu spannungsarm geglühtem Zircaloy bei 20 °C (Abb. 2.12) nach /ARS 03/. Im Fall des rekristallisierten Materials geht die Duktilität im Bereich von etwa 800 bis 1400 ppm Gewichtsanteilen Wasserstoff auf Werte nahe Null zurück. Um bei spannungsarm geglühtem Zircaloy eine ähnliche Abnahme der plastischen Verformbarkeit beim Bruch bis auf wenige Prozent Verformung zu erreichen, sind wesentlich höhere H-Konzentrationen im Bereich von 1500 bis 2400 ppm erforderlich.

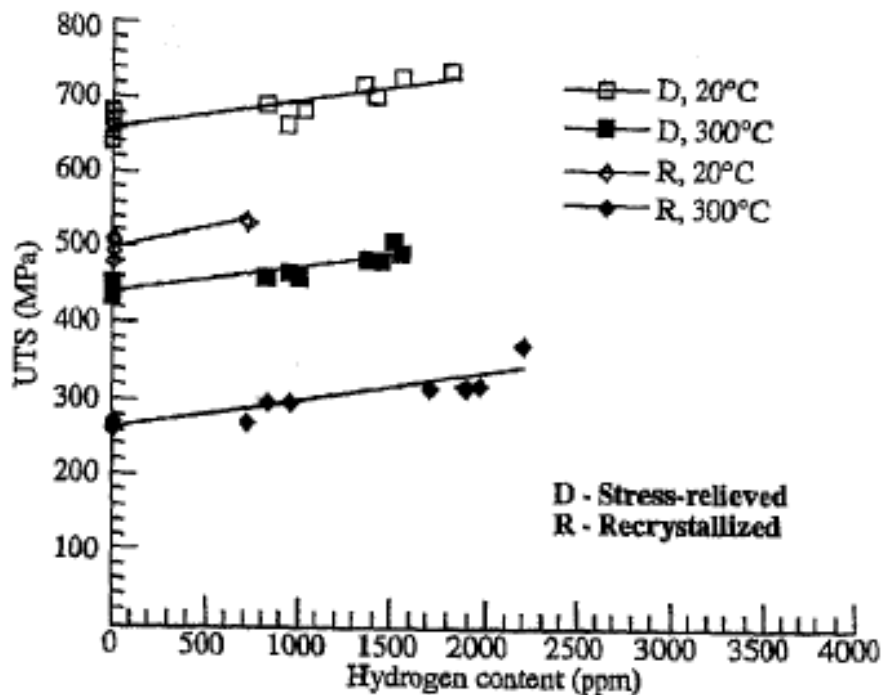


Abb. 2.11 Auswirkung von Temperatur und Wasserstoffgehalt auf die Zugfestigkeit von rekristallisiertem (R) und spannungsarm geglühtem (D) Zircaloy /ARS 03/

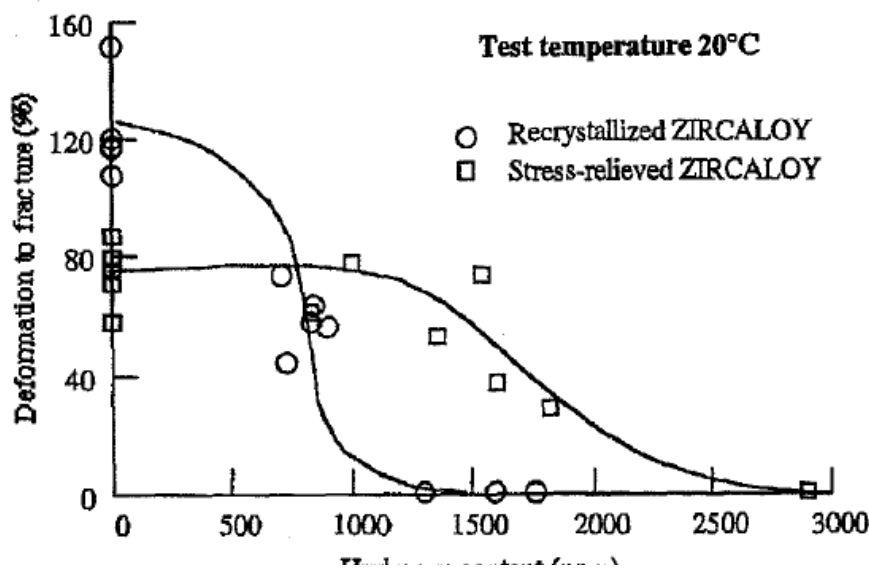


Abb. 2.12 Auswirkung des Wasserstoffgehalts auf die Bruchverformung von rekristallisiertem und spannungsarm geglühtem Zircaloy /ARS 03/

#### 2.4.2 Untersuchungen in Zugversuchen durch Chu et al.

Von H.C. Chu und Mitarbeitern wurde die Bildung von radialen Hydriden in spannungsfrei geglühtem frischem Zircaloy-4 Hüllrohrmaterial studiert /CHU 08/ und die Auswirkung der Radialhydride auf mechanische Eigenschaften bei axialer und tangentialer Spannung untersucht /CHU 07/. Als Probekörper wurden 13 cm lange Hüllrohrstücke aus spannungsfrei geglühtem Zircaloy-4 (stress-relief annealed, SRA) mit 9,5 mm Außendurchmesser und 0,58 mm Wandstärke verwendet, die mit einer Wasserstoffkonzentration zwischen 100 und 600 wppm (weight parts per million) beladen wurden.

Die Probekörper wurden zunächst homogen bis zum gewünschten Wasserstoffgehalt beladen, wobei vorzugsweise umfangsorientierte Hydride entstanden. Die Hydrierung erfolgte durch wiederholtes Aufheizen der Probekörper auf 300 °C mit 3 K/Minute und Abkühlen auf ~200 °C mit 2 K/Minute in einer hitzebeständigen Glaskapsel, die eine vorgegebene Menge reinen Wasserstoffs bei niedrigem Partialdruck enthielt. Die Anzahl der Temperaturzyklen wurde solange gesteigert, bis die Zielkonzentration erreicht war.

Die Umorientierung der Hydride erfolgte durch einen weiteren zyklischen Temperaturprozess, bei dem in einem Autoklaven das freie Hüllrohrvolumen unter einem konstanten Überdruck von 20,7 MPa, was einer Umfangsspannung von 160 MPa entspricht,

mit 3 K/Minute auf 400 °C aufgeheizt, zwei Stunden auf 400 °C gehalten und mit 1 K/Minute auf 170 °C abgekühlt wurde. Diese Spannungs-Temperaturbehandlung wurde unterschiedlich oft wiederholt, 1-, 2-, 4-, 8- oder 12-mal, um unterschiedliche Anteile radialer Hydridausscheidung zu erhalten.

Nach dem Reorientierungsprozess wurden die Hüllrohrabschnitte für zwei verschiedene mechanische Testverfahren präpariert: uniaxiale Zugversuche und Ringzugversuche. Für die uniaxialen Zugversuche (uniaxial tension test, UTT) wurden 55 mm lange und 6,6 mm breite longitudinale Wandbereiche des Hüllrohrs verwendet, bei denen der zentrale Messbereich 20 mm lang und 3 mm breit war. Für die Ringzugversuche (slotted arc tension test, SAT) wurden aus dem Hüllrohr Halbringe mit der Breite von 10 mm präpariert, bei denen der eigentliche Messbereich durch Ausfräsen eines 1 mm breiten Kanals entlang einer Mantellinie entstand, der eine Restwandstärke von 0,3 mm hatte (Abb. 2.13). Die mechanischen Belastungsmessungen wurden mit einer Universalprüfmaschine Instron Modell 5582 bei einer nominellen Dehnrage von  $\sim 1 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  ausgeführt /CHU 07/.

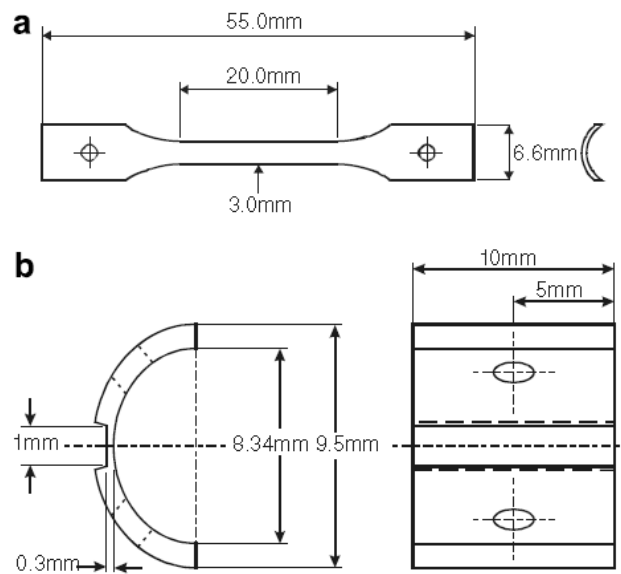


Abb. 2.13 Abmessungen der Probekörper für (a) uniaxiale und (b) Ring-Zugversuche /CHU 07/

### 2.4.2.1 Analyse der Hydrid-Orientierung

Als ein Beispiel für die Reorientierung von Hydridausscheidungen zeigt Abb. 2.14 das metallografische Gefügebild von Zircaloy-4 Hüllrohren bei einer Wasserstoffkonzentration von ~230 ppm (a) nach der Hydrierung (b) nach acht thermischen Zyklen im Umorientierungsprozess nach der erfolgten Hydrierung /CHU 08/.

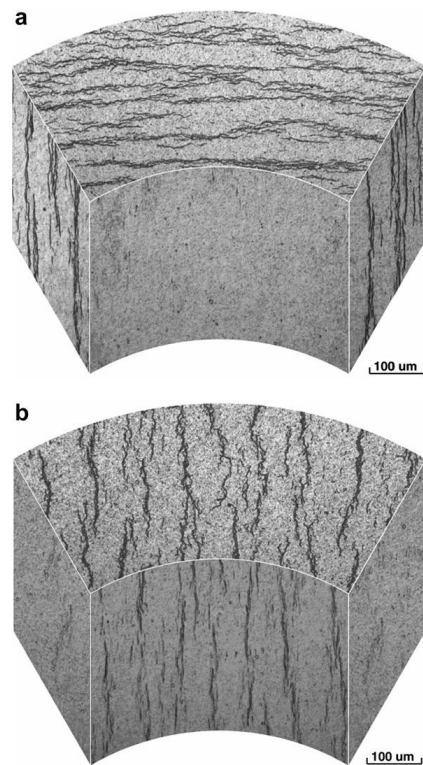


Abb. 2.14 Gefügebildungen zeigen die Orientierung von Hydriden in Zircaloy-4 Hüllrohren bei ~230 ppm (a) nach der Hydrierung (b) nach 8 thermischen Zyklen /CHU 08/

### 2.4.2.2 Auswirkung der Temperaturzyklen

Wie in Abb. 2.14 zu sehen ist, liegen die Hydridausscheidungen im Zircaloy Hüllrohr nach der Wasserstoffbeladung homogen in umfangsorientierter Form vor. Durch Gefügebildungen an unterschiedlich hoch mit Wasserstoff beladenen Proben wurde in /CHU 08/ gezeigt, dass mit zunehmender Anzahl der Thermozyklen im Reorientierungsprozess der Anteil der radial umorientierten Hydride wächst (Abb. 2.15).

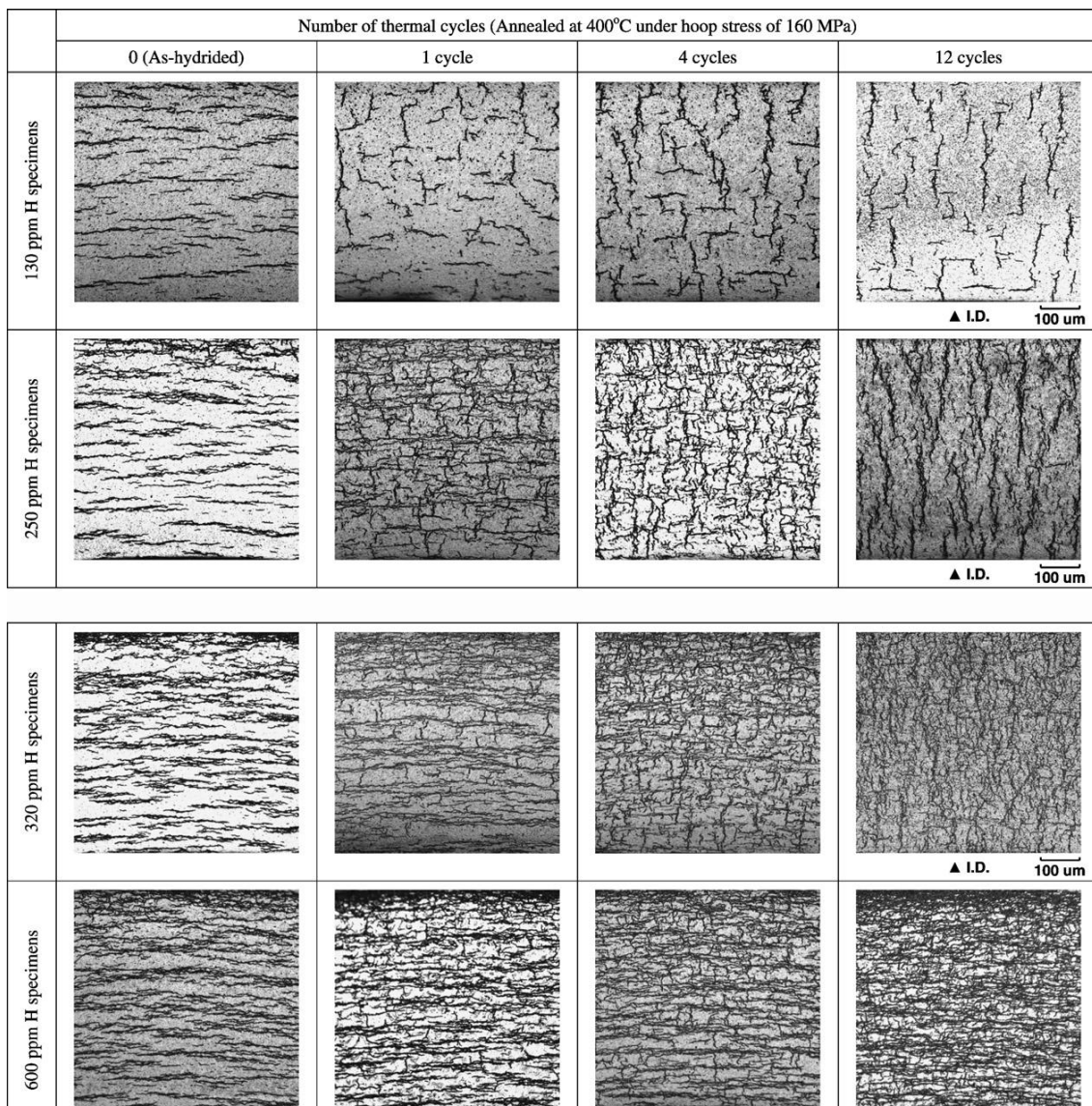


Abb. 2.15 Gefügebildungen zeigen die Orientierung von Hydriden in Zircaloy-4 Hüllrohren bei verschiedenen Konzentrationen und nach einer unterschiedlichen Anzahl von thermischen Zyklen /CHU 08/

Die Abhängigkeit des Grads der Umorientierung von der Zykluszahl der Umorientierungsbehandlung und der Wasserstoffkonzentration ist in Abb. 2.16 dargestellt. Nach 12 Zyklen der Umorientierungsbehandlung sind 90 % der Hydride bei einer Wasserstoffkonzentration von 250 wppm von einer ursprünglich umfangsorientierten Form in radial orientierte Hydride umgewandelt worden /CHU 08/. Für die niedrigere Wasserstoffkonzentration von 130 wppm H oder die höhere Wasserstoffkonzentration von 600 wppm H betrug der maximale Anteil der radial orientierten Hydride 75 % bzw. 20 %. Aufgrund der Beobachtungen wurde für Probekörper mit etwa 300 wppm Wasserstoffgehalt bei der Lösungstemperatur 400 °C und der Umfangsspannung 160 MPa

durch Wiederholung der thermischen Zyklen zwischen 400 °C und 170 °C eine vollständige Umorientierung aller Hydride für möglich gehalten /CHU 08/.

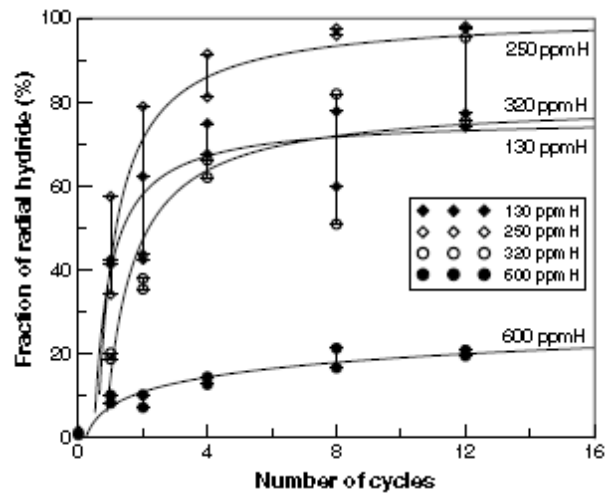


Abb. 2.16 Abhängigkeit der Reorientierung von Hydriden in Zircaloy-4 Hüllrohren bei verschiedenen H-Konzentrationen und nach einer unterschiedlichen Anzahl von thermischen Zyklen (Lösungstemperatur 400 °C, Umfangsspannung 160 MPa) /CHU 08/

### 2.4.2.3 Effekt des Wasserstoffgehalts der Proben

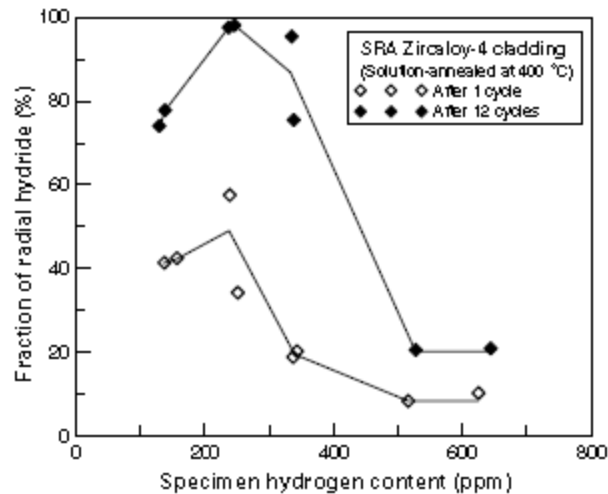


Abb. 2.17 Abhängigkeit der Spannungs-Reorientierung von der Wasserstoffkonzentration (Lösungstemperatur 400 °C, Umfangsspannung 160 MPa) /CHU 08/

Abb. 2.18 zeigt die von /CHU 08/ gefundene Abhängigkeit der Spannungs-Reorientierung von der Wasserstoffkonzentration nach einem bzw. 12 Thermozyklen zwischen



400 °C und 170 °C bei einer Umfangsspannung von 160 MPa. Für Wasserstoffkonzentrationen im Bereich 250 bis 320 wppm konnte eine vollständige Umorientierung bewirkt werden. Für niedrigere und höhere Wasserstoffkonzentrationen wurde ein geringerer Umwandlungsanteil erreicht, was durch Betrachtung der Löslichkeit von Wasserstoff in Zircaloy für den Temperaturbereich 170 °C bis 400 °C analysiert werden kann.

#### 2.4.2.4 Effekt von Umfangsspannung, Temperatur und Wasserstoffkonzentration auf die Hydrid-Reorientierung

In /CHU 08/ werden Ergebnisse von Modellrechnungen zur Abhängigkeit der Hydrid-Reorientierung in SRA Zry-4 von der Umfangsspannung für verschiedene Lösungstemperaturen gezeigt nach einem Temperaturzyklus (Abb. 2.18), wobei die Annahme getroffen wurde, dass nur gelöste Hydride zur Reorientierung verfügbar sind. Diese Modellrechnungen beziehen sich auf Hydrid-Reorientierungsexperimente, in denen in einem Autoklaven das zuvor homogen hydrierte Hüllrohrprobestück aufgeheizt, für zwei Stunden auf der gewählten Lösungstemperatur gehalten und mit konstanter Rate auf 170 °C abgekühlt wurde. Die Umfangsspannung im Hüllrohr wurde durch einen gezielten Differenzdruck während des Versuchs konstant gehalten.

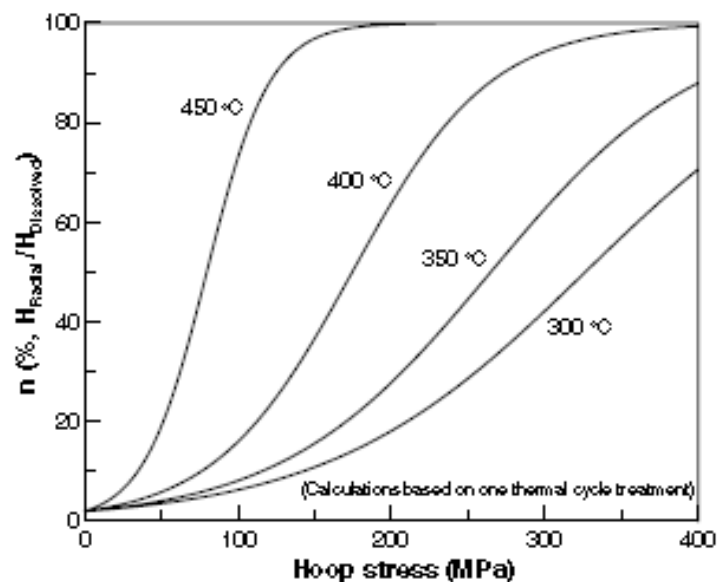


Abb. 2.18 Berechnete Abhängigkeit der Hydrid-Reorientierung in SRA Zry-4 von der Umfangsspannung für verschieden Lösungstemperaturen /CHU 08/

Ein Vergleich der berechneten mit der experimentellen Hydrid-Reorientierung in Zry-4 als Funktion der gesamten Wasserstoffkonzentration bei verschiedenen Lösungstemperaturen für einen Temperaturzyklus in Abb. 2.19 zeigen bei 300 – 400 °C eine gute Übereinstimmung. Ergebnisse bei einer Lösungstemperatur von 450 °C zeigen, dass im Modell die Abhängigkeit von der Umfangsspannung bei 130 und 600 wppm H unterschätzt wird /CHU 08/.

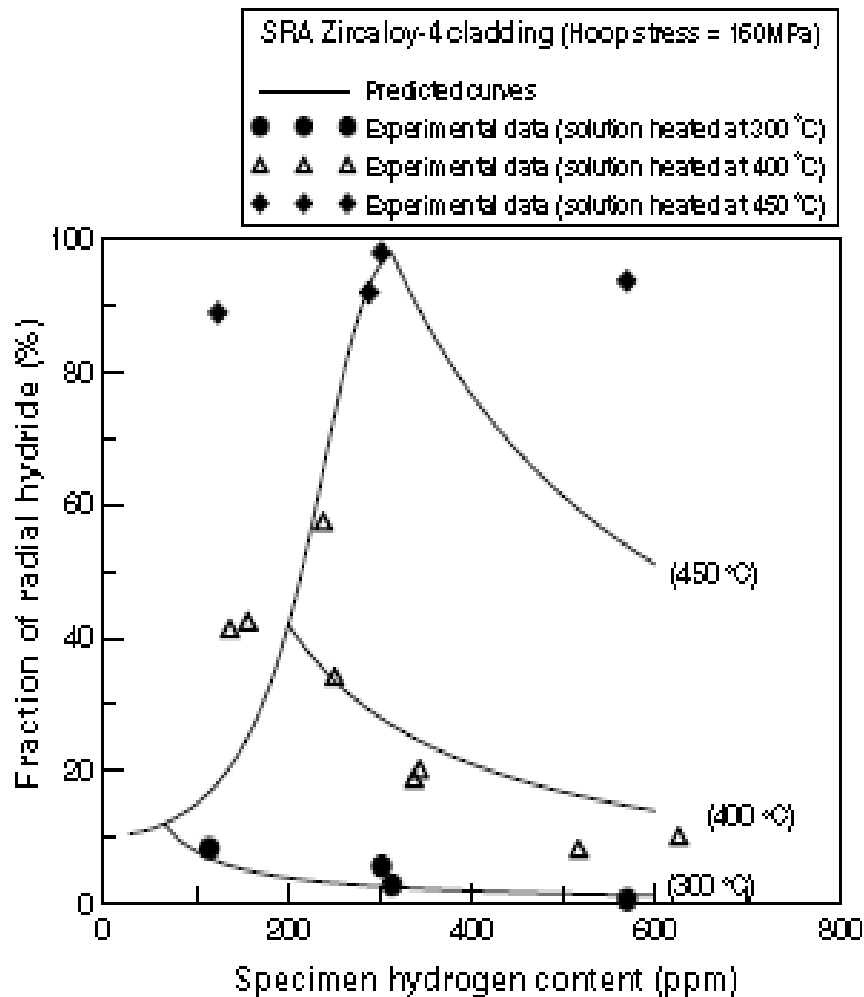


Abb. 2.19 Vergleich der berechneten mit der experimentellen Hydrid-Reorientierung in Zry-4 als Funktion der Wasserstoffkonzentration bei verschiedenen Lösungstemperaturen für einen Temperaturzyklus /CHU 08/

### 2.4.2.5 Bildung von radialen Hydriden

Abb. 2.20 zeigt berechnete Grenzkurven in der Darstellung Umfangsspannung gegen Lösungstemperatur für das Auftreten der Spannungs-Reorientierung von Hydriden bei verschiedenen Wasserstoff-Konzentrationsniveaus im Vergleich mit experimentellen Daten; dabei werden in Klammern auch Mindestwerte der beobachtbaren Radialhydridausscheidung angegeben.

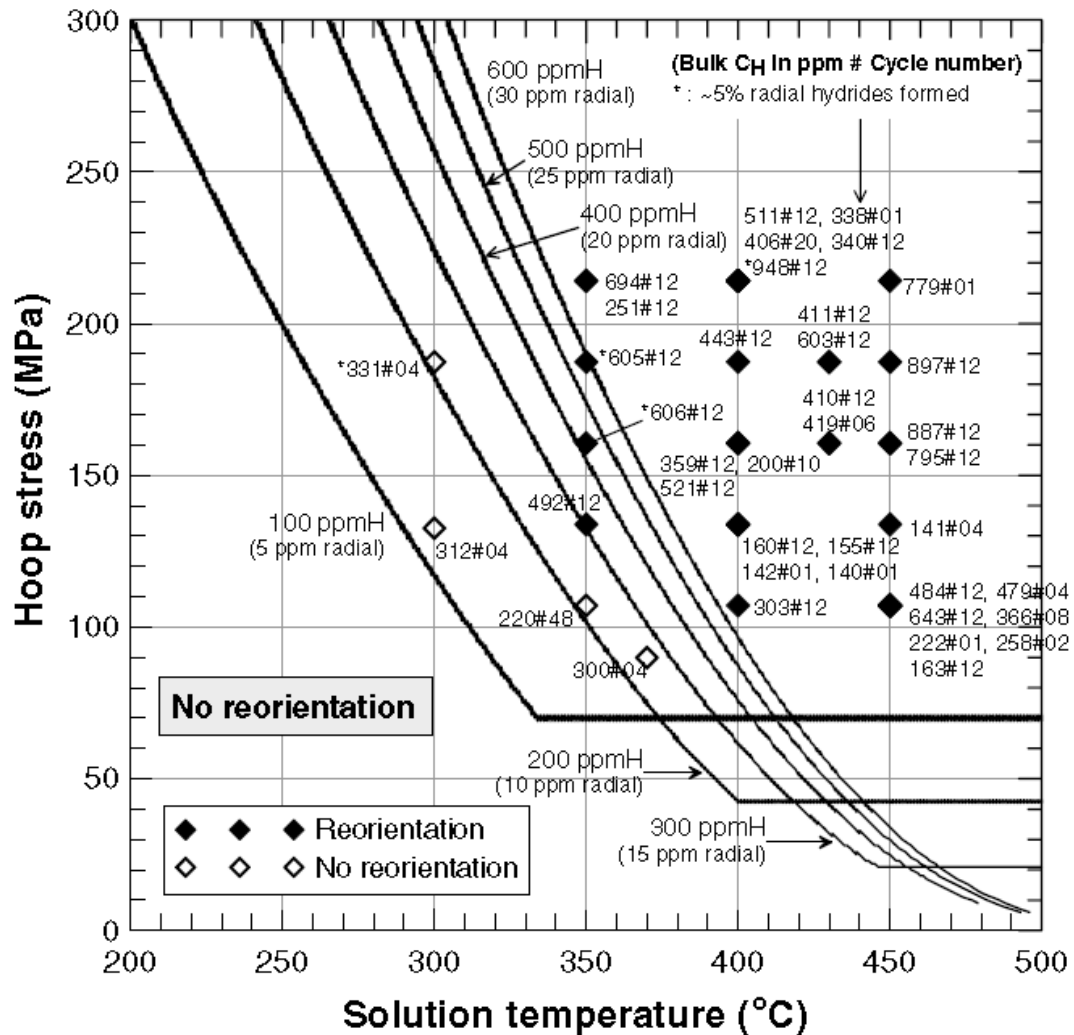


Abb. 2.20 Berechnete Spannungs-Temperatur-Grenzkurven für Hydrid-Reorientierung in Zry-4 bei verschiedenen Wasserstoffkonzentrationen (Werte in Klammern geben die Grenze der beobachtbaren Radialhydrid-Konzentration an) /CHU 08/

#### 2.4.2.6 Wirkung von radialen Hydriden auf mechanische Eigenschaften

Typische Spannungs-Dehnungskurven für uniaxiale (uniaxial tension test, UTT) und Ring (slotted arc tension test, SAT) Zugversuche an frischen Zircaloy-4 Probekörpern bei Raumtemperatur sind in Abb. 2.21 wiedergegeben /CHU 07/. Mit Ausnahme der Probekörper, die Radialhydride enthielten, zeigten die Ringzugproben höhere Zugfestigkeit aber wesentlich geringere Duktilität als die Axialzugproben. Ringzugproben mit Radialhydriden hatten gegenüber den Proben ohne Wasserstoffbeladung oder mit rein umfangsorientierter Hydridausscheidung erheblich reduzierte Festigkeit und nahezu verschwindende Duktilität (Abb. 2.21).

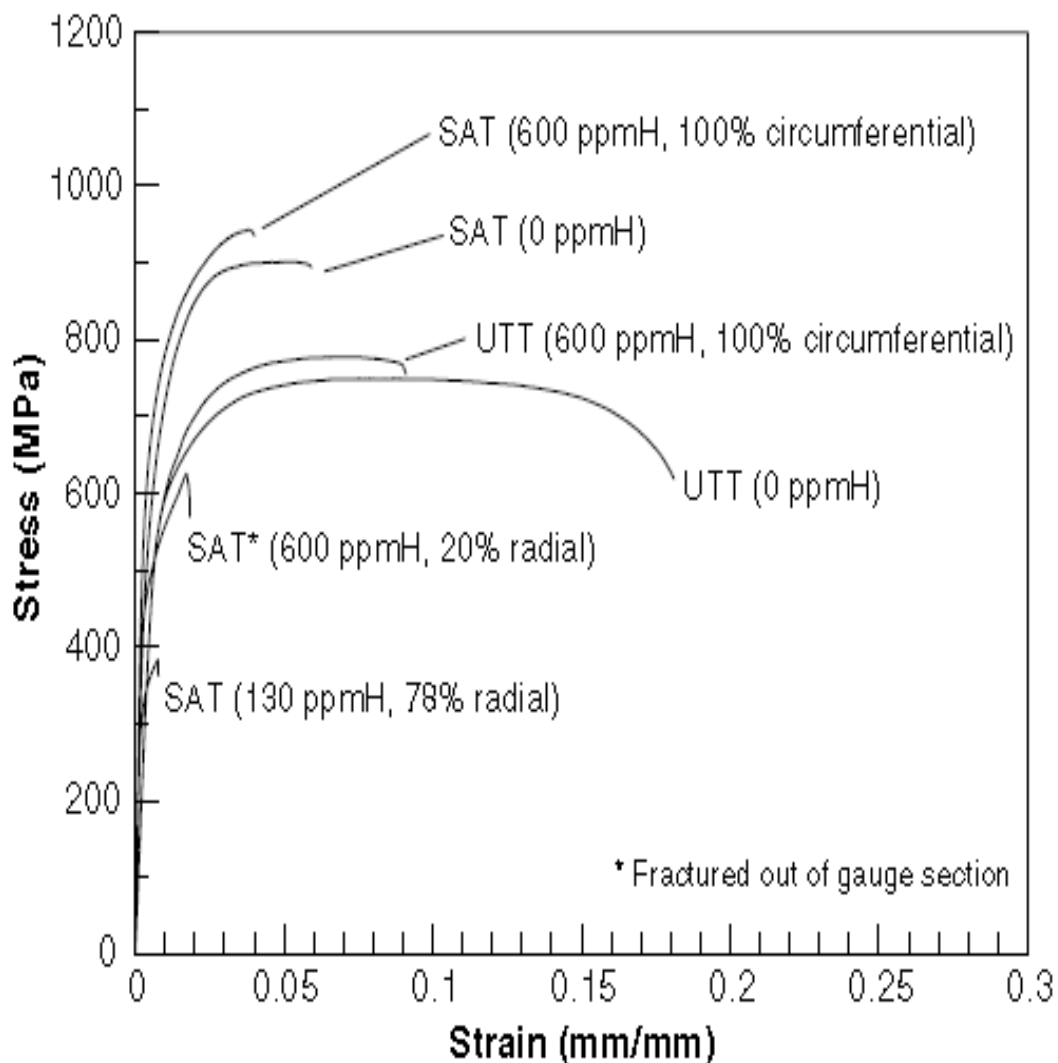


Abb. 2.21 Typische Spannungs-Dehnungskurven für uniaxiale (UTT) und Ring (SAT) Zugversuche an Zircaloy-4 Probekörpern bei Raumtemperatur /CHU 07/

Für Probekörper aus spannungsfrei geglühtem Zircaloy-4 SRA (SRA stress relief annealed) Hüllrohrmaterial ohne radiale Hydridausscheidung zeigten die Ergebnisse bei uniaxialen (UTT) und Ring- (SAT) Zugversuchen bei Raumtemperatur für die Zugfestigkeit eine leichte Zunahme mit wachsendem Wasserstoffgehalt zwischen 0 und 600 wppm, während die Bruchdehnung (Duktilität) abnahm (Abb. 2.22) /CHU 07/.

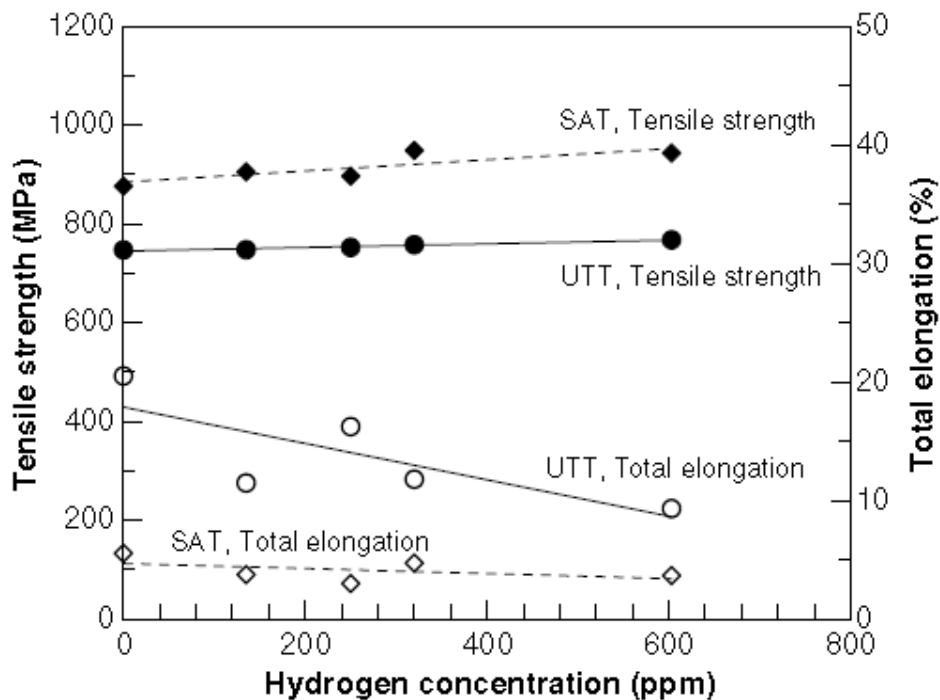


Abb. 2.22 Abhängigkeit mechanischer Kennwerte von der Wasserstoffkonzentration für uniaxiale (UTT) und Ring (SAT) Zugversuche an SRA-Hüllrohr-Probekörpern bei Raumtemperatur (keine Radialhydride) /CHU 07/

Die Untersuchung zur Auswirkung von Radialhydriden auf die mechanischen Eigenschaften - Zugfestigkeit und Bruchdehnung - von SRA-Hüllrohr-Probekörpern aus Zircaloy-4 unter uniaxialer Spannung zeigte bei Raumtemperatur selbst bei 320 wppm Wasserstoffgehalt keinen signifikanten Einfluss (Abb. 2.23) /CHU 07/.

Deutliche Auswirkungen der Radialhydride zeigten sich in Ringzugversuchen bei Raumtemperatur in Messungen von mechanischen Eigenschaften von SRA-Hüllrohr-Probekörpern aus Zircaloy-4 mit unterschiedlichen Wasserstoffkonzentrationen (Abb. 2.24) /CHU 07/. Bei allen untersuchten Wasserstoffkonzentrationen bewirkte der zunehmende Anteil radialer Hydride eine zunehmende Versprödung, verbunden mit der Abnahme der Zugfestigkeit (unter die Dehngrenze) und der Bruchdehnung, verbunden

mit Anzeichen einer duktilen Verformung. Auffällig ist die große Streubreite der Messwerte wenn der Anteil der umfangsorientiert ausgeschiedenen Hydride auf Werte unter 100 % abnimmt.

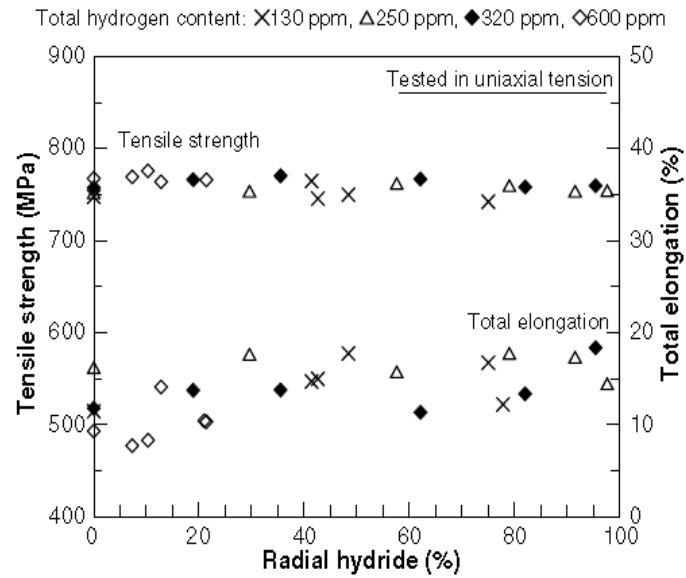


Abb. 2.23 Auswirkung von Radialhydriden auf mechanische Eigenschaften von SRA-Hüllrohr-Probekörpern unter uniaxialer Spannung bei Raumtemperatur /CHU 07/

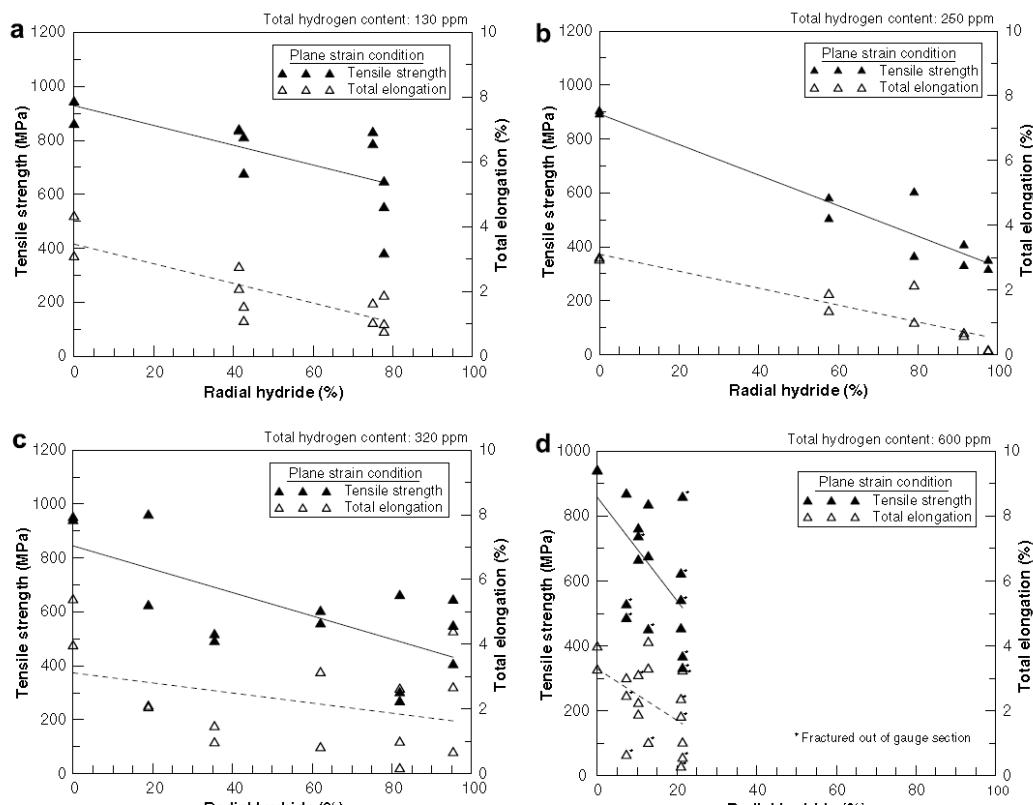


Abb. 2.24 Auswirkung von Radialhydriden auf mechanische Eigenschaften von SRA-Hüllrohr-Probekörpern mit unterschiedlichen Wasserstoffkonzentrationen in Ringzugversuchen bei Raumtemperatur /CHU 07/

### 2.4.3 Untersuchungen mit Ringdruckversuchen durch Daum et al.

Im Argonne National Laboratory (ANL) wird seit Jahren das Forschungsprogramm "High-Burnup Cladding Performance", kürzlich umbenannt in "Advanced Fuel Cladding Response to Limiting Conditions", durch die amerikanische Genehmigungsbehörde U.S. NRC Office of Nuclear Regulatory Research (NRC-RES) gefördert /ANL 08/. In aktuellen Arbeiten der Abteilung Irradiation Performance Section (IPS) des ANL steht insbesondere das Verhalten der Hydridausscheidungen im Hüllrohr hoch abgebrannter Brennstäbe im Vordergrund. Die Resultate dieser Studien wurden durch das U.S. NRC Spent Fuel Project Office verwendet, um beispielsweise die Anleitung ISG-11, Rev. 3 /ISG 03/ zu formulieren, in der Kriterien für Vakuumtrocknung nach Beladung, Transport zur Zwischenlagerung, zur trockenen Lagerung und zum Transport für Transport- und Lagerbehälter für abgebrannte Kernbrennstoffe gegeben werden.

ISG-11, Revision 3 formuliert folgende Anforderungen, um die Integrität von Hüllrohrmaterial zu gewährleisten:

1. Für alle Abbrände (niedrig und hoch) soll bei normalen Lagerbedingungen und bei kurzzeitigen Vorgängen (z. B. bei der Trocknung nach der Behälterbeladung, Spülung mit Inertgas, Transport zum Lager) die berechnete maximale Temperatur des heißesten Hüllrohres 400 °C nicht überschritten werden. Für niedrige Abbrände kann kurzzeitig eine höhere Grenztemperatur erreicht werden, wenn dafür nachgewiesen wird, dass die berechnete Umfangsspannung 90 MPa nicht übersteigt.
2. Bei der Beladung sollen weniger als 10 Aufheiz-/Abkühl-Vorgänge vorkommen, bei denen die Temperaturdifferenz kleiner als 65 K bleiben muss.

Durch Verwendung des Bezugs auf die heißeste Hüllrohrtemperatur wird erwartet, dass nur ein kleiner Teil der Brennstäbe eine Temperatur und Umfangsspannung erreicht, durch die es während der normalen Lagerbedingungen zur Bildung von Radialhydriden kommen kann.

#### **2.4.3.1 Probenpräparation**

Als unbestrahltes Probenmaterial wurde von Daum et al. /DAU 06/ spannungsfrei geglähtes Zry-4 (SRA stress-lief annealed) Hüllrohr von 900 mm Länge von Framatome Advanced Nuclear Products (F-ANP) verwendet. Bestrahlte Hüllrohrproben stammten von Brennstäben aus Zry-4, die im Reaktor H. B. Robinson Block 2 (HBR) in sieben Zyklen abgebrannt worden waren (ca. 67 MWd/kgU). Beide Hüllrohrtypen wurden in ähnlicher Weise durch Kaltwalzen und Spannungsfrei-Glühen hergestellt, entstammen aber nicht derselben Produktionscharge.

Aus dem unbestrahlten F-ANP Hüllrohr wurden 100 mm lange Abschnitte angefertigt, die in einer Gasatmosphäre aus 30 % H<sub>2</sub> und 70 % He bei 400 °C unter spannungsfreien Bedingungen mit Wasserstoff von 200 bis 900 wppm beladen wurden. Zur Vorbereitung des bestrahlten HBR-Hüllrohrs wurde der Brennstoff entnommen und die äußere Oxidschicht entfernt.

Für die spätere Radialhydrid-Behandlung (RHT, radial hydride treatment) und die Ringdruckversuche (RCT, ring compression test) wurden die Stabsegmente in 8 mm



lange Ringe geteilt. Bei den unbestrahlten F-ANP Hüllrohrabschnitten wurde durch eine Wärmebehandlung bei 400 °C über 96 Stunden für eine gleichmäßige Verteilung der umfangsorientierten Hydride gesorgt.

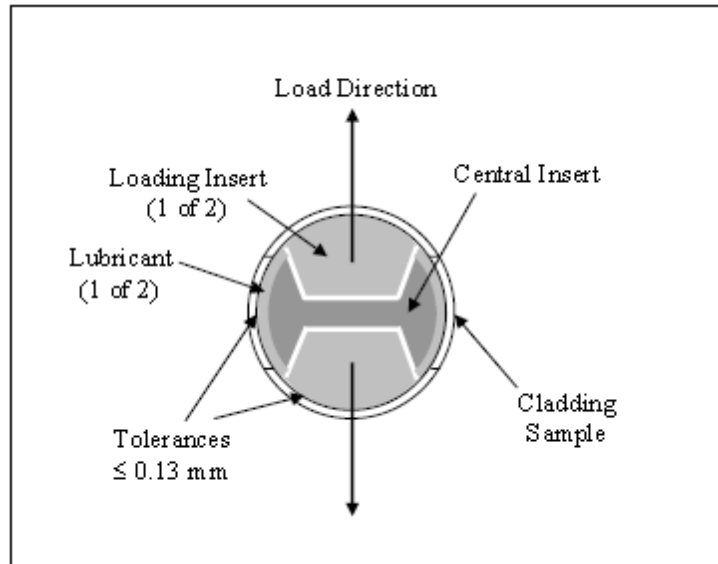


Abb. 2.25 Skizze eines dreiteiligen Werkzeugs (Querschnitt) zur Induktion von Umfangsspannung in einen ringförmigen Hüllrohrabschnitt /IPS 07/

Für die Erzeugung radial orientierter Hydride wurde ein spezielles dreiteiliges Werkzeug – untere und obere Klaue und hantel-förmiges Distanzstück - (Abb. 2.25) verwendet, mit dem in einen ringförmigen Hüllrohrabschnitt durch die Zugkraft zwischen der unteren und oberen Klaue im Mittelbereich Umfangsspannungen induziert wurden.

Da dieses Verfahren der Spannungsinduktion ein räumlich inhomogenes Feld der Umfangsspannung erzeugte, waren begleitende Berechnungen der Umfangsspannung mit dem Finite-Elemente Programm ABAQUS v6.1 erforderlich (Abb. 2.26).

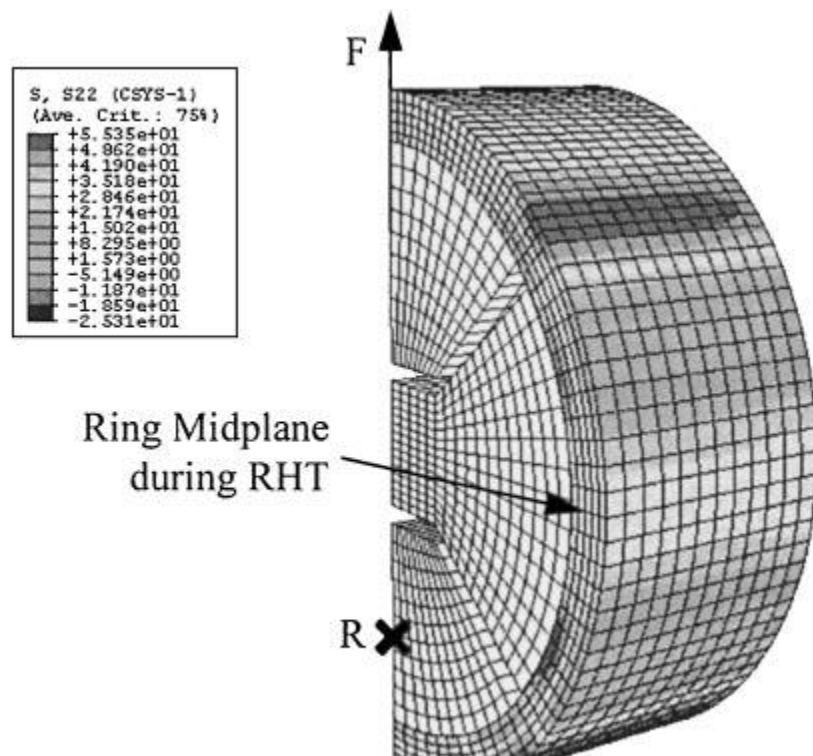


Abb. 2.26 Finite-Elemente Modell (FEM) (1/4-Symmetrie) für die berechnete Verteilung der Umfangsspannung während der Radialhydridbehandlung (RHT) /DAU 06/

Während der Radialhydridbehandlung (RHT, radial hydride treatment) fand eine Wärmebehandlung in einem infrarot beheizten Ofen statt, bei dem die Probe auf 400 °C aufgeheizt wurde, dann die entsprechende Kraft auf die Zugeinrichtung ausgeübt wurde und danach bei konstanter Kraft die Temperatur durch Ausschalten der Heizung reduziert wurde. Dieses Verfahren führte zu einer raschen Abkühlung von etwa 10 K/Minute. Im Fall der bestrahlten HBR-Hüllrohrringe wurde vor der Abkühlung die Temperatur von 400°C für zwei Stunden gehalten, um eine partielle Umverteilung der tangentialen Hydride von der äußeren zur inneren Hüllrohrseite zu bewirken.

Die Ringdruckversuche (RCT, ring compression test) wurden mit einer Instron Modell 8511 (Abb. 2.27) bei 26 °C Raumtemperatur bzw. 150 °C mit einer Kompressionsrate von 2 mm/Minute ausgeführt. Die Probekörper wurden nach der Radialhydrid-Behandlung (RHT) um 90 ° gedreht in die Ringdruckapparatur eingesetzt, um zu erreichen, dass die Mittelebene (Ring Midplane during RHT in Abb. 2.26), in der während der RHT die größten Spannungen an der Rohrinneiseite aufgetreten sind (3 und 9 Uhr), bei der Druckbelastung ebenfalls an der Hüllrohrinnenseite die höchsten umfangsorientierten Zugspannungen erfährt (6 und 12 Uhr).

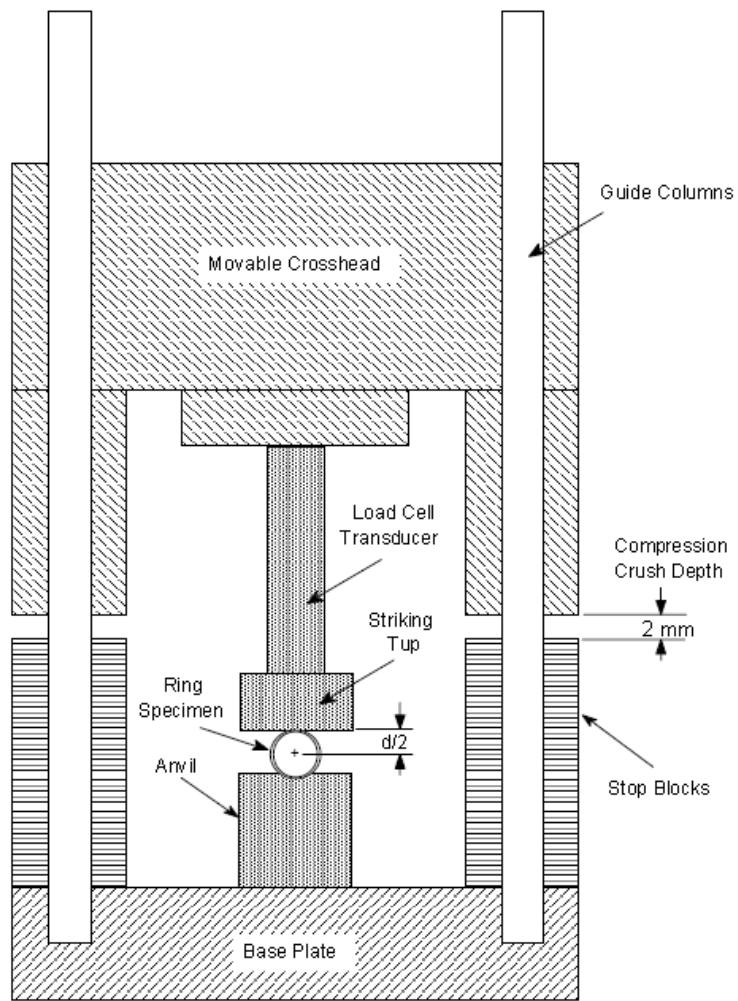
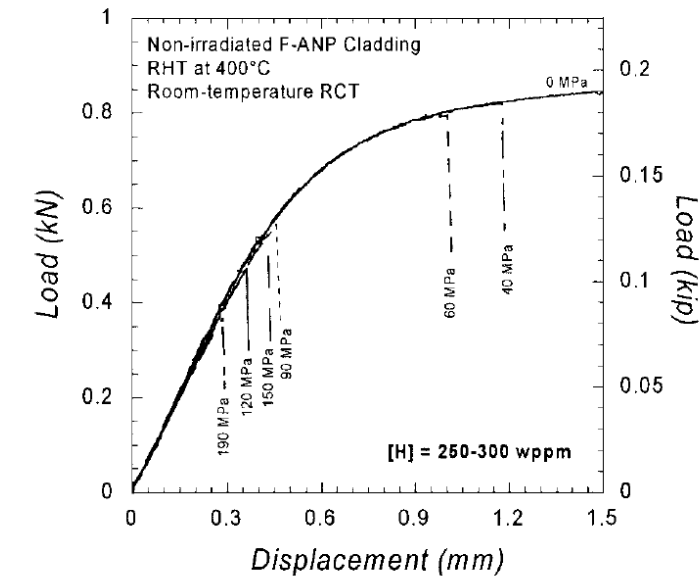


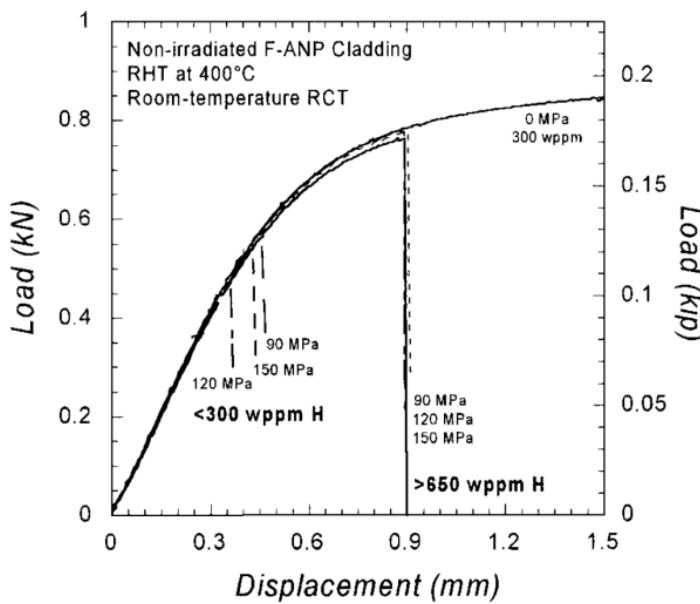
Abb. 2.27 Schematische Darstellung der Apparatur für Ringdruckversuche /IPS 07/

### 2.4.3.2 Versuchsergebnisse



Unbestrahltes F-ANP Hüllrohr:  
RCT Kraft-Verformungsdiagramm bei  
Raumtemperatur  
250-300 wppm Wasserstoff;  
400 °C-RHT mit angegebenen mittlere-  
ren Spannungen (Fig. 10 in /DAU 06/)

a



Unbestrahltes F-ANP Hüllrohr:  
RCT Kraft-Verformungsdiagramm bei  
Raumtemperatur  
niedrige und hohe Wasserstoffkon-  
zentration;  
400 °C-RHT mit angegebenen mittlere-  
ren Spannungen (Fig. 12 in /DAU 06/)

b

Abb. 2.28 Kraft-Verformungsdiagramme für unbestrahlte Zry-4 Hüllrohre nach Radial-Hydrid-Behandlung in Ringdruckversuchen bei niedriger (a) und niedriger/hoher (b) Wasserstoffkonzentration /DAU 06/

Ergebnisse der Kraft-Verformungsuntersuchungen mit unbestrahlten F-ANP Hüllrohren in Ringdruckversuchen bei Raumtemperatur zeigen, dass bei Umfangsspannungen  $\geq 90$  MPa während der Radialhydrid-Behandlung mit Wasserstoffkonzentrationen  $< 300$  wppm [H] instabiles Risswachstum oder Versprödung im linearen Bereich

der Kraft-Verformungskennlinie auftritt (Abb. 2.28). Dagegen zeigen Proben mit geringeren Umfangsspannungen  $< 60$  MPa stabiles Risswachstum im nichtlinearen Bereich der plastischen Verformung (Abb. 2.28). Ringdruckversuche nach Radialhydrid-Behandlung mit hohen Wasserstoffkonzentrationen  $> 650$  wppm [H] zeigen nur stabiles Risswachstum im nichtlinearen Bereich der plastischen Verformung (Abb. 2.28b).

Die Ergebnisse der Kraft-Verformungsuntersuchungen mit bestrahlten HBR Hüllrohren in Ringdruckversuchen bei Raumtemperatur zeigen, dass ähnlich wie bei den unbestrahlten Hüllrohren (Abb. 2.28) abnehmende Duktilität mit zunehmender Umfangsspannung oberhalb 90 MPa während der Radialhydrid-Behandlung bei einem Wasserstoffgehalt von 650 wppm [H] auftritt (Abb. 2.29).

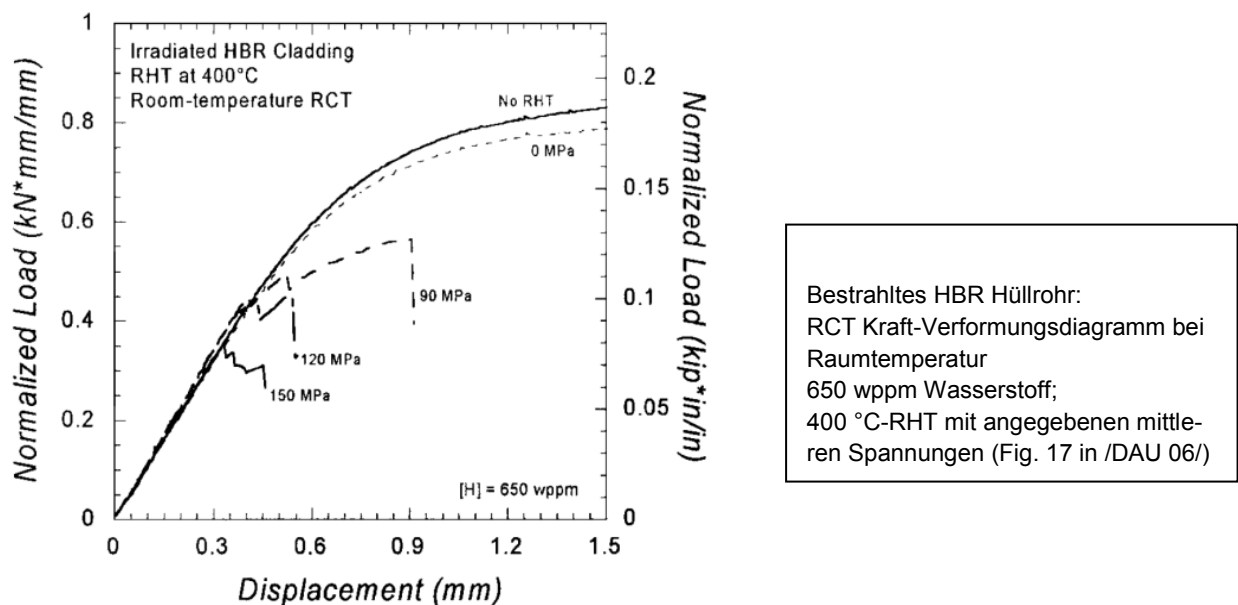


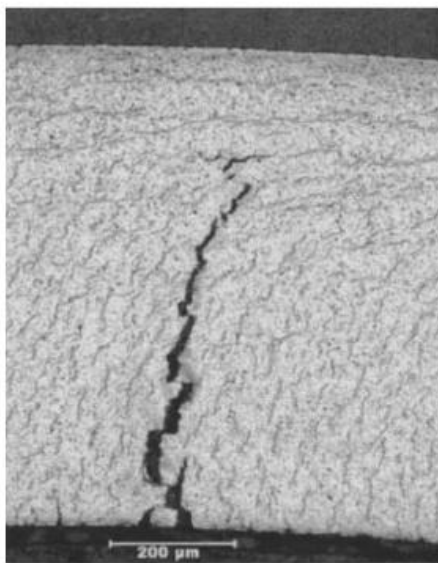
Abb. 2.29 Spannungs-Dehnungsdiagramme für bestrahlte Zry-4 Hüllrohre ohne bzw. nach Radial-Hydride-Treatment in Ringdruckversuchen /DAU 06/

In Gefügebildern der Abb. 2.30 erkennt man die unterschiedlichen Rissausbildungen nach Ringdruckversuchen an unbestrahlten und bestrahlten Proben. Nach einer Radial-Hydrid-Behandlung mit 40 MPa Umfangsspannung (300 wppm H) liegen so gut wie keine radialen Hydride vor und die Rissausbildung geht zwar von der Hüllrohrinnenseite (12 Uhr im RCT) aus, folgt aber stark den tangential orientierten Hydridausscheidungen (Abb. 2.30a). Im Gegensatz dazu erfolgt die Rissausbildung nach einer Radial-Hydrid-Behandlung von unbestrahlten Proben mit 120 MPa Umfangsspannung (250 wppm H) entlang den radial ausgerichteten Hydriden. Im Gefügebild der bestrahlten HBR Hüllrohrprobe mit einer Umfangsspannung bei der

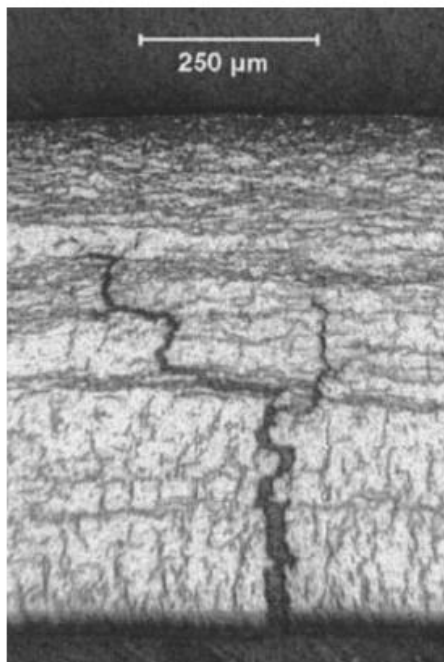
Radial-Hydrierung von 120 MPa (ca. 650 wppm H) in Abb. 2.30c sind sowohl radial als auch Verzweigung in tangential ausgerichtete Bruchspalten zu erkennen.



(a)



(b)



(c)

Abb. 2.30 Gefügebilder von unbestrahlten F-ANP Proben nach Ringdruckversuchen mit Bruchspalten nach Radial-Hydrid-Behandlung bei 400 °C und Umfangsspannung von (a) 40 MPa (ca. 300 wppm H) und (b) 120 MPa (ca. 250 wppm H) sowie von (c) einer bestrahlten HBR Probe 120 MPa (ca. 650 wppm H) /DAU 06/

### 2.4.3.3 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen bei Daum et al.

Im Rahmen der Untersuchung von Daum et al. /DAU 06/ wurde ein Experimentalprogramm durchgeführt, das zur Bestimmung thermomechanischer Bedingungen diente, die eine Ausscheidung radial orientierter Hydride in hoch abgebranntem Zircaloy-4 (Zry-4) Hüllrohr begünstigen und das der Bestimmung der Auswirkung von Radialhydriden auf mechanische Hüllrohreigenschaften diente. Radialhydrid-Ausscheidungsverfahren und mechanische Belastungstests wurden begleitet von aufwändigen FEM-Analysen und optisch-metallographischen Verfahren an unbestrahltem und hoch abgebranntem Hüllrohrmaterial mit mehr als 900 wppm Wasserstoff ausgeführt. Aus diesen Untersuchungen werden in /DAU 06/ die folgenden Schlussfolgerungen gezogen:

1. Der Schwellenwert der Umfangsspannung, der zur Ausscheidung von radialen Hydriden in unbestrahltem und hoch abgebranntem Zry-4 überschritten werden muss, liegt für 400 °C bei  $80 \pm 10$  MPa bzw.  $75 \pm 12$  MPa. Im Rahmen der bestehenden Unsicherheiten in der Studie scheint die Bestrahlung keinen Einfluss auf den Schwellenwert zu haben. Der Schwellenwert der Umfangsspannung für hoch abgebranntes Zry-4 bei 400 °C scheint etwas unter dem Schwellenwert der ISG-11 (Rev. 3) von 90 MPa zu liegen. Allerdings ist das verwendete Radialhydrid-Ausscheidungsverfahren mit einem komplexen Spannungszustand und zugehöriger Spannungsverteilung in der Hüllrohrwand verbunden, die zu dieser Unsicherheit führen. Es ist geplant, weitere Radialhydrid-Ausscheidungsexperimente an Proben auszuführen, deren Umfangsspannung durch einen Gasinnendruck aufgeprägt wird.
2. Bei den Ringdruckversuchen zeigte sich, dass die Duktilität und das Bruchverhalten von unbestrahltem und Hochabbrand-Hüllrohr signifikant durch radiale Hydride beeinflusst werden. Unbestrahlte Ringe (< 300 wppm Wasserstoff) und Hochabbrand-Ringe ( $\approx 650$  wppm Wasserstoff) brechen im elastischen Bereich oder auf instabile Weise, wenn sich radiale Hydride im Bereich der inneren 50 % der Hüllrohrwandstärke befinden.
3. Unbestrahltes Hüllrohr, das weniger als 300 wppm Wasserstoff enthielt, war empfänglicher für Radialhydrid-Versprödung als Hüllrohr mit mehr als 650 wppm Wasserstoff. Dieser Rückgang in der Empfindlichkeit bei höherem Wasserstoffgehalt ist der Anwesenheit von umfangsorientierten Hydriden zuzuschreiben, die ein verformungsinduziertes stabiles Risswachstum begünstigen.

4. Unbestrahlte und hoch abgebrannte Hüllrohr-Probekörper zeigten nur einen geringen oder gar keinen Temperatureffekt bezüglich Duktilität und Bruchverhalten bei Raumtemperatur und 150 °C. Diese Beobachtung muss durch weitere Untersuchungen bestätigt werden.
5. Das Bruchverhalten von unbestrahltem und hoch abgebranntem Hüllrohren in den Ring-Kompressions-Tests ist durch Experimente in Verbindung mit Gefügeuntersuchungen und Finite-Elemente-Analysen charakterisiert worden. Radialhydride fördern instabiles Risswachstum, während umfangsorientierte Hydride dazu tendieren, plastizitätsinduziertes oder stabiles Risswachstum zu begünstigen.
6. Umfangsspannung und plastische Umfangsdehnung, die erforderlich sind, um instabiles Risswachstum zu initiieren, nehmen ab, wenn die Radial-Hydrid-Behandlung mit zunehmender Umfangsspannung oberhalb von 90 MPa einhergeht.
7. Obwohl in dieser Studie strahlungsinduzierte Verfestigung beobachtet wurde, deuten die Ergebnisse darauf hin, dass die Radialhydrid-Ausscheidung den dominierenden Versprödungsmechanismus bildet.

Für die weiteren Forschungsarbeiten wurde ein Versuchsplan erstellt, in dem gasdichte Kapseln aus mit Innendruck versehenen Hüllrohren verwendet werden sollen, bei denen die Bedingungen der Radial-Hydrid-Behandlung stärker denen bei der Handhabung von Brennelementen mit abgebranntem Kernbrennstoff entsprechen. Durch Verwendung dieser Kapseln und die dadurch erreichte Vermeidung lokaler Biegespannungen und unsicherer Reibungseffekte soll erreicht werden, dass die Hydrid-Morphologie metallographisch einfacher zu interpretieren ist und die Korrelation zwischen Radialhydrid-Ausscheidung und Schwellenspannung einfacher und sicherer bestimmbar wird. Die gasdichten Kapseln sollen ebenfalls als Probekörper zur Untersuchung der Schlagfestigkeit dienen.

#### **2.4.4 Neuere Untersuchungen durch Daum et al.**

In neueren Arbeiten durch Daum /DAU 07/ an hoch abgebrannten Zircaloy-4 Hüllrohrabschnitten wurden insbesondere die Einflüsse der korrosionsbedingten Oxidschicht an der Hüllrohraußenseite und der experimentell aufgeprägten Dehnrates auf die plastische Verformbarkeit und das Bruchverhalten in Ringdruckversuchen bei Raumtemperatur untersucht.



Die untersuchten Proben entstammten Brennelementen mit Hüllrohren aus spannungsfrei geglühtem Zircaloy-4, die im Reaktor H. B. Robinson in sieben Zyklen bis zum Abbrand von 67 MWd/kgU (schnelle Neutronenfluss von  $14 \cdot 10^{25} \text{ n/m}^2$  mit  $E > 1 \text{ MeV}$ ) bestrahlt worden waren. Die in 76 mm lange Segmente zerteilten Brennstababschnitte wurden in einem Salpetersäurebad bei Raumtemperatur chemisch von dem enthaltenen Brennstoff befreit und durch Ultraschall in frischer Salpetersäure gereinigt. Bei einigen Segmenten wurde die korrosionsbedingte Oxidschicht mit einer Feile auf einer Drehbank entfernt. Ein Hüllrohrabschnitt wurde unter Innendruck (190 MPa Umfangsspannung) für > 2400 Stunden bei 400 °C beheizt bis eine Kriechdehnung von > 3 % entstand und anschließend unter Innendruck abgekühlt, so dass sich eine 100 %-ige Radialhyridausscheidung bildete. Abb. 2.31 zeigt Gefügebilder der verwendeten Hüllrohrproben mit und ohne Oxidschicht und nach der Radialhydrid-Behandlung.

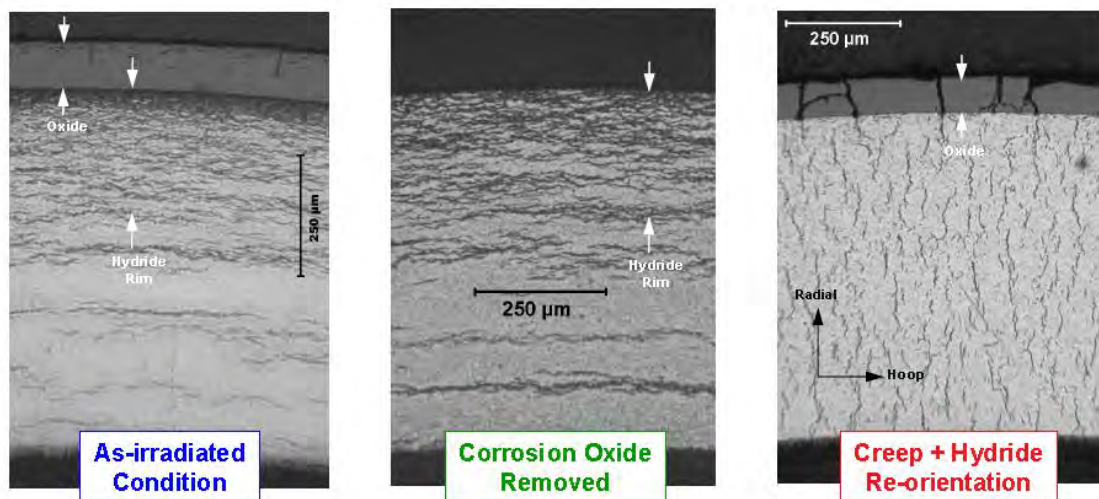


Abb. 2.31 Gefügebilder von hoch abgebrannten Zry-4 Hüllrohren (67 MWd/kgU): links: nach der Bestrahlung mit Oxidschicht, mittig: nach der Bestrahlung ohne Oxidschicht, rechts: nach Radialhydrid-Behandlung und ca. 3 % Kriechdehnung

Für Zugversuche wurden mittels Funkenerosion aus den Hüllrohrabschnitten longitudinale Probekörper herausgearbeitet und für Ringdruckversuche wurden 8 mm breite Ringe mittels Diamantsäge abgetrennt. Kurze 2 mm breite Ringe wurden für Gefügeuntersuchungen und Messungen des Wasserstoffgehalts mittels heißer Vakuumextraktion abgetrennt.

Die einachsigen Zugversuche wurden bei Raumtemperatur und 400 °C mit Dehnraten von 0,1 %/s und 100 %/s ausgeführt. Die Verschiebungsgeschwindigkeit des hydrau-

lich betätigten Druckstempels bei den Ringdruckversuchen betrug 0,033, 10 und 500 mm/s.

Abb. 2.32 zeigt als Ergebnis die Spannungs-Dehnungsdiagramme von einachsigen Zugversuchen an unbestrahlten und hoch abgebrannten Zry-4 Hüllrohrprobekörpern (67 MWd/kgU) bei Raumtemperatur und 400 °C mit unterschiedlichen Dehnraten /DAU 07/. Man erkennt als strahlungsbedingte und dehnratenabhängige Effekte die wachsende Verfestigung und abnehmende plastische Verformbarkeit (Duktilität). Dazu gegenläufig bewirkt die Temperaturzunahme eine verringerte Festigkeit und vergrößerte Duktilität.

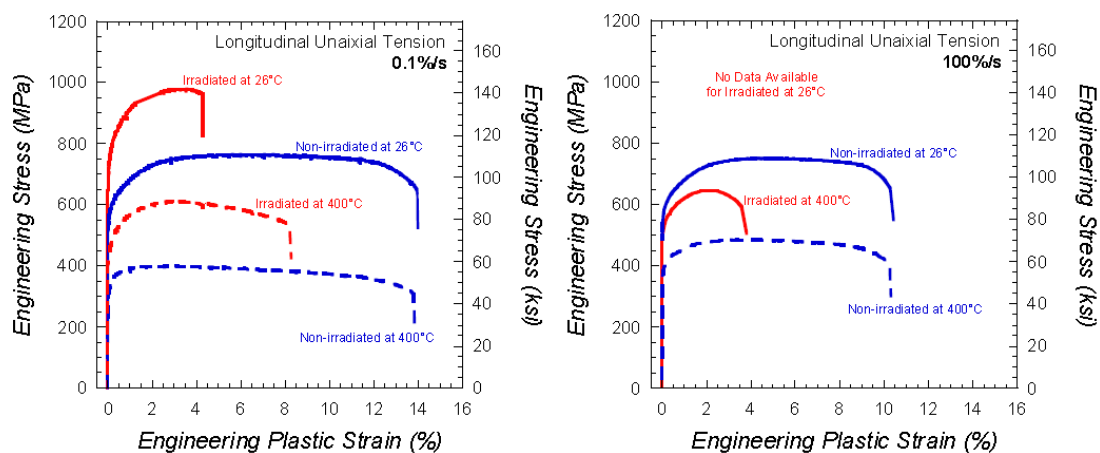


Abb. 2.32 Einachsige Spannungs-Dehnungsdiagramme von unbestrahlten und hoch abgebrannten Zry-4 Hüllrohren (67 MWd/kgU) bei Raumtemperatur und 400 °C:  
links: bei kleiner Dehnrade (0,1 %/s),  
rechts: bei hoher Dehnrade (100 %/s) /DAU 07/

Sehr wichtig waren die Untersuchungen zum Einfluss der äußeren Oxidschicht auf das Verformungs- und Bruchverhalten von hoch bestrahlten Hüllrohren /DAU 07/. Abb. 2.33 zeigt im Vergleich die Kraft-Verformungsverläufe aus Ringdruckversuchen an bestrahltem Zry-4 Hüllrohr ohne und mit äußerer Oxidschicht bei Raumtemperatur und niedriger (0,033 mm/s) Dehnrade. Die Versuche zeigen, dass ein Riss, der in der elastisch-spröden Oxidschicht beginnt, sich in der angrenzenden Hydrid-Rim-Zone bei geringer oder verschwindender plastischer Verformung fortpflanzt. Es scheint, dass die Existenz der äußeren Oxidschicht das radiale Risswachstum verstärkt.

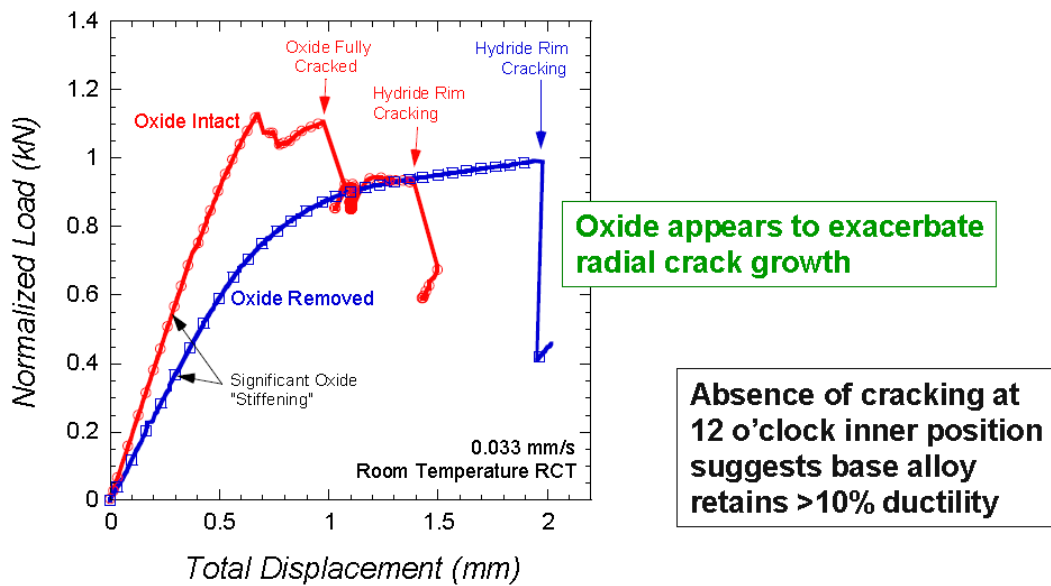


Abb. 2.33 Vergleich der Kraft-Verformungsdiagramme aus Ringdruckversuchen für bestrahltes Zry-4 Hüllrohr ohne und mit äußerer Oxidschicht bei Raumtemperatur und niedriger Dehnrage

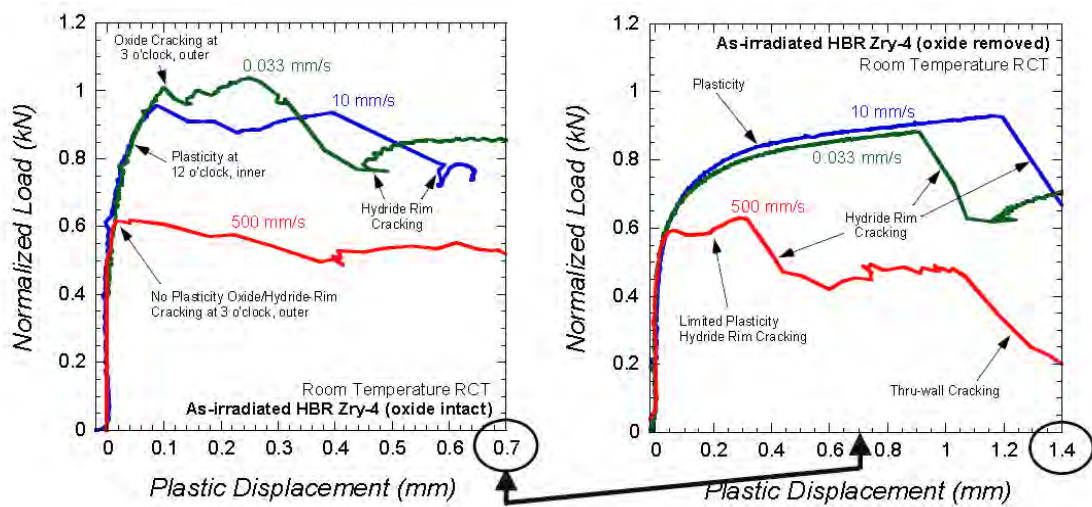


Abb. 2.34 Vergleich der Kraft-Verformungsdiagramme für bestrahltes Zry-4 Hüllrohr ohne (rechts) und mit (links) äußerer Oxidschicht bei Raumtemperatur und verschiedenen Dehnraten

Der Einfluss der Dehnrage in den Ringdruckversuchen bei Raumtemperatur an bestrahlten Hüllrohrabschnitten mit und ohne Oxidschicht wurde mit verschiedenen Geschwindigkeiten des Druckstempels (0,033, 10 und 500 mm/s) untersucht (Abb. 2.34) /DAU 07/. Bei der mittleren Dehnrage (10 mm/s) zeigte sich der gleiche Effekt der Oxidschicht wie zuvor bei der geringen Einwirkgeschwindigkeit von 0,033 mm/s (Abb. 2.33).

Bei der hohen Vorschubgeschwindigkeit des Druckstempels von 500 mm/s zeigten das intakte Hüllrohr mit original belassener Oxidschicht und das Hüllrohr mit entfernter Oxidschicht ein sehr ähnliches Verhalten mit elastisch-sprödem Versagen und keiner oder geringer plastischer Verformung.

Zu guter Letzt erfolgte in den Untersuchungen von Daum /DAU 07/ ein Vergleich des Kraft-Verformungsverhaltens von bestrahltem Hüllrohr nach einer vollständigen radialen Orientierung der Hydridausscheidung mit unbestrahltem und bestrahltem Hüllrohr mit original belassener Oxidschicht bei Raumtemperatur und niedriger Verschiebegeschwindigkeit von 0,033 mm/s. Der Radialhydrid-Probekörper zeigte geringes oder kein plastisches Verhalten mit instabilem Risswachstum im elastischen Bereich bei erheblich geringerer Kraftereinwirkung als bestrahlte und unbestrahlte Proben.

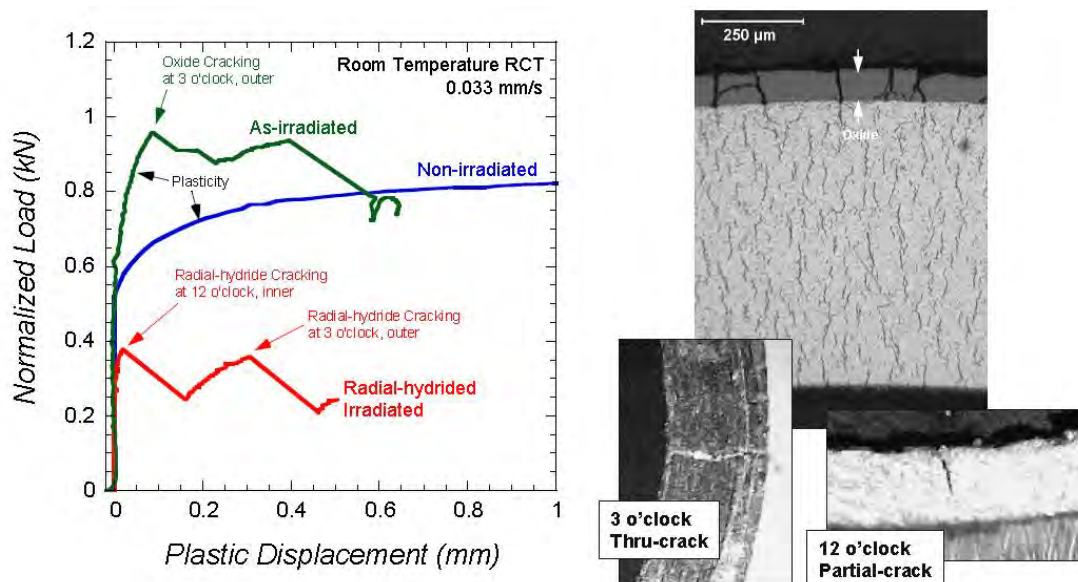


Abb. 2.35 Vergleich der Kraft-Verformungsdiagramme für unbestrahltes, bestrahltes und zusätzlich radialhydriertes Zry-4 Hüllrohr mit äußerer Oxidschicht bei Raumtemperatur und niedriger Dehnrage

## 2.4.5 Untersuchungen mit Ringdruckversuchen durch Aomi et al.

Aomi et al. /AOM 07/ berichten über Untersuchungen zur Hydrid Reorientierung und dem Bruchverhalten in Ringdruckversuchen mit Probekörpern aus bestrahlten Hüllrohrmaterialien für Siedewasserreaktoren (SWR, engl. BWR) und Druckwasserreaktoren (DWR, engl. PWR) gemäß Abb. 2.36. Zusätzlich wurden unbestrahlte hydrierte Proben untersucht. Die Untersuchungen wendeten sich insbesondere den seltener untersuchten moderaten Bedingungen für die Reorientierung bei der Zwischenlagerung im Bereich um 300 °C und 100 MPa für Temperatur und Umfangsspannung zu. Neben den Hauptmaterialien Zry-2 mit/ohne Zr-Liner und Zry-4 wurden Zusatzexperimente mit den neuentwickelten Legierungen MDA von Mitsubishi Heavy Industries und ZIRLO von Westinghouse Electric Corporation durchgeführt.

Fuel cladding type	Material	Heat treatment in tube	Burn-up (GWd/t) [rod average]	Fluence ( $\times 10^{23}$ 1/m <sup>2</sup> , E>1 MeV)	Hydrogen content (ppm) [specimens position]
BWR	40GWd/t no liner type	Zry-2	~29	~5.3	~42
	50GWd/t type	Zry-2 (with Zr liner)	~47 - ~50	~9.6 - ~9.7	~133 - ~264
	55GWd/t (A) <sup>1</sup> type		Unirradiated	Unirradiated	~49 - ~157
	55GWd/t (B) <sup>1</sup> type		~57 - ~59	~10.3 - ~10.5	~98 - ~122
PWR	39GWd/t type	Zry-4	~57	~10.5	~166
	48GWd/t type		~39	~7.1	~50 - ~100
	55GWd/t (A) type	MDA <sup>2</sup> ZIRLO <sup>3</sup>	~44 - ~46	~7.9 - ~8.2	~40 - ~230
			~55	~9.7	~130
			~54	~10.0	~140 - ~150

\*1 (A),(B): different fuel maker

\*2 MDA: 0.8wt%Sn-0.2wt%Fe-0.1wt%Cr-0.5wt%Nb-Zr(bal.)

\*3 ZIRLO: 1.0wt%Sn-0.1wt%Fe-1.0wt%Nb-Zr(bal.)

Abb. 2.36 Verwendete Hüllrohrmaterialien /AOM 07/

Als Belastungsform der Hüllrohre wurde in dieser Untersuchung eine Quetschbelastung von Hüllrohren unterstellt, wie sie bei Stab-Stab- oder Stab-Wand-Wechselwirkungen auch bei einem Behältersturz erwartet werden. Wesentliches Ziel war die Ermittlung der Duktilität der Hüllrohre in Umfangsrichtung durch Ringdruckversuche. Diese Versuche wurden durch Ringzugversuche und longitudinale Zugversuche ergänzt (Abb. 2.37).

Die Apparatur und das Verfahren für die Hydrid Reorientierung ist der Abb. 2.38 zu entnehmen. Die Hüllrohrabschnitte wurden unter konstantem Druck mit dem Edelgas Argon gefüllt, wodurch ein biaxialer (azimutal und longitudinal) Spannungszustand induziert wurde, und in einem elektrisch beheizten Ofen aufgeheizt und für 30 – 60 Minuten auf der gewünschten Hydrid-Umorientierungstemperatur (HRT, hydride

reorientation treatment) gehalten, um danach mit einer kontrollierten Rate abgekühlt zu werden.

### Mechanical property test methods (at room temp.)

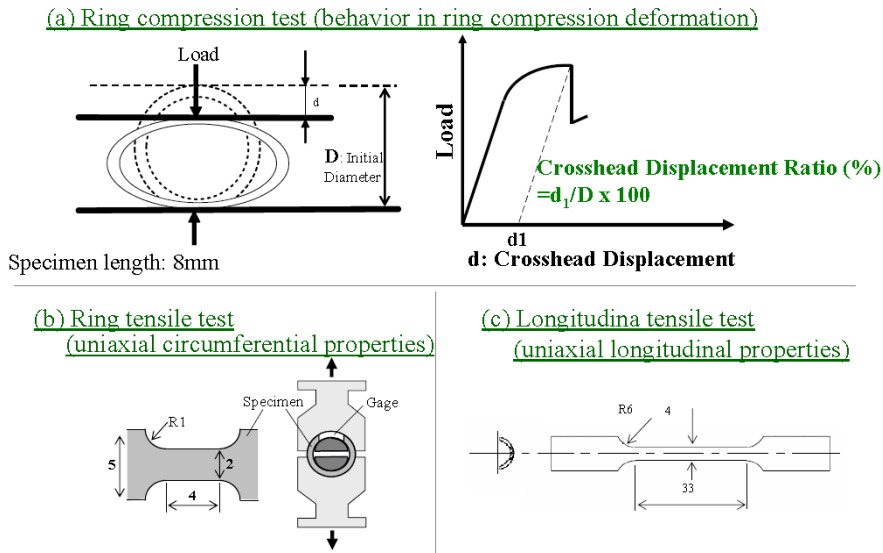


Abb. 2.37 Mechanische Untersuchungsmethoden: (a) Ringdruckversuche, (b) Ringzugversuche, (c) longitudinale Zugversuche /AOM 07/

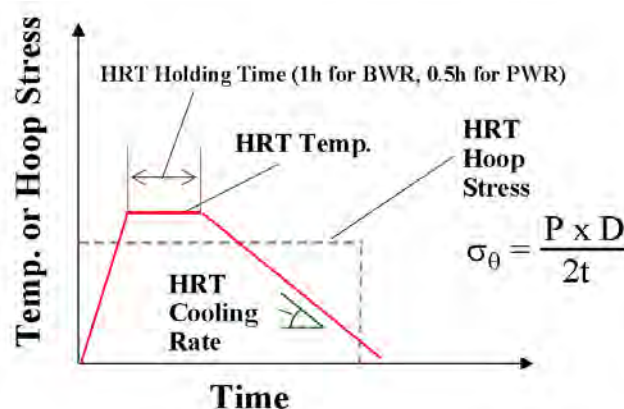
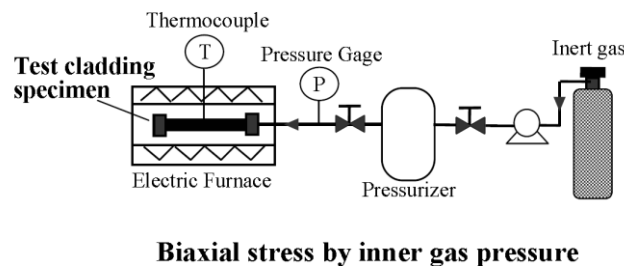


Abb. 2.38 Skizze der Apparatur und des Verfahrens für Hydrid Reorientierung /AOM 07/



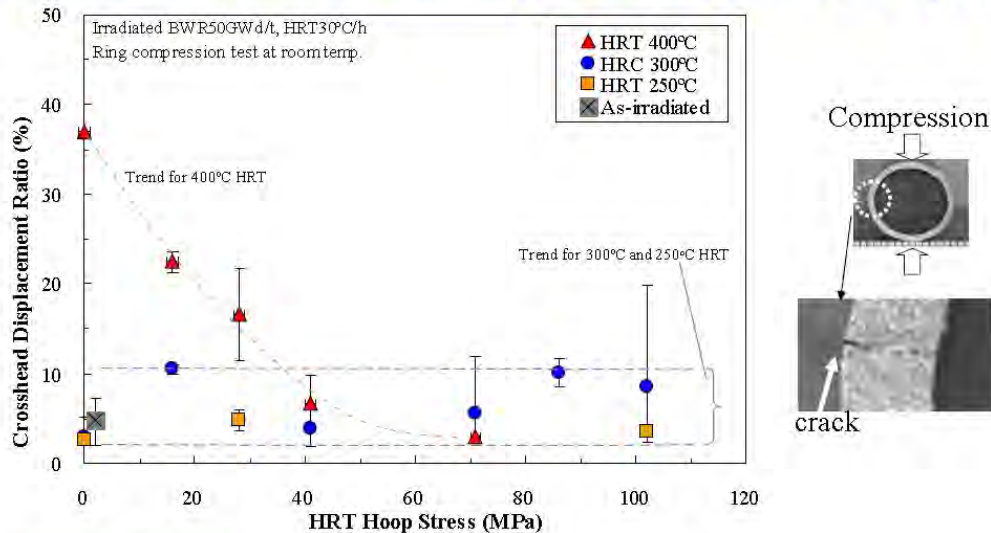
Der plastische Verformungsgrad des Hüllrohrs (Crosshead Displacement Ratio in %, s. Abb. 2.37) wurde in /AOM 07/ als Maß für die Duktilität in Ringdruckversuchen verwendet.

### 2.4.5.1 Ergebnisse für Zircaloy-2

Nach Radialhydridbehandlung im Temperaturbereich 250 bis 300 °C zeigte die Hüllrohrverformung von Zry-2 mit Zr-Liner keine ausgeprägte Abhängigkeit von der Umfangsspannung, obwohl ein gewisser Anteil an Radialhydriden nach HRT 300 °C, 70 – 100 MPa vorhanden war (s. Abb. 2.40). Bei der Hydrid-Reorientierungs-Temperatur HRT 400°C zeigt sich für Zry-2 mit Liner eine deutlich abnehmende Duktilität mit zunehmender Umfangsspannung bis etwa 70 MPa (Abb. 2.39).

Es zeigte sich hierbei auch, dass eine Hydrid-Reorientierungsbehandlung mit reiner Wärmebehandlung ohne Innendruck und somit ohne Umfangsspannung (HRT 400 °C, 0 MPa) gegenüber bestrahlten Proben ohne Wärmebehandlung zu einer erhöhten Duktilität führt, was als Erholung von strahlungsinduzierten Schäden interpretiert wird (Abb. 2.39 Textblock).

### Correlation between ductility and hoop stress, temperature



#### \*Vickers hardness

As-irradiated: 286Hv → After 400°C, 0MPa HRT: 279Hv (irradiation hardening recovery)  
 → After 300°C, 0MPa HRT: 287Hv (no change)

Abb. 2.39 Abhängigkeit der Duktilität von Zry-2 mit Liner von Umfangsspannung und Hydridreorientierungs-Temperatur /AOM 07/

Die Rissbildung hatte in den Ringdruckversuchen mit Zry-2 mit Zr-Liner ihren Anfang an der Außenseite (3- oder 9-Uhr-Position) und bei den Versuchen ohne Liner an der Innenseite (12-Uhr-Position).

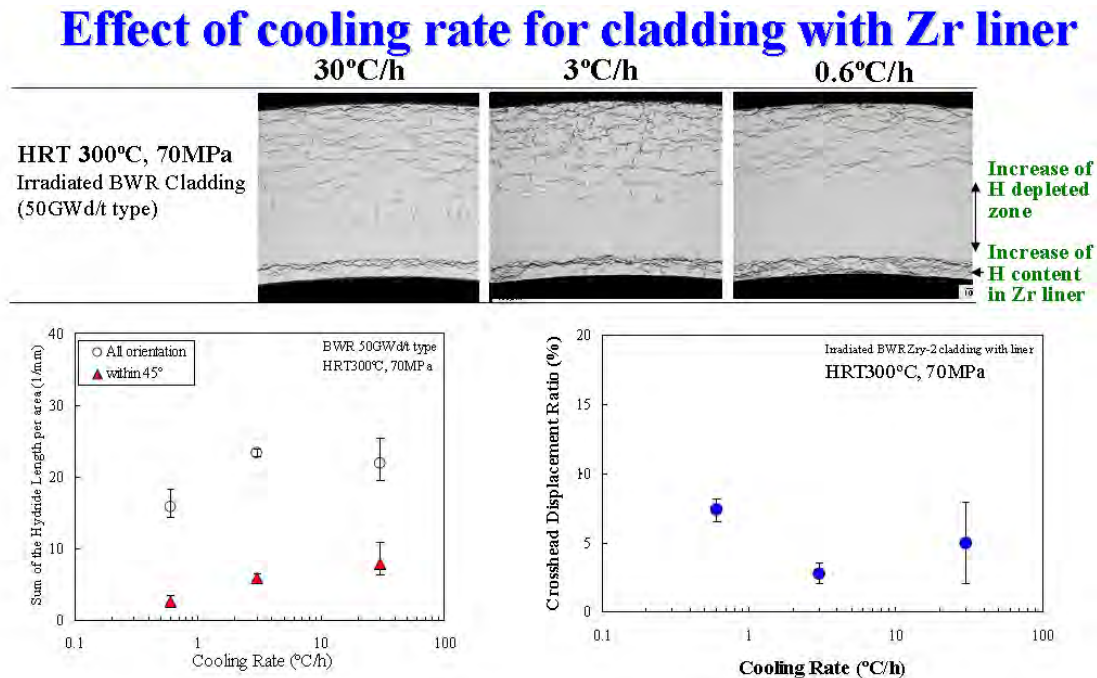


Abb. 2.40 Abhängigkeit der Duktilität von Zry-2 mit Liner von der Abkühlrate /AOM 07/

Die Abhängigkeit der Duktilität von Zry-2 mit Zr-Liner von der Abkühlrate wird in Abb. 2.40 nach Radialhydridbehandlung bei 300 °C und 70 MPa gezeigt /AOM 07/. Die bevorzugte Hydridausscheidung findet bei langsamerer Abkühlung im Zr-Liner statt und führt zu einem geringeren Radialhydridanteil im Zry-2 Material und somit zu höherer Duktilität.

Die geringste Duktilität mit 0,3-0,4 % diametralem Verformungsanteil zeigte sich in den Ringdruckversuchen mit SWR-Hüllrohren bei einem Test mit Hüllrohr nach geringem Abbrand (ca. 25 MWd/kgU) aus Zry-2 ohne Liner nach Radialhydrid-Behandlung bei 300 °C, 70 MPa Umfangsspannung, 3 K/h Abkühlrate und 42 ppm Wasserstoffgehalt (Abb. 2.41) /AOM 07/. Die Radialrissbildung ging von der Hüllrohrinnenseite aus, wie die metallographische Untersuchung zeigte. Die Rissbildung erfolgte elastisch-spröde im elastischen Bereich der Kennlinie, während der Kontrollversuch ohne Hydrid-Umorientierung ein elastisch-plastisches Versagen bei 15 % Verformungsgrad hatte.



## Behavior of no-liner BWR cladding

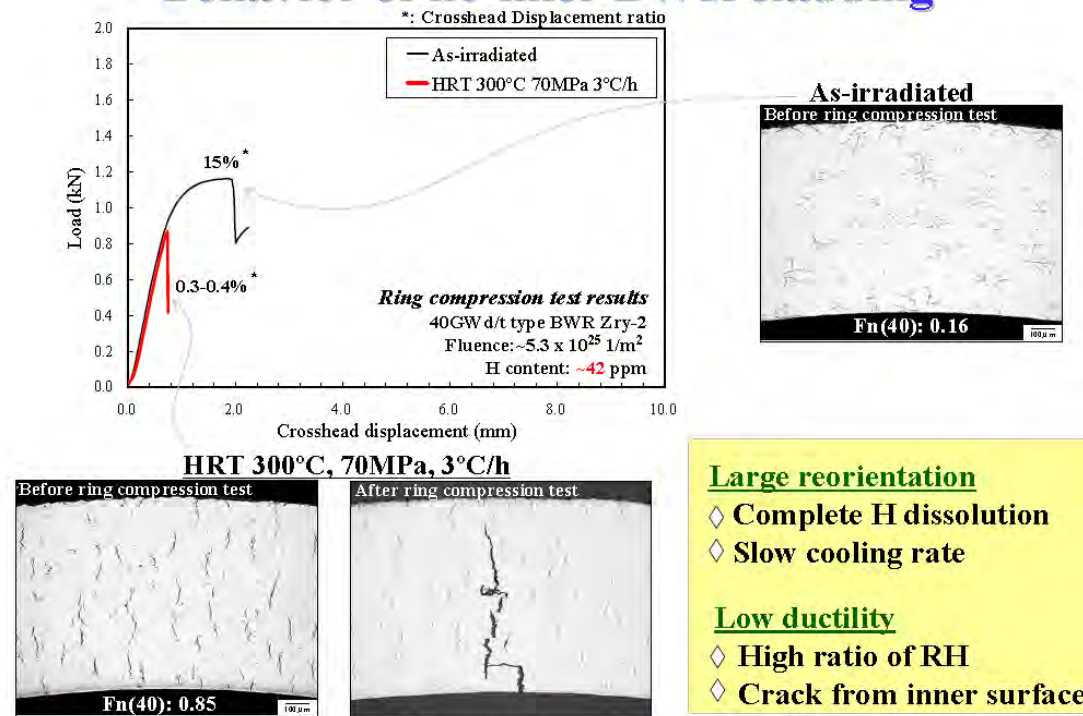


Abb. 2.41 Kraft-Verformungsdiagramm von bestrahltem Zry-2 ohne Liner ohne und mit Hydridumorientierung /AOM 07/

In longitudinalen Zugversuchen und in Ringzugversuchen bei Raumtemperatur wurden von Aomi /AOM 07/ Dehngrenze und Zugfestigkeit von bestrahltem Zry-2 mit Liner in Abhängigkeit von der Dehnrage gemessen (Abb. 2.42). Für die Dehnrage  $8,3 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$  wurde keine Abhängigkeit der longitudinalen mechanischen Kennwerte von der Radial-Hydridbehandlung festgestellt, was mit der Tatsache im Einklang stand, dass kaum Hydride senkrecht zur longitudinalen Zugrichtung ausgerichtet waren. Die Untersuchungen zeigten, dass die umfanga bezogene Festigkeit höher als die longitudinale war und somit eine geringe Anisotropie nach der Bestrahlung weiterhin bestand. Die Abb. 2.42 zeigt, dass eine etwa 10 %-ige Zunahme der Festigkeit bei Erhöhung der Dehnrage von  $10^{-4}$  auf  $1 \text{ s}^{-1}$  erfolgte.

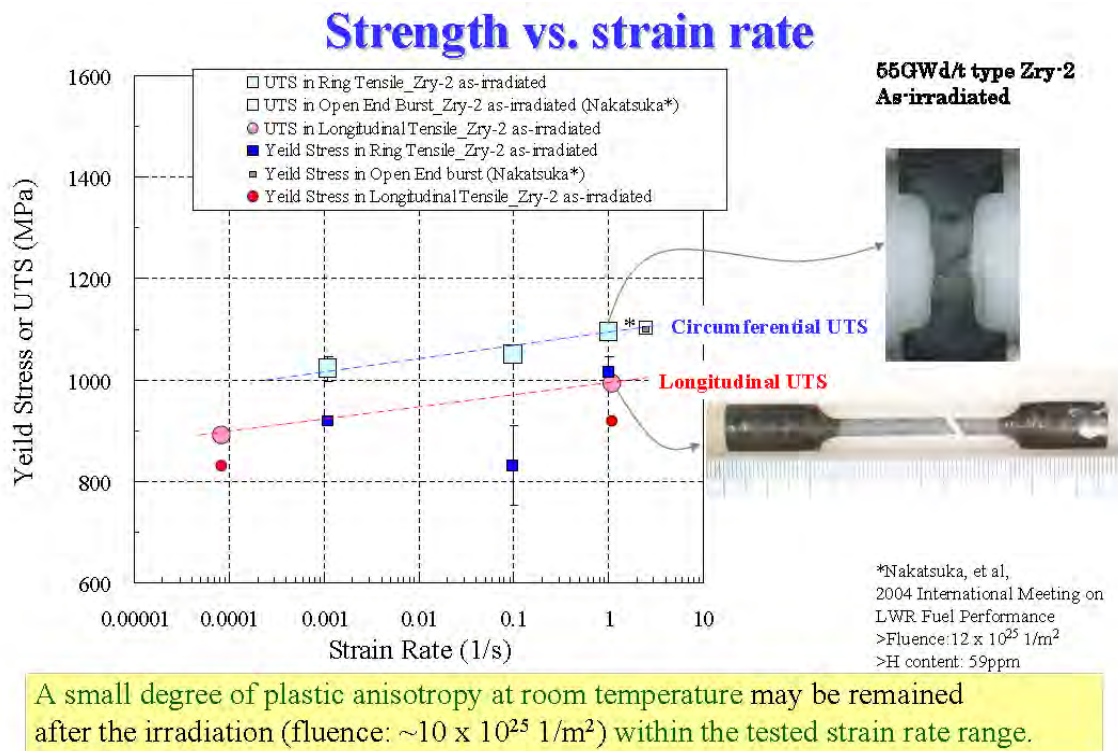


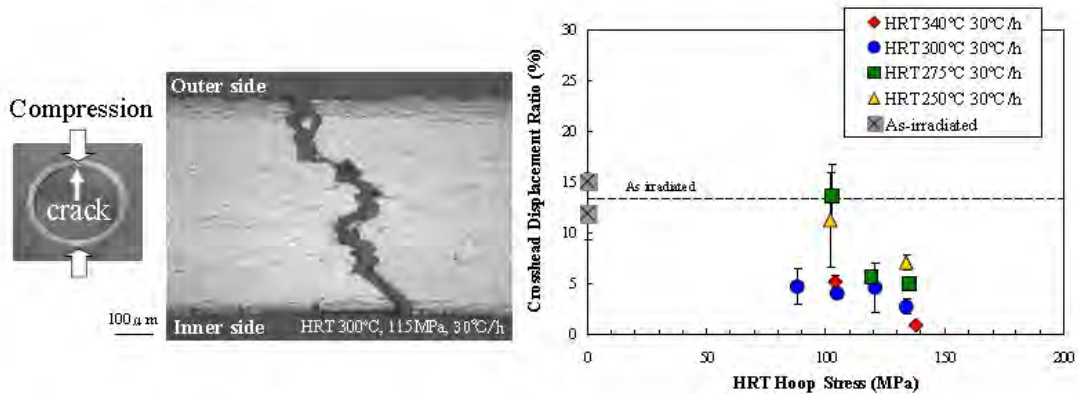
Abb. 2.42 Dehngrenze und Zugfestigkeit von bestrahltem Zry-2 mit Liner in Abhängigkeit von der Dehnrage /AOM 07/

#### 2.4.5.2 Ergebnisse für Zircaloy-4 und fortschrittliche Legierungen

Untersuchungen zur Duktilität von bestrahlten Zry-4 Hüllrohrproben in Ringdruckversuchen /AOM 07/ zeigten nach einer Radial-Hydridbehandlung bei HRT 275 °C, 100 MPa und HRT 250 °C, 100 MPa, Abkühlrate 30 K/h fast das gleiche Verhalten wie ausschließlich bestrahlte Proben (Abb. 2.43). Bei einer Temperaturerhöhung in der Radial-Hydridbehandlung auf 300 °C und 340 °C bei 100 MPa reduzierte sich die radiale Duktilität (crosshead displacement ratio %) erheblich. Gleiches wurde bei allen genannten Temperaturen verzeichnet, wenn die Umfangsspannung über 120 MPa angehoben wurde (Abb. 2.43).

## Ductility vs. hoop stress

Zry-4 (48GWd/t type)



◇ In 30°C/h cooling condition, HRT 275°C, 100MPa and HRT 250°C, 100MPa specimens showed the same level ductility as as-irradiated cladding.

Abb. 2.43 Duktilität von bestrahltem Zry-4 (48 MWd/kgU) in Abhängigkeit von der Umfangsspannung /AOM 07/

## Effect of cooling rate

Zry-4 (48GWd/t type)

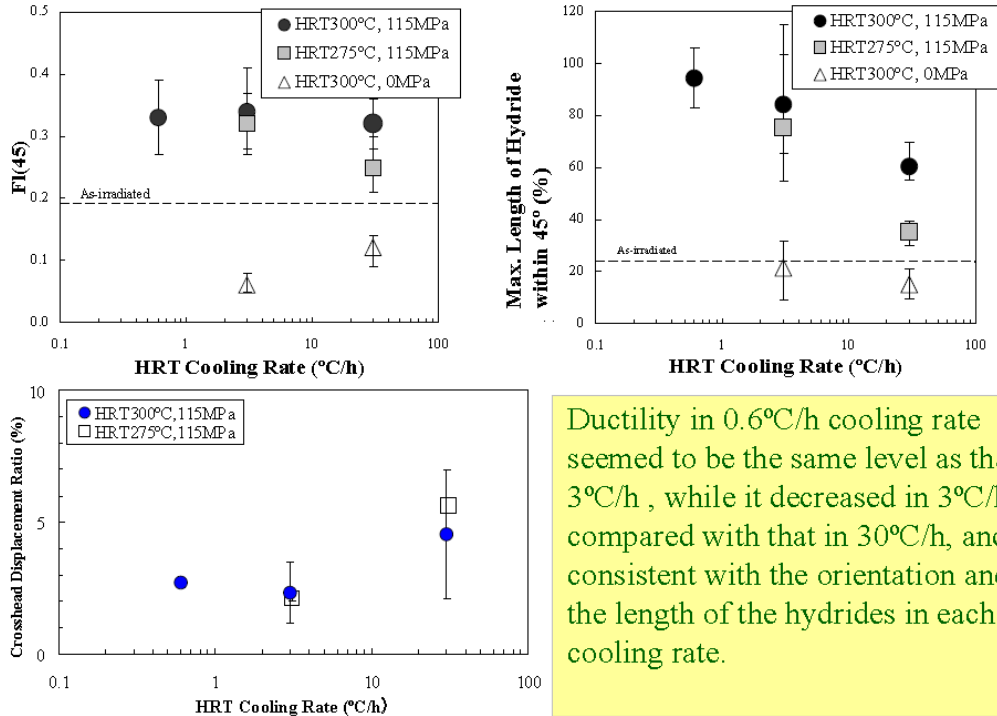


Abb. 2.44 Duktilität von bestrahltem Zry-4 (48 MWd/kgU) in Abhängigkeit von der Kühlrate /AOM 07/

In Abb. 2.44 werden die Effekte der Abkühlrate einer Radialhydridbehandlung auf die Duktilität von bestrahltem Zry-4 (48 MWd/kgU) in Ringdruckversuchen gezeigt /AOM 07/. Im Gegensatz zu den Ergebnissen bei Zry-2 zeigte sich hier eine abnehmende Duktilität in Ringdruckversuchen mit abnehmender Kühlrate was konsistent war mit den Ergebnissen zur radialen Orientierung FI(45) und Länge der Hydride in der Abb. 2.44. Die Größe FI(45) bezeichnet das Verhältnis aus der summierten Länge der in radialer Richtung vorhandenen Hydride (+/-) 45° und der Gesamtlänge aller Hydride im Auswertebereich.

Vergleichende Untersuchungen in /AOM 07/ zum Reorientierungsverhalten verschiedener DWR Hüllrohrtypen nach Bestrahlung und HRT bei 300 °C, 70 – 140 MPa und 30 K/h zeigten für Zry-4 und MDA ähnliche Ergebnisse während ZIRLO vergleichsweise hohe Werte der radialen Orientierung FI(45) erreichte (Abb. 2.45).

### Reorientation behavior of improved materials (MDA, ZIRLO)

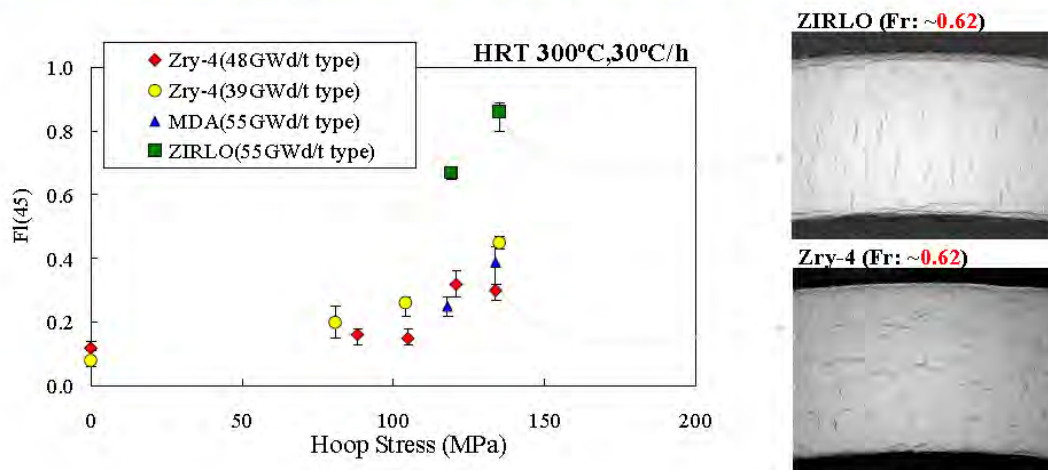


Abb. 2.45 Reorientierung von Hydriden fortschrittlicher Legierungen in Abhängigkeit von der Umfangsspannung /AOM 07/

#### 2.4.6 Zusammenfassung zum Einfluss der Hydride

Die vielschichtigen Ergebnisse der vertiefenden Literaturstudie zur Bedeutung von radial orientierten Hydridausscheidungen im Hüllrohr auf das Verhalten von hoch abgebrannten Brennstäben bei potenziellen mechanischen Unfallbelastungen werden hier zusammenfassend betrachtet.

**Gegenstand** der hier vorgestellten Untersuchungen sind Experimente mit unbestrahlten und bestrahlten Hüllrohrproben aus den Legierungen Zircaloy-4, Zircaloy-2 ohne und mit Liner und nur in geringem Ausmaß mit den neuen Materialien ZIRLO und MDA. Alle Versuche wurden an reinen Hüllrohrproben ohne Brennstoff ausgeführt. Die Wiedergabe von Untersuchungsergebnissen aus der Literaturrecherche beschränkt sich auf einige als herausragend eingestufte Berichte.

Die verwendeten **Methoden** unterscheiden sich bei der Probenpräparation z. B. im Hydridreorientierungsverfahren. Bei Daum et al. /DAU 06/ wurde die bei der Hydridreorientierung erforderliche Umfangsspannung für ringförmige Probekörper durch eine Zugvorrichtung eingepreßt und anschließend der komplexe Spannungszustand durch numerische Simulation berechnet. In den übrigen Untersuchungen durch Daum et al. /DAU 07/, Chu et al. /CHU 07/, /CHU 08/ und Aomi et al. /AOM 07/ wurden kurze Rohrabschnitte mit konstantem Innendruck beaufschlagt, wodurch ein leichter interpretierbarer biaxialer Spannungszustand eingestellt wurde.

Ein bedeutsamer Wechsel der Präparation bestrahlter Hüllrohrabschnitte wurde in /DAU 07/ durch das Beibehalten der äußeren Oxidschicht vorgenommen, was zur Folge hatte, dass die radiale Bruchentstehung bei intakter Oxidschicht in der elastisch-spröden Oxidschicht begann und sich ohne wesentliche plastische Verformungen in der angrenzenden Hydrid-Rim-Zone fortsetzte.

Die mechanischen Belastungstests wurden bei der Messung der klassischen Spannungs-Dehnungsdiagramme und ihrer Eckwerte durch axiale Zugversuche oder Ringzugversuche vorgenommen /CHU 07/, /DAU 07/.

Die Bildung der Radialhydride durch Umorientierung während der trockenen Lagerung hängt von Hüllrohrmaterial, Wasserstoffkonzentration, Lösungstemperatur und Umfangsspannung (abhängig vom Brennstabinnendruck, h. h. Spaltgasfreisetzung) ab. In allen bislang vorliegenden Untersuchungen wird die Umfangsspannung während der

experimentellen Abkühlphase konstant gehalten und nicht entsprechend einem Temperaturverlauf eines sich über die Lagerzeit von angenommen 40 Jahren abkühlenden Brennstabs modelliert.

Die Messung der Kraft-Verformungskurven und die Bestimmung der Rissbildung geschah unter Verwendung kleiner Ringproben durch Ringdruckversuche /DAU 06/, /DAU 07/, /AOM 07/. Die radiale Umfangsverformung, absolut oder in Relation zum Durchmesser gesetzt, wird als Maß für die Hüllrohrduktilität bei dieser Form der Quetschbelastung angesehen.

Die experimentellen **Zielsetzungen** waren auf die Messung der Kraft-Verformungskennlinien unter besonderer Berücksichtigung der potenziellen Spannungsreorientierung von umfangsorientiert ausgeschiedenen Zirconiumhydriden und des Einflusses radial orientierter Zirconiumhydride auf die Duktilität der Hüllrohre ausgerichtet. Das Hydridverhalten wurde in Abhängigkeit von Lösungstemperatur der Hydride, Umfangsspannung bei der Umorientierung, Wasserstoffkonzentration und Abkühlrate bei der Hydridreorientierung untersucht. Das Hüllrohrverhalten wurde für diese Parameter und zusätzlich bei verschiedenen Einwirkungsraten der mechanischen Belastungseinrichtung oftmals bei Raumtemperatur aber auch bei erhöhter Temperatur untersucht.

Als wichtige **Ergebnisse** kann man festhalten, dass Chung et al. /CHU 08/ bei unbestrahltem spannungsfrei geglühtem (SRA) Zry-4 bei Wasserstoffkonzentration im Bereich 250 bis 320 wppm und Radialhydrierungsparameter (RHT: 400 °C Lösungstemperatur und 160 MPa Umfangsspannung) durch Wiederholungen mit bis zu 12 Zyklen eine vollständige Umorientierung erreicht haben. Bei geringerer Wasserstoffkonzentration von 130 wppm wurden 75 % und bei hoher Wasserstoffkonzentration von 600 wppm wurden nur 20 % der Hydride radial orientiert.

Bei Probekörpern, die keine Radialhydride enthielten, zeigten die Ringzugproben höhere Zugfestigkeit aber wesentlich geringere Duktilität als die Axialzugproben. Ringzugproben mit Radialhydriden (600 wppm [H], 20 % radial) hatten gegenüber den Proben ohne Wasserstoffbeladung oder mit rein umfangsorientierter Hydridausscheidung deutlich reduzierte Festigkeit und Duktilität und bei Proben mit höherem Radialanteil bei insgesamt niedrigerem Wasserstoffgehalt (130 wppm [H], 78 % radial) zeigte sich eine weitere erhebliche Festigkeitsreduktion bei nahezu verschwindender Duktilität (1 %) ein weitgehend sprödes Verhalten /CHU 07/.

Die Untersuchung zur Auswirkung von Radialhydriden auf die axialen mechanischen Eigenschaften - Zugfestigkeit und Bruchdehnung - von SRA-Hüllrohr-Probekörpern aus Zircaloy-4 unter uniaxialer Spannung zeigte bei Raumtemperatur selbst bei 320 wppm Wasserstoffgehalt keinen signifikanten Einfluss /CHU 07/.

Als Schwellenwert der Spannung, die erforderlich ist, um Radialhydride zu erzeugen, wird von Chu /CHU 07/ und /DAU 06/ näherungsweise 75-80 MPa für unbestrahlte und bestrahlte Hüllrohre aus Zircaloy-4 bei einer Wärmebehandlung bei 400 °C angegeben.

Bei den Ringdruckversuchen von Daum et al. /DAU 06/ zeigte sich, dass die Duktilität und das Bruchverhalten von unbestrahltem und Hochabbrand-Hüllrohr aus Zircaloy-4 signifikant durch radiale Hydride beeinflusst wurden. Unbestrahlte Ringe (< 300 wppm Wasserstoff) und Hochabbrand-Ringe ( $\approx$  650 wppm Wasserstoff) brechen im elastischen Bereich oder auf instabile Weise, wenn sich radiale Hydride im Bereich der inneren 50 % der Hüllrohrwandstärke befinden. Unbestrahltes Hüllrohr, das weniger als 300 wppm Wasserstoff enthielt, zeigte sich empfänglicher für Radialhydrid-Versprödung als Hüllrohr mit mehr als 650 wppm Wasserstoff. Dieser Rückgang in der Empfindlichkeit bei höherem Wasserstoffgehalt wird der Anwesenheit von umfangsorientierten Hydriden zugeschrieben, die ein verformungsinduziertes stabiles Risswachstum begünstigen.

Umfangsspannung und plastische Umfangsdehnung, die erforderlich sind, um instabiles Risswachstum zu initiieren, nehmen ab, wenn die Radial-Hydrid-Behandlung bei Umfangsspannungen von mehr als 90 MPa erfolgt /DAU06/. Obwohl in /DAU06/ strahlungsinduzierte Verfestigung beobachtet wurde, deuten die Ergebnisse darauf hin, dass die Radialhydrid-Ausscheidung den dominierenden Versprödungsmechanismus bildet.

In neueren Arbeiten durch Daum /DAU 07/ an hoch abgebrannten Zircaloy-4 Hüllrohrabschnitten wurden insbesondere die Einflüsse der korrosionsbedingten Oxidschicht an der Hüllrohraußenseite und der experimentell aufgeprägten Dehnrates auf die plastische Verformbarkeit und das Bruchverhalten in Ringdruckversuchen bei Raumtemperatur untersucht. Dabei zeigten strahlungsbedingte und dehnratenabhängige Effekte in einachsigen Zugversuchen die wachsende Verfestigung und abnehmende plastische Verformbarkeit (Duktilität). Dazu gegenläufig bewirkte die Temperaturzunahme eine verringerte Festigkeit und vergrößerte Duktilität.



Sehr wichtig waren die Untersuchungen zum Einfluss der äußeren Oxidschicht an hoch abgebrannten Zircaloy-4 Hüllrohrabschnitten auf deren Verformungs- und Bruchverhalten in Ringdruckversuchen /DAU 07/. Die Versuche mit niedriger Dehnrates (0,033 mm/s) zeigten, dass die Existenz der äußeren Oxidschicht das radiale Risswachstum verschlimmert.

Der Einfluss der Dehnrates in den Ringdruckversuchen bei Raumtemperatur an bestrahlten Hüllrohrabschnitten mit und ohne Oxidschicht wurde mit verschiedenen Geschwindigkeiten des Druckstempels (0,033, 10 und 500 mm/s) untersucht /DAU 07/. Bei der mittleren Dehnrates (10 mm/s) zeigte sich der gleiche Effekt der Oxidschicht wie zuvor bei der geringen Einwirkgeschwindigkeit von 0,033 mm/s. Bei der hohen Vorschubgeschwindigkeit des Druckstempels von 500 mm/s zeigten das intakte Hüllrohr mit original belassener Oxidschicht und das Hüllrohr mit entfernter Oxidschicht ein sehr ähnliches Verhalten mit elastisch-sprödem Versagen und keiner oder geringer plastischer Verformung.

Von Daum /DAU 07/ wurde das Kraft-Verformungsverhalten von bestrahltem Hüllrohr nach einer vollständigen radialen Orientierung der Hydridausscheidung verglichen mit unbestrahltem und bestrahltem Hüllrohr mit original belassener Oxidschicht bei Raumtemperatur und niedriger Krafteinleitungsgeschwindigkeit von 0,033 mm/s. Der Radialhydrid-Probekörper zeigte den geringsten Widerstand mit elastisch-sprödem Verhalten mit instabilem Risswachstum im elastischen Bereich bei erheblich geringerer Krafteinwirkung als bestrahlte und unbestrahlte Proben.

Aomi et al. /AOM 07/ berichten über Untersuchungen zur Hydrid Reorientierung und dem Bruchverhalten in Ringdruckversuchen mit Probekörpern aus bestrahlten Hüllrohrmaterialien für Siedewasserreaktoren (SWR, engl. BWR) und Druckwasserreaktoren (DWR, engl. PWR). Zusätzlich wurden unbestrahlte hydrierte Proben untersucht. Die Untersuchungen wendeten sich insbesondere den seltener untersuchten moderaten Bedingungen für die Reorientierung bei der Zwischenlagerung im Bereich um 300 °C und 100 MPa für Temperatur und Umfangsspannung zu. Neben den Hauptmaterialien Zry-2 mit/ohne Zr-Liner und Zry-4 wurden Zusatzexperimente mit den neuentwickelten Legierungen MDA von Mitsubishi Heavy Industries und ZIRLO von Westinghouse Electric Corporation durchgeführt.

Als kritische Spannung, bei der sich für Zry-2 mit Liner eine deutlich verringerte Duktilität zeigte, ergab sich bei einer Umfangsspannung von etwa 70 MPa und hohem Re-



orientierungsgrad bei einer Hydrid-Reorientierungs-Temperatur HRT von 400 °C /AOM 07/. Nach Radialhydridbehandlung im Temperaturbereich 250 bis 300 °C zeigte die Hüllrohrverformung von Zry-2 mit Zr-Liner keine ausgeprägte Abhängigkeit von der Umfangsspannung, obwohl ein gewisser Anteil an Radialhydriden nach HRT 300 °C, 70 – 100 MPa vorhanden war /AOM 07/.

Die geringste Duktilität mit 0,3-0,4 % diametralem Verformungsanteil zeigte sich in den Ringdruckversuchen mit SWR-Hüllrohren bei einem Test mit Hüllrohr nach geringem Abbrand (ca. 25 MWd/kgU) aus Zry-2 ohne Liner nach Radialhydrid-Behandlung bei 300 °C, 70 MPa Umfangsspannung, 3 K/h Abkühlrate und nur 42 ppm Wasserstoffgehalt /AOM 07/.

Untersuchungen zur Duktilität von bestrahlten Zry-4 Hüllrohrproben in Ringdruckversuchen /AOM 07/ zeigten nach einer Radial-Hydridbehandlung bei HRT 275 °C, 100 MPa und HRT 250 °C, 100 MPa, Abkühlrate 30 K/h fast das gleiche Verhalten wie ausschließlich bestrahlte Proben. Bei einer Temperaturerhöhung in der Radial-Hydridbehandlung auf 300 °C und 340 °C bei 100 MPa reduzierte sich die radiale Duktilität erheblich. Gleiches wurde bei den übrigen genannten Temperaturen verzeichnet, wenn die Umfangsspannung über 120 MPa angehoben wurde.

Die Untersuchung der Abhängigkeit der Duktilität von Zry-2 mit Zr-Liner von der Abkühlrate wird nach Radialhydridbehandlung bei 300 °C und 70 MPa /AOM 07/ zeigte, dass die bevorzugte Hydridausscheidung bei langsamerer Abkühlung (0,6 K/h) im Zr-Liner stattfand und zu einem geringeren Radialhydridanteil im Zry-2 Material und somit zu höherer Duktilität führte.

Zu den neuen Hüllrohrwerkstoffen wurde nur berichtet, dass bei ZIRLO ein im Vergleich zu anderen DWR-Hüllrohrwerkstoffen (Zry-4, MDA) nach Abbränden im Bereich 39-55 MWd/kgU und Radialhydridbehandlung bei 300 °C, 30 K/h bei Umfangsspannungen um 130 MPa relativ starkes Reorientierungsverhalten beobachtet wurde /AOM 07/.

## **2.5 Ergebnisse des Workshops**

Zur Vertiefung der Erfassung und Auswertung des aktuellen Standes von Wissenschaft und Technik wurde am 4. und 5. Dezember 2008 im Fraunhofer ITEM in Hannover ein

internationaler Workshop "Behaviour of LWR Spent Nuclear Fuel under Transport Accident Conditions" durchgeführt. Vertreten waren 25 Teilnehmer aus 5 Ländern (D, F, USA, CH, S) aus Forschung, Industrie und von Behörden.

Der Workshop hatte auch zum Ziel, den aktuellen Stand des Versuchsaufbaus und der Versuchsmatrix dieses Vorhabens einem internationalen Kreis von Fachkollegen zu präsentieren und dabei das Experimentalprogramm dieses Vorhabens sowie Optionen für eine Fortführung mit aktiven Proben zu diskutieren.

Im Folgenden werden die wichtigsten Inhalte und Diskussionspunkte der einzelnen Vorträge und die abschließende Diskussionsrunde zusammengefasst.

### **2.5.1 Test program for structural behaviour of mock-up fuel rodlets under transportation accident conditions (Eugen Schrödl, GRS)**

Die Ziele des experimentellen Teils des Vorhabens (Konzeption und Bau eines Versuchsaufbaus zur Anwendung in einer heißen Zelle und Messung des Deformations-, Bruch und Freisetzungsverhalten von inaktiv gefüllten Hüllrohrabschnitten zur Verifikation von FE-Modellrechnungen) wurden vorgestellt. Dabei wurde auf die ursprüngliche Planung unter Einbeziehung von Versuchen mit heißen Proben hingewiesen. Die nachfolgend in Abschnitt 3.2 genannten potenziellen Einflussgrößen für das Brennstabverhalten bei Unfallbelastungen wurden aufgezählt und die zugehörige Parameterauswahl für die geplante Matrix der Hauptversuche erläutert, in der lediglich die Art der Belastung sowie das Material und die Hydrierung des Hüllrohrs variiert werden sollten.

Dabei wurde darauf hingewiesen, dass die gewählten Materialien und deren Vorbehandlung reale frische und hochabgebrannte Brennstäbe nur sehr grob annähern können. Dies gilt insbesondere für Brennstäbe mit Hochabbrand wegen der unklaren Äquivalenz zwischen künstlicher Versprödung im Autoklaven und realen Hydrideinlagerungen und wegen der komplexen und wenig erforschten Materialeigenschaften des abgebrannten Brennstoffs.

Für eine mögliche Fortführung der experimentellen Arbeiten wurden daher neben der Berücksichtigung zusätzlicher Einflussgrößen wie z. B. Innendruck, Einlagerung von Radialhydriden oder Versagensmodus vor allem die Verwendung von realen bestrahlten Hüllrohrabschnitten als sinnvolle Erweiterungen genannt.

In der anschließenden Diskussion wurden die angesprochenen Unsicherheiten bei der Abschätzung des Quellterms auch von anderen Teilnehmern bestätigt: Insbesondere das vom abgebrannten Brennstoff vor allem in der Struktur abweichende Surrogatmaterial und der fehlende Innendruck. Der Einfluss der mechanischen Materialeigenschaften des Füllmaterials wird von deutscher Seite nach den Erfahrungen in verschiedenen Projekten zur Freisetzung bei Sprödbbruch jedoch nicht als so gravierend gesehen wie von der US NRC. Die Frage nach dem Grund für die Wahl unterschiedlicher Hüllrohrmaterialien wird mit den experimentellen Randbedingungen bei der Hydrierung und der Auslenkung begründet, die ein einheitliches Material in hydrierter und unhydrierter Form nicht zulässt.

### **2.5.2 Test apparatus – Set-up and performance (Wolfgang Koch, ITEM)**

Der mechanische Teil des Testaufbaus mit seinem hydraulischen Antrieb für quasi-stationäre und dynamische horizontale Beaufschlagung der vertikal locker eingespannten Proben wurde präsentiert. Der hydraulisch beschleunigte Stempel kann auf maximal 5 m/s beschleunigt werden und mit einer Kraft von maximal 22 kN auf die Probe einwirken. Die Messung erfolgt zeitlich hoch aufgelöst piezoelektrisch (Kraft), per Triangulation (Auslenkung) und Hochgeschwindigkeitskamera (Versagensablauf). Die freigesetzten Partikel werden in der Kammer online mit einem Respicon gemessen (lungengängiger Anteil) und nach dem Versuch einer Siebanalyse zugeführt. Erste Ergebnisse erfolgreicher Vorabtests zeigen plausible Ergebnisse. Oszillationen in der Triangulationsmessung wurden durch einen weniger schwingungsanfälligen Reflektor beseitigt. Es wird davon ausgegangen, dass der Aufbau mit wenigen Anpassungen für die Verwendung in einer heißen Zelle geeignet ist.

In der anschließenden Diskussion wurde vor allem Optionen der Lagerung der Probe (z. B. eingespannt oder mit definierter Reibung) und geometrischer Einschränkungen entsprechend der Brennelementgeometrie (Auslenkung und Stablänge) angesprochen, die mit der Apparatur mit wenigen Anpassungen realisierbar sind. Von IRSN wurde darauf hingewiesen, dass auch frischer Brennstoff aus Kritikalitätsgesichtspunkten einen interessanten Untersuchungsgegenstand darstellt.

### **2.5.3 Mechanical safety analysis strategy for high-burnup spent fuel under accident transport conditions: Approach and experimental basis (Frank Koch, BAM)**

Nach einem Überblick über mögliche Effekte, die beim Behälterabsturz aus Kritikalitätsgesichtspunkten relevant sein können, wurde ein Balkenmodell eines Brennelementabschnittes vorgestellt, mit dem das Durchbiegen und Versagen von Hüllrohren beim Horizontalaufprall eines Behälters vereinfacht beschrieben werden kann. Ergänzend wurden typische experimentell bestimmte Zeitverläufe der auftretenden Beschleunigungen beim horizontalen oder verkanteten Seitenaufprall (slap down) von Brennelementbehältern gezeigt. Typische Beschleunigungswerte liegen je nach Art der eingesetzten Stoßdämpfer im Bereich 40 – 150 g bei einer Impulsdauer von 20 - 30 ms. Unsicherheiten bestehen bei der Beschreibung der komplexen Kraftübertragung dieser Messwerte auf die Brennelemente und Brennstäbe. Es wurde zudem versucht, das Verformungsverhalten von Brennstababschnitten in einem Finite-Elemente Modell zu simulieren und das erstellte Modell am Beispiel von Messdaten des Fuel Integrity Projects zu validieren. Unsicherheiten bestehen hierbei vor allem in Bezug auf die mechanischen Eigenschaften des Brennstoffs und seine Verbindung mit dem Hüllrohr. Analoge Rechnungen für ausgewählte Versuche dieses Projekts befanden sich zu diesem Zeitpunkt noch in der Planung.

Die anschließende Diskussion hatte vor allem die Möglichkeit von kritischen Zuständen durch Deformationen der Brennelemente zum Inhalt (z. B. Verformung der Abstandhalter).

### **2.5.4 Behaviour of LWR spent nuclear fuel under transport accident conditions (Sarah Forgeaud, IRSN)**

Diese Präsentation diente zum Überblick über die Aktivitäten von IRSN im oben genannten Themenbereich und bildete eine Klammer um die folgenden drei Detailpräsentationen von IRSN. Zu den von IRSN in den vergangenen Jahren behandelten Themengebieten mit Bezug zum Workshop-Inhalt zählen Fragestellungen des Transports von frischem und abgebranntem Brennstoff, und zur Handhabung von Brennstäben. Dazu wird die Betriebserfahrung ausgewertet, experimentelle Arbeiten zum Verhalten von Brennstababschnitten und Brennelementdummys bei Unfallbedingungen durchgeführt und eine Datenbank mit Materialkennwerten von Hüllrohrmaterial und zu-

gehörigen Modellansätzen erstellt. Zu dieser Präsentation gab es keine eigene Diskussion.

### **2.5.5 Fission gas release (Christophe Getrey, IRSN)**

Die Spaltgasfreisetzung aus abgebranntem Brennstoff in das freie Volumen von Brennstäben muss im Wesentlichen aus zwei Gründen bekannt sein: für die Abschätzung der Druckbelastung des Hüllrohrs und für die Abschätzung von Aktivitätsfreisetzungen bei Hüllrohrschäden. In Frankreich gibt es Festlegungen der Behörde zu den im Rahmen von Sicherheitsanalysen zu unterstellenden Spaltgasfreisetzungsanteilen. Diese Werte sind abhängig vom Brennstofftyp und vom Abbrand. Untersuchungen an französischen Brennstäben zeigen eine gute Übereinstimmung mit den Annahmen. Es gibt jedoch Hinweise, dass die maximale lineare Stableistung pro Zyklus in anderen europäischen Ländern die Annahmen für Brennstäbe in Frankreich um bis zu 15 % überschreitet. IRSN ist daher an Daten aus anderen Ländern interessiert.

Das PSI verweist in diesem Zusammenhang auf eine Schweizer Studie. Messungen der Gasfreisetzung beim Hüllrohrbruch oder –bersten sind bei IRSN nicht durchgeführt worden. NRC weist in diesem Zusammenhang auf amerikanische Messungen hin.

### **2.5.6 Safety of fuel handling in the fuel cycle facilities and laboratories (Marc Phillippe, IRSN)**

Von IRSN wurden Untersuchungen zum Risiko durch Handhabungsunfälle mit Brennstoff in unterschiedlichen Stadien und Anlagen des Brennstoffkreislaufs durchgeführt. Es zeigt sich, dass das Unfallrisiko in allen untersuchten Typen von Anlagen sehr ähnlich ist, da sich beispielsweise die maximalen Fallhöhen nicht wesentlich unterscheiden. Beispiele analysierter Unfallabläufe und deren möglicher Konsequenzen wurden ebenso präsentiert wie zugehörige vorbeugende oder schadensminimierende Maßnahmen. In diesem Zusammenhang ist IRSN auch an neuen Erkenntnissen zum Materialverhalten aktuell gebräuchlicher und zukünftiger Hüllrohrmaterialien interessiert. Auf die Frage nach der Existenz von entsprechenden Szenarienvorgaben im französischen Regelwerk wird darauf hingewiesen, dass früher getroffene Festlegungen überprüft werden müssen.

### **2.5.7 Mechanical characteristics of fuel rods in transport conditions (Jean Desquines, IRSN)**

Die Präsentation konzentrierte sich auf die Eigenschaften der Hüllrohrmaterialien Zry-4 und M5<sup>TM</sup>, die in Frankreich verbreitet Verwendung finden. Während die Streckgrenze und die Zugfestigkeit bei Zry-4 höher sind, zeigt M5<sup>TM</sup> eine höhere Gleichmaßdehnung. Diese Unterschiede zwischen beiden Materialien nehmen mit zunehmender Bestrahlung des Materials ebenso ab wie das Kriechen durch Innendruck. Zur Bildung einer äußeren Oxidschicht wurden Messungen durchgeführt mit denen auch entsprechende Modellansätze auch für mittlere Zeiträume (bis 150 Tage) und hohe Temperaturen validiert werden konnten. Es wird beim Transport von Temperaturen über 400 °C ausgegangen. Weiterer Untersuchungsbedarf besteht zum Kriechen bei Temperaturen über 400 °C, zur Oxidbildung jenseits von 150 Tagen und zum Bruchverhalten. Die Datensammlung und zugehörige Modellansätze sollen auf andere Hüllrohrwerkstoffe ausgedehnt werden.

In der Diskussion wird hierzu auf einen NUREG Report hingewiesen und auf die Tatsache, dass sich die Materialeigenschaften während eines Kriechens verändern. Auf Rückfrage bestätigt der Vortragende seine Einschätzung, dass die Versprödung durch Hydrideinlagerungen bei den betrachteten Hüllrohrmaterialien wegen der vergleichsweise geringen Temperaturen und Umfangsspannungen während der Lagerungszeit kein wesentliches Problem darstellt.

### **2.5.8 Mechanical integrity testing of fuel claddings (Johannes Bertsch, PSI)**

Beim PSI wurde eine Vielzahl von vor allem experimentellen Untersuchungen zu den Änderungen der Eigenschaften von Hüllrohren und des Brennstoffs durchgeführt, wobei aktuell der Schwerpunkt auf Analysen des Hüllrohrmaterials liegt. Hierzu steht eine kleine heiße Zelle und eine schwächer abgeschirmte Box zur Analyse- Bearbeitung aktiver Proben zur Verfügung. Experimentelle Ergebnisse zur Rissentstehung und – ausbreitung sowie zur Hydridreorientierung wurden präsentiert. Bei letzteren konnte mit parallelen FE-Berechnungen gezeigt werden, dass die Zonen der Umorientierung mit der Verteilung der Zugspannung im Material korreliert ist. Dies wurde auch in Versuchen mit variiertem Umfangsspannung bestätigt. Ein Vorhaben zur Untersuchung der Rissausbreitung bei hydrierten und unbehandelten Proben befindet sich noch in der Anfangsphase.

Eine numerische Analyse der Rissausbreitung in FEM sieht der Vortragende als äußerst schwierig an. Experimente mit hochabgebrannten Brennstababschnitten sind abhängig von der enthaltenen Aktivität in der heißen Zelle vorstellbar. Die im Vortrag genannte Untergrenze der Umfangsspannung von 50 Mpa wird in der Diskussion einerseits als zu niedrig kritisiert, andererseits aber auch als stark definitionsabhängig relativiert, da der Prozess der Umorientierung fließend und nicht abrupt verläuft.

#### **2.5.9 Review of EPRI's research program on the structural behavior of high-burnup spent fuel subjected to transportation accidents – Relevance to GRS' project (Joe Rashid, ANATECH)**

Es wurden verschiedene Effekte angesprochen, die in den meisten vereinfachten Analysen vernachlässigt werden. Zum Beispiel können inhomogene Verteilungen der Hydrierung (Hydridlinsen) zu einer starken lokalen Verformung des Hüllrohrs führen. Weiterhin wurde auf den deutlich entspannenden Effekt des während der Zwischenlagerzeit abnehmenden Hüllrohrinnendrucks hingewiesen, wodurch sich die Bildung von Radialhydriden deutlich gegenüber vereinfachten Abschätzungen reduziert. Der in diesem Zusammenhang relevante laterale Belastungsmodus beim Seitenaufprall eines Behälters wurde durch lokal hochaufgelöste FE-Berechnungen untersucht. Im Ergebnis zeigt sich, dass nur wenige Hüllrohre eines Brennelements dabei extremen Quetschkräften ausgesetzt sind. Es wurden Submodelle zum Materialverhalten experimentell validiert, um mit einem Monte-Carlo-Ansatz probabilistische Analysen zum Brennstabversagen durchzuführen. Als wesentliche in der Zukunft zu lösende Probleme sind die realistische Berücksichtigung des Brennstoffs in den numerischen Analysen, die Frage des Einflusses der äußeren Oxidschicht auf die Rissentstehung und die Bestimmung der Freisetzung von Brennstoff bei Hüllrohrversagen.

In der Diskussion wurde dafür plädiert zunächst weitere numerische Analysen durchzuführen, um einen geeigneten Test zur Brennstofffreisetzung zu konzipieren. Die Bedeutung radialer Hydride für die potenzielle Brennstofffreisetzung von Hochabbrand wird bei der NRC inzwischen auf Grund der erwarteten maximalen Gesamthydridkonzentration als eher untergeordnet angesehen.

#### **2.5.10 US testing program for hydride reorientation effects in spent fuel (Robert Einziger, US NRC)**

Die wesentliche Besorgnis der NRC im Zusammenhang mit dem Transport von hochabgebrannten Brennelementen nach der Zwischenlagerung war in den letzten Jahren die Umorientierung von umfangsorientierten Hydriden in Radialhydride. Aus diesem Grund wurden zwei Experimentalprogramme initiiert: Zug- und Ringdruckversuche mit hydriertem und bestrahltem Hüllrohrmaterial (ANL) und Biege- und Aufpralltests (ORNL). Die Ergebnisse einer großen Testmatrix von hydriertem Material liegen bereits weitgehend vor, während die Versuche mit Hüllrohrmaterial hochabgebrannter Brennstäbe noch ausstehen. Für M5 wird eine Abdeckung durch Zr-4 und ZIRLO erwartet. Bei bestrahltem Material wird von einer höheren Löslichkeit für Wasserstoff ausgegangen als bei unbestrahltem Material, was die Hydridbildung bei Abkühlung abschwächen würde. Da die Umfangsspannung die Bildung von Radialhydriden bestimmt, sollen weitere Untersuchungen zu diesem Thema und Tests zur Materialermüdung (Simulation von Vibrationen beim Transport) durchgeführt werden. Der aktuelle Stand der Untersuchungen lässt noch keine abschließenden Schlussfolgerungen zu, jedoch wird erwartet, dass sich die Anleitung zur Vakuumtrocknung ISG-11 auf Basis der Ergebnisse so ergänzen lässt, dass keine Probleme beim Transport von hochabgebranntem Brennstoff zu besorgen sind.

In der anschließenden Diskussion konnte keine einheitliche Einschätzung zum möglichen Einfluss einer Entfernung der Oxidschicht bei der Probenpräparation gefunden werden. NRC hofft, dass die Unterschiede zwischen unbestrahlten (künstlich hydrierten) und bestrahlten Proben gering sind, um die breitere experimentelle Datenbasis für unbestrahlte Proben nutzen zu können.

#### **2.5.11 Alterations in the mechanic properties of zirconium alloys and fuel due to the operating time in the reactor associated with a burn-up higher than 50 GWd/ t HM (Astrid Jussodie, GNS)**

Die wichtigsten Abhängigkeiten der Hüllrohr-Materialeigenschaften von den Parametern Neutronenbestrahlung, Abbrand und Oxidation sowie der Bildung der Hochabbrandstruktur mit ihrer unterstützenden Wirkung für das Hüllrohr wurden zusammengefasst. Um die potenzielle Freisetzung von Brennstoff aus einem versagenden Hüllrohr zu untersuchen, wurden Brennstababschnitte (Zry-4 und M5) mit einem



Abbrand von 65 und 68 MWd/kg SM einem Biegetest bei einseitiger Einspannung unterzogen. Das Versagen trat bei etwa 30° bis 45° Auslenkung ein und die freigesetzte Masse lag bei 0,7 bzw. 1,4 g. Weitere vier horizontale beidseitig beweglich gelagerte Proben wurden mit einem Pellini-Hammer bei 1 m Fallhöhe beaufschlagt (Abbrand zwischen 19 und 73,4 MWd/kg SM). Wegen der seitlichen Lagerung traten jeweils 3 Bruchstellen mit einer mittleren Freisetzung pro Bruchstelle zwischen 1,2 und 1,8 g auf. Ein Einfluss des Abbrands auf die freigesetzte Menge konnte nicht festgestellt werden. Bei einem freigesetzten Brennstoffvolumen von 1,5 g wurde bei einem scheibenförmigen Volumen eine axiale Ausdehnung des Bruchs von ungefähr 2 mm berechnet. Der verbleibende Brennstoff blieb fest im Hüllrohr verankert.

In der nachfolgenden Diskussion wurde angeregt, neben der geplanten Analyse der Partikelgrößenverteilung auch zu prüfen, welchen Anteil der Randbereich des Brennstoffs an der Freisetzung hat. Nach ersten Einschätzungen ist kein höherer Anteil des Randbereichs freigesetzt worden. Die Ergebnisse der Untersuchung sollen in 2009 veröffentlicht werden. Der mögliche zusätzliche Freisetzungsbetrag bei Überdruck wurde hier erneut diskutiert, ohne eine abschließende Einschätzung zu treffen.

#### **2.5.12 Mechanical testing of irradiated cladding (Slava Grigoriev, Studsvik)**

Bei Studsvik werden alle Arten von Materialtests an Hüllrohren bzw. Hüllrohrabschnitten im Auftrag Dritter durchgeführt. Die Verfahren folgen weitgehend den standardisierten oder allgemein üblichen Testmethoden. Diese wurden in mehreren Ringversuchen mit anderen Institutionen verglichen. Bisher wurden alle Versuche ohne Brennstoff durchgeführt, jedoch sind zukünftig auch Versuche an gefüllten Brennstäben vorgesehen.

#### **2.5.13 Abschlussdiskussion und Fazit**

In der Abschlussdiskussion wurde der Workshop allgemein als gute Gelegenheit zum aktuellen Erfahrungsaustausch im Themenbereich der Sicherheit von hochabgebrannten Brennelementen beim Transport und der Handhabung und zur Herstellung von Kontakten zwischen den internationalen Experten für eine Fortführung des Informationsaustauschs begrüßt. Die Flexibilität der realisierten Versuchsanlage wurde nochmals hervorgehoben und eine Anpassung der Apparatur für ergänzende Versuche zur Quetschbelastung angeregt. In Bezug auf die international vorhandene experimen-

telle Datenbasis wurde betont, dass immer noch zu wenig Daten mit Material nach hohem Abbrand verfügbar sind, um ausreichend abgesicherte Modellannahmen für Finite-Elemente-Modelle abzuleiten und damit belastbare Aussagen zum mechanischen Verhalten von Hochabbrandmaterial bei Unfallbelastungen zu machen.

Mit dem Workshop konnte die Auswertung des internationalen Standes von Wissenschaft und Technik über den aus Veröffentlichungen bekannten Stand hinaus erweitert werden und mit internationalen Experten diskutiert werden. Die Bildung von Radialhydriden wurde dabei unter Berücksichtigung typischer Temperatur- und Druckverläufe der Brennstäbe bei der Beladung und der anschließenden trockenen Zwischenlagerung von TLB sowie auf Grund der begrenzten Anzahl von potenziell bei einem Transportunfall durch Quetschbelastungen betroffenen Brennstäbe etwas weniger kritisch gesehen, als dies aus manchen früheren Veröffentlichungen hervorgeht. Allerdings wurde die Untersuchung von Quetschbelastungen mit der neuen Versuchsanlage als sinnvolle Ergänzung der geplanten Versuchsmatrix gesehen, um mehr über die potenzielle Freisetzungsmenge bei diesem Einwirkungsmodus zu lernen.

Die von der GNS präsentierten Versuche mit heißem Material bieten solche Ergebnisse nur für Biegebelastungen und enthalten keine Messung des Kraft-Verformungsverlaufs, einer wichtigen Grundlage für die Verbesserung und Validierung von FE-Modellrechnungen. Ebenso wäre in zukünftigen Experimenten eine Druckbeaufschlagung von Proben sinnvoll, um zu klären, ob dies einen Einfluss auf den Versagensverlauf und auf die Freisetzungsmenge von Brennstoff hat.

Insgesamt wurden während des Workshops verschiedene Anregungen zur zukünftigen Anwendung der Apparatur gegeben, die im Rahmen des laufenden Vorhabens aus Aufwands- und Zeitgründen nicht mehr umgesetzt werden konnten. Das in den Kapiteln 3 und 4 näher beschriebene Versuchsprogramm kann die Einsatzfähigkeit der Apparatur unter Beweis stellen und grobe Aussagen zum Versagensablauf, zu den Einflussfaktoren und zur Freisetzungsmenge von Brennstoff bei Biegebelastungen von Brennstäben liefern. Grundsätzlich besteht jedoch nach Ansicht aller Experten auch bei verschiedenen Verbesserungen des Versuchsaufbaus mit Surrogatmaterial immer das Problem der eingeschränkten Übertragbarkeit der Versuchsergebnisse auf reale Brennstäbe mit hohem Abbrand. Zum Thema Übertragbarkeit sind in den USA weitere Experimente vorgesehen, mit denen versucht werden soll, diese Wissenslücke zumindest zu verkleinern. Eine internationale Initiative zur Durchführung entsprechender

Versuche mit der neu entwickelten Apparatur hat sich bei dem Workshop nicht ergeben.

## **2.6 Zusammenfassung und Bewertung**

Anknüpfend an eine vorangegangene Untersuchung /LAN 05/ wurde in diesem Vorhaben ebenfalls die Untersuchung zum Stand von W&T geführt, um den Kenntnisstand zur Belastung und zum Struktur- und Bruchverhalten von frischen und abgebrannten Brennelementen bzw. Brennstäben bei potentiellen Transportunfällen wiederzugeben. Es wurden die Ergebnisse zum Stand von W&T aus dem Zwischenbericht des Vorhabens zusammenfassend wiedergegeben /SCH 08/ und zusätzlich Ergebnisse einer vertiefenden Literaturanalyse zum Einfluss von Hydriden auf die Duktilität von Hüllrohren sowie Ergebnisse eines Workshops mit Beteiligung von internationalen Experten dargestellt.

Legierungen auf der Basis von Zirkonium (Zr) haben sich als Hüllrohrwerkstoff für Leichtwasserreaktoren (LWR) durchgesetzt, weil sich ausgehend von dessen sehr niedrigem Wirkungsquerschnitt für die Reaktion mit thermischen Neutronen durch weiterentwickelte Legierung mit Spuren von Zinn, Eisen, Chrom, Nickel oder Niob und dem mechanisch-thermischen Produktionsverfahren die steigenden Anforderungen hinsichtlich Korrosionsbeständigkeit und Integrität erfüllen ließen /SCH 08/.

Die mechanischen Eigenschaften des Hüllrohrwerkstoffs Zircaloy werden im Reaktorbetrieb durch die Bestrahlung mit schnellen Neutronen ( $E > 1 \text{ MeV}$ ), Korrosion (d. h. Wandstärkenverringern) und Wasserstoffaufnahme bzw. Hydridausscheidung beeinflusst. Die elastischen Eigenschaften wie der E-Modul und die Querkontraktionszahl der Hüllrohre ändern sich durch den Reaktoreinsatz kaum. Auf die Festigkeits- und Verformungseigenschaften, Dehngrenze  $R_{p0,2}$  (yield stress, YS), Zugfestigkeit  $R_m$  (ultimate tensile strength, UTS) und Bruchdehnung  $A$  (ultimate elongation, UE) wirkt die Bestrahlung verhärtend: Streckgrenze und Zugfestigkeit nehmen zu und Bruchdehnung d. h. Duktilität nimmt ab. Bei einer Temperaturerhöhung wiederum nehmen die Dehngrenze und die Zugfestigkeit ab und die Bruchdehnung zu.

Die mechanischen Eigenschaften von Zircaloy-Hüllrohren können durch die Anwesenheit von Hydriden nachteilig beeinflusst werden, insbesondere wenn sie in den Hüllrohren Ausscheidungen bilden, die in radialer Richtung orientiert sind, d. h. sogenannte

radiale Hydride bilden. Aufgrund der verwendeten Kaltverarbeitungsverfahren bei der Hüllrohrherstellung werden die Zirconiumhydride bevorzugt in einer umfangsorientierten Form abgeschieden, wobei bis zu einer Konzentration von bis zu 500 ppm Gewichtsanteil Wasserstoff für die mechanischen Festigkeitseigenschaften bei einer Umfangsspannung durch den betrieblichen Innendruck keine nennenswerten Nachteile entstehen. Durch die Wärmebehandlung am Ende der Rohrfertigung und ungünstige betriebliche Umstände bedingt, kann die Hydridablagerung aber auch in der radial orientierten Form erfolgen, die die Zugfestigkeit in Umfangsrichtung erheblich reduziert /NOR 83/.

Die Untersuchung zum Stand von W&T, die im Zwischenbericht des Vorhabens /SCH 08/ detailliert dokumentiert worden sind, befasste sich mit dem Einfluss von Abbrand, Wasserstoffgehalt, Temperatur und Dehnraten auf mechanische Kennwerte von Hüllrohrwerkstoffen ohne besondere Berücksichtigung der orientierten Ausscheidung von Hydriden unter speziellen Randbedingungen. Herausgehoben seien hier die Untersuchungen der Hüllrohrversprödung durch Wasserstoff von Arsène et al. /ARS 03/ an unbestrahltem rekristallisiertem und spannungsarm geglühtem Zircaloy bei Raumtemperatur (20 °C), in denen deutlich wurde, dass ein geringer Einfluss des Wasserstoffgehalts auf die Festigkeit (Streckgrenze und Zugfestigkeit) besteht, während die Bruchdehnung von rekristallisiertem Hüllrohr (RXA) bei etwa 1000 ppm Wasserstoffgehalt erheblich reduziert wird (s. Abb. 2.11). Dieser Effekt wurde in diesem Vorhaben verwendet, um bei unbestrahlten Hüllrohrproben aus Zircaloy-2 durch homogenisierte Hydrierung mit 1000 ppm im Autoklaven eine Minderung der plastischen Verformbarkeit zu erreichen, die einer Bestrahlung im Reaktor bei mittlerem bis hohem Abbrand entspricht (s. Abb. 2.4).

Nach der vertiefenden Literaturanalyse zum Einfluss von Hydriden auf die Duktilität von Hüllrohren bestehen insgesamt gesehen große Unsicherheiten bei der Bewertung der Hydrid-Reorientierung:

- In welchem Ausmaß muss eine Radialorientierung erfolgen, um eine signifikante mechanische Auswirkung zu zeigen?
- Welche Kriterien wie Umfangsspannung, Hüllrohrtemperatur, Wasserstoffkonzentration, führen zu einer kritischen Hydrid-Reorientierung?

- Die bislang verfügbaren Untersuchungen betreffen in der Hauptsache Hüllrohre aus Zircaloy-2 und Zircaloy-4, nur wenige Ergebnisse liegen für die neuen Werkstoffe wie Zirlo und M5 vor.
- Es liegen keine Daten für tatsächliche Verläufe von Temperatur und Tangentialspannung im Hüllrohr vor, alle Experimente wenden eine konstante Hüllrohrspannung an.

An dieser Stelle sei auf die in Deutschland bei der Genehmigung der trockenen Zwischenlager berücksichtigten Werte für Verläufe von Temperatur und Tangentialspannung im Hüllrohr hingewiesen. Um ein systematisches Versagen von Hüllrohren durch Kriechen und Spannungsrisskorrosion während der 40-jährigen Lagerzeit auszuschließen, wird bei der Genehmigung der Zwischenlager in Deutschland der Nachweis gefordert, dass die aus dem Innendruck der Brennstäbe resultierende Tangentialdehnung der Brennstabhüllrohre während der Lagerung auf 1 % begrenzt ist und damit unterhalb der Versagensgrenze für Zircaloy-Materialien liegt. Dieses Kriterium wird durch eine Begrenzung der tangentialen Hüllrohrspannung auf den in konservativer Weise konstant angesetzten Wert von 120 MPa erreicht /RSK 01/. Nach numerischer Analyse bleibt die berechnete maximale Hüllrohrtemperatur unter 380 °C im Verlauf der Behältertrocknung bei einer Beladung mit hoher Wärmeleistung. Wegen der konservativen Berechnung wird tatsächlich eine deutlich niedrigere Temperatur der heißesten Hüllrohre von etwa 350 °C erwartet. Zudem ist anzumerken, dass die heißesten Hüllrohrtemperaturen nur von Brennstäben im Zentralbereich des Behälterschachts erreicht werden können, da durch die Wärmeabfuhr nach außen die Temperaturen der Brennstabhüllrohre radial nach außen sowie vertikal zum oberen und unteren Bereich des Behälters auf Werte unter 300 °C abnehmen.

Mit dem Workshop konnte die Auswertung des internationalen Standes von Wissenschaft und Technik über den aus Veröffentlichungen bekannten Stand hinaus erweitert werden und mit internationalen Experten diskutiert werden. Die Bildung von Radialhydriden wurde dabei unter Berücksichtigung typischer Temperatur- und Druckverläufe der Brennstäbe bei der Beladung und der anschließenden trockenen Zwischenlagerung von TLB sowie auf Grund der begrenzten Anzahl von potenziell bei einem Transportunfall durch Quetschbelastungen betroffenen Brennstäbe etwas weniger kritisch gesehen, als dies aus manchen früheren Veröffentlichungen hervorgeht. Allerdings wurde die Untersuchung von Quetschbelastungen mit der neuen Versuchsanlage als sinn-

volle Ergänzung der geplanten Versuchsmatrix gesehen, um mehr über die potenzielle Freisetzungsmenge bei diesem Einwirkungsmodus zu lernen.

### **3            Versuchsplanung**

#### **3.1           Diskussion der Einflussgrößen**

In diesem Abschnitt wird das Versuchskonzept der „kalten“ Versuche diskutiert. Es dient dabei sowohl zur Festlegung der Versuchsdetails und der zugehörigen Analysen als auch zu deren nachvollziehbaren Begründung.

Parallel zur Versuchsplanung wurde eine zum Bericht /LAN 07/ ergänzende Auswertung des Standes von W&T zu ausgewählten Aspekten vorgenommen, die bereits zum Teil im Zwischenbericht des Vorhabens SR 2558 (Stand Dezember 2007) /SCH 08/ dokumentiert sind:

- DWR- und SWR-Brennelemente in Deutschland (Aufbau, Werkstoffe, Abbrand, etc.)
- Werkstoffkennwerte von Brennstäben
- Unfallbelastungen
- Einflussfaktoren auf Werkstoffeigenschaften (Hydrierung, Temperatur, Innendruck, etc.)

Die bei dieser Auswertung in Hinblick auf die Beeinflussung der mechanischen Eigenschaften des Brennstabs und der Brennstofffreisetzung potentiell relevanten Parameter sind in der folgenden Tabelle Tab. 3.1 zusammengefasst. Im Anschluss werden die Parameter in Hinblick auf ihre Relevanz für das Versuchsprogramm diskutiert.

Diese Diskussion gibt den aktuellen Stand der Auswertung wieder und erweitert damit die im Zwischenbericht dargestellte Basis zur Ableitung eines geeigneten Versuchsaufbaus und einer zugehörigen Versuchsmatrix. Die daraus unter Berücksichtigung weiterer technischer und finanzieller Randbedingungen entwickelte Versuchsmatrix wird im anschließenden Kapitel beschrieben.

**Tab. 3.1**

Potentiell relevante Parameter für das Verhalten von Brennstäben bei transportunfalltypischen Belastungen

Nr.	Parameter	Einfluss auf	typischer Wertebereich für TLB-Transportunfall (Mantelaufprall)
1	Einwirkende Beschleunigung / Kraft	Verformung von TLB-Einbauten (BS, BE, BE-Abstandshalter, BE-Korb) (Amplitude und Verlauf)	Behälterverzögerung: ca. 1100 m/s <sup>2</sup> , Stossdauer: ca. 20 ms; (Messung BAM) Trägheitskraft eines BS-Abschnittes zwischen mittleren Abstandshaltern: ca. 0,5 kN (Abschätzung)
2	Wasserstoffeinlagerung [H <sub>radial</sub> ] und [H <sub>total</sub> ]	Festigkeit/Duktilität	ca. 500 – 1000 ppm Beginn Trockenlagerung
3	Radialhydridbildung [H <sub>radial</sub> ]	Festigkeit/Duktilität	ca. 10 – 150 ppm Ende Trockenlagerung
4	Brennstabinnendruck	Umfangsspannung, Kriechen	ca. 200 bar, Beginn Trockenlagerung ca. 100 bar, Ende Trockenlagerung
5	Brennstoff-Hüllrohr-Spalt	Kraftübertragung Brennstoff/Hüllrohr	Spalt durch Brennstoff-Hüllrohr-Wechselwirkung geschlossen, ersetzt durch Brüche im Brennstoff, modifiziert durch Hüllrohrkriechen → nicht quantifizierbar
6	Hüllrohrtemperatur	Festigkeit/Duktilität	< 400 °C, Beginn Trockenlagerung < 180 °C, Ende Trockenlagerung
7	Hüllrohrmaterial	Festigkeit/Duktilität, Oxidation, Hydrierung	Zircaloy-2 o/m Liner, Zircaloy-4 o/m Korrosionsschutz, M5, ZIRLO
8	Art / Abbrand des Brennstoffs	Mechanische Eigenschaften, Freisetzung	UO <sub>2</sub> / MOX, 30 – 80 MWd/kgSM

Zu den potenziell relevanten Parametern für das Verhalten von Brennstäben bei transportunfalltypischen Belastungen nach Tab. 3.1 nummeriert nach Spalte 1 lässt sich zusammenfassend folgende Bewertung angeben:

#### 1. Einwirkende Beschleunigung/Kraft

Messungen der BAM /MÜL 06/ für einen verkanteten Seitenaufprall (slap down) zeigen während eines Zeitintervalls  $< 20$  ms maximale Verzögerungswerte des Behälters (deckelseitig, Zweitaufprall) bis  $1100 \text{ m/s}^2$  und Geschwindigkeiten bis  $17 \text{ m/s}$  zu Beginn der Verzögerung. Diese negativen Beschleunigungen bewirken bei einzelnen Komponenten elastische und plastische Verformungen, wobei auch Wechselwirkungen der Komponenten untereinander vorkommen. Die für die Durchbiegung der BS-Abschnitte zwischen den Abstandhaltern maßgebende Trägheitskraft beträgt dabei schätzungsweise ca.  $0,5 \text{ kN}$ .

#### 2. Wasserstoffeinlagerung

Ungefähr  $10 - 20 \%$  des Wasserstoffs, der bei der Oxidation an der Hüllrohraußenwand entsteht, diffundiert in das Hüllrohr und wird bei Konzentrationen oberhalb der temperaturabhängigen Löslichkeitsgrenze überwiegend umfangsorientiert als Zirconiumhydrid ausgeschieden. Um die Hüllrohrwandstärke nicht zu sehr zu schwächen, wird eine Begrenzung der Oxidschichtbildung auf maximal  $100 \mu\text{m}$  angestrebt, so dass die erreichte Wasserstoffkonzentration im Hüllrohr in der Regel  $700 \text{ wppm}$  nicht überschreitet.

In typischen Spannungs-Dehnungskurven bei kleiner Dehnrates von  $10^{-4} \text{ s}^{-1}$  für uniaxiale und Ringzugversuche bei Raumtemperatur an frischen spannungsfrei geglühten Probekörpern aus Zircaloy-4 SRA (SRA stress relief annealed), mit wachsendem Wasserstoffgehalt zwischen  $0$  und  $600 \text{ wppm}$ , zeigten mit Ausnahme der Probekörper, die Radialhydride enthielten, die Ringzugproben etwas höhere Zugfestigkeit ( $\sim 20 \%$ ) aber geringere Duktilität ( $\sim 30 \%$ ) als die Axialzugproben /CHU 07/. Bei von  $0$  auf  $600 \text{ wppm}$  steigender rein umfangsorientierter Hydridausscheidung sank die Bruchdehnung im Axialzugversuch von  $18 \%$  auf  $9 \%$  und im Ringzugversuch von  $6 \%$  auf  $4 \%$  /CHU 07/. Ringzugproben mit Radialhydriden hatten gegenüber den Proben ohne Wasserstoffbelastung oder mit rein umfangsorientierter Hydridausscheidung erheblich reduzierte Festigkeit und nahezu verschwindende Duktilität /CHU 07/. Die Ergebnisse von Spannungs-Dehnungsdiagrammen in einachsigen Zugversuchen an unbestrahlten und hoch abgebrannten ( $67 \text{ MWd/kgU}$ ,  $500-650 \text{ wppm [H]}$ ) Zry-4 Hüllrohrprobekörpern bei



Raumtemperatur und 400 °C mit unterschiedlichen Dehnraten 0,1 % s<sup>-1</sup> und 1 s<sup>-1</sup> ließen als strahlungsbedingte und dehnratenabhängige Effekte eine wachsende Verfestigung und abnehmende plastische Verformbarkeit (Duktilität) erkennen /DAU 07/. Nach vergleichenden Untersuchungen der Bruchverformung von rekristallisiertem und spannungsarm geglühtem Zircaloy bei 20 °C zeigte sich bei rekristallisiertem Material die Abnahme der Duktilität bereits bei wesentlich geringeren Wasserstoffkonzentrationen als bei spannungsarm geglühtem Zircaloy /ARS 03/.

Die Entwicklung der Hüllrohrlegierungen wurde nicht zuletzt mit dem Ziel betrieben, ein besseres Korrosionsverhalten zu erreichen, was im Fall des neuentwickelten M5 zu einer niedrigen Oxidschichtdicke von 30 µm bei ~ 60 WMd/kgU geführt hat /FOU 07/. Da bei Hüllrohren aber auch höhere Oxidschichtdicken als 100 µm erreicht wurden, wird eine Bandbreite der Wasserstoffkonzentration von 500 – 1000 wppm angesetzt /EIN 07/.

### 3. Radialhydridbildung

Die Bildung von Radialhydriden durch Umorientierung von umfangsorientiert ausgeschiedenen Zirconiumhydriden kann während der Abkühlung im Trockenlager einsetzen, wenn nach einem hinreichenden Temperaturanstieg die Umfangsspannung im Hüllrohr einen kritischen Wert von 70-90 MPa überschreitet. Die Reorientierung hängt von der Hüllrohroxidation, d. h. der Ausgangskonzentration des Wasserstoffs ab, während die Umfangsspannung vom Stabinnendruck abhängt, der wiederum von der abbrandabhängigen Spaltgasfreisetzung (zu 90 % Xe) aus dem Brennstoff bestimmt ist. Die Radialhydride begünstigen Hüllrohrversagen in Längsrichtung durch erhöhte Umfangsspannung, die aus dem Brennstabinnendruck oder aus entsprechenden mechanischen Belastungen beim Transportunfall stammen können. Eine in Stablängsachse wirkende Last erzeugt eine axiale Zugspannung, für die radiale oder umfangsorientierte Hydridausscheidungen gleichermaßen relativ unempfindlich sind /CHU 07/. Die Hydridreorientierung ist außerdem vom Hüllrohrmaterial abhängig. Wegen der komplexen Zusammenhänge besteht große Unsicherheit hinsichtlich des zum Ende der Trockenlagerzeit erwarteten Radialhydridkonzentration von 10 wppm bis 150 wppm /JAM 05/.

### 4. Brennstabinnendruck

Der Brennstabinnendruck steigt ausgehend von der Anfangsbefüllung mit Helium während des Reaktoreinsatzes mit zunehmendem Abbrand durch aus der Brennstoffmatrix

freigesetzte Spaltgase. Im Bereich hoher Stababbrände oberhalb 50 MWd/kgSM wächst die Spaltgasfreisetzung von etwa 7 % auf bis zu 28 % bei 100 MWd/kgSM an, wobei zwischen Brennstoff aus Uranoxid  $UO_2$  oder U-Pu-Mischoxid MOX unterschiedliche Freisetzungen beobachtet wurden. Bedingt durch Hüllrohrkriechen beim Reaktoreinsatz und während der späteren Lagerung und Brennstoffschwellen mit zunehmendem Abbrand ändert sich andererseits das freie Volumen im Brennstab. Im Einklang mit den Randbedingungen für Hydridreorientierung (400 °C Lösungstemperatur und 150 MPa Spannung) wird ein Druck von 200 bar bei Beginn und 100 bar am Ende der Trockenlagerung angenommen.

Der Stabinnendruck ist in zweierlei Hinsicht für das Bruch- und Freisetzungsverhalten bedeutsam: 1.) Er bewirkt eine statische biaxiale Vorspannung für die durch die mechanische Belastung des Unfalls entstehenden zusätzlichen Spannungskomponenten. 2.) Er ist die treibende Kraft für hydraulische Gasabströmung beim Bruch von Brennstoff und Hüllrohr, was insbesondere bei Bruchstellen nahe dem Brennstabplenum von Bedeutung sein dürfte.

#### 5. Brennstoff-Hüllrohr-Spalt

Der typische Spalt zwischen Brennstoff und Hüllrohr bei der Brennstabherstellung (ca. 170  $\mu\text{m}$  Einfüllspiel) wird zwischen 20 und 40 MWd/kgSM zu Beginn des Reaktoreinsatzes durch Niederkriechen des Hüllrohres und Brennstoffschwellen geschlossen /GOL 07/. Bei Abbränden oberhalb von 60 MWd/kgSM bildet sich am Rand der Brennstofftablette die Hochabbrandstruktur (HBS) oder Rimzone (ca. 1 mm breit), die durch eine rekristallisierte Struktur mit 0,15 bis 0,5  $\mu\text{m}$  Korngröße und die Porosität erhöhende Bildung von Spaltgasbläschen mit bis zu 10  $\mu\text{m}$  Größe charakterisiert ist /GOL 07/. Der Kontakt von Brennstoff und Hüllrohr lässt eine Zone mit stärkerer Haftung (bonding) entstehen, wodurch eine mechanische Pellet-Hüllrohr-Wechselwirkung (PCMI pellet cladding mechanical interaction) verstärkt wird. Bei zunehmendem Abbrand bilden sich im Inneren der Brennstofftabletten Risse, die bei einem Aufbrechen der Hüllrohrwandung die Wegsamkeiten für die Gasabströmung bei der folgenden Druckentlastung bilden können. Eine quantitative Angabe zu den Spaltweiten kann nicht gemacht werden. Diese Form der Gasströmung kann ein wichtiger Aspekt im Transportvorgang bei der bruchbedingten Freisetzung von Brennstoffpartikeln sein.

## 6. Hüllrohrtemperatur

Die Temperatur der heißesten Hüllrohre steigt nach dem Beladen der TLB im BE-Lagerbecken im Zuge der Vakuumtrocknung wegen der verschlechterten Wärmeabfuhr auf Werte bis maximal 400 °C (wahrscheinlich < 380 °C bei Trocknungsverfahren in Deutschland) an. Die Temperatur der heißesten Hüllrohre sinkt während der Trockenlagerung im Zeitbereich von 40 Jahren nach der Einlagerung auf Werte von ca. 180 °C ab. Bei dieser Temperaturreduktion nehmen Festigkeitswerte (Dehngrenze  $R_{p0,2}$  und Zugfestigkeit  $R_m$ ) zu und die plastische Verformbarkeit / Duktilität (Gleichmaßdehnung  $A_g$ , Bruchdehnung  $A$ ) ab /SCH 08/.

Die Hüllrohrtemperatur hat wegen der direkten Auswirkung auf den Druck und in Verbindung mit der Temperaturabhängigkeit der Stoffwerte und der möglichen Hydridreorientierung ihre Bedeutung. Die Bandbreite der im Innenraum des TLB erwarteten Hüllrohrtemperaturen ist groß und reicht beispielsweise gegen Ende der Trockenlagerzeit im Bereich von ca. 180 °C bis 40 °C. Für die Versuche bei Raumtemperatur wird erwartet, dass dabei das Hüllrohrmaterial eine erhöhte Festigkeit und reduzierte Duktilität aufweist.

## 7. Hüllrohrmaterial

Bei der Vielzahl der Hüllrohrmaterialien sind Zircaloy-2 ohne / mit Liner, Zircaloy-4 ohne / mit Korrosionsschutz z. B. Duplex und neue Legierungen, die bei weiter verbesserten Korrosionseigenschaften für hohen Abbrand entwickelt wurden, wie M5 und ZIRLO, zu unterscheiden. Es ist bekannt, dass bei den spannungsfrei geglühten (SRA) Rohrmaterialien wie Zircaloy-4, ZIRLO eine nennenswerte Verringerung der longitudinalen Bruchdehnung durch eine homogene Hydrierung ohne Umfangsspannung deutlich höhere Wasserstoffkonzentrationen erfordert als bei rekristallisierten Rohrmaterialien wie Zircaloy-2 und M5 /ARS 03/. Während von den neueren Legierungen M5 eine besonders hohe Korrosionsbeständigkeit aufweist, wurden bei anderen Materialien wie ZIRLO Oxidschichtdicken von 80 µm vorgefunden /EIN 07/.

## 8. Art und Abbrand des Brennstoffs

Hinsichtlich Art und Abbrand des Brennstoffs werden Urandioxid  $UO_2$  und (U, Pu) $O_2$  Mischoxid MOX im Bereich bis 80 MWd/kgSM betrachtet. Wie im Abschnitt zu Punkt 5 - Brennstoff-Hüllrohr-Spalt - dargestellt wurde, sind viele Merkmale hinsichtlich der Veränderung des Brennstoffs während des Abbrands bekannt. Durch die Effekte

Brennstoff-Hüllrohr-Bonding und Rissbildung in der gesamten Brennstofftablette können keine klassischen mechanischen Kennwerte für den Brennstoff angegeben werden. Hinsichtlich der Auswirkung der Brennstoffart und des Abbrands auf die Freisetzung existieren ebenfalls Spekulationen hinsichtlich der Auswirkungen durch Veränderung in der Mikrostruktur (Korngrößen im Zentralbereich größer, in der Hochabbrandstruktur kleiner als bei frischem Brennstoff) in Verbindung mit der Gasabströmung der freien Spaltgase beim Hüllrohrbrechen /EIN 07/.

Auf Basis der Auswertung des Standes von W&T wurde im Zwischenbericht /SCH 08/ ein Verzweigungsdiagramm zu den folgenden Parametern

- mechanische Einwirkgeschwindigkeit (quasistatisch, dynamisch)
- Brennstoffsurrogat (Graphit hart / weich, Simulox-Tabletten aus (W, Zr)O<sub>2</sub>)
- Einfüllspiel (90 µm, 170 µm)
- Innendruck (1 bar, 20 bar)

entwickelt, aus dem eine Auswahl von im Rahmen des Vorhabens handhabbaren zehn Parameterkombinationen zur Definition der Versuchsmatrix getroffen wurde. Dabei wurde hingenommen, dass im Rahmen der begrenzten Versuchsanzahl keine Wiederholungsexperimente stattfinden konnten.

Die vorgenannten Parameter wurden ausgewählt, weil man auch für nicht bestrahlte Materialien erwartete, dass sich Effekte in den „kalten“ Versuchen zeigen würden, die in besonderem Maße bei hoch abgebrannten Materialien wirksam werden können:

- Mechanische Einwirkgeschwindigkeit (quasistatisch, dynamisch)

Die mechanische Einwirkgeschwindigkeit sollte mit geringer Dehnrates (quasistatisch) und hoher Dehnrates (dynamisch) ausgeführt werden, um zu zeigen, dass mit erhöhter Dehnrates eine erhöhte Verfestigung und verringerte Duktilität auftritt. Dabei stehen für die numerischen Analysen zur quasistatischen Versuchsführung die bekannten mechanischen Kennwerte zur Verfügung.

- Brennstoffsurrogat (Graphit hart / weich, Simulox-Tabletten aus (W, Zr)O<sub>2</sub>)

Die Auswahl von Ersatzmaterialien für abgebrannten Kernbrennstoff aus Urandioxid-Keramik lässt sich nicht befriedigend lösen, weil die abbrandbedingten Werkstoffver-

änderungen (Bruch der Keramik und Bindung von Hüllrohr und Brennstabtabletten) nicht vollständig widerspiegelt werden können. Aus diesem Grund wurden einerseits Simulox-Tabletten aus  $(W, Zr)O_2$  ausgewählt, die bezüglich Dichte und Materialkennwerten weitgehend einem neuen Brennstoff entsprechen sollten. Die Graphitwerkstoffe wurden ausgewählt, weil sie verschiedene aber deutlich kleinere Elastizitätsmodule besitzen und somit einem effektiv verkleinerten E-Modul abgebrannter Brennstofftabletten näher kommen. Nachteilig ist insbesondere bei dynamischem Lasteintrag die geringe Materialdichte. Allerdings wurde unterstellt, dass die beiden Graphitwerkstoffe sich einfach bearbeiten lassen, so dass ein unterschiedliches Einfüllspiel erreicht werden kann.

- Einfüllspiel (90  $\mu\text{m}$ , 170  $\mu\text{m}$ )

Durch Hüllrohrkriechen, das schon zu Beginn des Reaktoreinsatzes ( $< 20 \text{ MWd/kgSM}$ ) stattgefunden hat, und die mit hohem Abbrand ( $> 60 \text{ MWd/kgSM}$ ) einhergehenden Werkstoffveränderungen (Brüche und Bonding) führen dazu, dass das Einfüllspiel verschwindet aber gleichzeitig neue Wegsamkeiten über die entstandenen Bruchspalten gebildet werden. Mit dem Parameter Einfüllspiel sollten die Werte von frischen unbestrahlten Brennstäben (170  $\mu\text{m}$ ) und eine etwa halb so große Spaltweite (90  $\mu\text{m}$ ) zwischen Hüllrohr und Inventartablette als technisch problemlos herstellbare Varianten realisiert werden, so dass für die Versuche wie auch die numerischen Simulationen definierte Zustände vorliegen, die Effekte in den Messwerten / Rechenergebnissen zeigen können.

- Innendruck (1 bar, 20 bar)

Die in der anfänglichen Planung noch diskutierte Versuchsoption mit leicht erhöhtem Innendruck von 20 bar ist nicht repräsentativ für hoch abgebrannte Brennstäbe. Der Aufwand für eine realistische Druckbeaufschlagung ist hoch und konnte unter den Gesichtspunkten Kosten und Begrenzung der Versuchsmatrix nicht realisiert werden. Die im Zwischenbericht /SCH 08/ noch genannte Option wurde in der endgültigen Versuchsmatrix nicht berücksichtigt.

Die so erstellte Versuchsmatrix wurde in der Folge weiter zwischen den Projektpartnern diskutiert und modifiziert. Das abschließende Feinkonzept des Versuchsaufbaus und der Versuchsmatrix wird im folgenden Kapitel behandelt und im Detail begründet.

### 3.2 Matrix der Versuche mit Surrogatmaterial

Die Entwicklung beim Einsatz der Brennelemente in deutschen Reaktoren geht in Richtung höherer Abbrände bei Verwendung optimierter Hüllrohrmaterialien. Es ist daher zielführend durch vergleichende Experimente von kommerziell eingeführten (Zry-2, Zry-4) und neuen (M5) Hüllrohrwerkstoffen bei verschiedenen Abbränden deren Versagensgrenzen in Bezug auf Unfallbeanspruchungen zu ermitteln („heiße“ Versuche). In den hier beschriebenen „kalten“ Versuchen mit nicht radioaktiven Materialien steht die Entwicklung und Erprobung einer geeigneten Versuchsanlage mit vergleichbaren Versuchsrandbedingungen im Vordergrund.

**Tab. 3.2** Parameterwahl im Rahmen der „kalten“ Versuche mit nicht radioaktiven Materialien

Nr.	Parameter	Parameter-variation	Wertebereich
1	Einwirkende Kraft	ja	statisch / dynamisch < 5 kN
2	Hydrideinlagerung [ $H_{\text{radial}}$ ] und [ $H_{\text{total}}$ ] (zur Duktilitätsminderung)	ja	1000 ppm und 0 ppm
3	Radialer Hydridanteil [ $H_{\text{radial}}$ ]	nein	nicht bestimmt
4	Brennstabinnendruck	nein	Umgebungsdruck
5	Brennstoff-Hüllrohr-Spalt	nein	ca. 170 $\mu\text{m}$ Einfüllspiel
6	Hüllrohrtemperatur	nein	Raumtemperatur
7	Hüllrohrmaterial	nein	Zry-2
8	Surrogatmaterial (für Art / Abbrand des Brennstoffs)	nein	Sinterkeramik $\text{Y}_2\text{O}_3$ , ( $\text{ZrO}_2$ , $\text{Al}_2\text{O}_3$ , Ceramofix )

In Tab. 3.2 wird die zum Teil bereits in den vorherigen Abschnitten genannte Parameterwahl für die Versuchsreihe der „kalten“ Versuche zusammengefasst. Nachfolgend wird die jeweilige Parameterwahl kurz begründet und abschließend die aus der vorgesehenen Parametervariation resultierende Versuchsmatrix in Tab. 3.3 dargestellt.

Bei der Formulierung der Versuchsmatrix wurden folgende Gesichtspunkte berücksichtigt:

1. Statisch / dynamisch einwirkende Kraft: Die Höhe der statischen Krafteinwirkung, die erforderlich ist, um ein Hüllrohrversagen zu erreichen, liegt gemäß /DAL 04/ bei etwa 1,5 kN. Bei gleicher Lagerung wie in den FIP-Versuchen und unter der Voraussetzung eines ähnlichen Werkstoffzustandes wäre für einen Stab von 250 mm Länge eine statische Bruchkraft von maximal ca. 3 kN zu er-

warten. Durch die Beaufschlagung mit der Geschwindigkeit des Stößels bis zu 10 m/s lassen sich nach Abschätzung der BAM auch die dynamischen Effekte eines Behälteraufpralls mit einer Stoßdauer von ca. 20-25 ms abbilden.

2. Die Hydrierung zur Duktilitätsminderung ließ sich nach Vorversuchen von AREVA mit vertretbarem Aufwand nur bei einer Hydrierung von Zry-2-Hüllrohrmaterial bis zu etwa 1000 ppm im Finanzrahmen des Vorhabens realisieren.

Das zusätzlich verwendete unhydrierte pilgerharte Zry-2 entspricht nicht exakt den Materialeigenschaften von frischen Hüllrohren, repräsentiert diese jedoch näherungsweise bei höherer Festigkeit und niedrigerer Duktilität gegenüber der Standardqualität.

Weiterhin wurde das Hüllrohrmaterial Zry-2 in Standardqualität als Referenzwerkstoff ausgewählt.

3. Die experimentellen Untersuchungen sind auf Versagemuster mit potentiell maximalem Spaltstoffaustritt ausgerichtet (Versagen unter Biegebeanspruchung bis zur vollständigen Querschnitttrennung), bei der geringere Umfangsspannungen als longitudinale Spannungen auftreten (Ergebnis von FEM-Analysen der BAM). Das Fehlen radial orientierter Hydride beeinflusst das mechanische Brennstabverhalten bei Biegebelastungen daher nur unwesentlich. Die möglichen Radial-Hydrid-Ausscheidungen liegen in radial-axialen Ebenen, parallel zu den Biegespannungen, und haben somit einen vernachlässigbaren Effekt auf die Versagensgrenze. Eine spezielle künstliche Hydrierung mit radialer Orientierung für Versuche zu Quetschbelastungen ließ sich nicht realisieren und würde auch nur in Kombination mit der erforderlichen Temperaturbehandlung und einer realistischen Druckbeaufschlagung zum Erreichen entsprechender anfänglicher Umfangsspannungen Sinn machen. Versuche zur Quetschbelastung wären grundsätzlich mit wenigen Änderungen an der Versuchsanordnung durchführbar.
4. Eine zusätzliche Druckbeaufschlagung der Probekörper durch ein Gas hätte eine Reduktion der Parametervariation an anderer Stelle erfordert, um eine systematische Parametervariation innerhalb der maximalen Anzahl von Versuchen zu ermöglichen. Aus Kosten-Nutzen-Gesichtspunkten wurde daher auf eine Gasbefüllung einzelner Proben mit Überdruck verzichtet.

5. Der Brennstoff-Hüllrohr-Spalt wurde in den „kalten“ Versuchen, wie bei frischen Brennstäben gebräuchlich, auf ein diametrales Einfüllspiel von etwa 170 µm eingestellt. Dieses Vorgehen gewährleistet, dass die Befüllung der Hüllrohre mit Brennstoffsurogat-Tabletten technisch einfach durchgeführt werden kann, was bei geringerem Einfüllspiel zweifelhaft ist. Eine effektivere Annäherung an die für hohen Abbrand erwarteten Kontaktbedingungen zwischen Brennstoff und Hüllrohr ließ sich in den „kalten“ Versuchen nicht realisieren.
6. Eine praktikable Lösung zum Erreichen und Halten einer Probertemperatur im Bereich von 200 – 400 °C konnte nicht gefunden werden. Da sich die Temperatur (neben der Druckbeeinflussung) im Wesentlichen auf die Festigkeit und Duktilität des Hüllrohrs auswirkt, letztere wird bereits durch die Hydrierung variiert, wurde der Verzicht auf eine Erhitzung der Proben als vertretbar gewertet.
7. Nur mit rekristallisiertem Zircaloy-2 (Zry-2) ließ sich die künstliche Versprödung einer ausreichenden Zahl von Hüllrohrproben innerhalb des verfügbaren Finanzrahmens sicherstellen. Für den zunächst ebenfalls ausgewählten Hüllrohrwerkstoff M5 wurde vom Hersteller AREVA keine Freigabe erteilt, gleichwohl besitzt dieser Werkstoff das derzeit größte Potential für den Einsatz bei hohen Abbränden.
8. Die zunächst alternativ vorgesehene Füllung mit verschiedenen Graphitsorten, die eine weitere Variation der mechanischen Eigenschaften erlaubt hätte, wurde aus praktischen Gesichtspunkten verworfen (hoher Staubanfall bei der Bearbeitung von Graphit). Statt einer Variation des Füllmaterials wurde eine Durchführung von Wiederholungsversuchen vorgesehen, um das Risiko von Fehlversuchen zu verringern bzw. Ausreißer zu erkennen. Bei der Wahl von Yttriumoxid  $Y_2O_3$  als Füllmaterial war ausschlaggebend, dass aus anderen Fraktionierungsexperimenten Erfahrung zur mechanisch bedingten Fraktionierung und Freisetzung vorliegen. Für die Vorversuche wurden als Werkstoffe des Füllmaterials Tabletten aus Zirconiumdioxid  $ZrO_2$ , Aluminiumoxid  $Al_2O_3$  und Ceramofix vorgesehen.
9. Zur besseren Absicherung der Versuchsergebnisse wurden abweichend von der zwischenzeitlichen Planung in /SCH 08/ alle Versuche zweifach durchgeführt, d. h. die Versuche H7 bis H12 stellen eine Wiederholung der Versuche H1 bis H6 dar (Tab. 3.3), H13 und H14 wurden zusätzlich zur Verbesserung der Statistik ausgeführt.



**Tab. 3.3** Planung der Matrix der Hauptversuche mit inaktiven Werkstoffen

V-Nr.	Hüllrohr-Material	Hydrierung	Füllmaterial	Belastungsform
H1	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H2	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H3	Zry-2 Std.-Qual.	ja	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H4	Zry-2 Std.-Qual.	ja	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H5	Zry-2 Std.-Qual.	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H6	Zry-2 Std.-Qual.	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H7	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H8	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H9	Zry-2 Std.-Qual.	ja	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H10	Zry-2 Std.-Qual.	ja	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H11	Zry-2 Std.-Qual.	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H12	Zry-2 Std.-Qual.	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H13	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H14	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch

### 3.3 Aufbau der Versuchsanlage

Das Gesamtkonzept umfasst vier unterschiedliche Gewerke: die Belastungsmechanik, die Kräfteerzeugung, die Messwertaufnahme und -erfassung und die Erfassung und Charakterisierung des freigesetzten Materials. Das Prinzip der Belastungsmechanik ist aus Abb. 3.1 ersichtlich. Der Gesamtaufbau der Versuchsanlage mit detaillierten Ausführungen zu den einzelnen Gewerken ist im Abschlussbericht des Fraunhofer ITEM (s. Anhang A) beschrieben.

Das bei der Hüllrohrbeschädigung freigesetzte Material wird in einer ventilierten Aerosolbox erfasst und klassiert. Im vorliegenden Zusammenhang wird zwischen der luftgetragenen Freisetzung - Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser kleiner 100 µm - und der nicht luftgetragenen Freisetzung unterschieden. Die nicht luftgetragenen größeren Fragmente fallen auf die untere perforierte Platte, von der sie abgeklopft werden für die anschließende Siebanalyse. Die Fraktion kleiner 100 µm AED wird mit dem Luftstrom nach oben getragen und einer weiteren Klassierung zugeführt. Im vorliegenden Zusammenhang wird wegen der erwarteten geringen Menge an luftgetragener Freisetzung diese nur integral durch Filtration des Ventilationsluftstroms, nicht weiter größenklassiert, ermittelt.

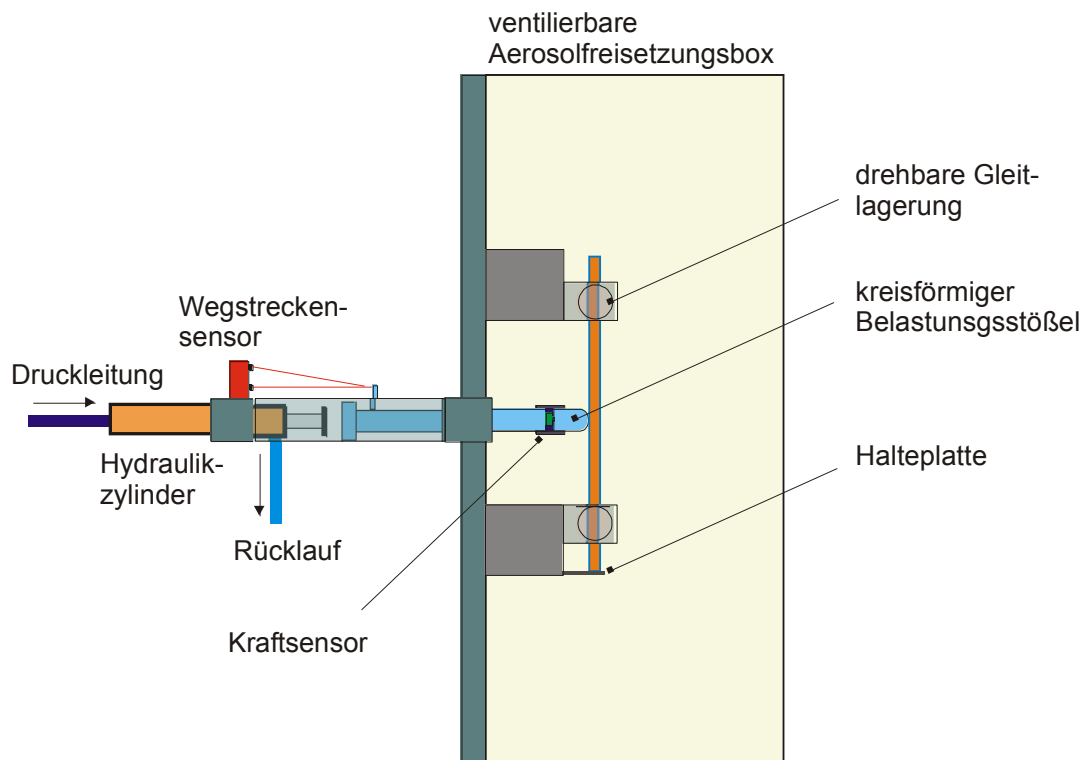


Abb. 3.1 Schema der Belastungseinheit zur quasistatischen und dynamischen Belastung von Brennstabsegmenten.

Bei der Siebung der nicht luftgetragenen größeren Fragmente wird nach den Fraktionen  $> 500$ ,  $250-500$ ,  $125-250$  und  $< 125 \mu\text{m}$  unterschieden. Bei einer angenommenen Materialdichte von  $5 \text{ g/cm}^3$  für Surrogatinventar und  $11 \text{ g/cm}^3$  für Brennstoff entsprechen Partikel diesen Siebdurchmessern bei Annahme kugelförmiger Partikel folgende aerodynamische Partikeldurchmesser (Tab. 3.4).

Tab. 3.4 Klassierschema der Siebanalyse

Siebdurchmesser [ $\mu\text{m}$ ]	Aerodynamischer Durchmesser [ $\mu\text{m}$ ]	
	$\rho = 6 \text{ g/cm}^3$	$\rho = 11 \text{ g/cm}^3$
500	1118	1658
250	559	829
125	280	415

### 3.4 Erprobung der Versuchsapparatur

Im Zuge der Qualifizierung des hydraulischen Beaufschlagungssystems erfolgte eine Untersuchung zur Dynamik des Systems. Insbesondere wurde die zu erzielende Verfahrgeschwindigkeit mittels Lichtschrankenmessung ermittelt. Hierzu wurden zwei Lichtschranken im Abstand von 10 cm voneinander im Endbereich des Fahrweges des Hydraulikzylinders installiert. Es ergab sich ein linearer Zusammenhang zwischen der Verfahrgeschwindigkeit am Ende des Fahrweges und dem Öldruck im Druckspeicher. Die Endgeschwindigkeit von 4.2 m/s bedeutet eine Einwirkzeit von 20 ms für die Durchbiegung des Hüllrohrs um 10 cm. (Details s. Anhang A)

### 3.5 Planung der Messungen

Die Messungen (Tab. 3.5) hatten insbesondere die Erfassung der Kraft-Verformungskurve unter transportunfalltypischen mechanischen Lasteinwirkungen zum Ziel. Um das Bruch- und Freisetungsverhalten zu erfassen, war Sammeln, Wägung und Siebung des fragmentierten Materials mit Unterscheidung des geometrischen Größenbereichs unterhalb und oberhalb 45 µm Durchmesser vorgesehen sowie die Bestimmung des Schadensbilds bei Bruch von Hüllrohr und/oder Inventarmaterial hinsichtlich Anzahl, Form und Größe der Bruchstellen.

**Tab. 3.5** Messgrößen und -methoden

Messgröße	Zeitabhängigkeit	Methode
Kraft	ja	Piezokristall (evtl. DMS)
Stößelauslenkung	ja	Triangulation
Verformung der Probe	ja	HG-Kamera Auswertung
Verschiebung der Probenenden	ja	HG-Kamera Auswertung
Art / Menge der Freisetzung	nein	Sammeln, Wägung und Siebung; geom. Größenbereich $\lt \gt 45 \mu\text{m}$ ; zusätzliche Filterprobenahme des lungengängigen Anteils
Schadensbild	nein	Geometrische Vermessung und Fotodokumentation

- Kraft-Messung: Grobe Voreinstellung über Öldruck/N<sub>2</sub>-Druck, Messung über Piezosensoren, Zeitauflösung = 0,1 ms (alternativ Dehnungsmessstreifen)

- Stoßelauslenkung über Triangulation (Sender / Spiegel / Empfänger), Zeitauflösung = 0,1 ms, Ortsauflösung 1 mm
- Hochgeschwindigkeits-Kamera: Erfassung der Probenverformung und der Bewegung von durch Markierungen definierten Probenenden, Zeitauflösung = ca. 1 ms

## 4 Durchführung und Ergebnisse der Versuche

Der Untersuchungsbericht des Fraunhofer ITEM über die mechanischen Belastungsexperimente ist im Anhang A vollständig wiedergegeben.

### 4.1 Probenmaterial

Es wurden Hüllrohrsegmente mit der Länge  $L = 250$  mm (Abstand zwischen den Auflagern 175 mm) aus rekristallisiertem Zircaloy-2 (Zry-2) in drei Varianten verwendet, die von AREVA im Rahmen des Vorhabens bereitgestellt wurden:

- Standardqualität (Std. Zry-2),
- Std. Zry-2 hydriert mit 1025 ppm Wasserstoff (reduzierte Duktilität) und
- pilgerhartes Hüllrohrmaterial (besitzt gegenüber frischem unbestrahltem Standardmaterial erhöhte Festigkeit und reduzierte Duktilität).

Zusätzlich wurde in der Vorversuchsserie das Rohrmaterial Muster\_06 (Außendurchmesser 9,5 mm; Wandstärke 0,65 mm) verwendet.

Eckpunkte der Werkstoffdaten im Rahmen der Spezifikation - wie 0,2 %-Dehngrenze, E-Modul, Zugfestigkeit, plastische Bruchdehnung – wurden in axialen Zugversuchen von AREVA gemessen und bereitgestellt (Tab. 4.1).

Zur Simulation des Hüllrohrinventars wurde eine Füllung mit Sinterkeramik-Tabletten benutzt. Als Inventar wurden Keramiken verwandt, deren Eigenschaften in

Tab. 4.2 aufgeführt sind. Die Aluminiumoxidpellets ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) waren im ITEM aus früheren Untersuchungen vorhanden (Bezugsquelle Siemens Framatome). Sie wurden in den Untersuchungen im Wesentlichen als endständige Platzhalter im Hüllrohr verwendet, um den Verbrauch an teuren Zirconium- und Yttriumoxidpellets zu reduzieren. Das Einfüllspiel zwischen Pellet und Hüllrohr betrug etwa 170  $\mu\text{m}$ . In Vorversuchen (Erpro-

bungsversuche) wurden Zirconiumoxidpellets ( $ZrO_2$ ), in den Hauptversuchen Yttriumoxidpellets ( $Y_2O_3$ ) verwendet. Die Probekörperkonfiguration der Hauptversuche ist in Abb. 4.1 dargestellt.

**Tab. 4.1** Werkstoffdaten der verwendeten Hüllrohre aus Zry-2 (Standard, pilgerhart, hydriert mit 1025 ppm H)

Probe Nr.	Prüf-temp.	E-Modul	Probenabmessungen			Dehngrenze		Zugfestigkeit		Dehnung	
			Ø-Außen	Wand-dicke	Quer-schnitt	Rp 0,2		Rm		A50 mm	
			[mm]	[mm]	[mm <sup>2</sup> ]	Kraft [N]	[N/mm <sup>2</sup> ]	Kraft [N]	[N/mm <sup>2</sup> ]	Mess-länge [mm]	[%]
<b>Std. Zry-2</b>											
1070-02-1	RT	97.20	10.03	0.60	17.8	6826	<b>384</b>	9545	<b>537</b>	50	<b>37</b>
1070-02-2	RT		10.03	0.60	17.8	6826	<b>384</b>	9527	<b>536</b>	50	<b>38</b>
1070-02-3	RT		10.03	0.60	17.8	6808	<b>383</b>	9527	<b>536</b>	50	<b>37</b>
<b>pilgerhart</b>											
30305-1	RT	92.11	10.06	0.62	18.4	14342	<b>780</b>	16328	<b>888</b>	50	<b>13</b>
30305-2	RT		10.06	0.62	18.4	14379	<b>782</b>	16254	<b>884</b>	50	<b>14</b>
30305-3	RT		10.06	0.62	18.4	14434	<b>785</b>	16273	<b>885</b>	50	<b>14</b>
<b>1025 ppm</b>											
1070-02-05	RT	95.92	10.05	0.61	18.1	6748	<b>373</b>	10565	<b>584</b>	50	<b>6</b>
1070-02-06	RT		10.05	0.61	18.1	6766	<b>374</b>	10565	<b>584</b>	50	<b>6</b>

**Tab. 4.2** Kenngrößen des Hüllrohrinventars

	Außendurchmesser [mm]	Länge [mm]	Dichte [g/cm <sup>3</sup> ]	Biegefestigkeit [MPa]	E-Modul [GPa]
$Al_2O_3$	7.5	15.0	3.85	-	
$ZrO_2$	8.7	10.1	5.75	1200	
$Y_2O_3$	8.7	10.1	4.90	150	170



**Abb. 4.1** Probekörperkonfiguration der Hauptversuche bestehend aus 9 mittig angeordneten  $Y_2O_3$ -Pellets und jeweils vier endständigen  $Al_2O_3$ -Pellets. Das Rohr ist an beiden Seiten mit Plastikstopfen fest verschlossen.

## 4.2 Untersuchungsprogramm

Das Untersuchungsprogramm teilte sich auf in Vorversuche (Tab. 4.3) zur Erprobung der Anlage und in eine Hauptversuchsserie (Tab. 4.4) auf der Basis einer zwischen den Beteiligten abgestimmten Untersuchungsmatrix. In den Vorversuchsplan wurde noch eine zusätzliche Konfiguration aufgenommen, nämlich ein Brennstabsegment homogen gefüllt mit sogenannter Gusskeramik (Ceramofix), die nach Eingießen und Aushärten im Hüllrohr ein Füllmaterial ohne diametralen Spalt ergab.

Die Vorversuche wurden unmittelbar nach Fertigstellung der Apparatur im Oktober/November 2008 durchgeführt. Die Ergebnisse wurden auf einem von der GRS organisierten internationalen Workshop im ITEM, Hannover präsentiert.

Es stellte sich heraus, dass alle Daten der Vorversuche für die weitergehenden numerischen Untersuchungen genutzt werden können. Bis auf eine kleinere technische Veränderung an der Reflektorscheibe des Triangulationssystems war keine nennenswerte Modifikation der Apparatur nötig.

**Tab. 4.3** Matrix der Vorversuche

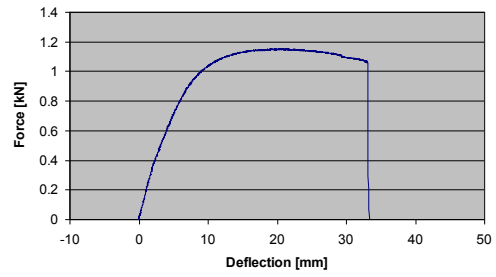
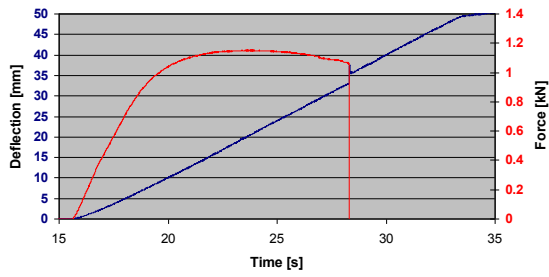
V-Nr.	Hüllrohr-Material	Hydrierung	Füllmaterial	Belastungsform
V1	Muster 06	nein	-	quasi-statisch
V2	Muster 06	nein	-	dynamisch
V3	Muster 06	nein	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
V4	Muster 06	nein	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
V5	Zry-2 pilgerhart	nein	-	quasi-statisch
V6	Zry-2 pilgerhart	nein	-	dynamisch
V7	Zry-2 pilgerhart	nein	ZrO <sub>2</sub> -Tabletten	quasi-statisch
V8	Zry-2 pilgerhart	nein	ZrO <sub>2</sub> -Tabletten	dynamisch
V9	Zry-2 pilgerhart	nein	ZrO <sub>2</sub> -Tabletten	dynamisch
V10	Zry-2 pilgerhart	nein	ZrO <sub>2</sub> -Tabletten	dynamisch
V11	Zry-2 pilgerhart	nein	Ceramofix	dynamisch

**Tab. 4.4** Matrix der Hauptversuche

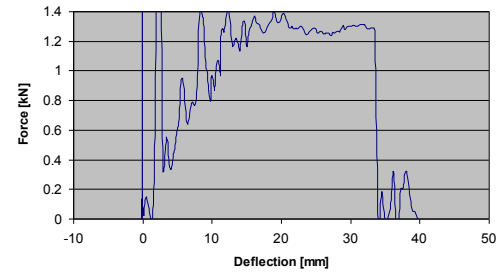
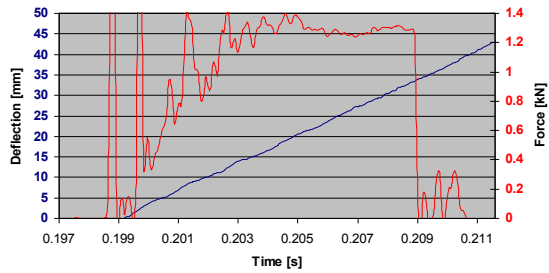
V-Nr.	Hüllrohr-Material	Hydrierung	Füllmaterial	Belastungsform
H1	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H2	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H3	Zry-2 Std.-Qual.	ja	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H4	Zry-2 Std.-Qual.	ja	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H5	Zry-2 Std.-Qual.	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H6	Zry-2 Std.-Qual.	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H7	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H8	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H9	Zry-2 Std.-Qual.	ja	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H10	Zry-2 Std.-Qual.	ja	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H11	Zry-2 Std.-Qual.	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H12	Zry-2 Std.-Qual.	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H13	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H14	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch

### 4.3 Ergebnisse

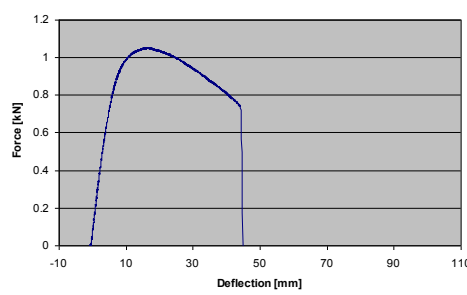
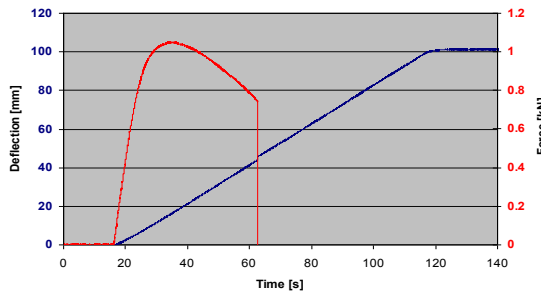
Für alle Versuche wurde der Kraft- und der Weg-Zeitverlauf aufgenommen und daraus eine Weg-Kraft-Kurve erstellt. Bei insgesamt drei Vorversuchen und bei allen Hauptversuchen wurde die Freisetzung quantifiziert. Beispiele der Kurven der mechanischen Messgrößen sind in Abb. 4.2 dargestellt. Für die Vorversuche wurde die maximale Durchbiegung auf 50 mm beschränkt. Für die Hauptversuche wurde das System auf eine maximale Durchbiegung von 100 mm umgestellt. In allen Experimenten ist eine konstante Vorschubgeschwindigkeit realisiert.



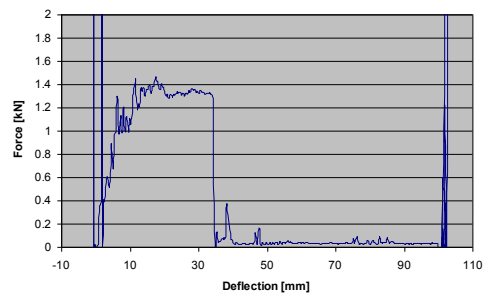
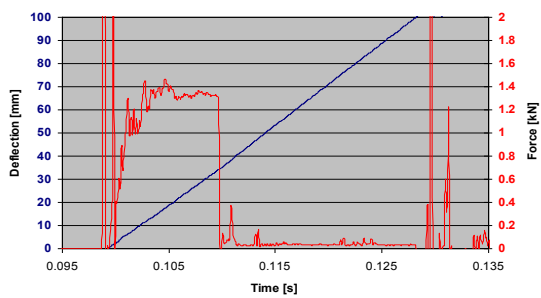
V7 ZrO<sub>2</sub>



V8 ZrO<sub>2</sub>



H7 Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>



H8 Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Abb. 4.2

Weg-Zeit und Kraft-Zeit-Diagramme sowie Kraft-Weg-Diagramme für die Experimente V7, V8 und H7, H8 mit pilgerharten Zry2-Hüllrohren und Füllmaterial aus ZrO<sub>2</sub> bzw. Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.



Insbesondere bei den quasistatischen Belastungen ist der Übergang vom elastischen, über das elastisch-plastische und irreversibel plastische Verhalten bis hin zum Bruch klar zu verfolgen. Bei der Kraftmessung in den dynamischen Versuchen sind im elastischen bzw. elastisch-plastischen Bereich ausgeprägte Schwingungen vorhanden, die auf die Trägheit und die elastischen Eigenschaften der Prüfvorrichtung, die Einspannung des Probekörpers etc. zurückzuführen sind. Die Durchbiegung beim Versagen (Bruchgrenze) und die zugehörige Reaktionskraft lassen sich aber dennoch mit ausreichender Genauigkeit erfassen.

Bei dynamischer Belastung sind Bruchgrenze und zugehörige Reaktionskraft für beide keramische Materialien trotz ihres erheblichen Unterschieds in der Biegefestigkeit (1200 MPa für  $ZrO_2$  und 150 MPa für  $Y_2O_3$ ) nahezu identisch: Bruchgrenze 33 mm, Reaktionskraft 1.3 kN, (Abb. 4.2: Versuche V8 und H8, siehe auch Ergebniszusammenfassung in Tab. 4.5 und Tab. 4.6). Bei langsamer Verformung ist der plastische Verformungsbereich beim „weicheren“ Füllmaterial ausgedehnter und die Bruchgrenze erhöht sich von 33 mm auf 44 mm (Abb. 4.2: Versuche V7 und H7).

Die Materialfreisetzung wurde bei allen Hauptversuchen und einigen Vorversuchen mit dem in Kapitel 3.3 beschriebenen Verfahren quantifiziert und in Form einer kumulierten Massenverteilung  $m$  als Funktion des aerodynamischen Durchmessers  $x_{AED}$  dargestellt. Der untere Wert ergibt sich aus der Wägung des Filters der Klassiereinheit, die anderen drei aus der Auswertung der Siebanalyse. An die Daten wurde eine Potenzfunktion der Form  $m = A x_{AED}^b$  angepasst (siehe Abb. 4.3). In allen Fällen ist der Korrelationskoeffizient besser als 0.97. In allen Experimenten der Hauptversuchsserie konnte die Massenbilanz, die sich aus der Rückwägung des Brennstabsegments und der Fragmente ergibt, bis auf wenige Milligramm geschlossen werden.

Die Abb. 4.4 zeigt beispielhaft Einzelbilder der Hochgeschwindigkeitsvideosequenz bei der dynamischen Belastung von pilgerharten Zry-2 Rohren gefüllt mit  $ZrO_2$ -Tabletten. Der Bruch des Hüllrohrs beginnt vorzugsweise im Bereich von Kanten der eingefüllten Tabletten. Die Freisetzung von Fragmenten erfolgt mit etwa der doppelten Hüllrohrverformungsgeschwindigkeit.

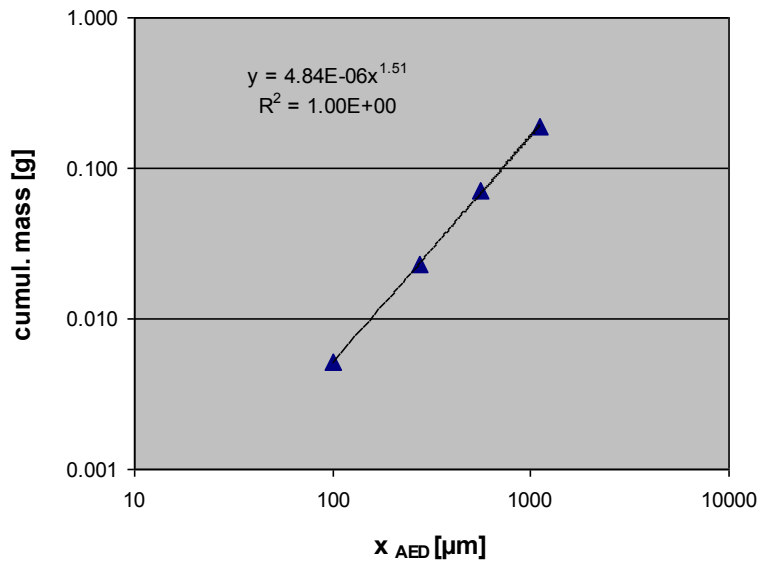


Abb. 4.3 Kumulierte Verteilung der freigesetzten Masse (H13).

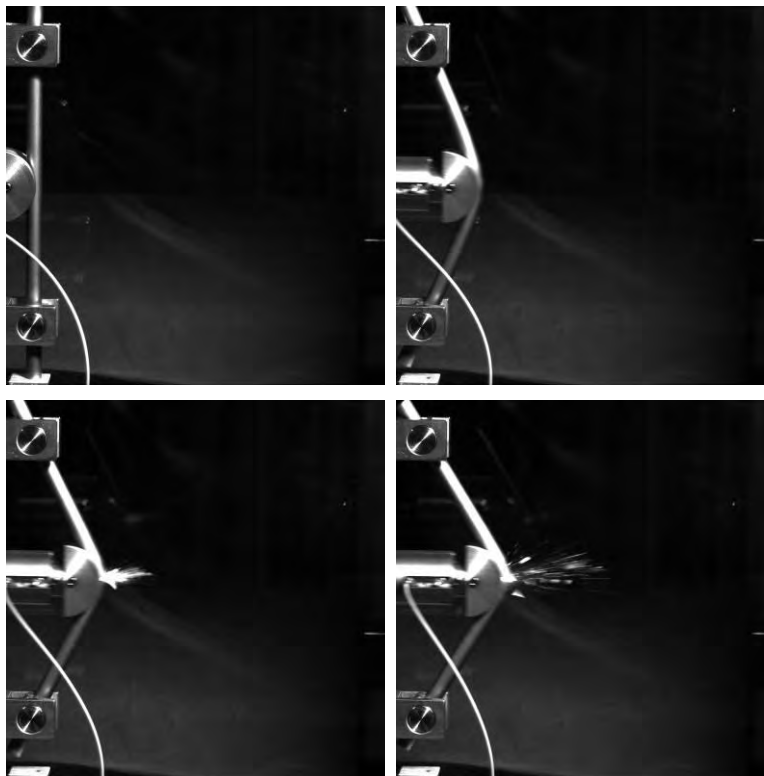


Abb. 4.4 Hüllrohrversagen und Materialfreisetzung bei dynamischer Belastung. Zeitabstand zwischen den Aufnahmen: 100  $\mu\text{s}$  ( $\text{ZrO}_2$  in pilgerhartem Zry2-Rohr).

**Tab. 4.5**

## Zusammenfassung der Ergebnisse der Vorversuche

Nr.	Hüllrohr Material Zry-2	Belastung	Kraft bei max. Durchbiegung [kN]	max. Durchbiegung [mm]	Freisetzung			
					$m_{<100\mu\text{m}}$ [mg]	$m_{>100\mu\text{m}}$ [mg]	A	b
V1	Muster 06	sta.	-	-	-	-	-	-
V2	Muster 06	dyn.	-	-	-	-	-	-
V3	Muster 06	sta.	0.81	31.7	-	-	-	-
V4	Muster 06	dyn.	0.95	32.1	-	-	-	-
V5	pilgerhart	sta.	-	-	-	-	-	-
V6	pilgerhart	dyn.	-	-	-	-	-	-
V7	pilgerhart	sta.	1.06	33.1	-	-	-	-
V8	pilgerhart	dyn.	1.25	33.2	-	-	-	-
V9	pilgerhart	dyn	1.29	33.4	3.27	1486	1.55E-06	1.6
V10	pilgerhart	dyn	1.30	34.4	3.30	360	5.63E-06	1.3
V11	pilgerhart	dyn	-	-	-	-		

(Belastung: sta. = statisch, dyn. = dynamisch)

**Tab. 4.6**

## Zusammenfassung der Ergebnisse der Hauptversuche

Nr.	Hüllrohr Material Zry-2	Belastung	Kraft bei max. Durchbiegung [kN]	max. Durchbiegung [mm]	Freisetzung			
					$m_{<100\mu\text{m}}$ [mg]	$m_{>100\mu\text{m}}$ [mg]	A	b
H1	pilgerhart	sta.	0.97	57.7	8.54	881	8.66E-06	1.51
H2	pilgerhart	dyn.	1.24	34.6	7.64	1402	8.30E-06	1.49
H3	hydriert	sta.	-	-	-	-	-	-
H4	hydriert	dyn.	0.98	20.6	3.47	2840	1.91E-06	1.63
H5	Std.-Qual.	sta.	-	-	-	-	-	-
H6	Std.-Qual.	dyn.	-	-	-	-	-	-
H7	pilgerhart	sta..	0.73	44.1	4.86	1045	2.73E-06	1.62
H8	pilgerhart	dyn.	1.31	34.0	5.77	730	8.03E-06	1.40
H9	hydriert	sta.	0.15	79.3	7.27	1766	7.53E-06	1.50
H10	hydriert.	dyn.	0.91	25.1	3.27	2991	1.83E-06	1.65
H11	Std.-Qual.	sta.	-	-	-	-	-	-
H12	Std.-Qual.	dyn.	-	-	-	-	-	-
H13	pilgerhart	sta.	0.74	41.0	5.16	1040	4.84E-06	1.51
H14	pilgerhart	dyn.	1.23	31.0	4.13	783	2.67E-06	1.59

(Belastung: sta. = statisch, dyn. = dynamisch)

Die Ergebnisse aller Versuche d.h. Reaktionskraft und Durchbiegung beim Hüllrohrversagen, luftgetragene ( $m < 100 \mu\text{m}$  AED) und nicht luftgetragene Freisetzung

( $m > 100 \mu\text{m AED}$ ) sowie die Parameter der Fragmentgrößenverteilung sind in Tab. 4.5 und Tab. 4.6 zusammengefasst.

Bei Experimenten mit Spiegelstricheintragungen wurde kein Hüllrohrversagen erzielt. Dies trifft für das mit  $\text{Y}_2\text{O}_3$ -Tabletten gefüllte Standard Zry-2-Referenzmaterial und für leere Rohre zu. Für das hydrierte Hüllrohrmaterial wurde nur im dynamischen Lastfall ein Hüllrohrversagen reproduzierbar induziert. Die Verformungskurven und die Schadensbilder aller Hauptversuche befinden sich im Anhang A. Eine Zusammenfassung der gemessenen Verformungskurven ist zusätzlich im Abschnitt 5.3 (Abb.5.6) dargestellt.

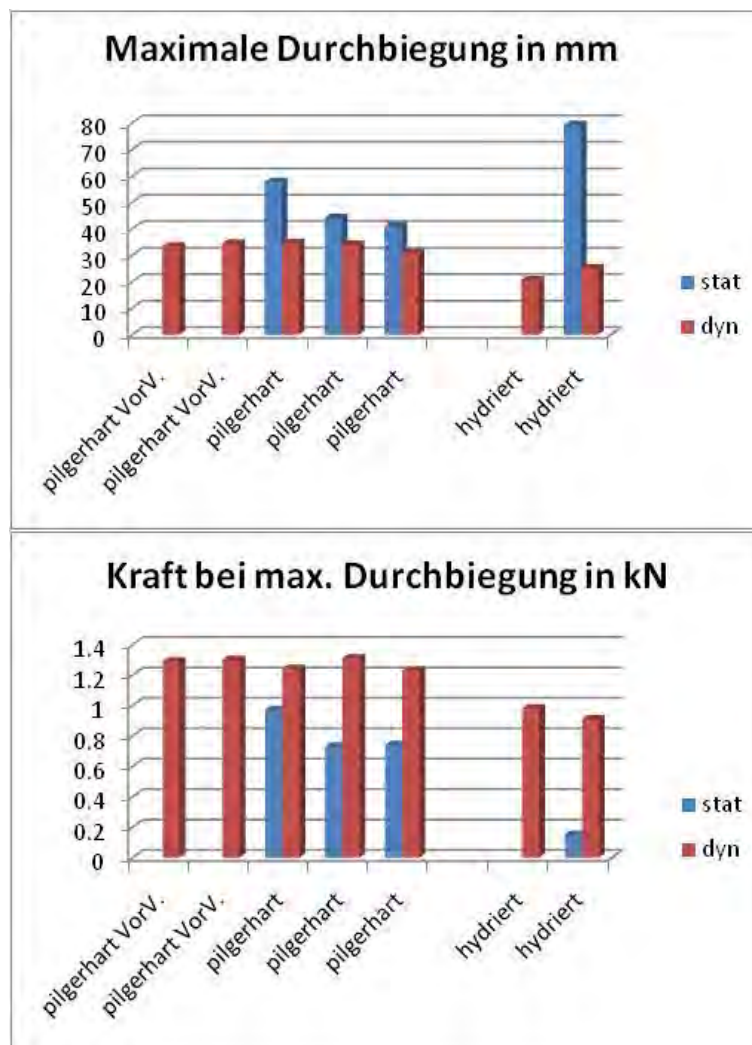


Abb. 4.5 Maximale Durchbiegung und zugehörige Kraft bei Hüllrohrversagen in Vor- und Hauptversuchen

In den Biegeversuchen der Vor- und Hauptversuche, in denen ein Hüllrohrbruch erreicht wurde, zeigt die maximale Durchbiegung und die zugehörige Kraft beim Hüll-

rohrversagen von pilgerhartem und hydriertem Hüllrohrmaterial folgende Tendenzen (Abb. 4.5). Die mechanischen Kennwerte der Hüllrohrmaterialien sind aus axialen Zugversuchen bekannt: Pilgerhartes Material besitzt höhere Dehngrenze, Zugfestigkeit und Bruchdehnung als hydriertes Material (Tab. 4.1).

- Bei beiden Materialien führt die dynamische Kraffteinleitung zum Bruch bei geringeren Durchbiegungen aber höheren Kräften als die statische Versuchsführung. Oder anders gesagt: Bei beiden Materialien wird mit statischer Kraffteinleitung also geringen Dehnraten eine größere maximale Durchbiegungen bei geringerem Kraftniveau erreicht.
- Die max. Durchbiegung ist bei dynamischer Belastung beim duktileren Material (pilgerhart) größer. Allerdings steht die deutlich höhere plastische Verformung des hydrierten Materials bei statischer Belastung im Widerspruch zum Kennwert der geringeren axialen Bruchdehnung.
- Die erforderliche Kraft bei max. Durchbiegung ist beim festeren Material (pilgerhart) größer, wie bei dynamischer und statischer Belastung zu sehen ist.
- Die mechanischen Eigenschaften des Brennstoffsurrogats ( $ZrO_2$  in Vor- und  $Y_2O_3$  in Hauptversuchen) sind von untergeordneter Bedeutung.

Eine Übersicht der wichtigsten Ergebnisse mit Mittelwerten und Fehlerangaben für die mechanischen Kenngrößen und die Materialfreisetzung bei allen Versuchen, in denen ein Hüllrohrversagen auftrat, geben die nachfolgenden Abbildungen (Abb. 4.6. und Abb. 4.7).

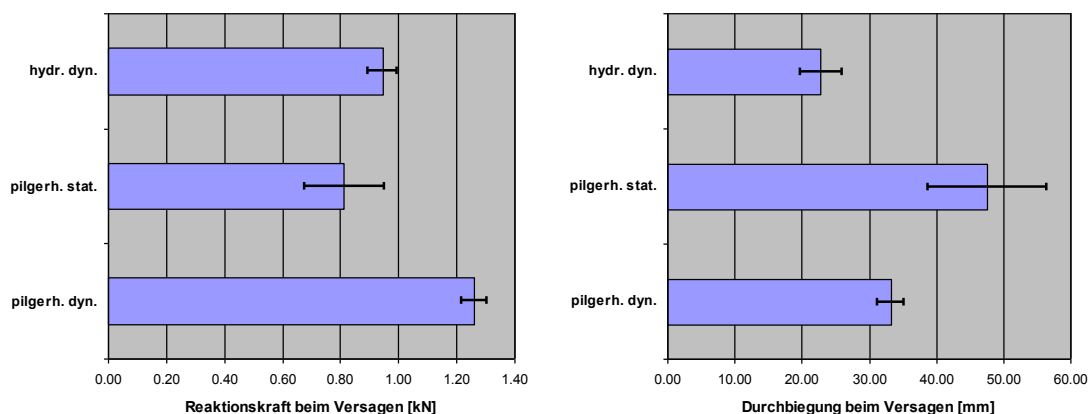


Abb. 4.6 Mechanische Kenngrößen der Belastungsversuche

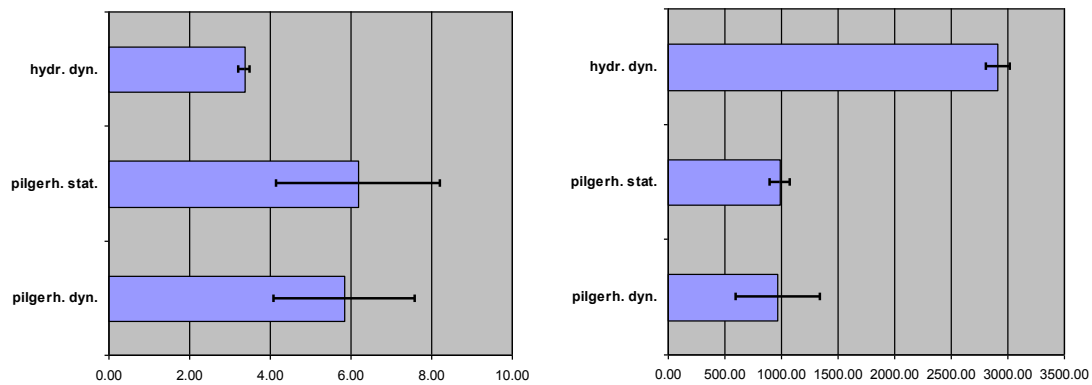


Abb. 4.7 Daten zur luftgetragenen (links) und nicht luftgetragenen (rechts) Materialfreisetzung

Die geringere Duktilität der hydrierten Rohre (Tab. 4.1) äußert sich zum einen in geringeren Werten der Durchbiegung und der Reaktionskraft gegenüber dem pilgerharten Material. Zum anderen ist die gesamte Materialfreisetzung beim Bruch des Hüllrohres deutlich höher, was auf ein sehr unterschiedliches Schadensbild zurückzuführen ist. Während beim pilgerharten Material saubere Umfangsbrüche auftreten, ist der Bruch des hydrierten Hüllrohr-Materials neben dem Umfangsbruch zusätzlich mit einem ausgeprägten axialen zungenförmigen Aufreißen des Hüllrohres verbunden, wodurch eine größere Oberfläche des Inventarmaterials offengelegt wird (s. Abb. 4.8 und Anhang A, Detaildokumentation in Kap. 7 für H4 und H10).

Dies führt zur Freisetzung größerer Fragmente, die beim Bruch des pilgerharten Hüllrohr-Materials im Verbund innerhalb des Hüllrohres verbleiben. Die luftgetragene Freisetzung ( $AED < 100 \mu m$ ) beträgt bei Belastung des hydrierten Materials nur ca. die Hälfte der Freisetzung beim pilgerharten Material. Dies kann auf einen entsprechend geringeren Energieeintrag in die Keramik zurückzuführen sein. Insgesamt wird bei den hydrierten Hüllrohren unter dynamischer Belastungsform ein Materialäquivalent von etwa einer Keramiktablette des Brennstoffsurrogats freigesetzt.



Abb. 4.8 Schadensbild nach Hauptversuch H4 (oben) und H10 (unten).

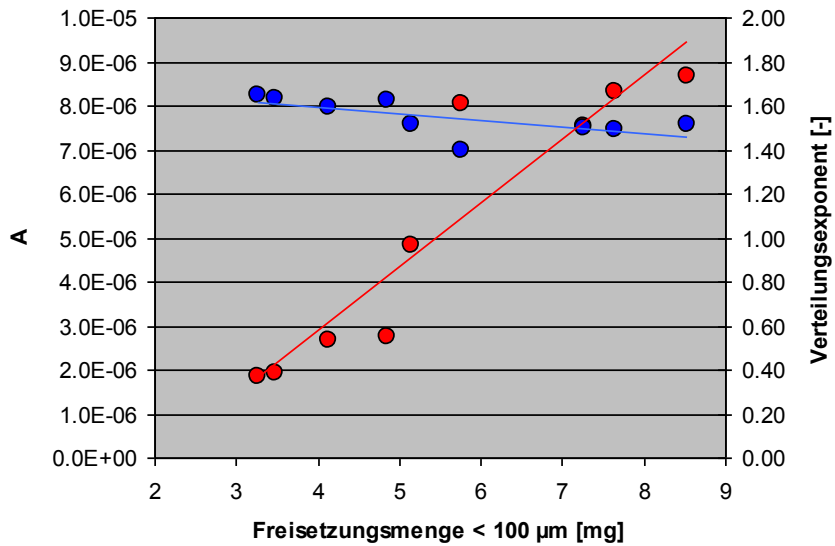


Abb. 4.9 Parameter der Fragmentgrößenverteilung als Funktion der luftgetragenen Staubmenge AED <math>< 100 \mu\text{m}</math>.

Der Exponent der Größenverteilung liegt mit einem Wert um 1,5 signifikant oberhalb von 1, den man für einen Hochgeschwindigkeitsaufprall (hoher spezifischer Energieeintrag) verbunden mit einer vollständigen Zerkleinerung des Pellets erwartet. Die Werte von Vorfaktor A und Exponent  $\nu$  der Massenverteilung der Fragmente - Potenzfunktion der Form  $m = A x_{AED}^b$  - sind als Funktion der luftgetragenen Freisetzungsmenge in Abb. 4.9 aufgetragen. Erwartungsgemäß steigt A mit zunehmender suspendierter Staubmenge mit  $AED < 100 \mu\text{m}$  an, da  $M < 100$  den unteren Punkt der kumulierten Massengrößenverteilung darstellt. Für den Verteilungsexponenten ist ein abfallender Trend mit der Feinstaubmenge, d.h. Zunahme der Fragmentierung, erkennbar.

#### 4.4 Diskussion

Mit der im Fraunhofer ITEM entwickelten Vorrichtung können Segmente von Brennstabsurrogaten reproduzierbar belastet werden. Dabei kann das dynamische Verhalten, wie es im Falle eines Absturzes des Transportbehälters zu erwarten ist, realitätsnah nachgebildet werden. Die im Vorhaben entwickelte Diagnostik erlaubt eine zeitlich hoch aufgelöste Erfassung des integralen mechanischen Werkstoffverhaltens: Reaktionskraft und Durchbiegung des Probekörpers. Die Materialfreisetzung kann vollständig charakterisiert werden, dabei wird zwischen der luftgetragenen Freisetzung ( $< 100 \mu\text{m}$  AED) und der nicht luftgetragenen Freisetzung unterschieden.

Unter dynamischen Belastungssituationen wurde bei den versprödeten (verringerte Duktilität) Hüllrohrmaterialien immer ein komplettes Hüllrohrversagen induziert und zwar für eine Durchbiegung im Bereich von 20 bis 40 mm. Pilgerharte Rohre entwickelten einen glatten Umfangsbruch an der Stoßstelle zweier Tabletten, während die hydrierten Proben zusätzlich über eine Länge von ca. 1 cm einen zungenförmigen axialen Riss in der Mantelfläche aufwiesen. Die Versuche mit dynamischer Belastung zeigen, dass die Festigkeit des Hüllrohrinventars - mit hochfesten  $\text{ZrO}_2$ -Tabletten in den Vorversuchen und mit  $\text{Y}_2\text{O}_3$ -Tabletten bei wesentlich kleinerer Biegefestigkeit in den Hauptversuchen - kaum Auswirkungen auf Biegeverformung und Kraft beim Versagen des Hüllrohrs hat. Die Bruchstelle des Hüllrohrs trat in den Versuchen an der Tablettenstoßstelle auf, weil bedingt durch das diametrale Einfüllspiel von  $170 \mu\text{m}$  für die Pellets im Zentralbereich der Stabsegmente, das für frische Brennstäbe charakteristisch ist, in Verbindung mit den weichen Abschlussstopfen eine größere axiale Verschiebung des Hüllrohrinventars möglich war, so dass die Pellets keinen geschlossenen Biegestab bildeten und an den Stoßstellen vermutlich lokal in der Biegezugseite des Hüll-



rohrs eine höhere Spannung aufbauen konnten. Bei realen Hochabbrand-Brennstäben ist der Brennstoff weitgehend eine feste Verbindung mit dem Hüllrohr eingegangen (bonding) und die einzelnen Tabletten sind von Rissen durchzogen. Hier kann man eher eine kraftschlüssigere Übertragung von Druckspannungen und eine weniger lokal ausgeprägte Verteilung der Zugspannungen erwarten, so dass die Versagensposition des Hüllrohrs nicht unbedingt an der Pelletgrenze zu erwarten ist.

Ein Massenäquivalent von maximal einer Tablette Brennstoffsurrogat (ca. 3 g) wurde beim Versagen von hydrierten Hüllrohren unter dynamischer Belastungsform freigesetzt. Bei glatteren Brüchen von nicht hydriertem Hüllrohrmaterial lag die Freisetzungsmenge auf Grund des kleineren Bruchquerschnitts niedriger. Die bei realen Hochabbrand-Brennstäben zu erwartende Brennstofffreisetzung beim Biegeversagen wird vermutlich ebenso wie der Versagensort davon bestimmt sein, dass der Brennstoff eine feste Verbindung mit dem Hüllrohr eingegangen (bonding) ist und die einzelnen Tabletten von Rissen durchzogen sind. Diese veränderte Struktur des Inventars im Hüllrohr könnte für die Massenfreesetzung aus Hochabbrand-Brennstäben nach dem Biegebruch eine reduzierende Wirkung haben, weil die Tablettenteile beiderseits der Bruchfläche trotz der vorliegenden Strukturschäden eine stärkere Bindung an das Hüllrohr besitzen.

Die suspendierte Staubmenge mit AED < 100  $\mu\text{m}$  betrug in den Versuchen wenige Milligramm. Die Massenverteilung ist in guter Übereinstimmung mit früheren Ergebnissen zum Bruch sprödbrechender Materialien bei niedrigem Energieeintrag. Die kumulierte Verteilung als Funktion des aerodynamischen Durchmessers folgt einem Potenzgesetz mit einem Exponenten von ca. 1,5 (Abb. 4.9) im Gegensatz zu etwa 1 bei hohem spezifischem Energieeintrag. Mit diesen Erkenntnissen lässt sich der nicht gemessene Anteil lungengängiger Partikel mit AED < 10  $\mu\text{m}$  abschätzen. Er würde demnach bei den Hauptversuchen unter 0,3 mg betragen.

## **5 Versuchsnachrechnungen**

Für ein besseres Verständnis bzw. eine besser fundierte Interpretation der Versuchsergebnisse wurden von der BAM zusätzlich numerische Analysen durchgeführt, die im Rahmen dieses Vorhabens einen unterstützenden Charakter hatten. Die Nachrechnungen der Versuche begrenzen sich auf die Ermittlung und Analyse von globalen charakteristischen Kenngrößen wie Kräfte und Durchbiegungen. Die Komplexität der Berechnungsansätze wurde dabei sukzessiv gesteigert, um die Einflüsse der einzelnen

Parameter deutlich zu differenzieren. Bei fehlenden Kenntnissen über die einzelnen Einflussgrößen wurden sie in physikalisch vertretbaren Grenzen variiert.

Eine verifizierte Aussage über die Verteilung der lokalen Beanspruchungsgrößen (Dehnungen und Spannungen) war auf Grund der nicht durchgeführten „lokalen“ Messungen und nicht ausreichender Belegung der Werkstoffkennwerte nicht möglich. In dieser Untersuchungsphase war das auch nicht geplant.

## 5.1 Vereinfachte Analyse der Brennstabbeanspruchung

Ein Brennstab kann bei horizontaler Fallorientierung als ein an den Positionen der Abstandhalter gelagerter Durchlaufträger angesehen werden, wobei auf Grund der überwiegend gleichmäßigen Verteilung der Abstandhalter über die Brennelementlänge die Analyse auf einen Brennstababschnitt zwischen zwei Abstandhaltern begrenzt wird (Abb. 5.1). Die Wechselwirkung zwischen den Brennstäben wird zunächst nicht berücksichtigt, so dass eine freie Durchbiegung unterstellt werden kann.

Es wird vorausgesetzt, dass der Hüllrohrwerkstoff auf Grund eines hohen Abbrandes keine Restduktilität mehr besitzt und man von einem vollständigen Bruch im höchst belasteten Querschnitt des Brennstabes beim Erreichen einer kritischen Randspannung  $\sigma_{kr}$  auf der Biegezugseite ausgehen kann. Durch diese Annahme, die tendenziell dem bei hoch abgebrannten Brennstäben zu erwartenden spröden Verhalten entspricht, lässt sich die Analyse erheblich vereinfachen.

Im betrachteten Belastungsfall erhält man die kritische Durchbiegung mit Hilfe von Gl. (2.10) aus dem Anhang B als Funktion von Länge  $L$  und Außenradius  $r_a$  des Hüllrohrabschnitts, E-Modul des Hüllrohrwerkstoffs  $E_C$  und der kritischen Spannung  $\sigma_{kr}$  :

$$w_{kr} = \frac{q_{eq}}{384 (EJ)_{\Sigma}} \frac{L^4}{32} = \frac{1}{32} \frac{L^2 \sigma_{kr}}{r_a E_C} .$$

Durch Analyse der geometrischen Verhältnisse in den Behälter- bzw. Tragkorbschächten kann damit überprüft werden, ob und bei wie vielen Brennstäben eine Möglichkeit besteht, sich zwischen zwei Abstandhaltern bis zu  $w_{kr}$  durchzubiegen.

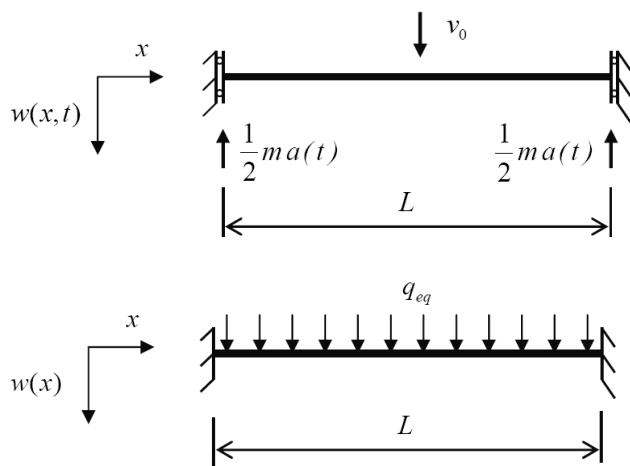


Abb. 5.1 Belastungsschema eines Brennstabsegments (oben) und quasi-statisches Ersatzmodell (unten)

Schematisch ist eine solche Analyse in der Abb. 5.2 gezeigt. Dabei ist vereinfachend eine homogene Durchbiegung der Brennstäbe einer Brennstabreihe bis zum Abstützen auf die darunterliegenden Schichten vorausgesetzt. Das mögliche Rutschen der einzelnen Brennstäbe in die Räume zwischen den "Säulen" wird hier nicht berücksichtigt.

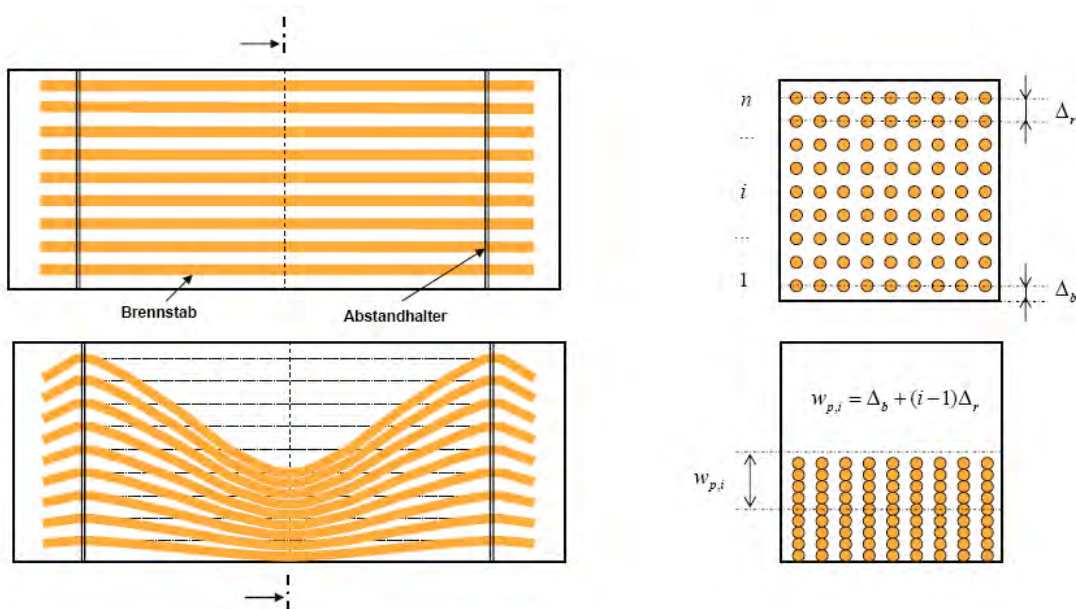


Abb. 5.2 Maximal mögliche Verformung der Brennstäbe zwischen zwei Abstandhaltern bei horizontaler Fallorientierung

Wird für die Brennstabreihe  $i$  die Bedingung  $w_{p,i} \geq w_{kr}$  erfüllt, so ist für diese Brennstäbe mit dem Versagen an den Abstandshaltern zu rechnen. (Die Definition der maximal möglichen Durchbiegung  $w_{p,i}$  ist ebenfalls in der Abb. 5.2 dargestellt.)

Unter der Annahme, dass aus einer Bruchstelle eine Brennstoffmasse  $m_{UO_2}$  austreten kann, gilt dann für die Gesamtmasse des ausgetretenen Brennstoffs

$$m_{sum} = m_{UO_2} n_{br} n_{BE} \cdot$$

Darin sind  $n_{BE}$  und  $n_{br}$  die Anzahl der Brennelemente und die Anzahl der Bruchstellen je Brennelement.

## 5.2 Finite-Elemente-Analysen der Biegeversuche

Zu den Versuchen mit statischer Krafteinwirkung wurden statische Finite-Elemente-Analysen durchgeführt, in denen der Berechnungscode ABAQUS/Standard in der Version 6.8 verwendet wurde.

Für die Nachrechnung der statischen Versuche wurde zunächst ein Balkenmodell erstellt. Dabei wird vereinfachend angenommen, dass die Versuchsprobe frei auf zwei starren befestigten Stützen aufliegt, wobei nur das Hüllrohr abgebildet wurde und die Pellets unberücksichtigt blieben (s. Abb. 5.3). Es wird die Reaktion des Balkens auf eine fortschreitende Verschiebung seines Mittelpunktes ermittelt. Die vorhandene Symmetrie wird durch Verwendung des Halbmodells mit geeigneten Symmetriebedingungen berücksichtigt. Die Kontaktbedingungen (Reibungskontakt) zwischen dem Balken und der Stütze lassen eine freie Drehung sowie ein Rutschen des Balkens zu.

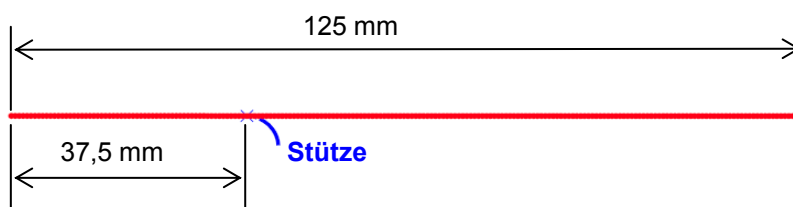


Abb. 5.3 Abmessungen des Balkenmodells (Halbmodell mit Symmetrie)

Die Wechselwirkung zwischen dem Hüllrohr und den Pellets bzw. die Auswirkung dieser Wechselwirkung auf die Ergebnisse der Biegeversuche wurde anhand der Berechnungen mit einem Kontinuumsmodell untersucht (s. Abb. 5.4).

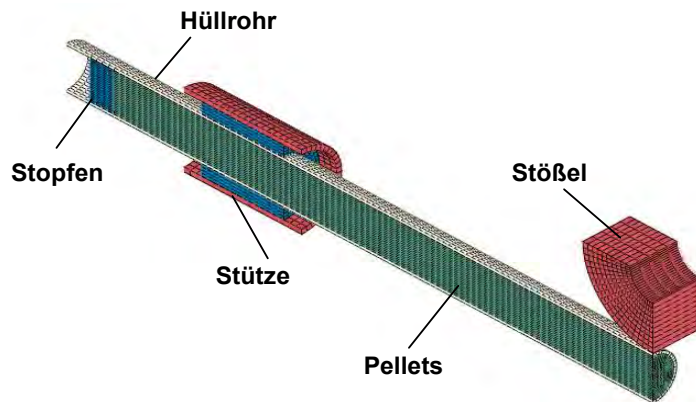
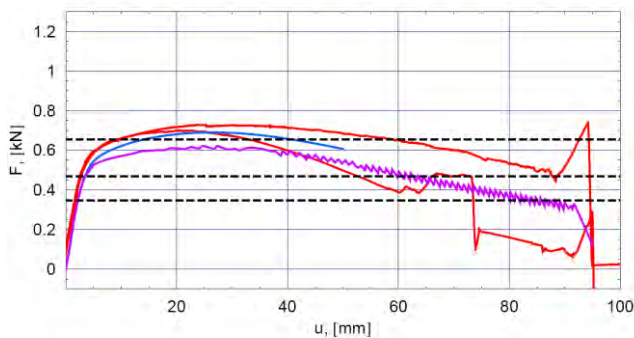


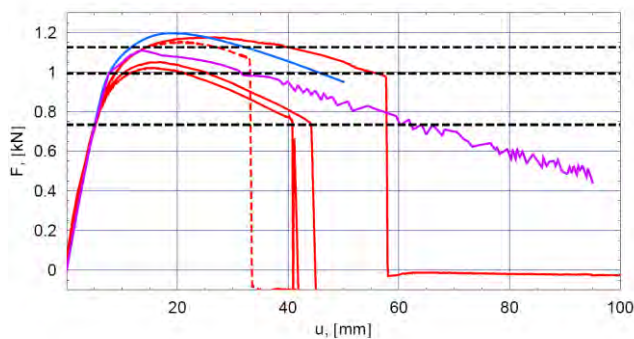
Abb. 5.4 Aufbau des Kontinuumsmodells

Aufgrund der vorliegenden Symmetrie wurde die Simulation auf ein  $\frac{1}{4}$ -Modell begrenzt. Neben dem Hüllrohr und den Pellets wurden die frei drehbare Stütze und der Stößel abgebildet. Die Pellets wurden einzeln modelliert, wobei die geometrischen Abmessungen der  $Y_2O_3$ -Pellets auch für die in den Endbereichen des Stabes positionierten  $Al_2O_3$ -Pellets berücksichtigt wurden.

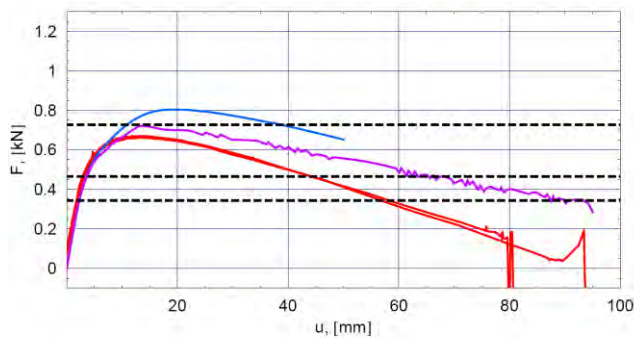
### 5.3 Ergebnisse der Versuchsnachrechnungen und zusätzliche Auswertungen



Std. Zry-2



Zry-2, pilgerhart



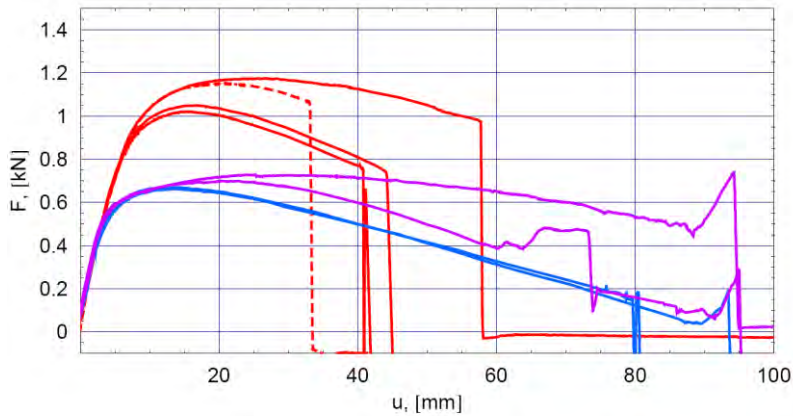
Std. Zry-2, hydriert

— Versuchsergebnisse      — Balkenmodell      — Kontinuumsmodell.

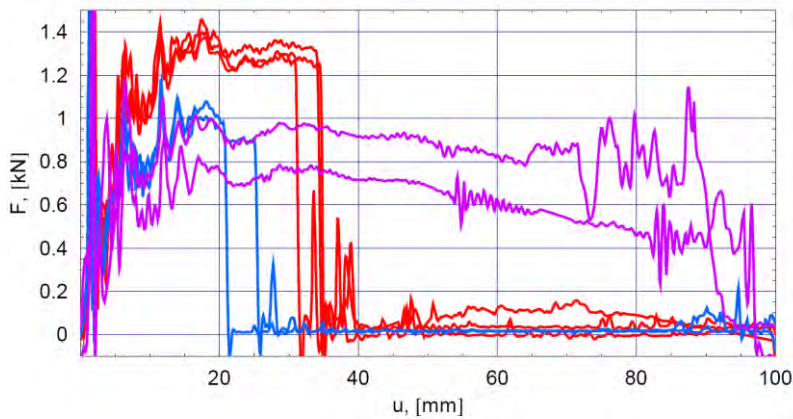
Abb. 5.5 Ergebnisse von FE-Berechnungen

Die rechnerisch ermittelten Kraft-Durchbiegungs-Kurven aus FE-Modellrechnungen mit dem Balken bzw. Kontinuumsmodell sind den Versuchsergebnissen qualitativ ähnlich (Abb. 5.5). Aufgrund der begrenzten Kenntnisse hinsichtlich der Werkstoffeigenschaften sind jedoch Abweichungen nicht vermeidbar. Die vollständige Beschreibung dieser und weiterer Berechnungen sowie weitere Auswertungen sind im Teilbericht der BAM (Anhang B) enthalten. Hier werden einige Ergebnisse wiedergegeben.

Bei allen gebrochenen Proben ist der Bruch nach relativ großen plastischen Verformungen im höchst belasteten Querschnitt eingetreten. Das Versagen geht von der Biegezugseite aus und der Bruch verläuft in die Umfangsrichtung. Der Zeitpunkt der Rissbildung konnte jedoch nicht eindeutig identifiziert werden. Die hydrierten Proben weisen einen zusätzlichen axialen Riss im Bereich der Kraftereinleitung aus. Ein Grund dafür kann in der Inhomogenität der Hydridverteilung liegen.



statische Versuche



dynamische Versuche

— Std. Zry-2,                      — Zry-2, pilgerhart,                      — Std. Zry-2, hydriert.

Abb. 5.6 Versuchsergebnisse nach Belastungsart und Hüllrohrwerkstoff

Die gemessenen Kraft-Durchbiegungs-Kurven zeigen, dass die maximale Durchbiegung bei der dynamischen Belastung geringer als bei der entsprechenden statischen Belastung ist (Abb. 5.6). Für die hydrierten Proben wurden in den dynamischen Versuchen (im Gegensatz zu statischer Belastung) geringere Durchbiegungen registriert als für die pilgerharten Proben (Abb. 5.6).

Wie bei den Nachrechnungen der statischen Versuche festgestellt wurde, wird das Kraftniveau sowie der tendenzielle Verlauf der Kraft-Durchbiegungs-Kurven maßgeblich vom Hüllrohr bestimmt. Bei allen statischen Versuchen liegen die maximal gemessenen Kräfte über den Kräften, die zur Durchplastifizierung (Fließgelenkbildung) des höchst beanspruchten Hüllrohrquerschnitts führen würden.

Die Pellets verhindern zwar das lokale Versagen des Querschnitts durch die Ovalisierung, wirken jedoch nicht als ein "geschlossener Biegestab": die Pellets übertragen nur geringe Zugspannungen, die Druckspannungen werden durch Kontaktschluss in Richtung weicherer Stopfen durchgestellt. Der Biegewiderstand des Hüllrohrinventars wird dadurch reduziert.

Außerdem bewirken die Pellets zusätzliche sekundäre Effekte, die sich in den Kurvenverläufen widerspiegeln. Besonders für den Standardwerkstoff und für die statischen Versuche mit dem pilgerharten Zry-2 ist eine starke Streuung der Versuchskurven ersichtlich. Diese Streuung könnte teilweise auf den im Abschnitt 3.2.3 des Anhangs B diskutierten Einfluss der unterschiedlichen Durchmesser der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ - und  $\text{Y}_2\text{O}_3$ - Pellets zurückgeführt werden. Eine unterschiedliche axiale Verteilung der anfänglichen Spalte zwischen den  $\text{Al}_2\text{O}_3$ - Pellets und dem Hüllrohr oder ein gegenseitiges Rutschen dieser Pellets während der Belastungsphase können zu einer Änderung der "integralen" Reaktion der Biegeprobe und den beobachteten Abweichungen in den Kurvenverläufen führen. Darüber hinaus kann auch die vertikale Ausrichtung des Probekörpers bei den Versuchen zusätzliche Abweichungen bewirken, beispielsweise infolge von Reibungseinflüssen an der Halteplatte.

Da die oben angesprochenen Effekte eine gewisse Trägheit haben, streuen die dynamischen Kurven insgesamt weniger. Die Steigung des Kraftniveaus bei dynamischen Versuchen wird unter anderem dadurch verursacht, dass die Pellets zeitlich nicht genauso stark der Kraft ausweichen können wie beim statischen Versuch. Die Steifigkeit der Pellets hat in diesem Fall einen größeren Anteil in der "integralen" Reaktion der Biegeprobe.

## **6 Zusammenfassung**

In diesem Forschungsvorhaben wurde das mechanische Brennelementverhalten unter postulierten Unfallbedingungen beim Transport primär im Hinblick auf die die Kritikalitätssicherheit beeinflussenden Effekte betrachtet. Im Vordergrund standen dabei die



Untersuchungen des Versagensmodus der Brennstäbe mit einem potenziell maximalen Brennstoffaustritt. Das Vorhaben enthielt zunächst neben der Entwicklung und Erprobung einer für bestrahlte und unbestrahlte Proben geeigneten Versuchsanlage auch das Ziel eines Versuchsprogramms mit bestrahlten Brennstabsegmenten in einer heißen Zelle. Da die für die letztgenannten „heißen“ Versuche notwendige Fremdfinanzierung jedoch im Projektverlauf nicht erreicht werden konnte, wurde das Vorhaben um diesen Projektteil gekürzt. Kompensierend wurde eine vertiefte Recherche des Standes von W&T und ein Erkenntnisaustausch mit internationalen Experten zur Optimierung des Versuchsaufbaus und der Versuchsmatrix sowie Diskussion der Versuchsergebnisse und des internationalen Kenntnisstandes bei einem Workshop durchgeführt.

Zur Interpretation der Versuchsergebnisse wurden von der BAM zusätzlich numerische Analysen durchgeführt, die im Rahmen dieses Vorhabens einen unterstützenden Charakter hatten aber trotzdem den maßgeblichen Schritt zum Verständnis und zur Bewertung der Resultate bilden. Die Nachrechnungen der Versuche begrenzten sich auf die Ermittlung und Analyse von globalen charakteristischen Kenngrößen wie Kräfte und Durchbiegungen. Die Komplexität der Berechnungsansätze wurde dabei sukzessiv gesteigert, um die Einflüsse der einzelnen Parameter deutlich zu differenzieren. Die rechnerisch ermittelten Kraft-Durchbiegungs-Kurven aus FE-Modellrechnungen mit dem Balken bzw. Kontinuumsmodell sind den Versuchsergebnissen qualitativ ähnlich. Aufgrund der begrenzten Kenntnisse hinsichtlich der Werkstoffeigenschaften sind jedoch Abweichungen nicht vermeidbar.

Mit der von Fraunhofer ITEM entwickelten Versuchsanlage können Segmente von Brennstaburrogaten reproduzierbar mit statischer oder dynamischer Krafteinleitung in einer Biegebeanspruchung belastet werden. Die im Vorhaben entwickelte Diagnostik erlaubt eine zeitlich hoch aufgelöste Erfassung der integralen mechanischen Kenngrößen: Reaktionskraft und Durchbiegung des Probekörpers. Die Materialfreisetzung nach einem Hüllrohrbruch kann vollständig charakterisiert werden.

Die Erprobung der Versuchsanlage mit nicht aktiven Materialien erfolgte mit Stababschnitten aus dem Hüllrohrwerkstoff (Zry-2) in Standard-Qualität, nach Hydrierung mit etwa 1000 ppm H und in einem als „pilgerhart“ bezeichneten Verarbeitungszustand, bei dem das Glühen nach dem letzten Walzvorgang im Pilger-Verfahren nicht alle Verfestigungen gelöst hat. Der pilgerharte Werkstoff Zry-2 zeigt dabei eine erhöhte Festigkeit, die sich an die Werkstoffeigenschaften im hoch bestrahlten Zustand orientiert,

besitzt gleichzeitig eine reduzierte jedoch noch recht hohe Duktilität. Bei der dritten Werkstoffvariante wurde durch eine Hydrierung (ca. 1000 ppm) der Hüllrohrabschnitte aus Standardwerkstoff eine noch niedrigere Duktilität als im pilgerharten Zustand erreicht. Die restlichen Festigkeitswerte, wie die 0,2%-Dehngrenze bzw. die Zugfestigkeit, blieben aber in der Größenordnung des Standardwerkstoffes. Durch die Verwendung dieser drei Werkstoffvarianten wurde versucht, unterschiedliche Auswirkungen der Bestrahlung auf die Hüllrohreigenschaften bereits in der Phase der Kalterprobung der Apparatur näherungsweise zu erfassen.

Zudem wurden in den Vorversuchen und Hauptversuchen zwei verschiedene Surrogatmaterialien – Keramiktabletten aus  $ZrO_2$  und  $Y_2O_3$  - als Füllmaterial der Hüllrohrabschnitte verwendet, die eine deutlich unterschiedliche Biegefestigkeit besitzen und damit die erwarteten Unterschiede zwischen frischen und abgebrannten Kernbrennstoffpellets aus  $UO_2$  widerspiegeln sollten. Weiterhin wurden  $Al_2O_3$ -Pellets in den Endbereichen der Stabsegmente verwendet. Die Größe der Keramiktabletten aus  $ZrO_2$  und  $Y_2O_3$  wurde so gewählt, dass in allen Tests ein diametrales Einfüllspiel von 170  $\mu m$ , analog zu den typischen Werten bei frischen Brennstäben, gegeben war.

Die Festlegung des experimentellen Untersuchungsprogramms erfolgte nach Diskussion der potenziell relevanten Parameter oder Einflussgrößen und berücksichtigte das Ziel einer Absicherung von Resultaten durch Wiederholung von Tests. Es war dabei hinzunehmen, dass mit den Ersatzpobekörpern und der Versuchsmatrix die Vielfältigkeit der Einflussparameter und Wechselbeziehungen nicht in einer Weise erfasst werden kann, die für reale hoch abgebrannte Brennstäbe gelten. So ist auch keine eindeutige Zuordnung der Werkstoffeigenschaften zwischen den während der "Kalterprobung" getesteten Hüllrohrvarianten und den verwendeten Surrogatpellets zu bestimmten Abbrandzuständen vorhanden.

Bedingt durch die Festlegung des Einfüllspiels des Hüllrohrinventars und die aufgrund der experimentellen Randbedingungen bedingte Auswahl von Surrogatwerkstoffen im Bruchbereich und in den Hüllrohrendbereichen sowie der speziellen Wahl des Hüllrohrverschlusses mittels weicher Stopfen sind bestimmte Wechselwirkungen zwischen den Pellets sowie zwischen den Pellets und dem Hüllrohr eingetreten, die für die in den Versuchen vorliegenden Verhältnisse spezifisch sind aber nicht den Bedingungen in Hochabbrand-Brennstäben entsprechen.

Bei allen gebrochenen Proben ist der Bruch nach relativ großen plastischen Verformungen im höchst belasteten Querschnitt eingetreten. Unter dynamischen Belastungssituationen wurde bei den versprödeten Hüllrohrmaterialien immer ein komplettes Hüllrohrversagen induziert und zwar für eine Durchbiegung im Bereich von etwa 20 bis 40 mm. Das Versagen geht von der Biegezugseite aus und der Bruch verläuft in Umfangsrichtung. Die hydrierten Proben weisen einen zusätzlichen axialen zungenförmigen Riss über eine Länge von ca. 1 cm im Bereich der Kraffteinleitung aus. Ein Grund dafür kann in der Inhomogenität der Hydridverteilung liegen. Die Hüllrohre aus dem duktilsten Werkstoff Zry-2 in Standard-Qualität zeigten kein Hüllrohrversagen.

Ein Massenäquivalent von maximal einer Tablette des Surrogatmaterials (ca. 3 g) wurde beim Versagen von hydrierten Hüllrohren unter dynamischer Belastungsform freigesetzt. Die luftgetragene Staubmenge mit AED < 100 µm betrug wenige Milligramm. Die Massenverteilung ist in guter Übereinstimmung mit früheren Ergebnissen zum Bruch sprödbrechender Materialien bei niedrigem Energieeintrag. Die kumulierte Verteilung als Funktion des aerodynamischen Durchmessers folgt einem Potenzgesetz mit einem Exponenten von etwa 1,5.

Die Duktilität der getesteten Hüllrohrvarianten ist wesentlich größer als gemäß der Literatur für hoch bestrahlte Hüllrohrwerkstoffe erwartet wird. Ein Versagen bei großen plastischen Verformungen ist für hoch bestrahlte Brennstäbe untypisch. Diesbezügliche Ergebnisse der plastischen Verformung und der maximalen Kraft beim BS-Versagen in den "kalten" Versuche sind somit nicht abdeckend für Hochabbrand-Brennstäbe. Dagegen können die Messergebnisse hinsichtlich des Austritts von Hüllrohrinventar auf Grund des vorhandenen Spaltes zwischen dem Hüllrohr und den Pellets, was diesen Austritt nach dem Bruch der Probe begünstigt, eher als konservativ angesehen werden.

Der Gewinn des Vorhabens besteht darin, dass eine Versuchsapparatur entwickelt und erfolgreich erprobt wurde, mit der Brennstab-Abschnitte reproduzierbar durch Biegebelastung bis zum Bruch beansprucht und zeitlich hoch aufgelöst die integralen mechanischen Messgrößen Reaktionskraft und Durchbiegung des Probekörpers als Kraft-Durchbiegungs-Kurve ermittelt werden können. Die Materialfreisetzung von Brennstofffragmenten nach einem Bruch kann erfasst und vollständig charakterisiert werden.

Insgesamt ist festzustellen, dass noch weitere Untersuchungen für eine experimentell abgesicherte Verifikationsbasis der numerischen Verfahren hinsichtlich des mechani-

schen Verhaltens von hoch abgebrannten Brennstäben notwendig sind. Auf Grund der Vielfältigkeit der Einflussparameter können in einem Ersatzprobekörper nicht alle Effekte gleichzeitig und in richtigen Wechselbeziehungen erfasst werden. Versuche mit aktiven Brennstababschnitten sind in diesem Zusammenhang wesentlich aussagekräftiger und haben deshalb eine große Bedeutung.

## 7 Literaturverzeichnis

- /ANL 08/ Argonne National Laboratory, Nuclear Engineering Division, High-Burnup Cladding Performance;  
[http://www.ne.anl.gov/capabilities/ip/highlights/light\\_water\\_reactor.html](http://www.ne.anl.gov/capabilities/ip/highlights/light_water_reactor.html)
- /AOM 07/ M. Aomi, T. Baba, T. Miyashita, K. Kamimura, T. Yasuda, Y. Shinohara, T. Takeda, Evaluation of Hydride Reorientation Behavior and Mechanical Property for High Burnup Fuel Cladding Tube in Interim Dry Storage, 15th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, Sunriver, Oregon, June 24-28, 2007
- /ARS 03/ S. Arsène et al., Hydride Embrittlement and Irradiation Effects on the Hoop Mechanical Properties of Pressurized Water Reactor (PWR) and Boiling-Water Reactor (BWR) ZIRCALOY Cladding Tubes;  
Part I. Hydride Embrittlement in Stress-Relieved, Annealed, and Recrystallized ZIRCALOYs at 20 °C and 300 °C, Metallurgical and Materials Transactions A, Volume 34A, March 2003, 553-566,  
Part II. Morphology of Hydrides Investigated at Different Magnifications and their Interaction with the Processes of Plastic Deformation, Metallurgical and Materials Transactions A, Volume 34A, March 2003, 567-578,  
Part III. Mechanical Behavior of Hydride in Stress-Relieved Annealed and Recrystallized ZIRCALOYs at 20 °C and 300 °C, Metallurgical and Materials Transactions A, Volume 34A, March 2003, 579-588
- /BIL 05/ M. Billone and H. Tsai, Comments on Fuel Rod, Fuel and Cladding Behavior, Argonne National Laboratory, Energy Technology Division, 10th Technical Meeting of the WGSTSC, Sandia National Laboratory, Albuquerque, NM, USA, November 15-17, 2005
- /BLA 00/ P. Blanpain et al., MOX fuel performance in the French PWRs: Status and developments, International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Park City, Utah, USA, April 10-13, 2000
- /CHU 07/ H.C. Chu, S.K. Wu, K.F. Chien and R.C. Kuo, Effect of radial hydrides on the axial and hoop mechanical properties of Zircaloy-4 cladding, Journal of Nuclear Materials Vol. 362, p. 93-103, 2007

- /CHU 08/ H.C. Chu, S.K. Wu and R.C. Kuo, Hydride reorientation in Zircaloy-4 cladding, *Journal of Nuclear Materials* Vol. 373, p. 319-327, 2008
- /DAL 04/ M. Dallongeville, J. Werle, G. McCreesh, Fuel integrity project: Analysis of light water reactor fuel rods test results, Proc. 14<sup>th</sup> International symposium on the packaging and transportation of radioactive materials (PATRAM 2004), Berlin, Germany, September 20-24, 2004
- /DAU 06/ R.S. Daum, S. Majumdar, Y. Liu and M.C. Billone, Radial-hydride embrittlement of high-burnup Zircaloy-4 fuel cladding, *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 43, No. 9, p. 1054-1067, 2006
- /DAU 07/ R.S. Daum, S. Majumdar, and M.C. Billone, Experimental and Analytical Investigation of the Mechanical Behavior of High-Burnup Zircaloy-4 Fuel Cladding, 15th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, Sunriver, Oregon, June 24-28, 2007
- /EIN 07/ R.E. Einziger, C. Beyer, Characteristics and behavior of high-burnup fuel that may affect the source terms for cask accidents, *Nuclear Technology* Vol. 159, August 2007
- /FOU 07/ S. Fourgeaud et al., Mechanical Characteristics Of Fuel Rods In Transport Conditions, IRSN, France, Proceedings of the 15<sup>th</sup> International Symposium on the Packaging and Transportation of Radioactive Materials, PATRAM 2007, Miami, Florida, USA , October 21 – 26, 2007
- /GOL 07/ W. Goll, Ch. Hellwig, P.B. Hoffmann, W. Sauser, J. Spino and C.T. Walker, UO<sub>2</sub> Fuel behaviour at rod burn-ups up to 105 MWd/kgHM, *atw* 52, Heft 2, 95-102, Februar 2007
- /IPS 07/ Irradiation Performance Section, Nuclear Engineering Division, Argonne National Laboratory, Test Plan – High-Burnup SNF Cladding Integrity During Drying, Transfer, Cask Storage And Transportation, IPS-498-00-00, April 27, 2007
- /ISG 03/ U.S. NRC Spent Fuel Project Office, Interim Staff Guidance No. 11, Revision 3, November 17, 2003

- /JAM 05/ R. James, J. Rashid, R. Dunham, L. Zhang, Spent Fuel Transportation Applications: Fuel Rod Failure Evaluation Under Simulated Cask Side Drop Conditions, ANATECH Corp. Report for EPRI, EPRI Technical Report 1009929, June 2005
- /LAN 05/ F. Lange, G. Schwarz, E. Hörmann und W. Koch, SR 2497, Erfassung, Bewertung und Fortentwicklung der sicheren Beförderung radioaktiver Stoffe, Mechanische Unfallbelastungen beim Transport von frischen und abgebrannten Brennelementen, Arbeitsbericht zum Vorhaben SR 2497 (Arbeitspunkt 4.4.6.2), GRS, November 2005
- /LAN 07/ F. Lange et al., Assessment, Evaluation and further Development of the Safe Transport of Radioactive Material Final Report of the Research Project SR 2497 (Working Area 4), Methods and Tools Applied for Radioactive Material Transport Risk Analysis Purposes, GRS-A-3378 / IV, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit, Köln, Juni 2007
- /LEM 94/ C. Lemaignan and A.T. Motta, in Materials Science and Technology, A Comprehensive Treatment, Volume 10 B (Ed: B. Frost), Ch.7 Zirconium alloys in nuclear applications, WILEY-VCH, Weinheim, 1994
- /MAN 00/ R. Manzel and C.T. Walker, High burnup fuel microstructure and its effect on Fuel rod performance, International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Park City, Utah, USA, April 10-13, 2000
- /MÜL 06/ K. Müller, T. Quercetti and B. Droste, Measurement techniques and preliminary results of drop tests with full scale spent fuel transport and storage casks, Packaging, Transport, Storage & Security of Radioactive Materials, Vol 17 No 4, p. 191-195, 2006
- /NOR 83/ D.O. Northwood and U. Kosasih, Hydrides and delayed hydrogen cracking in zirconium and its alloys, International Metals Review, Vol. 28, No. 2, p. 92-121, 1983

- /RAS 04/ J.Y.R. Rashid and A.J. Machiels, A methodology for the evaluation of fuel rod failures under transportation accidents, 14th INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON THE PACKAGING AND TRANSPORTATION OF RADIOACTIVE MATERIALS, PATRAM 2004, Berlin, Germany, September 20-24, 2004
- /RSK 01/ Empfehlung der Reaktorsicherheitskommission, Sicherheitstechnische Leitlinien für die trockene Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente in Behältern, Text entspricht der in der 339. RSK-Sitzung am 05.04.2001 gebilligten Fassung
- /SAN 92/ T.L. Sanders et al., A method for determining the spent-fuel contribution to transport cask containment requirements, SAND90-2406, November 1992
- /SCH 08/ E. Schrödl, SR 2558 Experimentelle Untersuchungen zum Verhalten von Brennstäben mit hohem Abbrand bei mechanischen Unfallbelastungen beim Transport, Zwischenbericht (Stand Dezember 2007), März 2008



## 8            **Abbildungsverzeichnis**

Abb. 2.1	Spannungs-Dehnungs-Diagramm von Zry-4 im Bereich der plastischen Verformung: Unbestrahlt (F-ANP), niedriger Abbrand (Surry 36 MWd/kgU), hoher Abbrand (HBR 67 MWd/kgU), Temperatur: RT (26 °C), 400 °C /BIL 05/.....	8
Abb. 2.2	Vergleich von experimentellen Dehngrenzen $R_{p0,2}$ in Abhängigkeit von Temperatur und Abbrand /SCH 08/ .....	9
Abb. 2.3	Vergleich von experimentellen Zugfestigkeiten $R_m$ in Abhängigkeit von Temperatur und Abbrand .....	10
Abb. 2.4	Bruchdehnung A von Zircaloy-2 gemessen bei verschiedenen Abbränden und Temperaturen /SCH 08/ .....	11
Abb. 2.5	Bruchdehnung A von unbestrahltem und bestrahltem (36, 43, 67 MWd/kgU) Zircaloy-4 bei 26 °C und 400 °C /SCH 08/ .....	12
Abb. 2.6	Versagensmodi für Hüllrohre (links) und Beispiel für Modus C (rechts) nach /SAN 92/ .....	13
Abb. 2.7	Freisetzungsanteile für Spaltgase aus DWR-Brennstäben mit Anfangsanreicherung von 3,5 bis 4,2 Gew.-% U-235 als Funktion des mittleren Stababbrands /MAN 00/.....	14
Abb. 2.8	Spaltgasfreisetzung aus Brennstäben mit Brennstofftabletten aus MOX oder UO <sub>2</sub> mit 4,5 % Anfangsanreicherung U-235 nach maximal 4 Zyklen bei linearer Stabileistung von 130 – 170 W/cm /BLA 00/.....	15
Abb. 2.9	Berechnete Hüllrohrspannung während der Trockenlagerung bei hypothetischer konstanter Temperatur (rot), tatsächlich sinkender Temperatur (grün) und bei zusätzlich modelliertem Hüllrohrkriechen (blau) /JAM 05/ .....	16
Abb. 2.10	Ausschnitt eines Hüllrohres mit schematischer Darstellung von umfangsorientierter oder radialer Hydridausscheidung /NOR 83/ .....	17
Abb. 2.11	Auswirkung von Temperatur und Wasserstoffgehalt auf die Zugfestigkeit von rekristallisiertem (R) und spannungsarm geglühtem (D) Zircaloy /ARS 03/ .....	19
Abb. 2.12	Auswirkung des Wasserstoffgehalts auf die Bruchverformung von rekristallisiertem und spannungsarm geglühtem Zircaloy /ARS 03/ ...	20
Abb. 2.13	Abmessungen der Probekörper für (a) uniaxiale und (b) Ring-Zugversuche /CHU 07/ .....	21
Abb. 2.14	Gefügaufnahmen zeigen die Orientierung von Hydriden in Zircaloy-4 Hüllrohren bei ~230 ppm (a) nach der Hydrierung (b) nach 8 thermischen Zyklen /CHU 08/ .....	22
Abb. 2.15	Gefügaufnahmen zeigen die Orientierung von Hydriden in Zircaloy-4 Hüllrohren bei verschiedenen Konzentrationen und nach einer unterschiedlichen Anzahl von thermischen Zyklen /CHU 08/ .....	23
Abb. 2.16	Abhängigkeit der Reorientierung von Hydriden in Zircaloy-4 Hüllrohren bei verschiedenen H-Konzentrationen und nach einer unterschiedlichen Anzahl von thermischen Zyklen (Lösungstemperatur 400 °C, Umfangsspannung 160 MPa) /CHU 08/.....	24
Abb. 2.17	Abhängigkeit der Spannungs-Reorientierung von der Wasserstoffkonzentration (Lösungstemperatur 400 °C, Umfangsspannung 160 MPa) /CHU 08/ .....	24
Abb. 2.18	Berechnete Abhängigkeit der Hydrid-Reorientierung in SRA Zry-4 von der Umfangsspannung für verschieden Lösungstemperaturen /CHU 08/ .....	25
Abb. 2.19	Vergleich der berechneten mit der experimentellen Hydrid-Reorientierung in Zry-4 als Funktion der Wasserstoffkonzentration bei	

	verschiedenen Lösungstemperaturen für einen Temperaturzyklus /CHU 08/ .....	26
Abb. 2.20	Berechnete Spannungs-Temperatur-Grenzkurven für Hydrid-Reorientierung in Zry-4 bei verschiedenen Wasserstoffkonzentrationen (Werte in Klammern geben die Grenze der beobachtbaren Radialhydrid-Konzentration an) /CHU 08/.....	27
Abb. 2.21	Typische Spannungs-Dehnungskurven für uniaxiale (UTT) und Ring (SAT) Zugversuche an Zircaloy-4 Probekörpern bei Raumtemperatur /CHU 07/ .....	28
Abb. 2.22	Abhängigkeit mechanischer Kennwerte von der Wasserstoffkonzentration für uniaxiale (UTT) und Ring (SAT) Zugversuche an SRA-Hüllrohr-Probekörpern bei Raumtemperatur (keine Radialhydride) /CHU 07/ .....	29
Abb. 2.23	Auswirkung von Radialhydriden auf mechanische Eigenschaften von SRA-Hüllrohr-Probekörpern unter uniaxialer Spannung bei Raumtemperatur /CHU 07/ .....	30
Abb. 2.24	Auswirkung von Radialhydriden auf mechanische Eigenschaften von SRA-Hüllrohr-Probekörpern mit unterschiedlichen Wasserstoffkonzentrationen in Ringzugversuchen bei Raumtemperatur /CHU 07/ .....	31
Abb. 2.25	Skizze eines dreiteiligen Werkzeugs (Querschnitt) zur Induktion von Umfangsspannung in einen ringförmigen Hüllrohrabschnitt /IPS 07/ .	33
Abb. 2.26	Finite-Elemente Modell (FEM) (1/4-Symmetrie) für die berechnete Verteilung der Umfangsspannung während der Radialhydridbehandlung (RHT) /DAU 06/ .....	34
Abb. 2.27	Schematische Darstellung der Apparatur für Ringdruckversuche /IPS 07/ .....	35
Abb. 2.28	Kraft-Verformungsdiagramme für unbestrahlte Zry-4 Hüllrohre nach Radial-Hydrid-Behandlung in Ringdruckversuchen bei niedriger (a) und niedriger/hocher (b) Wasserstoffkonzentration /DAU 06/ .....	36
Abb. 2.29	Spannungs-Dehnungsdiagramme für bestrahlte Zry-4 Hüllrohre ohne bzw. nach Radial-Hydride-Treatment in Ringdruckversuchen /DAU 06/ .....	37
Abb. 2.30	Gefügebilder von unbestrahlten F-ANP Proben nach Ringdruckversuchen mit Bruchspalten nach Radial-Hydrid-Behandlung bei 400 °C und Umfangsspannung von (a) 40 MPa (ca. 300 wppm H) und (b) 120 MPa (ca. 250 wppm H) sowie von (c) einer bestrahlten HBR Probe 120 MPa (ca. 650 wppm H) /DAU 06/.....	38
Abb. 2.31	Gefügebilder von hoch abgebrannten Zry-4 Hüllrohren (67 MWd/kgU): links: nach der Bestrahlung mit Oxidschicht, mittig: nach der Bestrahlung ohne Oxidschicht, rechts: nach Radialhydrid-Behandlung und ca. 3 % Kriechdehnung .....	41
Abb. 2.32	Einachsige Spannungs-Dehnungsdiagramme von unbestrahlten und hoch abgebrannten Zry-4 Hüllrohren (67 MWd/kgU) bei Raumtemperatur und 400 °C: links: bei kleiner Dehnrage (0,1 %/s), rechts: bei hoher Dehnrage (100 %/s) /DAU 07/.....	42
Abb. 2.33	Vergleich der Kraft-Verformungsdiagramme aus Ringdruckversuchen für bestrahltes Zry-4 Hüllrohr ohne und mit äußerer Oxidschicht bei Raumtemperatur und niedriger Dehnrage .....	43
Abb. 2.34	Vergleich der Kraft-Verformungsdiagramme für bestrahltes Zry-4 Hüllrohr ohne (rechts) und mit (links) äußerer Oxidschicht bei Raumtemperatur und verschiedenen Dehnraten .....	43

Abb. 2.35	Vergleich der Kraft-Verformungsdiagramme für unbestrahltes, bestrahltes und zusätzlich radialhydriertes Zry-4 Hüllrohr mit äußerer Oxidschicht bei Raumtemperatur und niedriger Dehnrage .....	44
Abb. 2.36	Verwendete Hüllrohrmaterialien /AOM 07/.....	45
Abb. 2.37	Mechanische Untersuchungsmethoden: (a) Ringdruckversuche, (b) Ringzugversuche, (c) longitudinale Zugversuche /AOM 07/ .....	46
Abb. 2.38	Skizze der Apparatur und des Verfahrens für Hydrid Reorientierung /AOM 07/ .....	46
Abb. 2.39	Abhängigkeit der Duktilität von Zry-2 mit Liner von Umfangsspannung und Hydridreorientierungs-Temperatur /AOM 07/ .....	47
Abb. 2.40	Abhängigkeit der Duktilität von Zry-2 mit Liner von der Abkühlrate /AOM 07/ .....	48
Abb. 2.41	Kraft-Verformungsdiagramm von bestrahltem Zry-2 ohne Liner ohne und mit Hydridumorientierung /AOM 07/.....	49
Abb. 2.42	Dehngrenze und Zugfestigkeit von bestrahltem Zry-2 mit Liner in Abhängigkeit von der Dehnrage /AOM 07/ .....	50
Abb. 2.43	Duktilität von bestrahltem Zry-4 (48 MWd/kgU) in Abhängigkeit von der Umfangsspannung /AOM 07/ .....	51
Abb. 2.44	Duktilität von bestrahltem Zry-4 (48 MWd/kgU) in Abhängigkeit von der Kühlrate /AOM 07/.....	51
Abb. 2.45	Reorientierung von Hydriden fortschrittlicher Legierungen in Abhängigkeit von der Umfangsspannung /AOM 07/ .....	52
Abb. 3.1	Schema der Belastungseinheit zur quasistatischen und dynamischen Belastung von Brennstabsegmenten. ....	82
Abb. 4.1	Probekörperkonfiguration der Hauptversuche bestehend aus 9 mittig angeordneten $Y_2O_3$ -Pellets und jeweils vier endständigen $Al_2O_3$ -Pellets. Das Rohr ist an beiden Seiten mit Plastikstopfen fest verschlossen. ....	85
Abb. 4.2	Weg-Zeit und Kraft-Zeit-Diagramme sowie Kraft-Weg-Diagramme für die Experimente V7, V8 und H7, H8 mit pilgerharten Zry2-Hüllrohren und Füllmaterial aus $ZrO_2$ bzw. $Y_2O_3$ . ....	88
Abb. 4.3	Kumulierte Verteilung der freigesetzten Masse (H13). ....	90
Abb. 4.4	Hüllrohrversagen und Materialfreisetzung bei dynamischer Belastung. Zeitabstand zwischen den Aufnahmen: 100 $\mu s$ ( $ZrO_2$ in pilgerhartem Zry2-Rohr). ....	90
Abb. 4.5	Maximale Durchbiegung und zugehörige Kraft bei Hüllrohrversagen in Vor- und Hauptversuchen. ....	92
Abb. 4.6	Mechanische Kenngrößen der Belastungsversuche .....	93
Abb. 4.7	Daten zur luftgetragenen (links) und nicht luftgetragenen (rechts) Materialfreisetzung .....	94
Abb. 4.8	Schadensbild nach Hauptversuch H4 (oben) und H10 (unten). ....	95
Abb. 4.9	Parameter der Fragmentgrößenverteilung als Funktion der luftgetragenen Staubmenge $AED < 100 \mu m$ . ....	95
Abb. 5.1	Belastungsschema eines Brennstabsegments (oben) und quasi-statisches Ersatzmodell (unten). ....	99
Abb. 5.2	Maximal mögliche Verformung der Brennstäbe zwischen zwei Abstandshaltern bei horizontaler Fallorientierung .....	99
Abb. 5.3	Abmessungen des Balkenmodells (Halbmodell mit Symmetrie) .....	100
Abb. 5.4	Aufbau des Kontinuumsmodells .....	101
Abb. 5.5	Ergebnisse von FE-Berechnungen .....	102
Abb. 5.6	Versuchsergebnisse nach Belastungsart und Hüllrohrwerkstoff .....	103



## 9 Tabellenverzeichnis

Tab. 2.1	Kumulativer mittlerer Abbrand und mittlere lineare Stableistung.....	14
Tab. 3.1	Potentiell relevante Parameter für das Verhalten von Brennstäben bei transportunfalltypischen Belastungen.....	71
Tab. 3.2	Parameterwahl im Rahmen der „kalten“ Versuche mit nicht radioaktiven Materialien.....	78
Tab. 3.3	Planung der Matrix der Hauptversuche mit inaktiven Werkstoffen .....	81
Tab. 3.4	Klassierschema der Siebanalyse.....	82
Tab. 3.5	Messgrößen und -methoden .....	83
Tab. 4.1	Werkstoffdaten der verwendeten Hüllrohre aus Zry-2 (Standard, pilgerhart, hydriert mit 1025 ppm H) .....	85
Tab. 4.2	Kenngößen des Hüllrohrinventars .....	85
Tab. 4.3	Matrix der Vorversuche .....	86
Tab. 4.4	Matrix der Hauptversuche .....	87
Tab. 4.5	Zusammenfassung der Ergebnisse der Vorversuche .....	91
Tab. 4.6	Zusammenfassung der Ergebnisse der Hauptversuche .....	91



## 10 Verteiler

Druckexemplare:

BfS	Dr. F. Nitsche		4
BfS	Volland		1
BAM	Dr. V. Ballheimer		3
Fraunhofer ITEM	Dr. W. Koch		3
AREVA-NP	Dr. W. Goll		3
GNS	Dr. D. Hoffmann		3
GRS	Abteilung 7020	thi	1
GRS	Autoren	scd, brc (je 3)	6
GRS	Bibliothek	hog	1
<b>Gesamtauflage</b>		<b>gedruckte Exemplare</b>	<b>25</b>

Bericht im PDF-Format:

BfS	Dr. F. Nitsche	
BAM	Dr. V. Ballheimer	
Fraunhofer ITEM	Dr. W. Koch	
AREVA-NP	Dr. W. Goll	
GNS	Dr. D. Hoffmann	
GRS	Geschäftsführung	hah, stj
	Bereichsleiter	tes, lim, rot, prg, erv, zir
	Projektbetreuung	kuf
	Projektleitung	scd
	Autoren	brc
	Abteilung 7020	thi
	Bibliothek	hog
	TECDO	nit
	GRS-Portal	ham
	Elektr. PA	(eZA) vet





## **Anhang A:**

### **Abschlussbericht des Fraunhofer ITEM zum Teilprojekt**

**„Experimentelle Untersuchungen zum Verhalten von Brennstäben mit hohem Abbrand bei mechanischer Unfallbelastung (SR 2558)“**



**Experimentelle Untersuchungen  
zum Verhalten von Brennstäben mit  
hohen Abbrand bei mechanischer  
Unfallbelastung (SR 2558)**

Abschlussbericht zum UA

Erstellung und Validierung eines experimentellen Aufbaus und Durchführung von Versuchen mit Surrogatbrennstabsegmenten

Fraunhofer Institut für Toxikologie und  
Experimentelle Medizin (ITEM)  
Abteilung für Aerosoltechnologie  
Nikolai-Fuchs-Str. 1  
30625 Hannover

W. Koch

H. Lödding

W. Dunkhorst

## Inhalt

<b>1</b>	<b>Einleitung und Zielsetzung .....</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Wissenschaftliche und technische Einzelziele .....</b>	<b>2</b>
<b>3</b>	<b>Material und Methoden .....</b>	<b>2</b>
3.1	Designkriterien für die Versuchsapparatur.....	2
3.2	Umsetzung der Belastungsapparatur .....	6
3.2.1	Gesamtkonzept.....	6
3.2.2	Messtechnik und Datenerfassung .....	9
3.2.3	Erfassung des freigesetzten Materials.....	11
3.2.4	Video-Aufnahmetechnik .....	13
3.3	Probekörper .....	13
<b>4</b>	<b>Durchführung der Versuche und Ergebnisse .....</b>	<b>15</b>
4.1	Untersuchung zur Dynamik des hydraulischen Belastungssystems .....	15
4.2	Untersuchungsprogramm .....	16
4.3	Ergebnisse .....	17
<b>5</b>	<b>Diskussion .....</b>	<b>24</b>
<b>6</b>	<b>Literaturangaben.....</b>	<b>25</b>
<b>7</b>	<b>Detalldokumentation der Belastungsexperimente .....</b>	<b>26</b>

## 1 Einleitung und Zielsetzung

Es besteht Forschungsbedarf zum Verhalten von Brennelementen mit hohem Abbrand im Hinblick auf das Schadensbild und eine mögliche Freisetzung von Brennstoff im Innern von Brennelementbehältern bei mechanischen Unfallbelastungen entsprechend den Typ B Prüfungen. Das übergeordnete Ziel des Vorhabens SR 2558 ist die Charakterisierung des Deformations-, Bruch- und Freisetzungsverhaltens bestrahlter Brennelementstäbe unter unfalltypischen mechanischen Lasteinwirkungen. Dieses soll durch eine Kombination aus experimentellen Untersuchungen und auf Finite-Element-Methoden (FE) basierenden numerischen Rechnungen erreicht werden. Im Einzelnen lassen sich die an das Vorhaben gestellten Anforderungen wie folgt zusammenfassen:

- Aufprägung einer repräsentativen Lasteinwirkung wie beim 9 m Falltest
- Übertragung der Ergebnisse vom Brennstabsegmenten auf einen vollständigen Brennstab
- Möglichkeit der Nachrechnung des Deformationsverhaltens
- Die Eigenschaften der Hüllrohrmaterialien sollen denjenigen bei einem Abbrand zwischen 50 – 75 GWd/tSM entsprechen
- Das Verformungs- und Bruchverhalten der Brennstabsegmente soll unter quasistatischen und dynamischen Belastungsvorgängen messtechnisch charakterisiert werden z.B. über die Angabe von Weg-Kraft-Verläufen
- Das Freisetzungsverhalten soll hinsichtlich der ausgetragenen Masse und Partikelgrößenverteilung sowie der Freisetzungsdynamik erfasst werden.
- Für Untersuchungen an Surrogatsystemen soll eine Versuchsanlage entwickelt, hergestellt und kalt erprobt werden.

Gegenstand dieses Berichts sind die experimentellen Untersuchungen, bei denen unfalltypische Belastungen nachgebildet, Daten über die Verformung d.h. geeignete Kraft-Zeit- bzw. Weg-Zeit-Diagramme als Eingabegrößen für weitergehende FE-

Rechnungen geliefert und die Freisetzung radioaktiven Materials des massenmäßig dominanten Anteils größer 100 µm AED quantifiziert werden. Die Freisetzung der luftgetragenen Fraktion (< 100 µm AED) sollte wegen ihrer generellen Bedeutung für Transportrisikoanalysen wenn möglich zusätzlich quantifiziert werden.

Die Untersuchungsmatrix wurde so ausgelegt sein, dass Aussagen über das Verhalten realer Brennstäbe verschiedener Abbrände möglich sind. Teile der Untersuchungen sollten daher unter Verwendung realer abgebrannter Brennelementsegmente durchgeführt werden.

## **2 Wissenschaftliche und technische Einzelziele**

Die Ziele der vom Fraunhofer ITEM im Verbund zu leistenden Arbeiten sind:

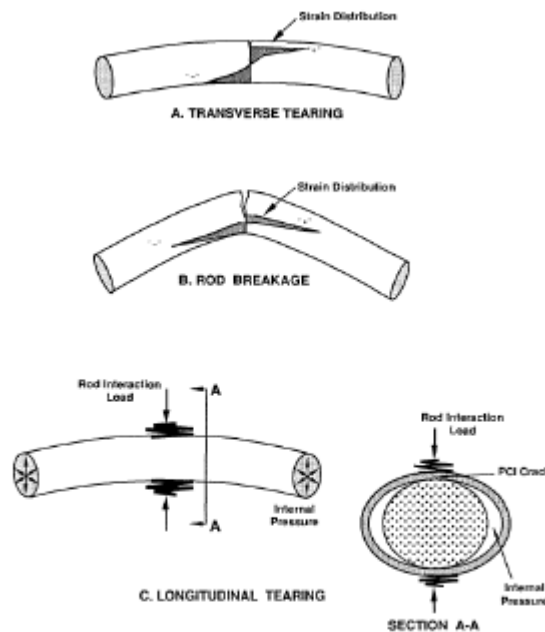
- In Zusammenarbeit mit allen Projektbeteiligten die Entwicklung eines qualifizierten Konzepts des experimentellen Aufbaus zur Belastungssimulation und Messung der Freisetzung.
- Fertigung und Validierung eines experimentellen Aufbaus für die Durchführung von Kaltversuchen.
- Herstellen von Probekörpern unter Verwendung von geeignet auszuwählenden nicht-radioaktiven Surrogatmaterialien.
- Durchführung von Kaltversuchen mit Belastungsmuster nach Vorgabe.
- Ableitung der Konsequenzen und Modifikationen für die Versuchsdurchführung unter Verwendung abgebrannter BE-Segmente in einer heißen Zelle.

## **3 Material und Methoden**

### **3.1 Designkriterien für die Versuchsaapparatur**

Ein Ziel der Untersuchungen ist die Korrelation der Freisetzung mit Schadensbildern, die beim Unfallgeschehen zu erwarten sind. Die Hüllrohrschäden sind in der Sandia-Quelltermstudie in drei Kategorien eingeordnet /SAN 92/: ein transversaler Riss in Umfangsrichtung, ein vollständiger Bruch des Hüllrohrs und ein longitudinaler Riss entlang

der Mantellinie (Abb. 3.1). Die ersten beiden Schäden werden durch Biegebelastung des Stabs erzeugt, das dritte Schadensbild durch Quetschbelastung einander berührender Stäbe innerhalb eines Brennelements. Ein zweites Ziel der Untersuchungen besteht in der Ermittlung von Materialkonstanten der integralen Brennstabprobe über die messtechnische Erfassung mechanischer Größen unter geometrisch und mechanisch möglichst einfacher, gleichzeitig aber realitätsnaher Belastung.



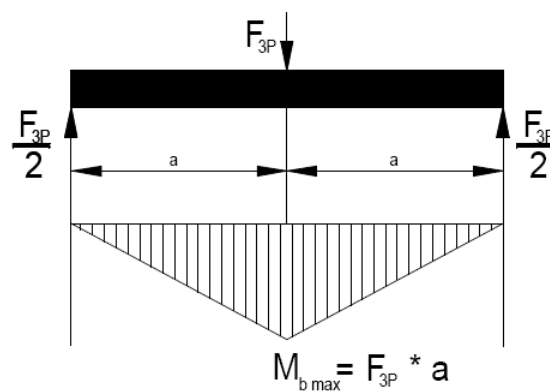
**Abb. 3.1:** Die in der Sandia-Quelltermstudie betrachteten Schadensbildkategorien.

Hier ist es nahe liegend eine Belastung analog zum so genannten Dreipunktbiegetest vorzunehmen (Abb. 3.2). Sie besteht in der mittigen Punktbelastung des an zwei Punkten frei gelagerten Stabs.

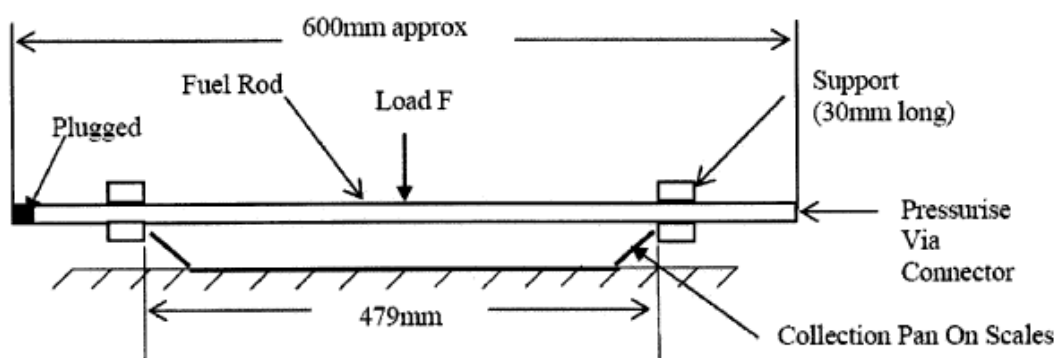
Für diese Konfiguration ist der Zusammenhang zwischen der Belastungskraft,  $F_B$ , beim Durchbruch und der Bruchspannung,  $\sigma_b$ , des Stabs (Durchmesser,  $d$ , Länge zwischen den Auflagerpunkten,  $l$ ) gegeben durch:

$$(1) \quad \sigma_b = \frac{8F_B l}{\pi d^3}$$

Diese Form der Lastbeaufschlagung wurde unter anderem auch im sog. Fuel Integrity Project /DAL, 2005/ gewählt (Abb. 3.3). Hier wurden Probestäbe im Abstand von 479 mm frei gleitend gelagert und mit einer Rolle in der Mitte beaufschlagt. Hüllrohrbruch trat bei einer Belastungskraft im Bereich bis 1.2 kN und einer Durchbiegung von ca. 42 mm auf (Abb. 3.4).

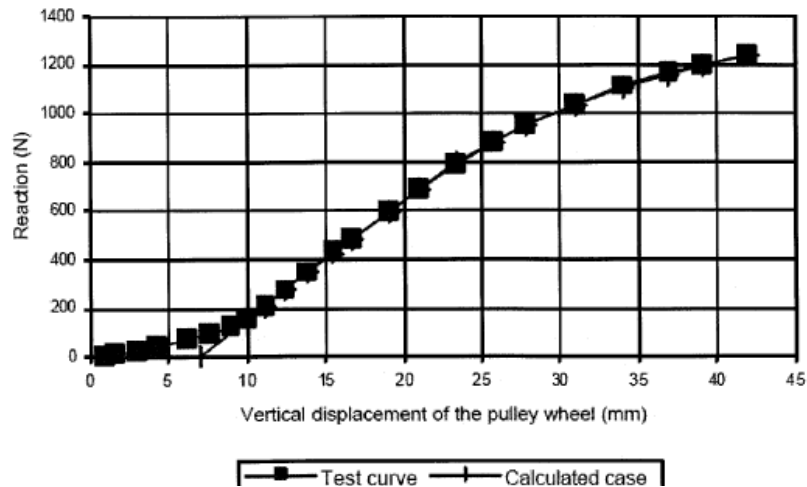


**Abb. 3.2:** Schema des 3-Punktbiegetests



**Abb. 3.3:** Eine der experimentellen Belastungsanordnungen, die im Fuel Integrity Project verwendet wurden.





**Abb. 3.4:** Kraft-Weg-Kurven bei der quasistatischen Belastung eines 600 mm langen Teilstücks eines abgebrannten Brennstabs. Bruchgrenze: 42 mm.

Beim Absturz realer Transportbehälter aus 9 m Höhe und einem horizontalen Aufprall auf ein unnachgiebiges Hindernis erfahren die Brennstäbe Spitzenbeschleunigungen im Bereich zwischen 300 und 400 g /LAN 05/. Auf ein Stabsegment einer Länge von 50 cm, was dem Abstand zwischen den Haltepunkten entspricht, wirkt damit eine Kraft im Bereich zwischen 1 und 1.4 kN. Hierbei wurden ein Innendurchmesser von 0.9 cm und eine Materialdichte von 11 g/cm<sup>3</sup> angenommen. Typische Einwirkzeiten sind 10-20 ms. Quetschbelastungen aufeinander gedrückter Brennstäbe können zu wesentlich höheren Hüllrohrbelastungskräften bis zu 10 kN führen /SAN92/.

Im projektbegleitenden Ausschuss wurde für die durchzuführenden Belastungsversuche eine Anordnung analog zur Abb. 3.3 favorisiert d.h. eine mittige Belastung eines an beiden Enden frei gelagerten Brennstabsegments. Folgende weitere Randbedingungen wurden an die Apparatur gestellt:

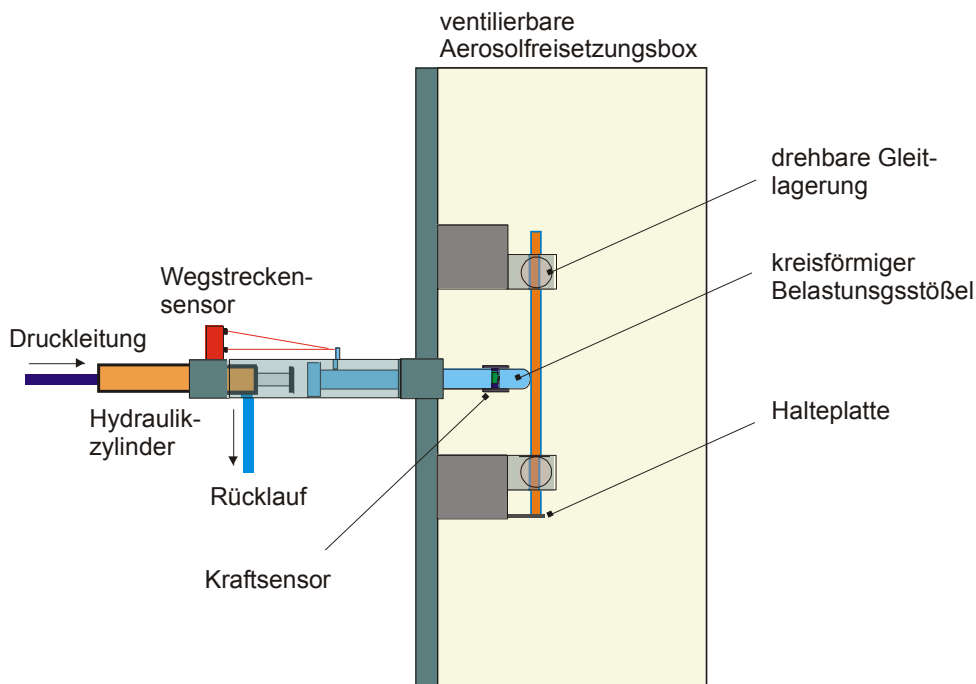
- Aufnahme der üblichen Hüllrohrdurchmesser (zwischen 9.5 und 10.7 mm) und Längen zwischen 200 und 500 mm.
- Flexible Fixiermöglichkeiten der Probestegmente: beidseitig frei gelagert, einseitig fixiert, beidseitig fixiert.
- Reproduzierbare quasistatische und dynamische Belastungssimulation mit maximalen Belastungskräften von 5 kN und Einwirkungszeiten bis zum Hüllrohrversagen von 10-20 ms bei dynamischer Belastung.

- Zeitlich hoch aufgelöste Registrierung von Belastungskraft und Verformung.
- Bestimmung des gesamten freigesetzten Materials und des luftgetragenen Anteils.
- Dokumentation des Versagensvorgangs mittels einer Hochgeschwindigkeitskamera.
- Prinzipielle Eignung für Untersuchungen in einer heißen Zelle

### 3.2 Umsetzung der Belastungsapparatur

#### 3.2.1 Gesamtkonzept

Das Gesamtkonzept umfasst vier unterschiedliche Gewerke: die Belastungsmechanik, die Krafterzeugung, die Messwertaufnahme und –erfassung und die Erfassung und Charakterisierung des freigesetzten Materials. Das Prinzip der Belastungsmechanik ist aus Abb. 3.5 ersichtlich.



**Abb. 3.5:** Schema der Belastungseinheit zur quasistatischen und dynamischen Belastung von Brennstabsegmenten.

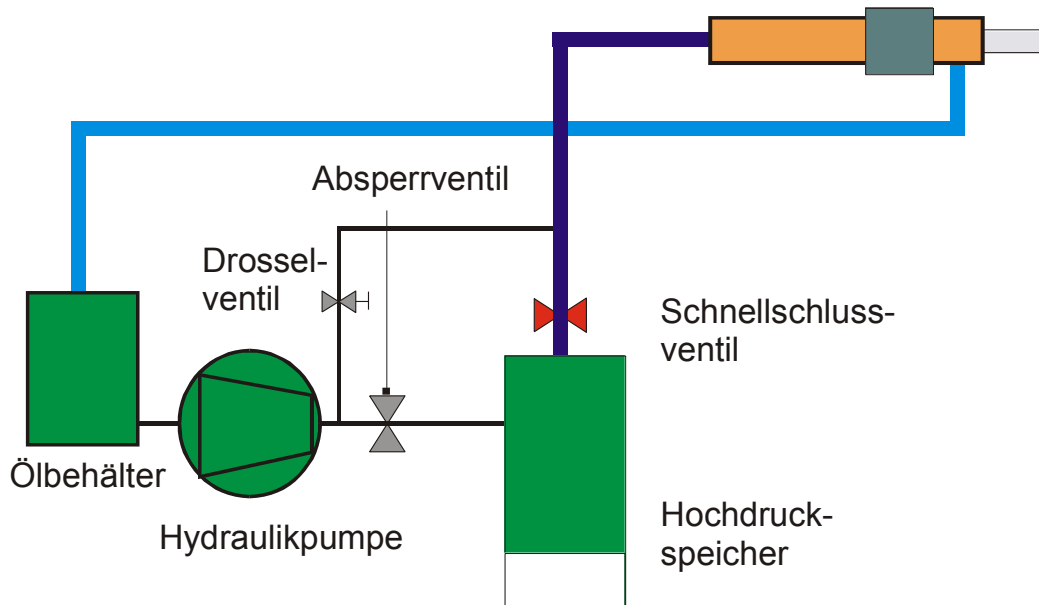
Der Probekörper befindet sich in senkrechter Anordnung innerhalb einer vertikal, ventilierbaren Freisetzungskammer. In diesem Falle ist das Segment oben und unten in einem drehbaren Gleitlager gelagert und wird unten von einer Halteplatte in Position gehalten. Die Probekörperlänge wird in einer ersten experimentellen Phase auf 25 cm festgelegt. Dies ist die Maximallänge für Probekörper, die beim Projektpartner AREVA durch Hydrierung versprödet werden. Die Belastungskraft wird mittig über einen an seinem Ende kreisförmig ausgebildeten Belastungsstößel aufgeprägt. Ein Piezokraftsensor registriert die Reaktionskraft des Probekörpers beim Verfahren des Stößels. Es soll ein Verfahrensweg bis zum Hüllrohrbruch realisierbar sein. Zur Wegstreckenmessung wird ein optisches Triangulationsverfahren verwendet.

Die Belastung erfolgt näherungsweise mit einer konstanten Geschwindigkeit, entweder quasistatisch oder dynamisch in ausreichender Höhe, um ein Hüllrohrversagen innerhalb von 10-20 ms zu realisieren. Geht man von einer Durchbiegung von 5 cm bis zum vollständigen Hüllrohrbruch aus, so müssen die Verfahrensgeschwindigkeiten im Bereich zwischen 2.5 und 5 m/s erzielt werden können.

Der Vortrieb des Stößels wird durch einen Hydraulikstempel induziert. Der Hydraulikstempel hat einen ausreichenden Verfahrensweg von 30 cm, um zunächst auf die gewünschte Endgeschwindigkeit zu beschleunigen und anschließend noch die vorgegebene Belastungsstrecke zurückzulegen. Die maximale Hüllrohrauslenkung ist eine Vorgabe beim Belastungstest. Der vorgegebene Sollwert wird bei voller Auslenkung des Hydraulikstempels erreicht und wird über den Abstand des Hydraulikzylinders vom Belastungsstößel eingestellt. In der Ausgangsposition befindet sich der Stößel unmittelbar am Probekörper.

Das Hydrauliksystem (Abb. 3.6) erlaubt einen quasistatischen (langsamen) und einen dynamischen Betriebszustand. Beim quasistatischen Betrieb wird Öl über ein Drosselventil mit konstanter, geringer Flussrate in den Hydraulikzylinder gepumpt und damit ein langsamer, konstanter Stempelvorschub erzielt. Der Hydraulikzylinder (Zylinderquerschnitt 12.6 cm<sup>2</sup>) generiert bei einem maximalen Pumpendruck von 180 bar eine mehr als ausreichende Stempelkraft von 22 kN. Ein schneller Vorschub wird mit Hilfe eines stickstoffgepufferten Hochdruckspeichers realisiert. Dieser der Puffer wird durch langsames Einfüllen des Öls auf bis zu 180 bar komprimiert. Die Ölfreigabe erfolgt schlagartig beim Öffnen des Schnellschlussventils. Die Dynamik ist durch den Druck-

abfall im Schlauch und den Querschnitten am Ein- und Ausgang des Zylinders bestimmt. Die Schlauchlänge beträgt 3 m. Damit lassen sich im Bedarfsfall Aggregat und Speicher vom Rest der Anlage räumlich getrennt anordnen und betreiben. Derzeit sind Hydrauliksystem, Belastungseinheit mit Probenhalterung sowie die Aerosolbox an einem Rahmen montiert (Abb. 3.7).



**Abb. 3.6:** Hydrauliksystem für die Belastungsuntersuchungen.



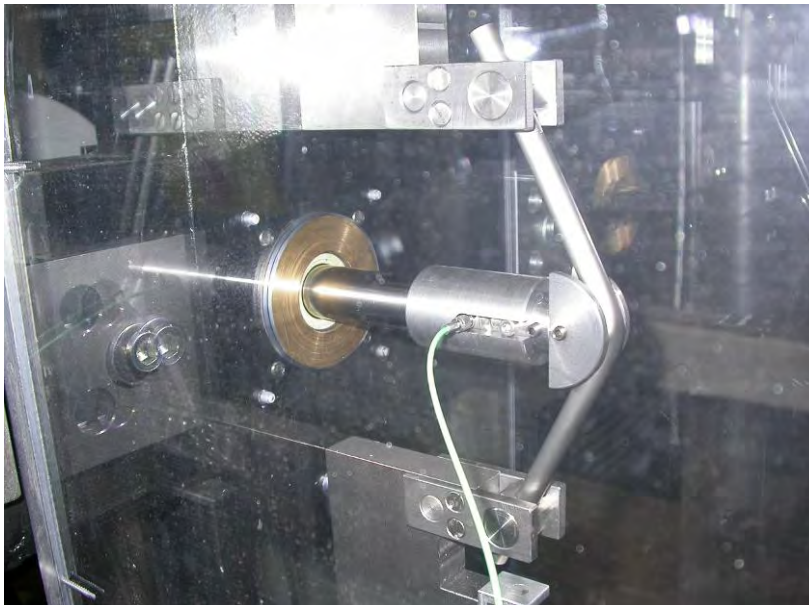
**Abb. 3.7:** Belastungsprüfstand mit Vorrichtung zur Erfassung und Charakterisierung der Freisetzung.

### 3.2.2 Messtechnik und Datenerfassung

Zu Analysenzwecken muss mindestens die Kraft-Verformungskurve mit genügender Genauigkeit und einer Frequenz von 10 kHz erfasst werden, was bei einer Ereignisdauer von 10 ms einer Bereitstellung von jeweils 100 Messpunkten für die Weg-Zeitkurve und die Kraft-Zeitkurve entspricht.

#### 3.2.2.1 Kraftaufnehmer

Als Kraftaufnehmer verwenden wir eine piezoelektrische Messunterlagscheibe der Baureihe 9021 A von Fa. Kistler. Der Messbereich erstreckt sich bis 5 kN. Der Vorteil eines piezokeramischen Sensors besteht im großen Überlastschutz. Auch sehr kleine Kräfte können mit einem Sensor mit großem Messbereich gemessen werden. Die Messunterlagscheiben sind sehr steif und eignen sich daher zum Messen sehr dynamischer Kräfte. Der Sensor befindet sich im vorgespannten Zustand am Ende des Stößels unmittelbar vor der Belastungsklaue (Abb. 3.8), so dass die hinter dem Sensor befindlichen beschleunigten Massen gering sind und das Signal von der Reaktionskraft des Prüfkörpers bestimmt ist.

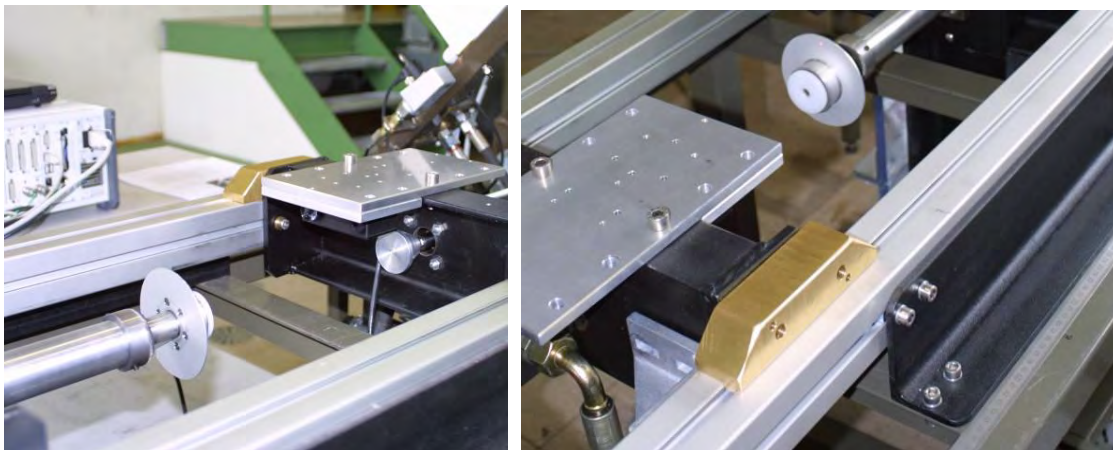


**Abb. 3.8:** Belastungsstößel mit eingebautem Piezo-Kraftsensor und verformtes leeres Hüllrohr.



### 3.2.2.2 Wegmessung

Die Wegmessung erfolgt durch Triangulation mittels eines Hochgeschwindigkeits-Laser-Distanzsensors des Typs AWL7/100 der Fa. Welotec. Auf dem Messobjekt wird ein Lichtpunkt fokussiert, der über ein Objektiv auf einen Positionssensor abgebildet wird. Für die Messung ist nur das diffus reflektierte Licht entscheidend. Mit dem eingesetzten Sensortyp kann eine Strecke von 100 mm mit einer Grenzfrequenz von 10 kHz vermessen werden. Sendelaser und Empfänger befinden sich fest am starren Rahmen der Prüfkörperaufnahme, während der Reflektor am Belastungsstößel montiert ist.



**Abb. 3.9:** Am Rahmen unterhalb der Aluminiumplatte montierte Sende- und Empfangseinheit der Abstandsmessvorrichtung sowie die Reflexionsscheibe mit Lichtpunkt.

### 3.2.2.3 Signalerfassung und Signalverarbeitung

Für die Signalerfassung, -digitalisierung und -speicherung wird das Messdatenerfassungssystem MGCplus der Fa. Hottinger Baldwin Messtechnik eingesetzt. Dieses besteht aus einem Grundgerät mit Stromversorgung, Kommunikationsprozessor und Bedienfeld. Das Chassis bietet Einschubmöglichkeiten von bis zu 16 Messverstärkern. Die Messverstärker sind den jeweiligen hochdynamischen Messaufgaben angepasst. Der Datenexport erfolgt über eine Speicherkarte. Die mitgelieferte Gerätesoftware erlaubt eine universelle Konfiguration von System, Messverstärkern und Messablauf. Die Signale aller Verstärker werden mit einer Verarbeitungsrate von 20 kHz synchron erfasst und abgespeichert, so dass sich aus den hochdynamischen Zeitverläufen der Reaktionskraft und der Auslenkung unmittelbar die Kraft-Weg-Kurve ergibt.

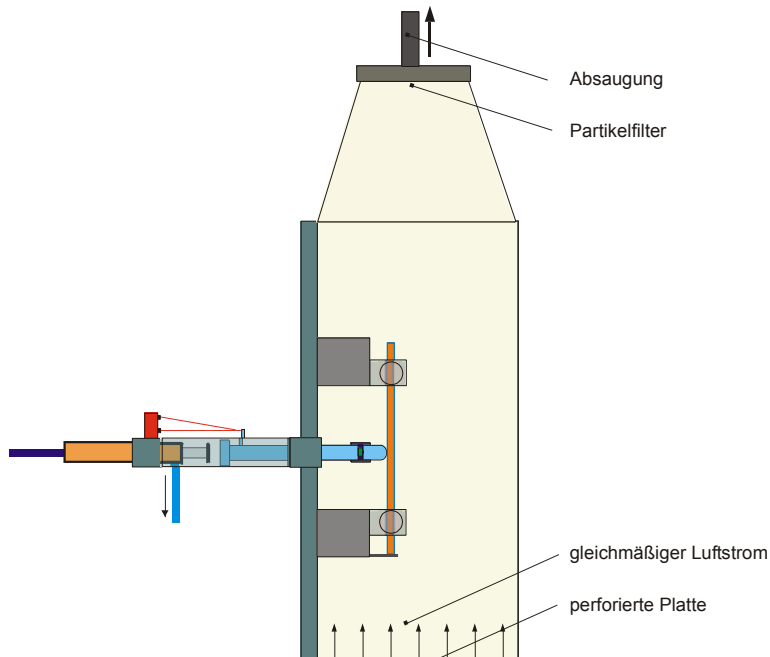
Die Konfigurierung des Systems erfolgt über einen separaten Laptop. (siehe Abb. 3.10).



**Abb. 3.10:** Messdatenerfassungssystem und angeschlossener Bedien-PC.

### 3.2.3 Erfassung des freigesetzten Materials

Das bei der Hüllrohrbeschädigung freigesetzte Material wird in einer ventilierten Aerosolbox erfasst und klassiert. Das Verfahren ist detailliert in /MAE 99/ beschrieben. Im vorliegenden Zusammenhang wird zwischen der luftgetragenen Freisetzung - Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser kleiner  $100\ \mu\text{m}$  - und der nicht luftgetragenen Freisetzung unterschieden. Die Klassierung erfolgt durch Vertikalelutration in der von unten nach oben gleichmäßig durchströmten Aerosolkammer. Die größeren Fragmente fallen auf die untere perforierte Platte, von der sie abgeklopft werden für die anschließende Siebanalyse. Für die Siebanalyse wird das System Analysette 3Pro (Fa. Fritsch) verwendet. Die Fraktion kleiner  $100\ \mu\text{m}$  AED wird mit dem Luftstrom nach oben getragen und einer weiteren Klassierung zugeführt. Im vorliegenden Zusammenhang wird wegen der erwarteten geringen Menge an luftgetragener Freisetzung diese nur integral durch Filtration des Ventilationsluftstroms, nicht weiter größenklassiert, ermittelt.



**Abb. 3.11:** Schematische Darstellung der Apparatur zur Erfassung der Freisetzung.

Bei der Siebung wird nach den Fraktionen  $> 500$ ,  $250-500$ ,  $125-250$  und  $< 125$   $\mu\text{m}$  unterschieden. Bei einer angenommenen Materialdichte von  $5 \text{ g/cm}^3$  für Surrogatinventar und  $11 \text{ g/cm}^3$  für Brennstoff entsprechen für kugelförmige Partikel diesen Siebdurchmessern folgende aerodynamische Partikeldurchmesser (Tab. 3.1).

**Tab. 3.1:** Klassierschema der Siebanalyse

Siebdurchmesser [ $\mu\text{m}$ ]	Aerodynamischer Durchmesser [ $\mu\text{m}$ ]	
	$\rho = 6 \text{ g/cm}^3$	$\rho = 11 \text{ g/cm}^3$
500	1118	1658
250	559	829
125	280	415



### 3.2.4 Video-Aufnahmetechnik

Für ausgewählte Versuche wurde der Verformungs- und Freisetzungsvorgang mit einer Hochgeschwindigkeitsvideokamera vom Typ HG 100-K, Fa. Redlake aufgezeichnet. Die Kamera wurde mit einer Zeitauflösung von 5  $\mu$ sec betrieben. Die Aufnahmen sind als Einzelbilder im JPG-Format abgespeichert.



**Abb. 3.12:** Hochgeschwindigkeitsvideokamera und Lichtquelle zur Dokumentation des Verformungs- und Freisetzungsvorgangs.

### 3.3 Probekörper

Für die Kalterprobungsversuche und die Hauptversuche wurden Hüllrohrsegmente aus unbehandelten, pilgerharten und mit Wasserstoff beladenen Rohren aus Zircaloy-2 (Zry-2) von AREVA-NP GmbH zur Verfügung gestellt. Angaben zu Dimensionen und Duktilitäten über die Bruchdehnungswerte finden sich in Tab. 3.2. Die Bruchdehnungswerte wurden von AREVA NP GmbH in Zugversuchen aus Spannungs-Dehnungskurven ermittelt. Als Inventar wurden Keramiken verwandt, deren Eigenschaften in Tab. 3.3 aufgeführt sind. Die Aluminiumoxidpellets ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) waren im ITEM aus früheren Untersuchungen vorhanden (Bezugsquelle Siemens Framatome). Sie wurden in den Untersuchungen im Wesentlichen als endständige Platzhalter im Hüllrohr verwendet, um den Verbrauch an teuren Zirkon- und Yttriumoxidpellets zur redu-

zieren. Diese wurden von der Fa. Sindlhauser Keramik, Kempten maßhaltig gefertigt, so dass sich ein Spiel zwischen Pellet und Hüllrohr von etwa 170 µm ergibt. In Vorversuchen wurden Zirkonoxidpellets ( $ZrO_2$ ), in den Hauptversuchen die Yttriumoxidpellets ( $Y_2O_3$ ) verwendet. Die Probekörperkonfiguration der Hauptversuche ist in Abb. 3.13 dargestellt.

**Tab. 3.2:** Kenngrößen der Hüllrohrmaterialien

	Außen- durchmesser [mm]	Wandstärke [mm]	Länge [mm]	Bruchdeh- nung [%]
Muster_06	9.5	0.65	250	nicht bekannt
Zry-2 Referenz	10.1	0.62	250	37
Zry-2 pilgerhart	10.1	0.62	250	13
Zry-2 hydriert 1000 ppm	10.1	0.62	250	6

**Tab. 3.3:** Kenngrößen des Hüllrohrinventars

	Außendurchmesser [mm]	Länge [mm]	Dichte [g/cm <sup>3</sup> ]	Biegefestig- keit [MPa]
$Al_2O_3$	7.5	15.0	3.85	-
$ZrO_2$	8.7	10.1	5.75	1200
$Y_2O_3$	8.7	10.1	4.90	150

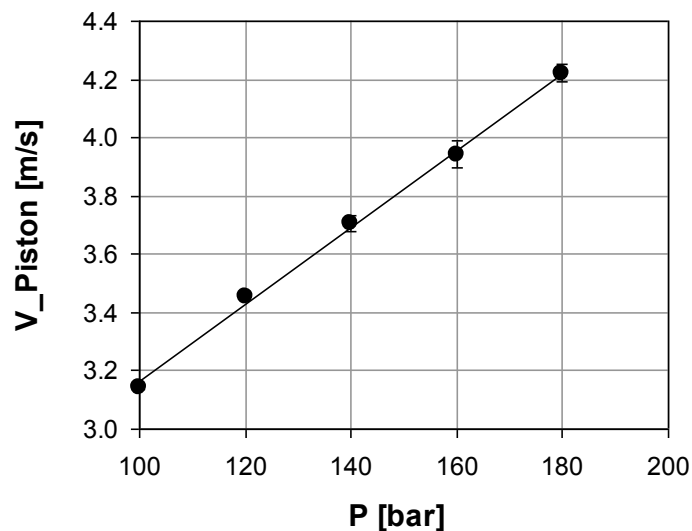


**Abb. 3.13:** Probekörperkonfiguration bestehend aus 9 mittig angeordneten  $Y_2O_3$ -Pellets und jeweils vier endständigen  $Al_2O_3$ -Pellets. Das Rohr ist an beiden Seiten mit Plastikstopfen fest verschlossen. Auf einer Seite wurde der Überstand abgeschnitten, um beim Versuchstand einen bündigen Stand auf der Halteplatte (siehe Abb. 3.5) zu haben und so eine genau mittige Kraftbeaufschlagung zu gewährleisten.

## 4 Durchführung der Versuche und Ergebnisse

### 4.1 Untersuchung zur Dynamik des hydraulischen Belastungssystems

Im Zuge der Qualifizierung des hydraulischen Beaufschlagungssystems wurde zunächst die zu erzielende Verfahrgeschwindigkeit mittels Lichtschrankenmessung gemessen. Hierzu wurden zwei Lichtschranken im Abstand von 10 cm voneinander im Endbereich des Verfahrswegs des Hydraulikzylinders installiert. Es ergab sich ein linearer Zusammenhang zwischen der Verfahrgeschwindigkeit am Ende des Verfahrswegs und dem Öldruck im Druckspeicher. Die Endgeschwindigkeit von 4.2 m/s bedeutet eine Einwirkzeit von 20 ms für die Durchbiegung des Hüllrohrs um 10 cm. Durch Reduzierung des Zylinderdurchmessers von 4 auf 3 cm kann die Verfahrgeschwindigkeit des Stempels um 80 % auf ca. 7.5 m/s erhöht werden. Die Druckkraft des Stempels ist dann immer noch für die Verformung der Probekörper ausreichend. Die geringen Fehlerbalken im Diagramm (Abb. 4.1) belegen eine gute Reproduzierbarkeit der Verfahrvorrichtung.



**Abb. 4.1:** Verfahrgeschwindigkeit des Hydraulikstempels

## 4.2 Untersuchungsprogramm

Das Untersuchungsprogramm teilte sich auf in Vorversuche (Tab. 4.1) zur Erprobung der Anlage und in eine Hauptversuchsserie (

Tab. 4.2) auf der Basis einer zwischen den Beteiligten abgestimmten Untersuchungsmatrix. In den Vorversuchsplan wurde noch eine zusätzliche Konfiguration aufgenommen, nämlich ein Brennstabsegment homogen gefüllt mit sogenannter Gusskeramik (Ceramofix).

Die Erprobungsversuche wurden unmittelbar nach Fertigstellung der Apparatur im Oktober/November 2008 durchgeführt. Die Ergebnisse wurden auf einem von der GRS organisierten internationalen Workshop im ITEM, Hannover präsentiert.

Es stellte sich heraus, dass alle Daten der Erprobungsversuche für die weitergehenden numerischen Untersuchungen genutzt werden können. Bis auf eine kleinere technische Veränderung an der Reflektorscheibe des Triangulationssystems war keine nennenswerte Modifikation der Apparatur nötig.

**Tab. 4.1:** Versuchparameter der Erprobungsversuche

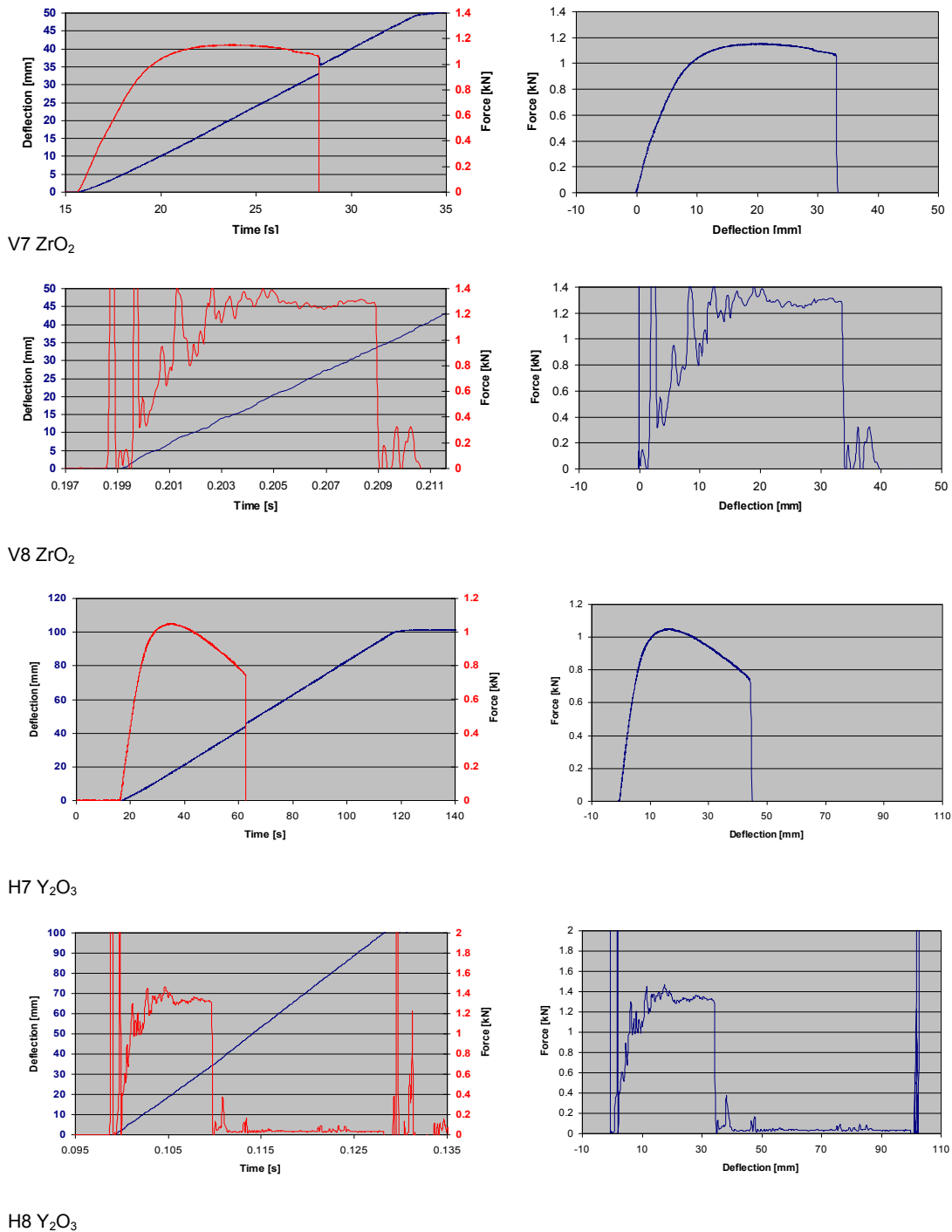
V-Nr.	Hüllrohr-Material	Hydrierung	Füllmaterial	Belastungsform
V1	Muster 06	nein	-	quasi-statisch
V2	Muster 06	nein	-	dynamisch
V3	Muster 06	nein	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
V4	Muster 06	nein	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
V5	Zry-2 pilgerhart	nein	-	quasi-statisch
V6	Zry-2 pilgerhart	nein	-	dynamisch
V7	Zry-2 pilgerhart	nein	ZrO <sub>2</sub> -Tabletten	quasi-statisch
V8	Zry-2 pilgerhart	nein	ZrO <sub>2</sub> -Tabletten	dynamisch
V9	Zry-2 pilgerhart	nein	ZrO <sub>2</sub> -Tabletten	dynamisch
V10	Zry-2 pilgerhart	nein	ZrO <sub>2</sub> -Tabletten	dynamisch
V11	Zry-2 pilgerhart	nein	Ceramofix	dynamisch

**Tab. 4.2:** Untersuchungsmatrix der Hauptversuche

V-Nr.	Hüllrohr-Material	Hydrierung	Füllmaterial	Belastungsform
H1	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H2	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H3	Zry-2 Std.-Qual.	ja	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H4	Zry-2 Std.-Qual.	ja	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H5	Zry-2 Std.-Qual.	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H6	Zry-2 Std.-Qual.	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H7	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H8	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H9	Zry-2 Std.-Qual.	ja	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H10	Zry-2 Std.-Qual.	ja	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H11	Zry-2 Std.-Qual.	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H12	Zry-2 Std.-Qual.	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch
H13	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	quasi-statisch
H14	Zry-2 pilgerhart	nein	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Tabletten	dynamisch

### 4.3 Ergebnisse

Für alle Versuche wurde der Kraft- und der Weg-Zeitverlauf aufgenommen und daraus eine Weg-Kraft-Kurve erstellt. Bei insgesamt drei Vorversuchen und bei allen Hauptversuchen wurde die Freisetzung quantifiziert. Beispiele der Kurven der mechanischen Messgrößen sind in der nachfolgenden Abb. 4.2 dargestellt. Für die Vorversuche wurde die maximale Durchbiegung auf 50 mm beschränkt. Für die Hauptversuche wurde das System auf eine maximale Durchbiegung von 100 mm umgestellt.



**Abb. 4.2:** Weg-Zeit und Kraft-Zeit-Diagramme sowie Kraft-Weg-Diagramme für die Experimente V7, V8 und H7, H8 mit pilgerharten Zry2-Hüllrohren und Füllmaterial aus ZrO<sub>2</sub> bzw. Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

In allen Experimenten ist eine konstante Vorschubgeschwindigkeit realisiert, d.h. das Brennstabsegment hat keinen Einfluss auf die Charakteristik der Kraftbeaufschlagung.

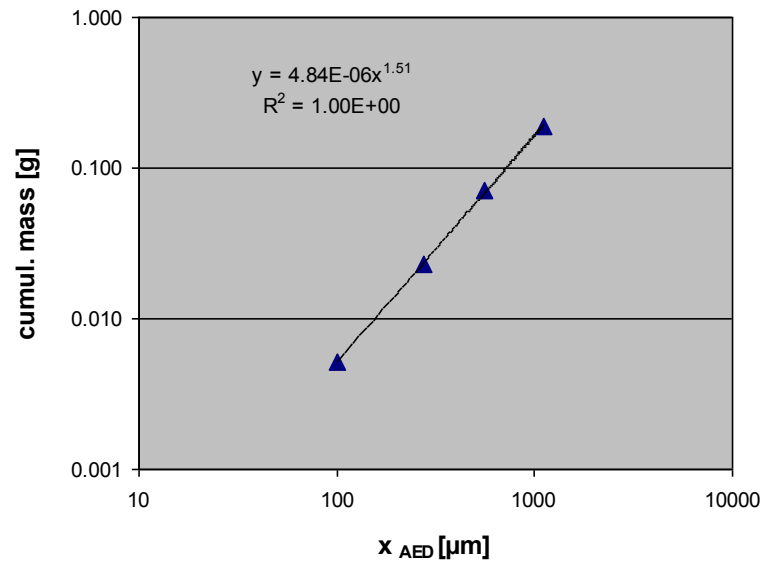
Die dynamischen Versuche wurden bei einem Vordruck im Druckspeicher von 120 bar vorgenommen. Aus dem Weg-Zeitverlauf wird eine Vorschubgeschwindigkeit von 3.47 m/s bestimmt, was gut mit den Lichtschrankenmessungen beim unbelasteten Stempel (siehe Abb. 4.1) übereinstimmt.

Insbesondere bei den quasistatischen Belastungen ist der Übergang vom elastischen, über das elastisch-plastische und irreversibel plastische Verhalten bis hin zum Bruch klar zu verfolgen. Bei der Kraftmessung in den dynamischen Versuchen sind im elastischen bzw. elastisch-plastischen Bereich ausgeprägte Schwingungen vorhanden, die auf die Trägheit und die elastischen Eigenschaften der Prüfvorrichtung, die Einspannung des Probekörpers etc. zurückzuführen sind. Die Bruchgrenze und die zugehörige Reaktionskraft am Ende des plastischen Verhaltens lassen sich aber dennoch mit ausreichender Genauigkeit erfassen.

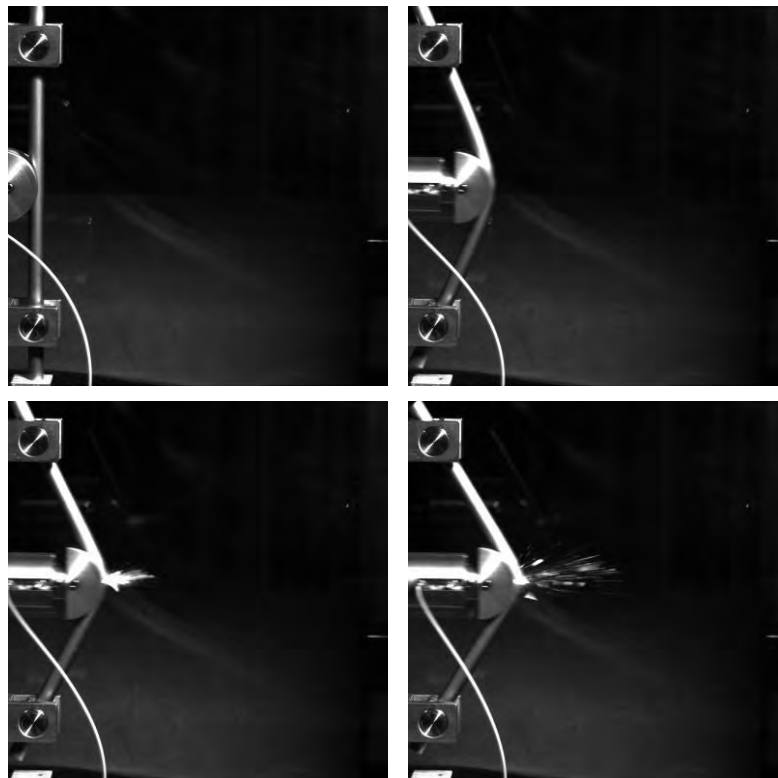
Bei dynamischer Belastung sind Bruchgrenze (Durchbiegung beim Versagen) und zugehörige Reaktionskraft für beide keramische Materialien trotz ihres erheblichen Unterschieds in der Biegefestigkeit (1200 MPa für  $ZrO_2$  und 150 MPa für  $Y_2O_3$ ) nahezu identisch: Bruchgrenze 33 mm, Reaktionskraft 1.3 kN (siehe auch Tab. 4.3 und Tab. 4.4 ). Bei langsamer Verformung ist der plastische Verformungsbereich beim „weicheren“ Inventar ausgedehnter und die Bruchgrenze erhöht sich von 33 mm auf 44 mm.

Die Materialfreisetzung wurde bei allen Hauptversuchen und einigen Vorversuchen mit dem in 3.2.3 beschriebenen Verfahren quantifiziert und in Form einer kumulierten Massenverteilung  $m$  als Funktion des aerodynamischen Durchmessers  $x_{AED}$  dargestellt. Der untere Wert ergibt sich aus der Wägung des Filters der Klassiereinheit, die anderen drei aus der Auswertung der Siebanalyse. An die Daten wurde eine Potenzfunktion der Form  $m = A x_{AED}^b$  angepasst (siehe Abb. 4.3). In allen Fällen ist der Korrelationskoeffizient besser als 0.97. In allen Experimenten der Hauptversuchsserie konnte die Massenbilanz, die sich aus der Rückwägung des Brennstabsegments und der Fragmente ergibt, bis auf wenige Milligramm geschlossen werden.

Die Abb. 4.4 zeigt beispielhaft Einzelbilder der Hochgeschwindigkeitsvideosequenz bei der dynamischen Belastung von pilgerharten Zry-2 Rohren gefüllt mit  $ZrO_2$ -Tabletten. Die Freisetzung von Fragmenten erfolgt mit etwa der doppelten Hüllrohrverformungsgeschwindigkeit.



**Abb. 4.3:** Kumulierte Verteilung der freigesetzten Masse (H13).



**Abb. 4.4:** Hüllrohrversagen und Materialfreisetzung bei dynamischer Belastung. Zeitabstand zwischen den Aufnahmen: 100 µs (ZrO<sub>2</sub> in pilgerhartem Zry2-Rohr).



Die Ergebnisse aller Versuche d.h. Reaktionskraft und Durchbiegung beim Hüllrohrversagen, luftgetragene und nicht luftgetragene Freisetzung sowie die Parameter der Fragmentgrößenverteilung sind in Tab. 4.3 und Tab. 4.4 zusammengefasst.

**Tab. 4.3:** Zusammenfassung der Ergebnisse der Vorversuche

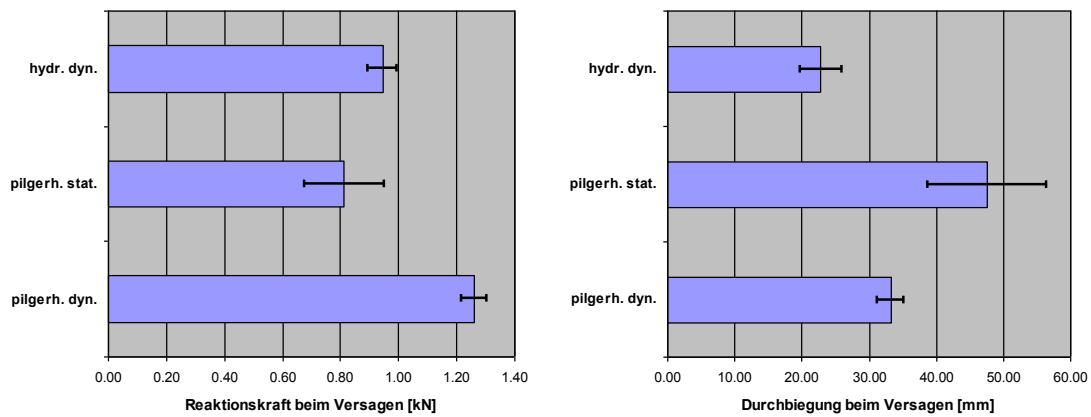
Nr.	Bruchkraft [kN]	Bruchdurchbiegung [mm]	Freisetzung			
			$m_{<100\mu\text{m}}$ [mg]	$m_{>100\mu\text{m}}$ [mg]	A	b
V1	-	-	-	-	-	-
V2	-	-	-	-	-	-
V3	0.81	31.7	-	-	-	-
V4	0.95	32.1	-	-	-	-
V5	-	-	-	-	-	-
V6	-	-	-	-	-	-
V7	1.06	33.1	-	-	-	-
V8	1.25	33.2	-	-	-	-
V9	1.29	33.4	3.27	1486	1.55E-06	1.67
V10	1.30	34.4	3.30	360	5.63E-06	1.37
V11	-	-	-	-	-	-

**Tab. 4.4:** Zusammenfassung der Ergebnisse der Hauptversuche

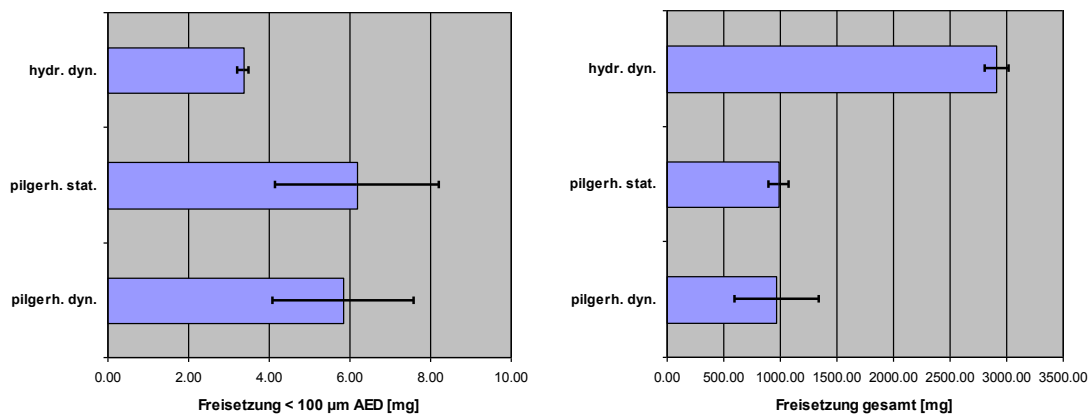
Nr.	Bruchkraft [kN]	Bruchdurchbiegung [mm]	Freisetzung			
			$m_{<100\mu\text{m}}$ [mg]	$m_{>100\mu\text{m}}$ [mg]	A	b
H1	0.97	57.7	8.54	881	8.66E-06	1.51
H2	1.24	34.6	7.64	1402	8.30E-06	1.49
H3	-	-	-	-	-	-
H4	0.98	20.6	3.47	2840	1.91E-06	1.63
H5	-	-	-	-	-	-
H6	-	-	-	-	-	-
H7	0.73	44.1	4.86	1045	2.73E-06	1.62
H8	1.31	34.0	5.77	730	8.03E-06	1.40
H9	0.15	79.3	7.27	1766	7.53E-06	1.50
H10	0.91	25.1	3.27	2991	1.83E-06	1.65
H11	-	-	-	-	-	-
H12	-	-	-	-	-	-
H13	0.74	41.0	5.16	1040	4.84E-06	1.51
H14	1.23	31.0	4.13	783	2.67E-06	1.59

Bei Experimenten mit Spiegelstricheintragungen wurde kein Hüllrohrversagen erzielt. Dies trifft für leere Rohre zu, sowie für das mit  $Y_2O_3$ -Tabletten gefüllte Standard Zry-2-Referenzmaterial. Für das hydrierte Hüllrohrmaterial wurde nur im dynamischen Lastfall ein Hüllrohrversagen reproduzierbar induziert. Die Verformungskurven und die Schadensbilder aller Hauptversuche befinden sich im Anhang.

Eine Übersicht der wichtigsten Ergebnisse für die mechanischen Kenngrößen und die Materialfreisetzung bei allen Versuchen, in denen ein Hüllrohrversagen auftrat, geben die nachfolgenden Graphiken (Abb. 4.5. und Abb. 4.6).



**Abb. 4.5:** Mechanische Kenngrößen der Belastungsversuche

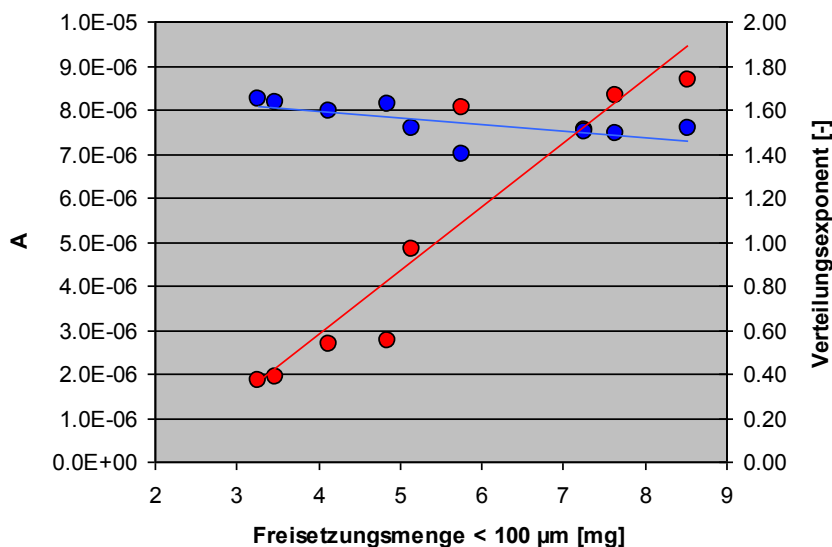


**Abb. 4.6:** Daten zur luftgetragenen und nicht luftgetragenen Materialfreisetzung.

Die größere Sprödigkeit der hydrierten Rohre äußert sich zum einen in geringeren Werten der Durchbiegung und der Reaktionskraft gegenüber dem pilgerharten Material. Zum anderen ist die gesamte Materialfreisetzung deutlich höher. Dies ist auf ein

sehr unterschiedliches Schadensbild zurückzuführen. Während beim pilgerharten Material saubere Umfangsbrüche auftreten, ist der Bruch des hydrierten Materials mit einem ausgeprägten axialen Aufplatzen des Hüllrohres verbunden (siehe Fotos im Anhang für H4 und H10). Dies führt zur Freisetzung größerer Fragmente, die beim Bruch des pilgerharten Materials im Verbund innerhalb des Hüllrohrs verbleiben. Die luftgetragene Freisetzung beträgt bei Belastung des hydrierten Materials nur ca. die Hälfte der Freisetzung beim pilgerharten Material. Dies kann auf einen entsprechend geringeren Energieeintrag in die Keramik zurückzuführen sein. Insgesamt wird ein Materialäquivalent von einem Keramikpellet freigesetzt.

Der Exponent der Größenverteilung liegt mit einem Wert um 1.5 signifikant oberhalb von 1, den man für einen Hochgeschwindigkeitsaufprall (hoher spezifischer Energieeintrag) verbunden mit einer vollständigen Zerkleinerung des Pellets erwartet. Über die Zunahme des Größenverteilungsexponenten bei sehr geringem Energieeintrag wird auch in /NOL 06/ und /CHI 99/ berichtet. Messungen von Nolte an Cordierit und Aluminiumoxid ergeben Werte von 1.6 bzw. 1.4. Die Werte  $A$  und  $\nu$  der Massenverteilung der Fragmente sind als Funktion der luftgetragenen Freisetzungsmenge in Abb. 4.7 aufgetragen. Erwartungsgemäß steigt  $A$  mit zunehmender Feinstaubmenge an, da  $M < 100$  den unteren Punkt der kumulierten Massengrößenverteilung darstellt. Für den Verteilungsexponent ist ein abfallender Trend mit der Feinstaubmenge, d.h. Zunahme der Fragmentierung, erkennbar.



**Abb. 4.7:** Parameter der Fragmentgrößenverteilung als Funktion der Feinstaubmenge.

## 5 Diskussion

Mit der im ITEM entwickelten Vorrichtung können Segmente von Brennstabsurrogaten reproduzierbar belastet werden. Dabei kann das dynamische Verhalten, wie es im Falle eines Absturzes des Transportbehälters zu erwarten ist, realitätsnah nachgebildet werden. Die im Vorhaben vorgesehene Diagnostik erlaubt eine zeitlich hoch aufgelöste Erfassung der integralen mechanischen Kenngrößen: Reaktionskraft und Durchbiegung des Probekörpers. Die Materialfreisetzung kann vollständig charakterisiert werden. Im Projekt wird zwischen der luftgetragenen Freisetzung ( $<100\mu\text{m AED}$ ) und der nicht luftgetragenen Freisetzung unterschieden.

Unter dynamischen Belastungssituationen wurde bei den versprödeten Hüllrohrmaterialien immer ein komplettes Hüllrohrversagen induziert und zwar für eine Durchbiegung kleiner als 40 mm. Pilgerharte Rohre entwickeln einen glatten Umfangsbruch, während die hydrierten Proben zusätzlich über eine Länge von ca. 1 cm einen axialen Riss in der Mantelfläche aufweisen.

Ein Massenäquivalent von etwa einer Tablette wird beim Versagen freigesetzt. Die Feinstaubmenge beträgt wenige Milligramm. Die Massenverteilung ist in guter Übereinstimmung mit früheren Ergebnissen zum Bruch sprödbrechender Materialien bei niedrigem Energieeintrag. Die kumulierte Verteilung als Funktion des aerodynamischen Durchmessers folgt einem Potenzgesetz mit einem Exponenten mit Wert von ca. 1.5.

Im Vorhaben konnten wesentliche Punkte noch nicht bearbeitet werden. Dazu gehören insbesondere die Einflüsse der mechanischen Eigenschaften des Hüllrohrinventars, der Spaltgröße zwischen Pellet und Hüllrohr, eine eventuelle Vorfragmentierung des Inventars sowie eine Variation der Dynamik der Belastung.

Weiterhin wäre eine weitergehende Analyse des in den Transportbehälter freigesetzten Materials im lungengängigen Partikelgrößenbereich für die Bewertung des Risikos der störfallbedingten Freisetzung aerosolgebundener Radioaktivität in die Umwelt von Interesse. Prinzipiell ist das mit der verwendeten Klassierapparatur möglich, erfordert aber einen höheren analytischen Aufwand, da die zu erwartenden geringen Probenmengen

nicht mehr durch Wägung bestimmt werden können, sondern ein chemischer Nachweis erforderlich ist.

## 6 Literaturangaben

/CHI 99/ Ching, E.S.C., Yiu, Y.Y., Lo, K.F. Energy dependence of mass distribution in fragmentation, *Physica A* 265, 119, 1999

/DAL 05/ Dallengfeville, M., Werle, J, McCreesh, G. *Fuel integrity project: Analysis of results of tests on light water reactor fuels*. RAMTRANS, 16, 2005

/LAN 05/ F. Lange, G. Schwarz, E. Hörmann und W. Koch, SR 2497, Erfassung, Bewertung und Fortentwicklung der sicheren Beförderung radioaktiver Stoffe, Mechanische Unfallbelastungen beim Transport von frischen und abgebrannten Brennelementen, Arbeitsbericht zum Vorhaben SR 2497 (Arbeitspunkt 4.4.6.2), GRS, November 2005

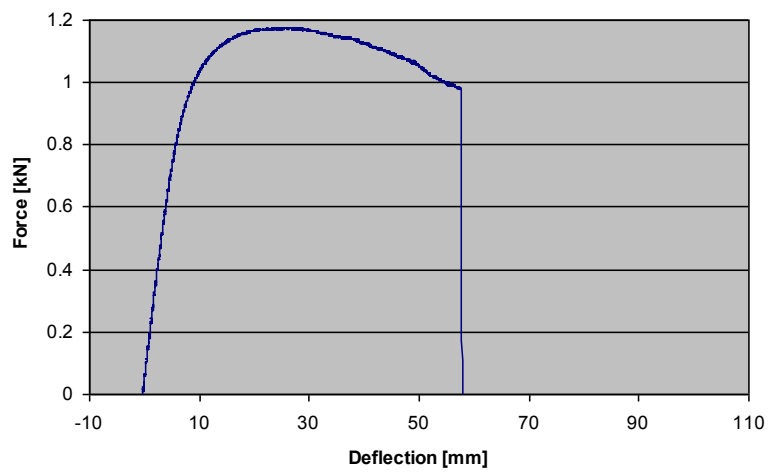
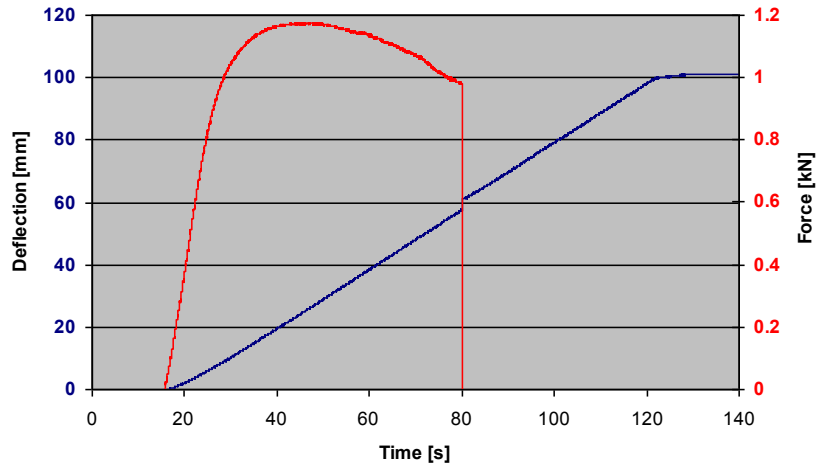
/NOL 06/ Nolte, O. Zur Phänomenologie der Feinstaubentstehung bei transientem mechanischem Energieeintrag in ungeordnete Festkörper, Diss. Univ. Clausthal-Zellerfeld, 2006

/MAE 99/ Mädler, L., Koch, W., Lange, F., Husemann, K.: In-situ aerodynamic size classification of aerosols in the size range between 0.1 and 100 µm for dustiness tests and powder characterization. *J. Aerosol Sci.*, 30, 451, 1999

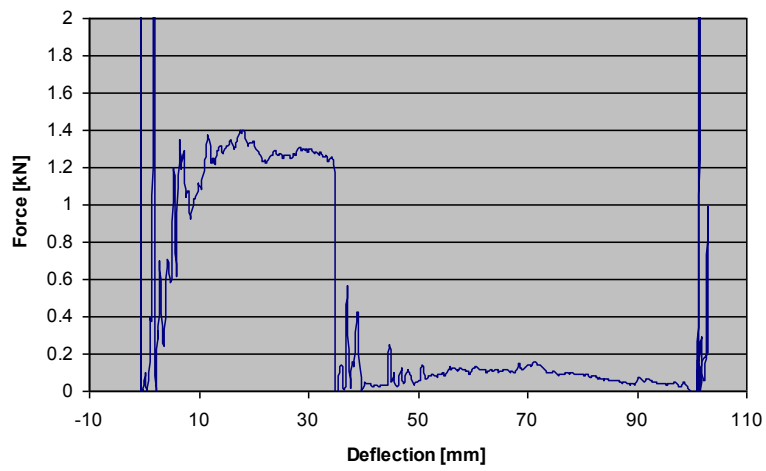
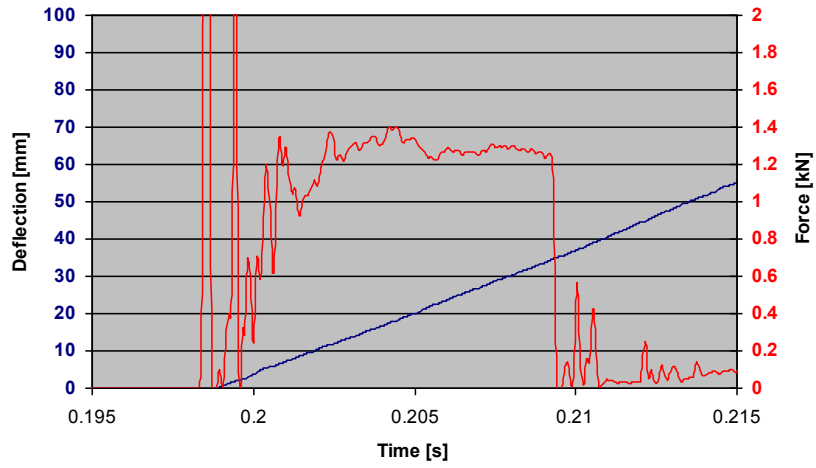
/SAN 92/ T.L. Sanders et al.: A Method for Determining the Spent-Fuel Contribution to Transport Cask Containment Requirements SAND90-2406, November 1992

## 7      **Detaildokumentation der Belastungsexperimente**

H1:

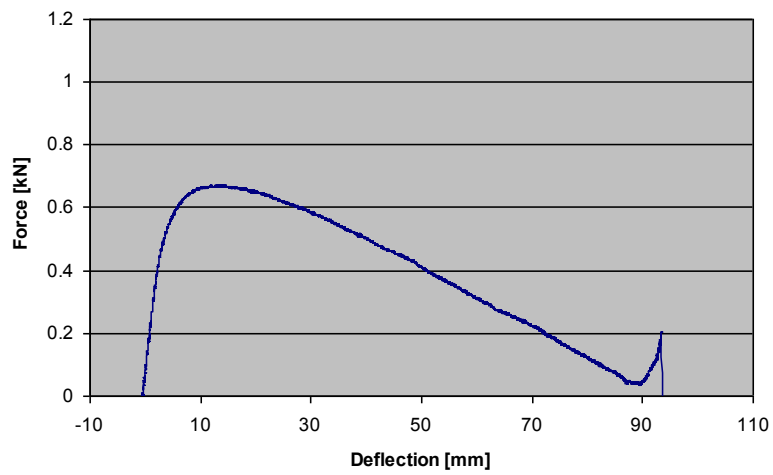
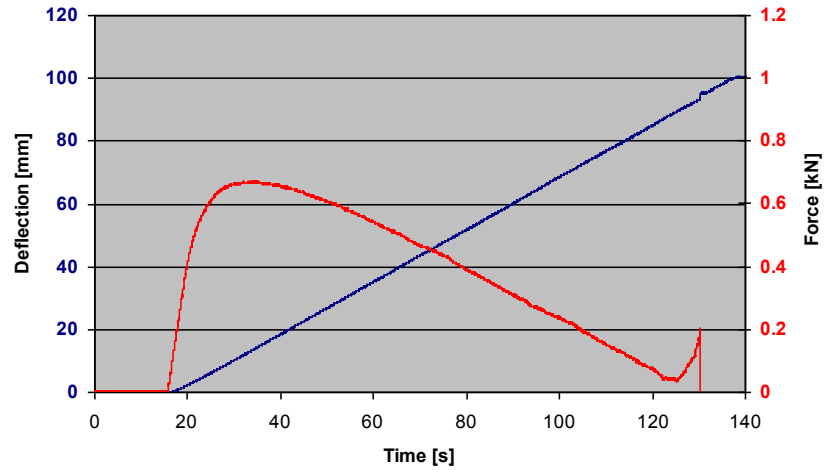


H2:

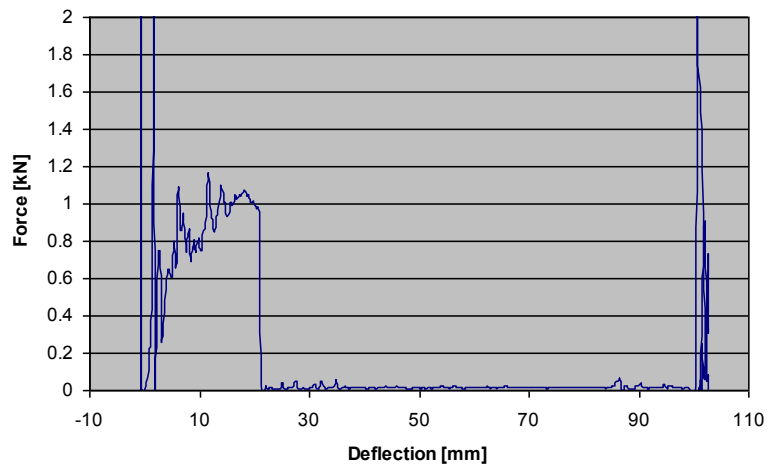
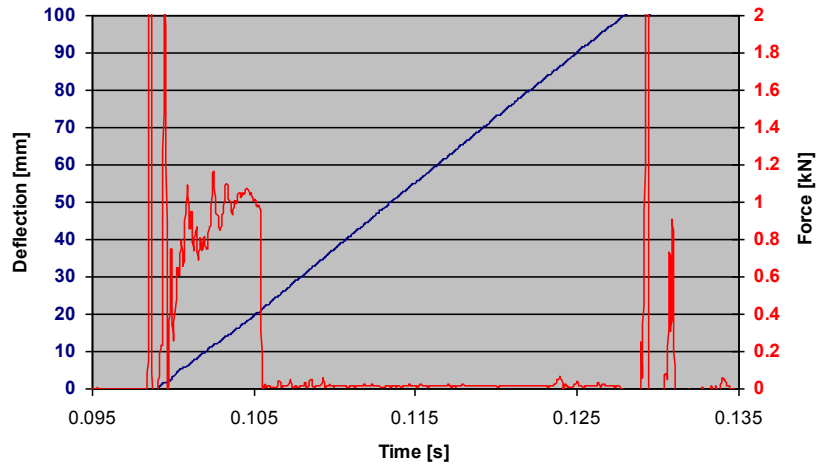




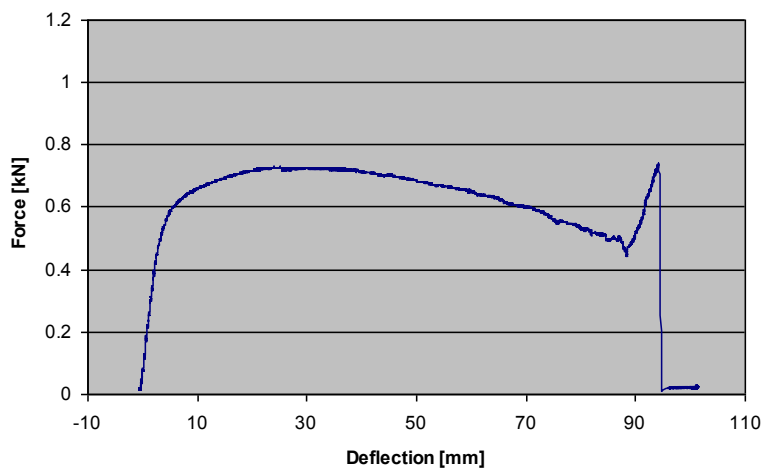
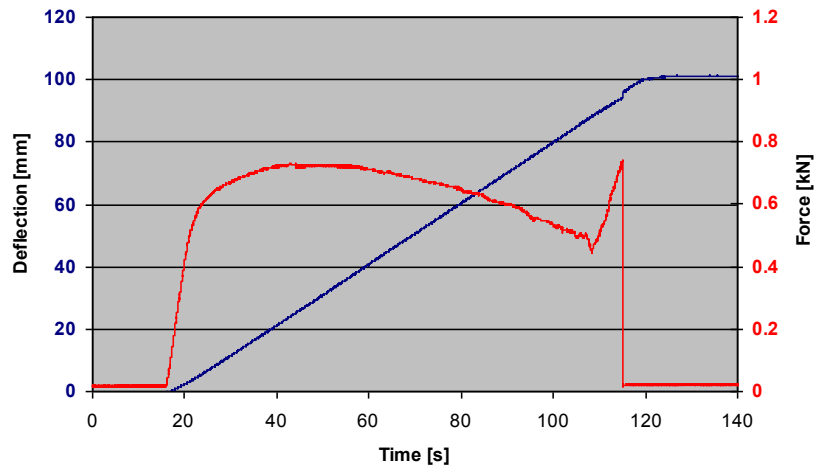
H3:



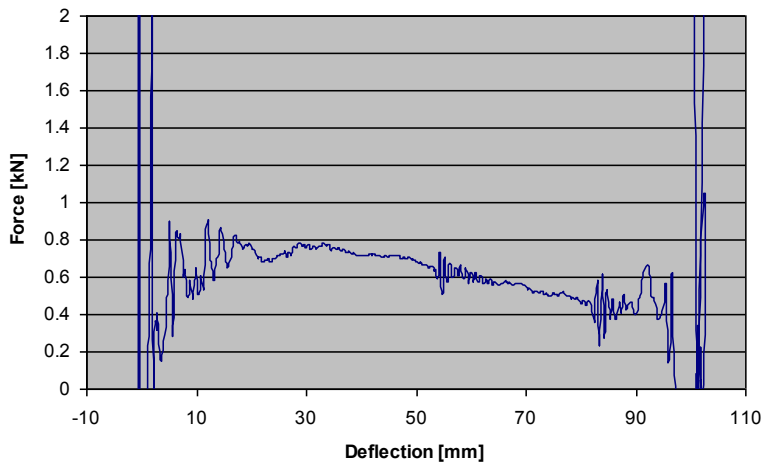
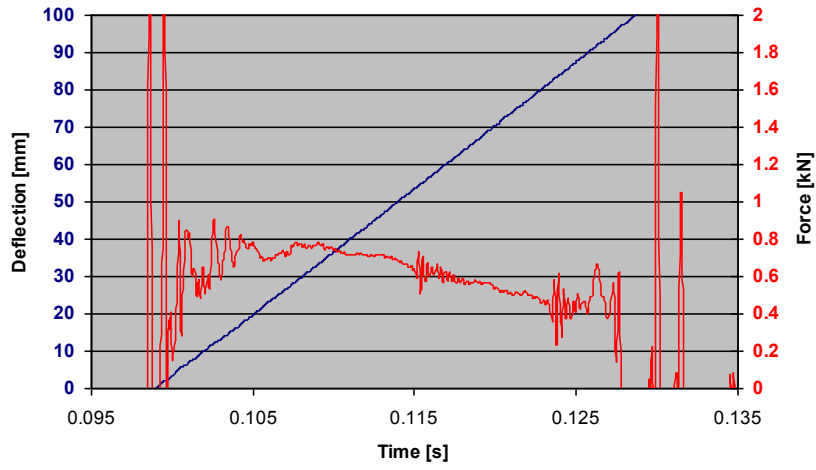
H4:



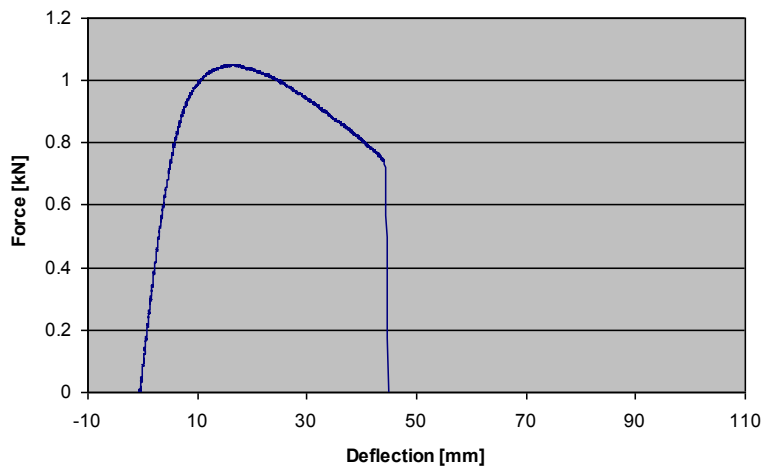
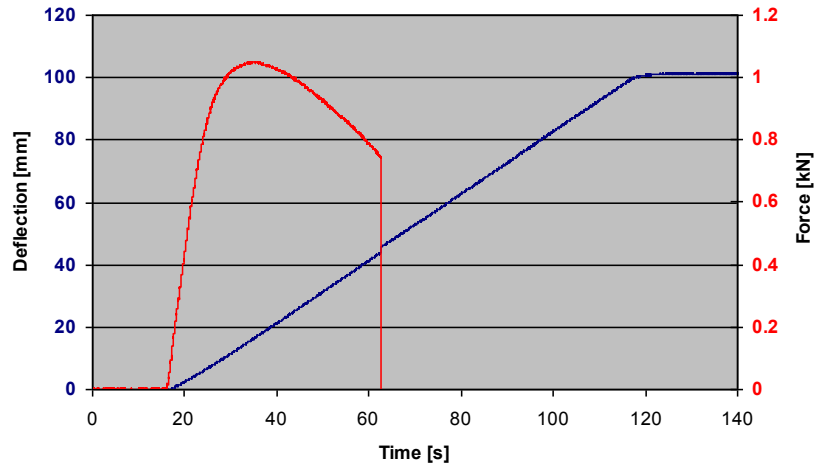
H5:



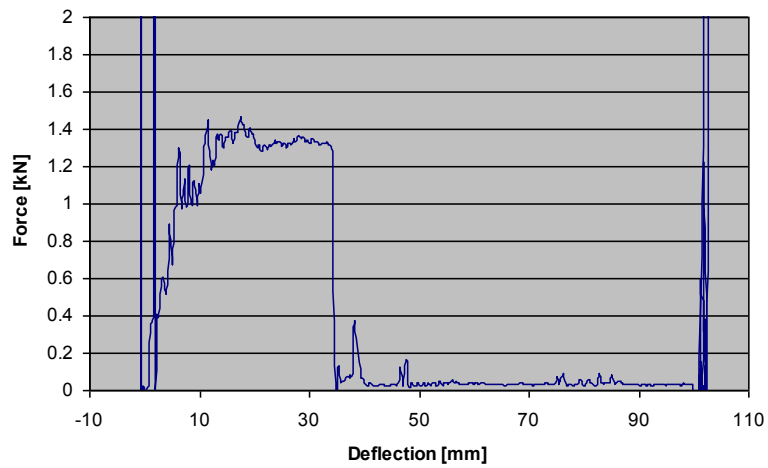
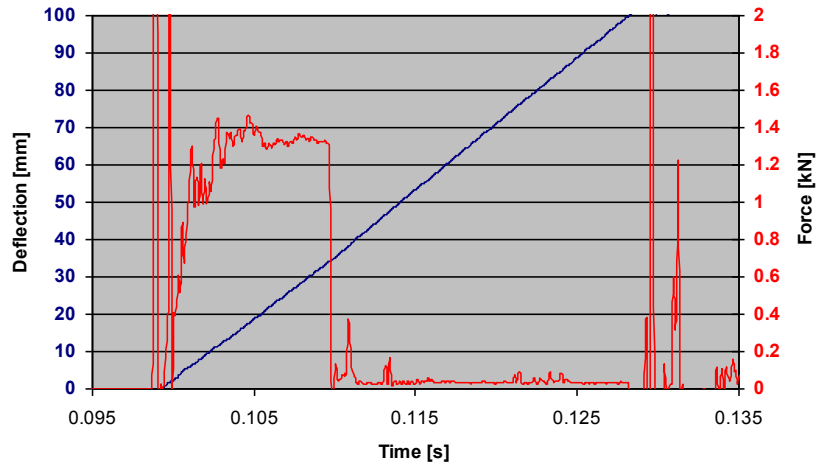
H6:



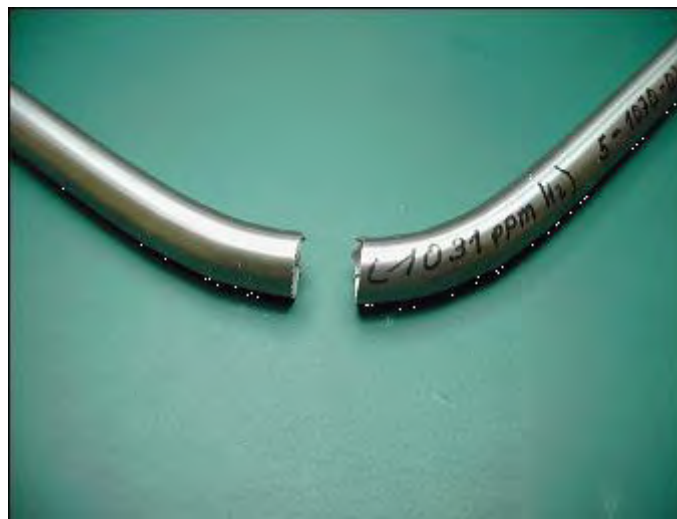
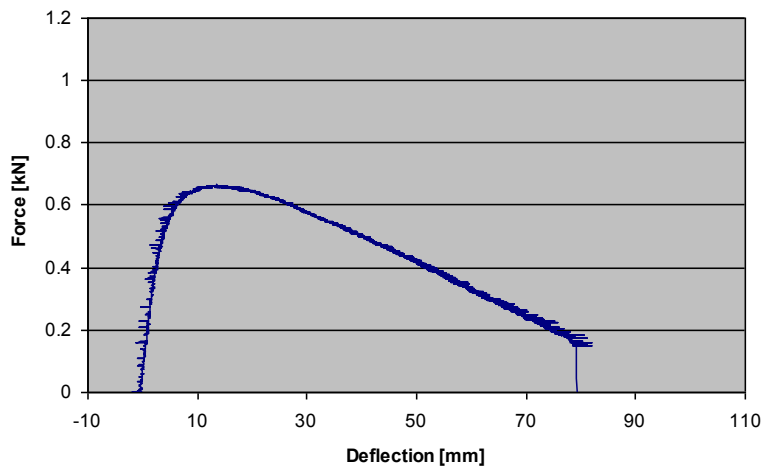
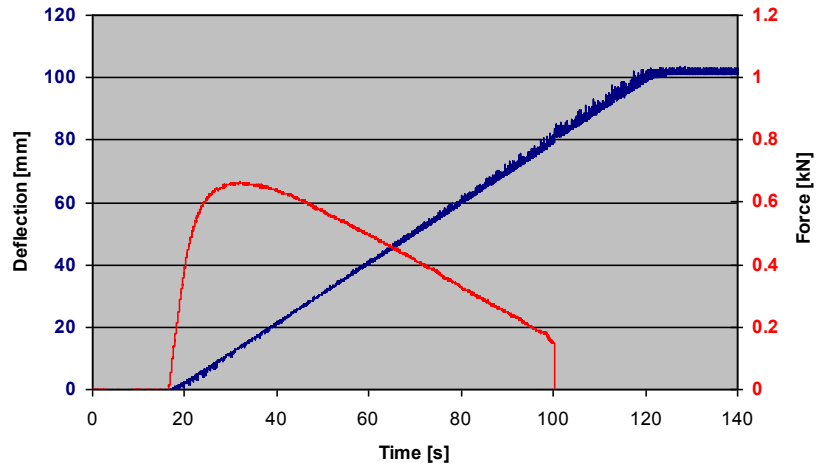
H7:



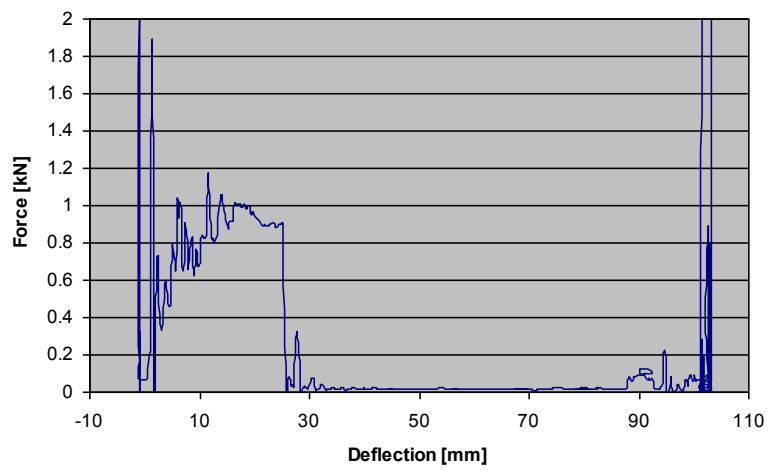
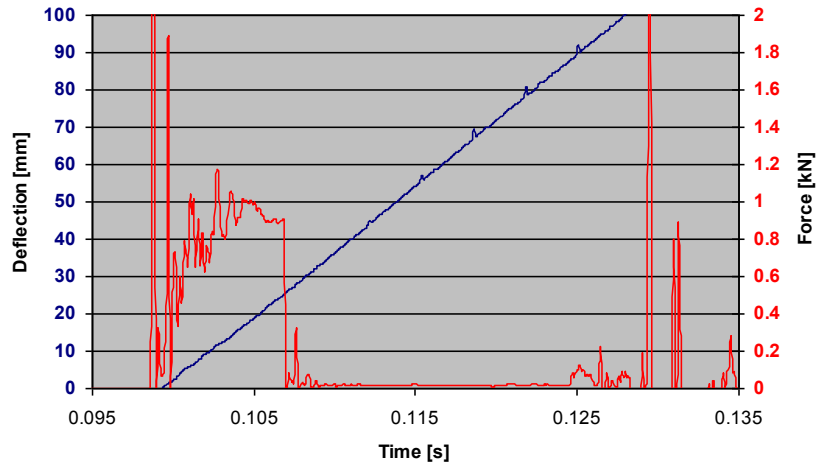
H8:



H9:

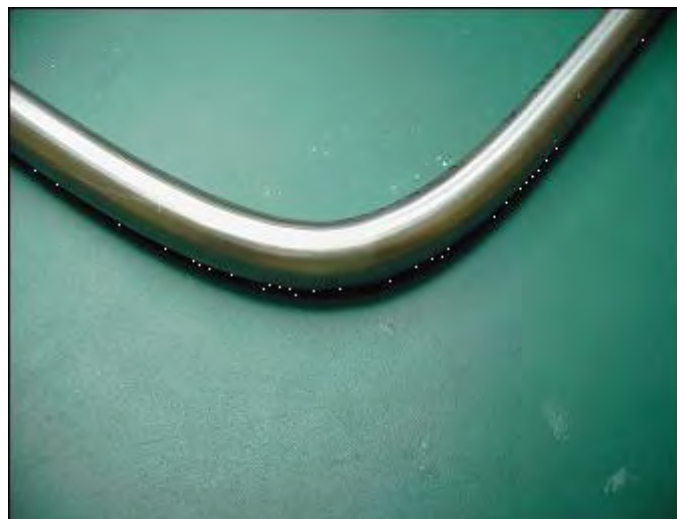
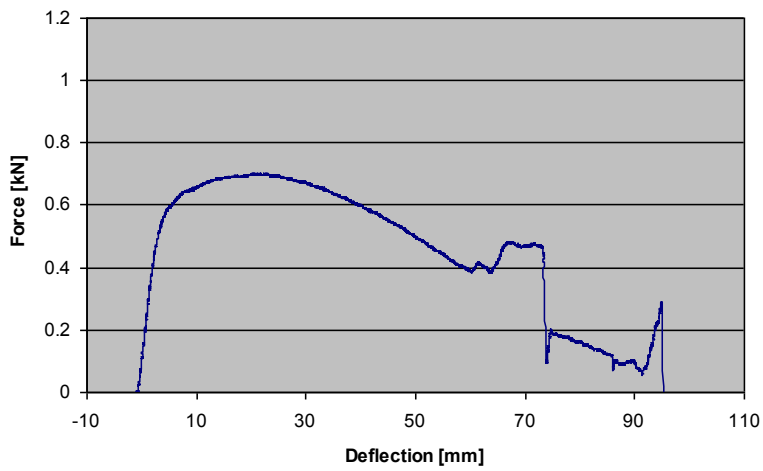
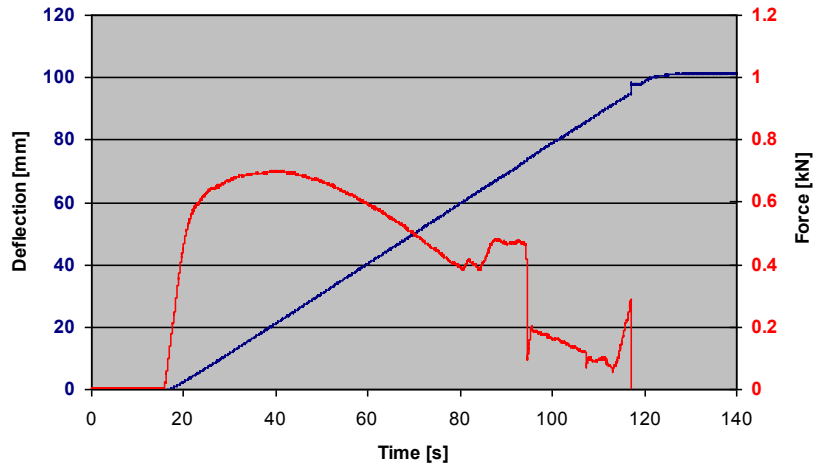


H10:

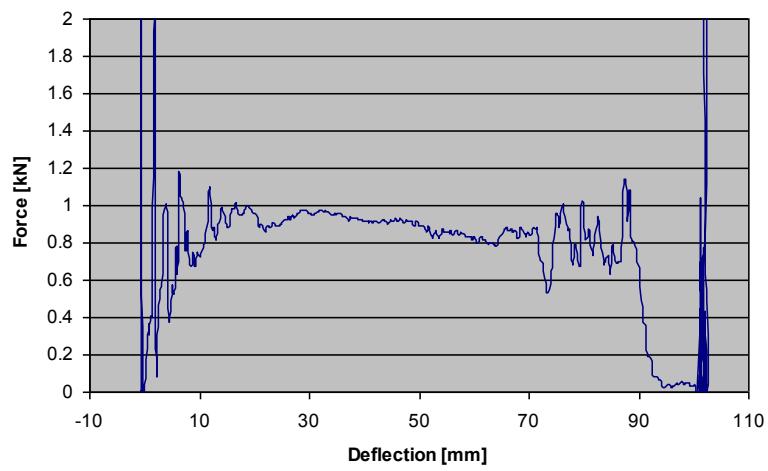
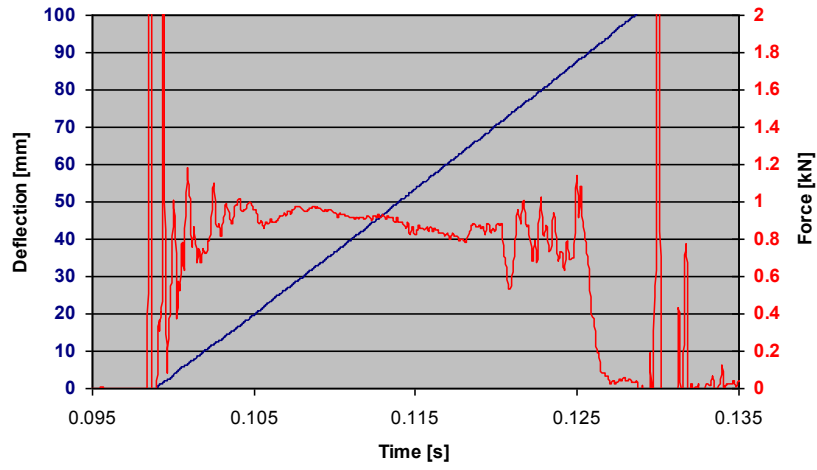




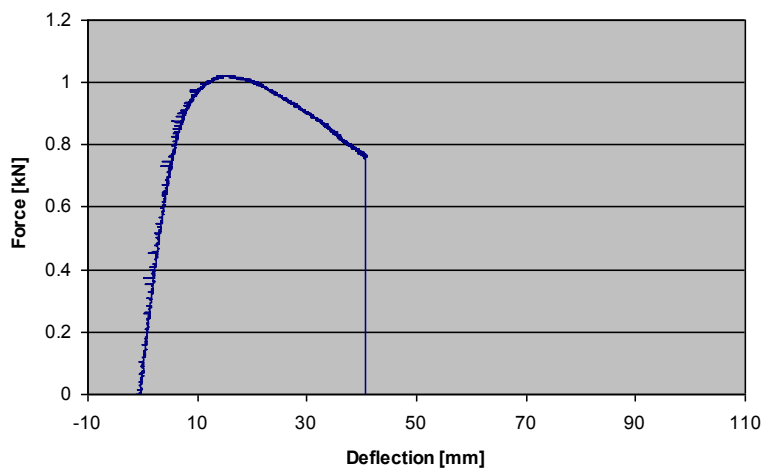
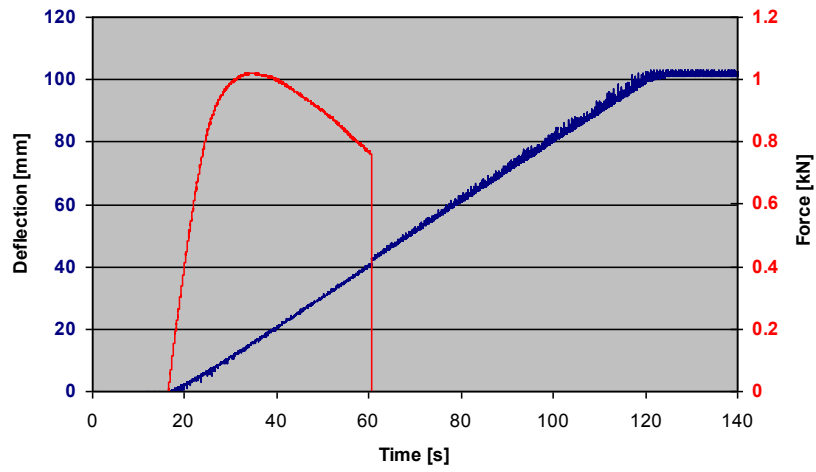
H11:



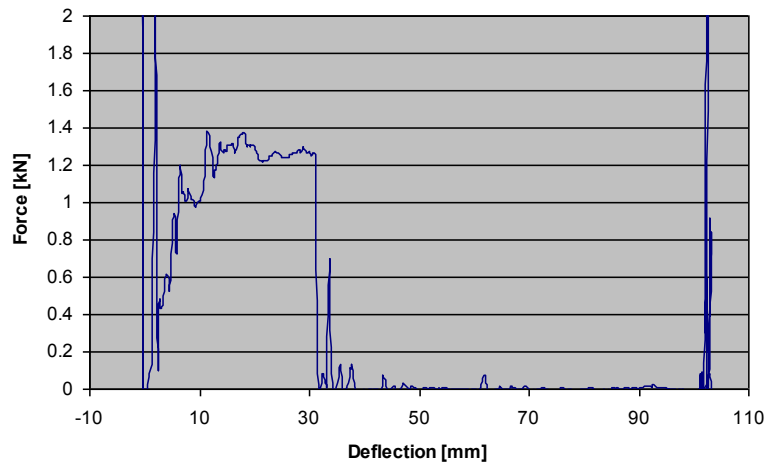
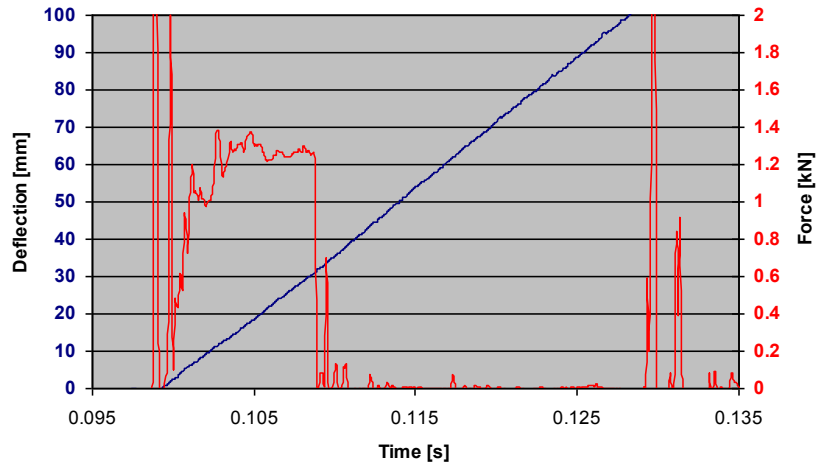
H12:



H13:



H14:



**Anhang B:**

**Abschlussbericht der BAM zum Teilprojekt**

**„Numerische Untersuchungen im Rahmen des Vorhabens SR 2558“**





**BAM**

Bundesanstalt für  
Materialforschung  
und -prüfung

**BMU/GRS-Forschungsvorhaben SR 2558**

**Experimentelle Untersuchungen zum Verhalten  
von Brennstäben mit hohem Abbrand  
bei mechanischen Unfallbelastungen**

*Teilprojekt*

*Numerische Untersuchungen im Rahmen des Vorhabens SR 2558*

**Laufzeit des Vorhabens: 01.11.2006 – 28.02.2009**

**Unterbeauftragung GRS/BAM: 02.05.2007**

**BAM Aktenzeichen: III.3/21261**

**Status: BAM-Abschlussbericht**



**Inhalt**

<b>1. Einleitung und Problembeschreibung</b>	<b>3</b>
1.1 <i>Konstruktionsmerkmale von Transportbehältern, Auslegungsgrundlagen</i>	3
1.2 <i>Brennelementverhalten unter mechanischen Beanspruchungen, Zusammenhang mit Kritikalitätssicherheitsnachweisen</i>	4
<b>2. Nachweismethodik</b>	<b>8</b>
2.1 <i>Vereinfachte mechanische Analyse</i>	8
2.2 <i>Stand der experimentellen Verifikation</i>	11
<b>3. Ergebnisse der Nachrechnungen und Auswertungen der "kalten" Versuche</b>	<b>13</b>
3.1 <i>Analytische Ansätze</i>	13
3.2 <i>Finite-Elemente-Analysen</i>	16
3.2.1 <i>Werkstoffverhalten</i>	16
3.2.2 <i>Balkenmodell</i>	16
3.2.3 <i>Kontinuumsmodell</i>	18
3.3 <i>Zusätzliche Auswertungen</i>	21
<b>4. Zusammenfassung</b>	<b>23</b>
<b>5. Literatur</b>	<b>24</b>
<b>Anhänge A1 bis A5</b>	<b>26</b>



## **1. Einleitung und Problembeschreibung**

### *1.1 Konstruktionsmerkmale von Transportbehältern, Auslegungsgrundlagen*

Ein typischer Transportbehälter für abgebrannte Brennelemente besteht aus einem massiven Behälterkörper, der zusammen mit dem Verschlussystem (z.B. angeschraubte Deckel mit Dichtungen) die dichte Umschließung des radioaktiven Inhalts bildet. Zusätzlich erfüllen die Komponenten der dichten Umschließung zusammen mit den darin integrierten oder daran befestigten Bauelementen der Abschirmung eine Schutzfunktion gegen die vom Inhalt ausgehende Strahlung.

Im Inneren der dichten Umschließung (Behälterinnenraum) wird ein Tragkorb zur Aufnahme der Brennelemente positioniert. Die Funktion des Tragkorbes besteht primär in der Gewährleistung einer unterkritischen Konfiguration des radioaktiven Inhalts.

Zur Reduzierung der Beanspruchung des Versandstücks infolge mechanischer Einwirkungen bei möglichen Zwischenfall- oder Unfallsituationen während einer Beförderung sind stoßdämpfende Komponenten vorgesehen. Oft werden dabei kappenförmige mit einem relativ weichen Material (z.B. mit Holz) gefüllte Stahlkonstruktionen in Deckel- bzw. Bodenbereichen verwendet. Bei einigen Bauarten schützen massive Aluminiumringe den Mantelbereich des Behälters.

Die Prüfbedingungen, die die Transportbehälter für radioaktive Stoffe erfüllen müssen, sind in internationalen und nationalen Regelwerken definiert. Diese Regelwerke basieren im Wesentlichen auf den Empfehlungen der Internationalen Atomenergie-Organisation (IAEA) /IAE 09/. Dabei wird zwischen

- Routine-Beförderungsbedingungen (RBB),
- Normalen Beförderungsbedingungen (NBB) und
- Unfallbeförderungsbedingungen (UBB)

unterschieden.

Hinsichtlich der mechanischen Beanspruchungen handelt es sich bei RBB um die Belastungen, die während eines Transports auf das Versandstück wirken (beispielsweise Beschleunigungen des Transportsmittels).

Die Normalen Beförderungsbedingungen schließen die so genannten kleinen Zwischenfälle während des Transports ein und werden unter anderem durch einen Aufprall auf ein unachgiebiges Fundament (IAEA-Fundament) simuliert. Die Fallhöhe hängt dabei vom Gewicht des Versandstücks ab und liegt für die üblichen Transportbehälter für abgebrannte

Brennelemente mit Gewichten  $\geq 15000$  kg bei 0,3 m. Die Fallposition wird normalerweise entsprechend der Transportlage des Versandstücks gewählt.

Die Unfallbeförderungsbedingungen werden gemäß /IAE 09/ durch Fallsequenzen simuliert, die aus einem 9 m-Fall auf das IAEA-Fundament und aus einem 1 m-Fall auf einen auf diesem Fundament befestigten Stahldorn bestehen. Diese Fallsequenzen müssen so gewählt werden, dass das Versandstück maximal möglich beschädigt wird. Meistens werden bei den Fallprüfungen deshalb mehrere Fallsequenzen durchgeführt, um die ungünstigsten Bedingungen für verschiedene Komponenten des Versandstücks zu erfassen. Das beschädigte Versandstück bildet den Ausgangszustand für die anschließende Erhitzungsprüfung und ggf. für die Wassertauchprüfung.

Die Sicherheitsnachweise für die Transportbehälter können gemäß /IAE 09/ experimentell mit Behältern in Originalgröße bzw. mit maßstabgetreuen Modellen sowie auf Basis von numerischen Simulationen oder plausiblen Übertragbarkeitsbetrachtungen erfolgen. In der Regel werden diese Nachweismethoden in geeigneter Weise kombiniert.

### *1.2 Brennelementverhalten unter mechanischen Beanspruchungen, Zusammenhang mit Kritikalitätssicherheitsnachweisen*

Im Rahmen der Behälterauslegung muss nachgewiesen werden, dass die geforderten Schutzfunktionen (Dichtheit, Abschirmung bzw. Unterkritikalität) bei allen durchzuführenden Prüfungen vorschriftenkonform gewährleistet sind. Dabei werden in die Nachweisführung auch Annahmen hinsichtlich des Verhaltens der Brennelemente unter den Prüfbedingungen integriert. Sie sind größtenteils vom Nachweisziel abhängig und beziehen sich auf die im jeweiligen Zusammenhang spezifisch zu berücksichtigenden Effekte.

In /REI 07/ sind die folgenden Schädigungen bzw. Änderungen des geometrischen Zustandes der Brennelemente unter UBB auf ihre Relevanz für die Kritikalitätssicherheit untersucht:

- Aufweitung der Brennelementgitter,
- gegenseitige axiale Verschiebung von einigen Brennstäben,
- axiale Verschiebung der Brennelemente in die Tragkorbbereiche ohne Neutronenabsorber,
- Brennstoffaustritt aus gebrochenen Brennstäben.

Aus den mechanischen Analysen benötigen die Kritikalitätssicherheitsnachweise daher die Bestätigung der angenommenen Randbedingungen bezüglich der genannten Effekte. Aufgrund sehr komplexer Wechselwirkungen innerhalb des Behälterschachtes können die mechanischen Analysen jedoch die Vielfalt der Beanspruchungs- bzw. möglichen Versagens-

muster von einzelnen Komponenten der Brennelemente nur annähernd und schematisch beschreiben. In bestimmten Fällen ist eine solche Beschreibung auch ausreichend /REI 07/. Die notwendige Genauigkeit der Ergebnisse von mechanischen Untersuchungen hängt damit maßgeblich von den Anforderungen der Kritikalitätssicherheitsnachweise ab.

Wie bereits erwähnt, werden die mechanischen Beanspruchungen des Versandstücks infolge eines hypothetischen Transportunfalls durch die Fallprüfungen simuliert. Unterscheidet man die Orientierungen der Längsachse des Versandstücks bei dem Aufprall in vertikale, horizontale und geneigte, so werden je nach Orientierung unterschiedliche Komponenten in die Lastübertragung bis zu den Brennelementen bzw. Brennstäben einbezogen.

- Bei vertikaler Fallposition auf den Behälterdeckel ergibt sich beispielsweise die folgende Lastkette:

*Fundament → Stoßdämpfer → Behälterkörper → Deckelschrauben → Deckel → Kopfstück des Brennelements.*

- Bei horizontalen Fallpositionen ist die folgende Lastübertragung charakteristisch:

*Fundament → Stoßdämpfer → Behälterkörper → Tragkorb → Abstandhalter des Brennelements → Brennstäbe.*

- Die geneigten Fallorientierungen können annähernd als eine Kombination der oben beschriebenen Positionen betrachtet werden.

Während des Aufpralls können sich auch gegenläufige Bewegungsrichtungen von Inventar, Tragkorb und Bauteilen der dichten Umschließung (insbesondere Deckel) ergeben, die die Lastübertragung signifikant beeinflussen und die Beanspruchung des radioaktiven Inhalts zusätzlich verstärken.

Bei den vertikalen Fallorientierungen kann ein Brennstabversagen durch Knicken auftreten. Gefährdet sind vor allem die unteren (in Aufprallrichtung) Brennelementsektionen. Ein Knicken kann zu bleibenden Aufweitungen des Brennstabgitters in diesen Sektionen und/oder zu einem Versagen der Brennstäbe durch eine nicht kontrollierte Biegung im "postbuckling"-Zustand führen. Bei den horizontalen Fallorientierungen werden die Brennstäbe durch eigene Trägheitskräfte während des Stoßvorganges ebenfalls auf Biegung belastet. Zusätzliche Einwirkungen können auch durch Zusammenstöße der Brennstäbe untereinander oder mit den Tragkorb- bzw. Behälterwänden auftreten.

Die Verformungen und die Versagensmöglichkeiten der einzelnen Stäbe sind darüber hinaus von den vorhandenen freien Räumen in den Tragkorbschächten sowie vom Zustand des Brennelementskeletts (Abstandhalter, Kopf- bzw. Fußstücke) abhängig.

In den ausführlichen Untersuchungen von Sandia National Laboratory /SAN 92/ sind die möglichen Versagensarten der Brennstäbe unter mechanischen Transportbelastungen in drei Gruppen geteilt:

- Modus I: Bildung eines lochförmigen (pinhole) Umfangsrisses infolge einer kritischen Biegebeanspruchung,
- Modus II: kompletter Bruch des Brennstabes infolge der Fortpflanzung des Umfangsrisses (Modus I) unter Biegebeanspruchung,
- Modus III: Bildung eines Längsrisses infolge von Querkräften an den Abstandhaltern oder wegen der Zusammenstöße der Brennstäbe.

Behälterfallprüfungen mit Verwendung von frischen Brennelementen sind nur eingeschränkt und mit abgebrannten Brennelementen nicht durchführbar. In der Regel werden bei den Fallprüfungen Ersatzkörper verwendet, die die Massen- und Steifigkeitsparameter vom radioaktiven Inhalt konservativ in Bezug auf die Belastung der Behälterkomponenten abbilden. Ein exaktes Brennelementmodell ist sehr komplex. Außerdem sind solche Modelle für quantitative Aussagen schwer zu instrumentieren. Demnach bekommt eine sinnvolle Kombination von numerischen Analysen und Bauteilversuchen an Brennstababschnitten unter Simulation der charakteristischen Lasteinwirkungen eine große Bedeutung.

Die numerischen Untersuchungen in /RAS 05/ gehen von einem globalen FE-Modell des Behälters mit Tragkorb und dem außer einem so genannten Kontroll-Brennelement insgesamt vereinfachend dargestellten Inhalt aus. An den mit Balkenelementen simulierten Brennstäben des Kontroll-Brennelements werden bei der globalen Analyse des Aufpralls Kräfte und Biegemomente ermittelt, die im zweiten Berechnungsschritt in einem verfeinerten Brennstabmodell berücksichtigt werden. Aus den Ergebnissen dieser Berechnung werden dann Schlussfolgerungen zum potenziellen Brennstabversagen gezogen. Ein wichtiges Merkmal dieser Analyse ist ein auf Basis von ausführlichen Untersuchungen speziell entwickeltes komplexes Materialmodell für den Hüllrohrwerkstoff (s. auch /RAS 08/).

Eine prinzipiell ähnliche Vorgehensweise wird in /AMM 05/ präsentiert. Die in der globalen Analyse eines aus Balken- und Schalenelementen (Brennstäbe bzw. Abstandhalter) bestehenden Brennelementmodells ermittelten Belastungen des höchstbeanspruchten Brennstabes werden ebenfalls in einem weiteren Schritt für ein verfeinertes Brennstabmodell verwendet.

Für eine phänomenologische Untersuchung des Brennelementverhaltens unter Unfallbelastungen sind solche Ansätze sicherlich geeignet, allerdings sind aufgrund von vielen Einflussfaktoren und einer fehlenden Verifikationsbasis bereits die Ergebnisse des ersten Berech-

nungsschrittes mit großen, derzeit kaum zu quantifizierbaren Unsicherheiten behaftet. Betrachtet man jedoch die möglichen Versagensmuster eines Brennstabes im Hinblick auf den potenziellen Brennstoffaustritt, so kann festgestellt werden, dass ein Versagen, bei dem es zu einer kompletten Trennung des Brennstabes in zwei oder mehrere Teile infolge der Biegebeanspruchung kommt (Modus II), ein abdeckendes Szenario darstellt. Für die Nachweisführung im Rahmen der Behälterauslegung erscheint es deshalb mehr geeignet, statt einer komplexen numerischen Untersuchung aller zu erwartenden Effekte, eine möglichst einfache, aber dennoch experimentell abgesicherte, Methode zu verwenden, die trotz der Vereinfachungen zu einer im Sinne des Kritikalitätssicherheitsnachweises /REI 07/ ausreichend konservativen Abschätzung hinsichtlich der maßgebenden Versagensart führen würde. Im nächsten Abschnitt werden die Eckpunkte einer solchen mechanischen Analyse anhand eines methodischen Beispiels erläutert.

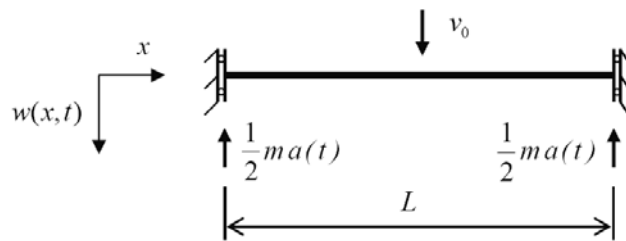
## 2. Nachweismethodik

### 2.1 Vereinfachte mechanische Analyse

Als ein charakteristisches Beispiel der Biegebeanspruchung soll nun die horizontale Fallorientierung analysiert werden. Ein Brennstab kann bei dieser Fallorientierung als ein an den Positionen der Abstandhalter gelagerter Durchlaufträger angesehen werden, wobei aufgrund der überwiegend gleichmäßigen Verteilung der Abstandhalter über die Brennelementlänge die Analyse auf einen Brennstababschnitt zwischen zwei Abstandhaltern begrenzt wird (Abb. 2-1). Die Wechselwirkung zwischen den Brennstäben wird zunächst nicht berücksichtigt, so dass eine freie Durchbiegung unterstellt werden kann.

Es wird vorausgesetzt, dass der Hüllrohrwerkstoff auf Grund eines hohen Abbrandes keine Restduktilität mehr besitzt und man von einem vollständigen Bruch im höchst belasteten Querschnitt des Brennstabes beim Erreichen einer kritischen Randspannung  $\sigma_{kr}$  auf der Biegezugseite ausgehen kann. Durch diese Annahme, die tendenziell dem bei hoch abgebrannten Brennstäben zu erwartenden spröden Verhalten entspricht, lässt sich die Analyse erheblich vereinfachen.

Bei den erzwungenen elastischen Transversalschwingungen infolge eines Aufpralls kann die Auslenkung der Brennstabachse zwischen zwei Abstandhaltern durch die Differenzialgleichung



**Abb. 2-1:** Belastungsschema eines Brennstabausschnittes

$$(EJ)_{\Sigma} \frac{\partial^4 w(x,t)}{\partial x^4} + m_x \frac{\partial^2 w(x,t)}{\partial t^2} = q(t) \quad (2.1)$$

beschrieben werden.

Hierin ist  $m_x = m/L$  die Masse je Längeneinheit. Für die Biegesteifigkeit des Stabes müssen im Allgemeinen die Hüllrohr- bzw. Pelletanteile berücksichtigt werden

$$(EJ)_{\Sigma} = E_C (J_C + \frac{E_P}{E_C} J_P) = E_C J_{\Sigma} \quad (2.2)$$

mit den Elastizitätsmodulen ( $E_C$  bzw.  $E_P$ ) und den Flächenträgheitsmomenten ( $J_C$  bzw.  $J_P$ ) von Hüllrohr (englisch: cladding) und Pellets.

Im betrachteten Belastungsfall handelt es sich für die Brennstäbe um eine Art kinematischer Anregung, d.h. die äußeren Kräfte werden beim Stoßvorgang über die Abstandhalter eingeleitet. Es gilt

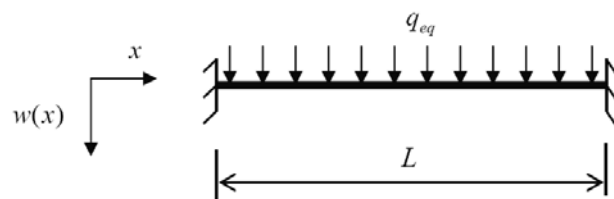
$$q(t) = -m_x a(t) \quad (2.3)$$

mit der auf den Brennstab über die im Abschnitt 1.2 diskutierten Lastkette durchgestellte Verzögerung von  $a(t)$ .

Die zu berücksichtigenden Anfangs- und Randbedingungen sind

$$t = 0, \quad w(x,0) = 0; \quad \dot{w}(x,0) = -v_0 \quad \text{bzw.} \quad \begin{array}{l} x = 0, \quad w(0,t) = w'(0,t) = 0 \\ x = L, \quad w(L,t) = w'(L,t) = 0 \end{array} \quad (2.4)$$

Ist nicht die genaue Beschreibung der Schwingungen infolge des Aufpralls von Interesse sondern nur die Maximalwerte der Beanspruchung, kann ein quasi-statischer Ansatz angewendet werden (Abb. 2-2). Dabei gilt



**Abb. 2-2:** Quasi-statisches Ersatzmodell

$$(EJ)_{\Sigma} \frac{d^4 w(x)}{dx^4} = q_{eq} \quad (2.5)$$

mit Randbedingungen in Form

$$x = 0, \quad x = L: \quad w(0) = w(L) = 0, \quad w'(0) = w'(L) = 0 \quad (2.6)$$

Die äquivalente statische Belastung

$$q_{eq} = f_d m_x a_{\max} \quad (2.7)$$

enthält neben dem maximalen Verzögerungswert  $a_{\max}$  auch einen dynamischen Überhöhungsfaktor  $f_d$ , der grundsätzlich von der Form des über die Abstandhalter eingeleiteten Lastimpulses (Lastanstieg) sowie der Periodendauer der unteren Eigenschwingungsform des betrachteten Brennstababschnittes abhängig ist.

Wird nach einer Belastung (Verzögerung) gesucht, die zum Erreichen einer kritischen Spannung  $\sigma_{kr}$  führen würde, so erhält man aus

$$\sigma_{max} = \frac{M_{max}}{W_{\Sigma}} \quad (2.8)$$

mit den maximalen Biegemomenten an den Abstandshaltern  $M_{max} = M(0) = M(L) = \frac{q_{eq} L^2}{12}$

das folgende Verhältnis für die kritische Verzögerung  $a_{kr}$

$$a_{kr} = \frac{1}{f_d} \frac{12 W_{\Sigma}}{m_x L^2} \sigma_{kr} \quad (2.9)$$

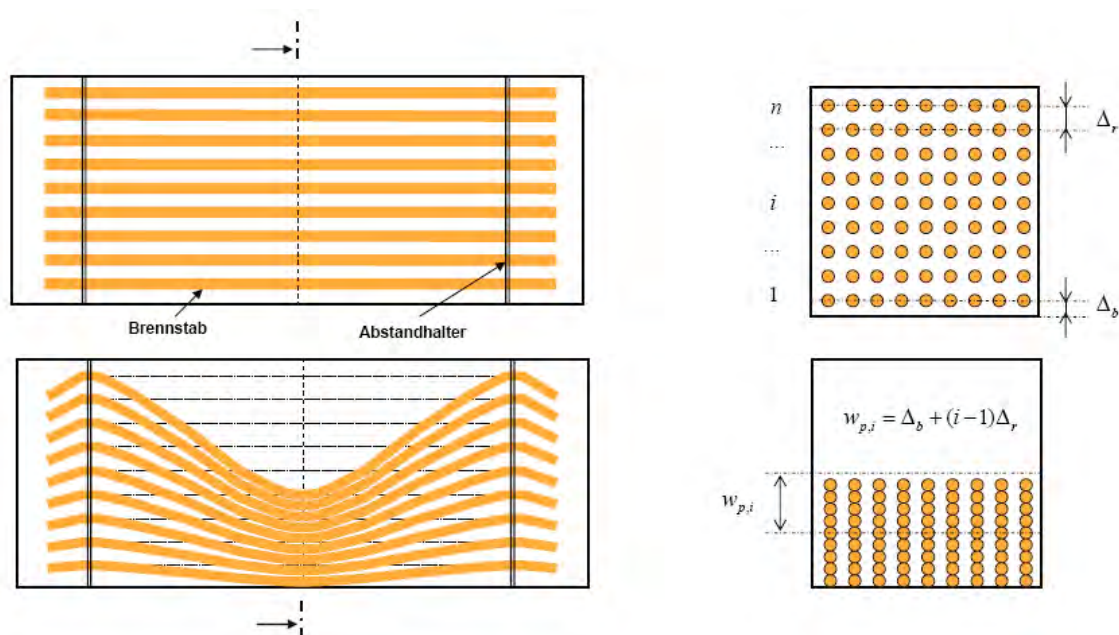
Darin bezeichnet  $W_{\Sigma} = J_{\Sigma}/r_a$  das "effektive" Widerstandsmoment des Stabes,  $r_a$  steht für den äußeren Radius.

Für die dazugehörige kritische Durchbiegung gilt

$$w_{kr} = \frac{q_{eq}}{384} \frac{L^4}{(EJ)_{\Sigma}} = \frac{1}{32} \frac{L^2 \sigma_{kr}}{r_a E_C} \quad (2.10)$$

Durch Analyse der geometrischen Verhältnisse in den Behälter- bzw. Tragkorbschächten kann folglich überprüft werden, ob und bei wie vielen Brennstäben eine Möglichkeit besteht, sich zwischen zwei Abstandshaltern bis zu  $w_{kr}$  durchzubiegen.

Schematisch ist eine solche Analyse in der Abbildung 2-3 gezeigt. Dabei ist vereinfachend eine homogene Durchbiegung der Brennstäbe einer Brennstabreihe bis zum Abstützen auf die darunterliegenden Schichten vorausgesetzt. Das mögliche Rutschen der einzelnen Brennstäbe in die Räume zwischen den "Säulen" wird hier nicht berücksichtigt.



**Abb. 2-3:** Maximal mögliche Verformungen der Brennstäbe zwischen zwei Abstandshaltern



Wird für die Brennstabreihe  $i$  die Bedingung  $w_{p,i} \geq w_{kr}$  erfüllt, so ist für diese Brennstäbe mit dem Versagen an den Abstandhaltern zu rechnen. (Die Definition der maximal möglichen Durchbiegung  $w_{p,i}$  ist ebenfalls in der Abbildung 2-3 dargestellt.)

Unter der Annahme, dass aus einer Bruchstelle eine Brennstoffmasse  $m_{UO_2}$  austreten kann, gilt dann für die Gesamtmasse des ausgetretenen Brennstoffs

$$m_{sum} = m_{UO_2} n_{br} n_{BE} \cdot \quad (2.11)$$

Darin sind  $n_{BE}$  und  $n_{br}$  die Anzahl der Brennelemente und die Anzahl der Bruchstellen je Brennelement.

Ob ein solches Szenario bei einem potenziellen Unfall eintreten könnte, soll ein Vergleich der kritischen Verzögerung  $a_{kr}$  (2.9) mit dem beim betrachteten Behälterauslegungsfall zu erwartenden Maximalwert der über die Lastkette gemäß Abschnitt 1.2 auf den Brennstab wirkenden Verzögerung zeigen. In welcher Vollständigkeit diese Lastübertragung untersucht werden soll sowie welche dynamischen Belastungsbeiwerte  $f_d$  zu berücksichtigen wären, ist in jedem Einzelfall zu entscheiden.

## 2.2 Stand der experimentellen Verifikation

Basierend auf der im Abschnitt 2.1 schematisch dargestellten Methodik können die Randbedingungen hinsichtlich des potenziellen Spaltstoffaustritts  $m_{sum}$  in den Nachweisen der Kritikalitätssicherheit formuliert bzw. kontrolliert werden. Allerdings fehlen derzeit allgemein zugängliche experimentelle Daten, die zur Verifikation des hier unterstellten spröden Brennstabverhaltens herangezogen werden können. Besonders die Fragen nach der Höhe der Versagensspannung (auch im Vergleich zu Werkstoffkennwerten eines hoch bestrahlten Hüllrohres), nach der Konservativität dieses Ansatzes, d.h. nach einem eventuell vorhandenen Abstand zwischen den Versagensmodi I und II, sowie nach begründeten Annahmen für den mit einem Querschnittsversagen verbundenen Spaltstoffaustritt können derzeit nicht beantwortet werden.

So ist beispielsweise aus den im Rahmen des "Fuel Integrity Project" gemessenen Kraft-Durchbiegungs-Kurven nur eine präsentiert worden /DAL 05/. Zum Spaltstoffaustritt aus den gebrochenen Biegeproben gibt es in /PUR 04/ und /DAL 05/ keine Angaben. Darüber hinaus waren die Abbrände der in diesem Projekt verwendeten Brennstababschnitte auf ca. 50 GWd/tSM begrenzt.

Aus den kürzlich veröffentlichten Ergebnissen der GNS/AREVA NP – Untersuchungen /JUS 08/ bzw. /PAP 09/, die wichtige Erkenntnisse bezüglich des Spaltstoffaustritts auch für höhere Abbrände enthalten, sind keine werkstoffmechanischen Kennwerte für die getesteten Brennstababschnitte abzuleiten.

Das Vorhaben SR 2558 hatte daher eine Erweiterung des Kenntnisstandes auf diesem Themenfeld zum Ziel. Neben der Konzeption eines Versuchsprogramms und der Entwicklung einer geeigneten experimentellen Einrichtung waren ursprünglich auch Versuche mit hoch abgebrannten Brennstababschnitten geplant. Im Projektverlauf wurde allerdings das Untersuchungsprogramm aus Finanzierungsgründen nur auf eine "Kalterprobung" der Versuchsapparatur begrenzt. Im Abschnitt 3 des Hauptteils ist die Versuchsmatrix der "kalten" Versuche begründet und ausführlich beschrieben.

Außer der Standardqualität des Hüllrohrmaterials Zry-2 sind bei den "kalten" Versuchen zwei weitere Varianten verwendet worden. Der so genannte pilgerharte Werkstoff Zry-2 zeigt dabei eine erhöhte Festigkeit, die sich an die Werkstoffeigenschaften im hoch bestrahlten Zustand orientiert, besitzt gleichzeitig eine reduzierte jedoch noch recht hohe Duktilität. Bei der dritten Werkstoffvariante wurde durch eine Hydrierung (ca. 1000 ppm) der Hüllrohrabschnitte aus Standardwerkstoff eine noch niedrigere Duktilität als im pilgerharten Zustand erreicht. Die restlichen Festigkeitswerte, wie die 0,2%-Dehngrenze bzw. die Zugfestigkeit, blieben aber in der Größenordnung des Standardwerkstoffes. Durch die Verwendung dieser drei Werkstoffvarianten wurde versucht, unterschiedliche Auswirkungen der Bestrahlung auf die Hüllrohreigenschaften bereits in der Phase der Kalterprobung der Apparatur näherungsweise zu erfassen. Eine Zusammenstellung der Versuchsergebnisse befindet sich im Teilbericht des ITEM (Anhang A). Da hinsichtlich der Werkstoffeigenschaften der getesteten Hüllrohrvarianten und den verwendeten Surrogatpellets keine eindeutige Korrelation zu den bestimmten Abbrandzuständen hergestellt werden kann, können die erzielten Ergebnisse jedoch nicht direkt in der Zulassungspraxis verwendet werden. Gleichwohl haben die "kalten" Versuche eine wichtige methodische Bedeutung.

### 3. Ergebnisse der Nachrechnungen und Auswertungen der „kalten“ Versuche.

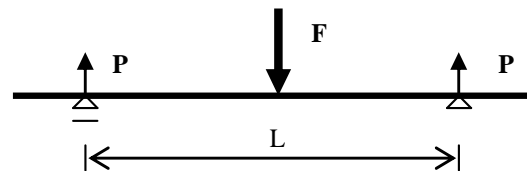
Für ein besseres Verständnis bzw. eine mehr fundierte Interpretation der Versuchsergebnisse wurden zusätzlich numerische Analysen durchgeführt, die im Rahmen dieses Vorhabens einen unterstützenden Charakter hatten. Die Nachrechnungen der Versuche begrenzen sich auf die Ermittlung und Analyse von globalen charakteristischen Kenngrößen wie Kräfte und Durchbiegungen. Die Komplexität der Berechnungsansätze wurde dabei sukzessiv gesteigert, um die Einflüsse der einzelnen Parameter deutlich zu differenzieren. Bei fehlenden Kenntnissen über die einzelnen Einflussgrößen wurden sie in physikalisch vertretbaren Grenzen variiert.

Eine verifizierte Aussage über die Verteilung der lokalen Beanspruchungsgrößen (Dehnungen und Spannungen) war auf Grund der nicht durchgeführten „lokalen“ Messungen und nicht ausreichender Belegung der Werkstoffkennwerte nicht möglich. In dieser Untersuchungsphase war das auch nicht geplant.

#### 3.1 Analytische Ansätze

Wie bereits beschrieben, handelt es sich bei den im Rahmen dieses Forschungsvorhabens durchgeführten Versuchen um die Biegeversuche mit den mittig belasteten, an zwei Punkten frei gelagerten Stäben (Dreipunkt-Biegung).

Bei kleinen Durchbiegungen (Abb. 3-1) betragen die Reaktionskräfte an den Stützen und das maximale Biegemoment in der Mitte der Biegeprobe:



**Abb. 3-1:** Belastungsschema des Biegeversuchs

$$P = \frac{F}{2} \quad \text{und} \quad M_{\max} = \frac{F L}{4} .$$

Der Zusammenhang zwischen der maximalen Durchbiegung und der Querkraft wird bei rein elastischen Verformungen auf Basis der klassischen Balkentheorie ermittelt:

$$w_{\max} = \frac{F L^3}{48 (E J)_{\Sigma}} \quad \text{bzw.} \quad F = \frac{48 (E J)_{\Sigma}}{L^3} w_{\max} , \quad (3.1)$$

wobei im Allgemeinen auch die Biegesteifigkeit von Pellets berücksichtigt werden muss, so dass hier  $(E J)_{\Sigma}$  die integrale Biegesteifigkeit des „gefüllten“ Stabes bedeutet (vgl. Abschnitt 2.1).

Die maximale Randspannung in der Probenmitte errechnet sich zu  $\sigma_{max} = \frac{M_{max}}{W_{\Sigma}}$  mit dem "effektiven" elastischen Widerstandsmoment von  $W_{\Sigma} = J_{\Sigma}/r_a$ .

Beim spröden Verhalten der Versuchsprobe wäre dann analog zu den konventionellen Biegeversuchen /HEI 03/ die fiktive Randspannung im Moment des Probenbruchs

$$\sigma_{b,B} = \frac{M_{max,B}}{W_{\Sigma}} = \frac{F_B L}{4 W_{\Sigma}} \quad (3.2)$$

als die "integrale" Biegefestigkeit des Brennstabes zu definieren. Dabei wird vereinfachend angenommen, dass die Spannungsverteilung im höchst belasteten Querschnitt auch bei elastisch-plastischer Verformung (kleine Durchbiegungen) linear ist. Die so festgelegte Grenzspannung könnte näherungsweise als Versagenskriterium bei den Betrachtungen hinsichtlich des Zustandes der Brennstäbe unter einer Biegebeanspruchung infolge eines hypothetischen Unfalls verwendet werden.

Bei den im Rahmen der Erprobung der Versuchsapparatur durchgeführten Biegeversuchen wurden große plastische Verformungen der Proben realisiert. Teilweise sind dabei die Proben nicht gebrochen. Die Anwendung der oben dargestellten Gleichungen bei der Auswertung der Ergebnisse dieser Versuchsreihe ist deshalb nur begrenzt möglich<sup>1</sup>. So können im ersten Schritt die daraus abgeleiteten charakteristischen Kräfte zur Kontrolle der gemessenen Werte herangezogen werden.

Beispielsweise gilt gemäß (3.2) für die Kraft, die zum Erreichen der Fließgrenze  $\sigma_F^C$  in der Randfaser des Hüllrohrs führt,

$$F_1 = \frac{4W_{\Sigma}}{L} \sigma_F^C = F_1^C + F_1^P \quad (3.3)$$

(hier wird angenommen, dass bei diesem Kraftniveau noch vom elastischen Zustand der Pellets ausgegangen werden kann).

Wird ein elastisch ideal-plastisches Verhalten der Werkstoffe vorausgesetzt (mit  $\sigma_F^C$  bzw.  $\sigma_F^P$  als Fließgrenzen von Hüllrohr und Pellets), bekommt man weiterhin eine Abschätzung der für eine vollständige Plastifizierung des Querschnittes notwendigen Kraft:

$$F_2 = \frac{4M_{pl}}{L} = \frac{4}{L} (W_{pl}^C \sigma_F^C + W_{pl}^P \sigma_F^P) = F_2^C + F_2^P \quad (3.4)$$

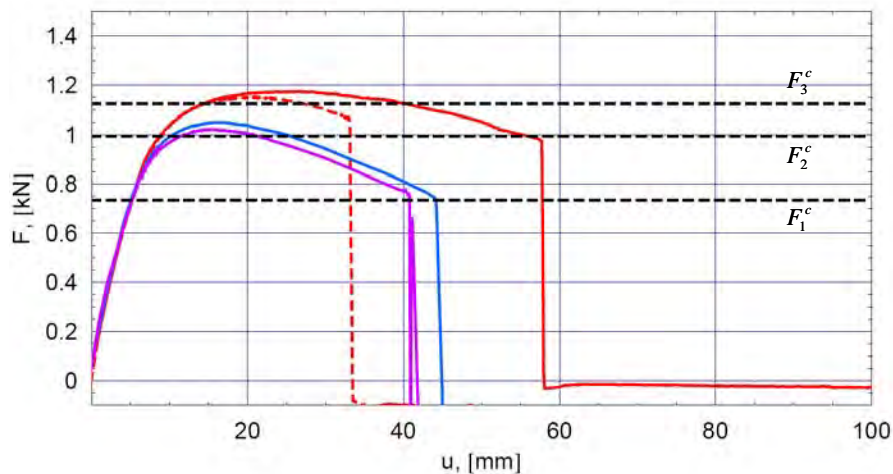
<sup>1</sup> Eine Erweiterung der analytischen Lösung auf große elastische Durchbiegungen wird im Anhang A1 dargestellt. Dieser Ansatz wird vor allem für die Verifikation des Balkenmodells bei den FE-Berechnungen verwendet.

mit den plastischen Widerstandsmomenten für das Hüllrohr und die Pellets von

$$W_{pl}^C = \frac{4}{3} \left( \left( \frac{d_a}{2} \right)^3 - \left( \frac{d_i}{2} \right)^3 \right) \quad \text{und} \quad W_{pl}^P = \frac{4}{3} \left( \frac{d_i}{2} \right)^3.$$

In der Abbildung 3-2 sind die gemessenen Kraft-Durchbiegungs-Kurven für die statischen Versuche mit pilgerhartem Werkstoff gezeigt. Vernachlässigt man die Pelletsanteile in den Gleichungen (3.3) und (3.4), so ergeben sich die in der Abbildung gestrichelt gekennzeichneten Grenzlinsen  $F_1^C$  und  $F_2^C$ . Zum Vergleich wird zusätzlich die Grenzlina  $F_3^C$  zugefügt, die sich auf einen "pseudo-vollplastischen" Zustand bei alleiniger Berücksichtigung des Hüllrohrs und seiner Zugfestigkeit als Anfangswert des ideal-plastischen Werkstoffzustandes bezieht.

Die entsprechenden Vergleiche für die statischen Versuche mit den anderen Hüllrohrvarianten (Standard bzw. hydriert) sind im Anhang A3 dargestellt. Die Werkstoffkennwerte sind den Tabellen im Anhang A2 entnommen.



**Abb. 3-2:** Statische Versuche mit pilgerhartem Hüllrohrmaterial, theoretische Grenzlinsen  $F_i^C$ :

- |                    |                     |
|--------------------|---------------------|
| --- Vorversuch V7, | — Hauptversuch H1,  |
| — Hauptversuch H7, | — Hauptversuch H13. |

Als Ergebnis dieser einfachen Analyse ist zum Beispiel festzustellen, dass die Größenordnung der gemessenen Kräfte bereits ohne Berücksichtigung der versteifenden Wirkung des Füllmaterials abgeschätzt werden kann. Die maximal gemessenen Kräfte liegen dabei stets über den Kräften  $F_2^C$ , die zur Durchplastifizierung (Fließgelenkbildung) des höchst beanspruchten Hüllrohrquerschnitts führen würden.

### 3.2 *Finite-Elemente-Analysen*

Bei den hier durchgeführten statischen Finite-Elemente-Analysen wurde der Berechnungscode ABAQUS/Standard in der Version 6.8 verwendet /ABA 08/. Die für die Nachrechnung der Versuche erstellten FE-Modelle werden im Folgenden kurz beschrieben.

#### 3.2.1 *Werkstoffverhalten*

Die Verwendung von komplexen numerischen Ansätzen für die Simulation des mechanischen Werkstoffverhaltens erfordert detaillierte Werkstoffuntersuchungen. Solche Untersuchungen sind im Rahmen dieses Forschungsvorhabens auch aus Finanzierungsgründen nicht durchgeführt worden. Für die verfolgten Ziele (Entwicklung und Erprobung der Versuchseinrichtung) waren sie auch nicht zwingend notwendig. Die Beschreibung des Werkstoffverhaltens (Hüllrohr, Pellets) erfolgt deshalb auf Basis des Standard-Plastizitätsmodells nach Mises mit isotroper Verfestigung.

- Hüllrohr

Die für die verwendeten Varianten von den Hüllrohrabschnitten berücksichtigten multilineareren Fließkurven sind aus den von AREVA NP bereitgestellten Werkstoffdaten (statische Zugversuche nach DIN 10002, s. /GOL 09/) abgeleitet worden. Da im Bereich der großen Dehnungen die Genauigkeit der gemessenen Fließkurven nicht ausreichend war, werden bei den Berechnungen die der Zugfestigkeit entsprechenden Werte der Gleichmaßdehnung variiert. Nach Erreichen der Zugfestigkeit wird ein konstanter Kurvenverlauf angenommen. Es werden keine Versagensoptionen berücksichtigt. Die verwendeten Werkstoffdaten sind im Anhang A2 zusammengefasst. Die variierten Werte bei großen Deformationen sind dort kursiv gedruckt.

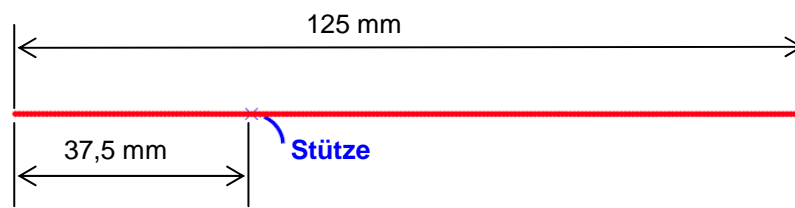
- Pellets

Für die Pellets wird ein linear elastisches – ideal plastisches Verhalten unterstellt. Als Orientierung gelten dabei die vom Hersteller angegebenen Werkstoffdaten (vgl. Tabelle 4.2 im Hauptteil). Bei den Parameterstudien sind diese Werte ebenfalls variiert worden.

#### 3.2.2 *Balkenmodell*

Für die Nachrechnung der statischen Versuche wurde zunächst ein Balkenmodell erstellt. Es wird vereinfachend angenommen, dass die Versuchsprobe frei auf zwei starren befestigten Stützen aufliegt. Die Diskretisierung erfolgt mit den schubweichen Balkenelementen (Timo-

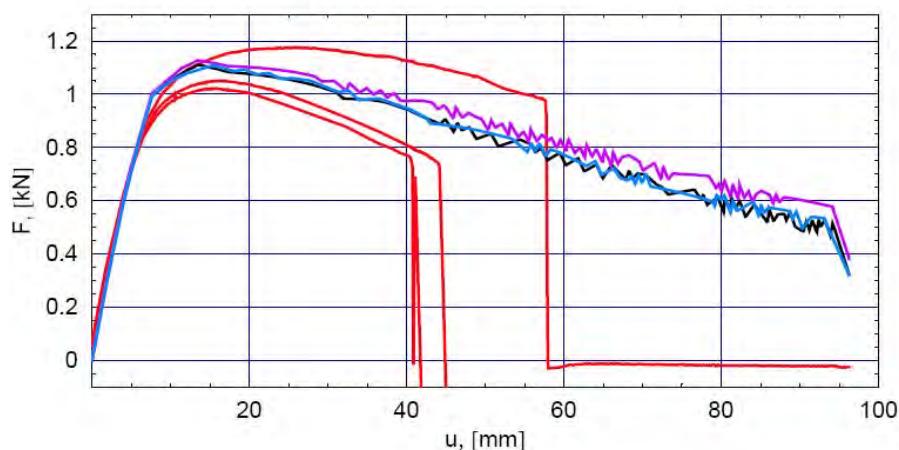
schenko-Theorie) vom Typ B21, wobei nur das Hüllrohr abgebildet wurde (PIPE Section) und die Pellets unberücksichtigt bleiben. Es wird die Reaktion des Balkens auf eine fortschreitende Verschiebung seines Mittelpunktes ermittelt. Die vorhandene Symmetrie wird durch Verwendung des Halbmodells mit geeigneten Symmetriebedingungen berücksichtigt. Die Kontaktbedingungen (Reibungskontakt) zwischen dem Balken und der Stütze lassen eine freie Drehung sowie ein Rutschen des Balkens zu.



**Abb. 3-2:** Abmessungen des Balkenmodells

Die Verifikation des Modells erfolgt im ersten Schritt anhand der im Anhang A1 dargestellten analytischen Lösung für die große Durchbiegungen eines elastischen Balkens. Der Vergleich in der Abbildung A1-2 zeigt eine gute Übereinstimmung zwischen zwei Lösungen. Die zusätzlichen Variationen der Netzdichte, des Elementtyps (B22, mit quadratischem Ansatz) und der Geometrie der Stütze hatten keinen merklichen Einfluss auf die Ergebnisse gegenüber dem Basismodell gezeigt. Das Modell wurde für die weiteren Berechnungen übernommen.

Die Nachrechnung der statischen Versuche wurde für alle Hüllrohrvarianten durchgeführt wobei die Werkstoffeigenschaften des Hüllrohrs entsprechend der Beschreibung im Abschnitt 3.2.1 variiert wurden. Die Abbildung 3-3 sowie die Abbildungen im Anhang A4 zeigen die rechnerischen Ergebnisse im Vergleich mit den gemessenen Kurven.



**Abb. 3-3:** Statische Versuche mit pilgerhartem Hüllrohrmaterial, Parametervariation für das Balkenmodell:

- Versuchsergebnisse;      —  $A_{gt} = 5\%$ , keine Reibung;
- $A_{gt} = 4\%$ , keine Reibung;      —  $A_{gt} = 4\%$ , Reibungsbeiwert 0,1.

Auffällig ist vor allem, dass die Kraft-Durchbiegungs-Verläufe bereits ohne die Berücksichtigung der Pellets tendenziell gut wiedergegeben werden.

Die Änderung der Gesamtdehnung bei Höchstlast ( $A_{gt}$ ) im untersuchten Umfang hat keinen merklichen Einfluss auf die Ergebnisse, bei hydrierten Proben führt sie zur leichten Verschiebung des Kurvenmaximums. Auf eine darüber hinaus gehende Variation der Werkstoffdaten wurde verzichtet. Die jeweils als Variante b) gekennzeichneten Daten (s. Tabellen im Anhang A2) wurden dann in den Nachrechnungen mit dem Kontinuumsmodell verwendet.

### 3.2.3 Kontinuumsmodell

Die Wechselwirkung zwischen dem Hüllrohr und den Pellets bzw. die Auswirkung dieser Wechselwirkung auf die Ergebnisse der Biegeversuche wurde anhand der Berechnungen mit einem Kontinuumsmodell untersucht. Aufgrund der vorliegenden Symmetrie wurde die Simulation auf ein  $\frac{1}{4}$ -Modell begrenzt. Neben dem Hüllrohr und den Pellets wurden die frei drehbare Stütze und der Stößel abgebildet. Die Pellets wurden einzeln modelliert, wobei die geometrischen Abmessungen der  $Y_2O_3$ -Pellets auch für die in den Endbereichen des Stabes positionierten  $Al_2O_3$ -Pellets berücksichtigt wurden (s. Abb. 3-4).

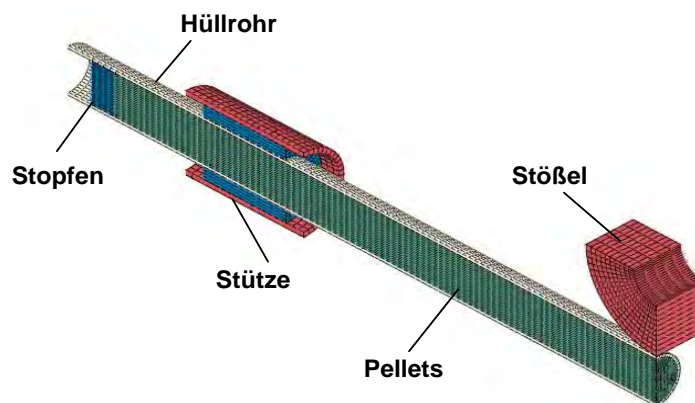
Die Modellierung des Hüllrohrs erfolgt mit den "continuum shell"-Elementen vom Typ SC8R, wegen der bereits im Rahmen der Vorberechnungen /BAM 08/ festgestellten Kontaktprobleme bei der Verwendung von "conventional shell"-Elementen. Alle anderen Komponenten des Modells wurden mit den Kontinuumselementen vom Typ C3D8 simuliert.

Zwischen dem Hüllrohr und der Stütze sowie dem Stößel wird ein Reibungskontakt definiert. Zwischen dem Hüllrohr und den Pellets wurden ebenfalls die Reibungsbedingungen angesetzt. Der Stopfen wird mit Klebekontakt an das Hüllrohr gekoppelt. An den Trennfugen zwischen den einzelnen Pellets wurden während der Parameterstudien unterschiedliche Kontaktdefinitionen betrachtet.

Die Berechnungen wurden weggesteuert durchgeführt. Die Verschiebung des Referenzknotens von dem als Starrkörper abgebildeten Stößel wurde schrittweise erhöht. Da für jedes Verschiebungsincrement die statischen Gleichgewichtsbedingungen erfüllt werden, können die globalen (Kräfte, Momente) bzw. die lokalen (Dehnungen, Spannungen) Größen in Abhängigkeit von der Stabdurchbiegung ermittelt werden.

Die wesentlichen Merkmale des FE-Modells sind in den Tabellen 3-1 und 3-2 zusammengefasst.





**Abb. 3-4:** Aufbau des Kontinuumsmodells

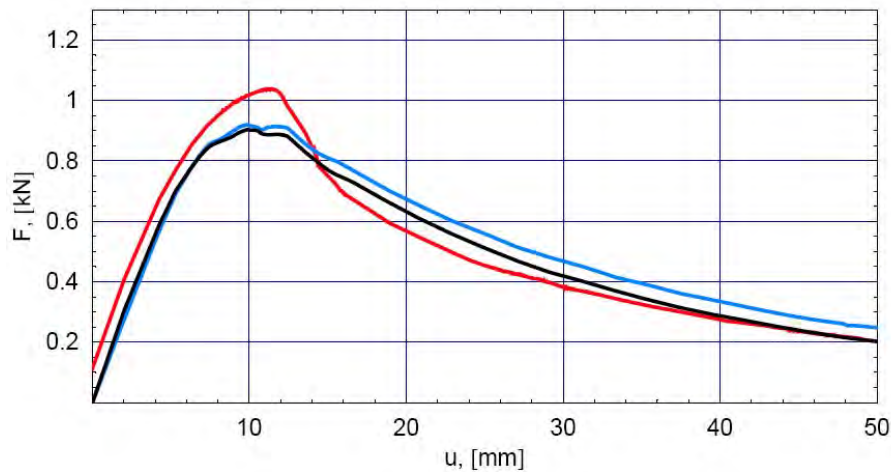
**Tabelle 3-1:** Die Baugruppen des FE-Modells

Bauteil	Elementtyp	Werkstoff	Werkstoffmodell
Hüllrohr	SC8R (continuum shell elements)	Zry-2 (3 Varianten)	elastisch plastisch mit isotroper Verfestigung
Pellets	C3D8 (solid elements)	$Y_2O_3$	elastisch ideal plastisch
Stopfen	C3D8 (solid elements)	Plastik	elastisch ideal plastisch
Stütze	C3D8 (solid elements)	Stahl	elastisch plastisch mit isotroper Verfestigung
Stößel	C3D8 (solid elements)	Stahl	Starrkörper

**Tabelle 3-22:** Kontaktdefinitionen im FE-Modell

Kontaktpaar	Kontakttyp
Hüllrohr/Stößel	Reibungskontakt
Hüllrohr/Stütze	Reibungskontakt
Hüllrohr/Pellets	Reibungskontakt
Hüllrohr/Stopfen	“tied“ Kontakt
Pellet/Pellet	Variation: Reibungskontakt bzw. “tied“ Kontakt

In der Abbildung 3-5 sind die Ergebnisse der Nachrechnung des Biegeversuches mit einem leeren Hüllrohrabschnitt im pilgerharten Zustand dargestellt. Es handelt sich um einen aus den während der Erprobung der Apparatur durchgeführten Vorversuchen. Aufgrund von Ungenauigkeiten des Messsystems im Anfangsbereich zeigt sich eine Verschiebung der Messkurve zu höheren Kraftwerten. Insgesamt kann jedoch eine ausreichende Übereinstimmung mit dem Experiment festgestellt werden. Die Elementierung des Hüllrohrs ist daher für die Abbildung der globalen Widerstandskurve beim Biegeversuch geeignet.

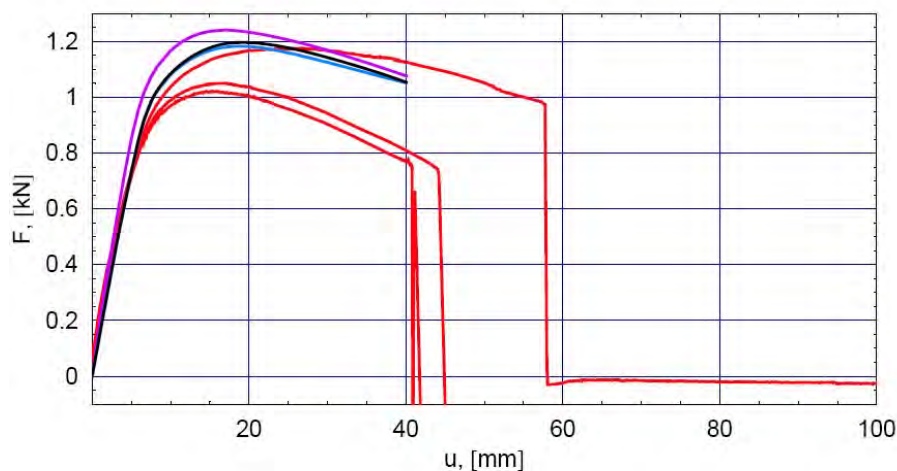


**Abb. 3-5:** Statische Versuche mit leerem pilgerhartem Hüllrohr, Nachrechnung mit Kontinuumsmodell :  
 — Vorversuch V5; —  $A_{gt}=5\%$ , keine Reibung; —  $A_{gt}=4\%$ , keine Reibung.

Die Parametervariationen für die Pellets wurden bei der Nachrechnung der statischen Versuche mit pilgerharten Hüllrohrabschnitten durchgeführt. Unter anderem wurde die Anzahl der einzeln modellierten Pellets variiert, die verbleibenden Pellets wurden durch Klebekontakt (TIED-Option) miteinander verbunden. Zu den anderen variierten Parametern gehörten die Reibungsbeiwerte zwischen den Pellets, die Reibungsbeiwerte sowie Spaltmaß zwischen den Pellets und dem Hüllrohr, der Elastizitätsmodul und der  $R_{p0,2}$ -Wert für die Pellets.

Die Berechnungen zeigten stets ein steiferes Verhalten des numerischen Modells. Als entscheidend haben sich dabei die Werkstoffeigenschaften des Stopfens erwiesen. Berücksichtigt man, dass die Stopfen "weicher" sind als die Pellets, so wird eine bessere Übereinstimmung erzielt. Dadurch werden jedoch auch tatsächliche Verhältnisse im Inneren der Probe widergespiegelt. Die durch Kontakt zwischen Pellets übertragenden Druckspannungen bei der Durchbiegung der Probe werden in Richtung des weicheren Stopfens durchgestellt und bewirken dort lokale plastische Verformungen, was zu einer Reduzierung des Biegewiderstandes führt. Ein zusätzlicher gleichgerichteter Effekt kann dadurch entstehen, dass die in den Randbereichen der Probe positionierten  $Al_2O_3$ -Pellets einen geringeren Durchmesser haben als die  $Y_2O_3$ -Pellets. Der Widerstand gegen die Drehung der mittleren  $Y_2O_3$ -Pellets bei der Durchbiegung der Probe wird dadurch geringer. Dieser Effekt wird im FE-Modell nicht berücksichtigt. In der Abbildung 3-6 sind exemplarisch die Ergebnisse der Parameterstudien dargestellt. Durch die Berücksichtigung des weicheren Werkstoffs für die Stopfen kann die Steifigkeit des Modells reduziert werden. Da bei einer großen Anzahl der einzeln modellierten Pellets die Rechenzeit erheblich steigt, wurde zusätzlich eine Variante mit vier im hoch

beanspruchten Bereich einzeln sowie mit den restlichen als zusammengeklebt modellierten Pellets untersucht. Die Werkstoffkennwerte der Pellets wurden dabei reduziert. Der Vergleich in der Abbildung 3-6 zeigt, dass diese Variante den oben diskutierten Sachverhalt annähernd beschreibt. Mit diesem Ansatz werden auch die statischen Versuche mit den Hüllrohren in der Standardqualität und mit den hydrierten Abschnitten nachgerechnet. Die Ergebnisse dieser Nachrechnung sind im Anhang A4 dargestellt. Die rechnerisch ermittelten Kraft-Durchbiegungs-Kurven sind den Versuchsergebnissen qualitativ ähnlich. Aufgrund der begrenzten Kenntnisse hinsichtlich der Werkstoffeigenschaften sind jedoch Abweichungen nicht vermeidbar.



**Abb. 3-6:** Variation der Pelletseigenschaften (pilgerharte Hüllrohrabschnitte):

- experimentelle Ergebnisse;
- Pellets durch Kontaktflächen getrennt,  $E = 170$  GPa,  $R_{p0,2} = 150$  MPa; mit "hartem" Stopfen;
- Pellets durch Kontaktflächen getrennt,  $E = 170$  GPa,  $R_{p0,2} = 150$  MPa; mit "weichem" Stopfen;
- nur 4 Pellets durch Kontaktflächen getrennt, restliche Pellets zusammengeklebt  $E = 170$  GPa,  $R_{p0,2} = 150$  MPa; mit "hartem" Stopfen.

### 3.3 Zusätzliche Auswertungen

Die vollständige Beschreibung und die Auswertung der Ergebnisse von den Biegeversuchen kann dem Teilbericht des ITEM (Anhang A) entnommen werden. Hier werden einige wichtige Effekte zusätzlich diskutiert. Die gemessenen Kraft-Durchbiegungs-Kurven sind im Abschnitt A5 zusammengefasst.

Bei allen gebrochenen Proben ist der Bruch nach relativ großen plastischen Verformungen im höchst belasteten Querschnitt eingetreten. Das Versagen geht von der Biegezugseite aus

und der Bruch verläuft in die Umfangsrichtung. Der Zeitpunkt der Rissbildung konnte jedoch nicht eindeutig identifiziert werden. Die hydrierten Proben weisen einen zusätzlichen axialen Riss im Bereich der Kraffteinleitung aus. Ein Grund dafür kann in der Inhomogenität der Hydridverteilung liegen.

Die maximalen Durchbiegungen bei der dynamischen Belastung (pilgerharte (Abb. A5-2) und hydrierte (Abb. A5-3) Rohre) sind geringer als bei den entsprechenden statischen Versuchen. Für die hydrierten Proben wurden in den dynamischen Versuchen (im Gegensatz zu statischer Belastung) geringere Durchbiegungen registriert als für die pilgerharten Proben (Abb. A5-4 und A5-5).

Wie bei den Nachrechnungen der statischen Versuche festgestellt wurde, wird das Kraftniveau sowie der tendenzielle Verlauf der Kraft-Durchbiegungs-Kurven maßgeblich vom Hüllrohr bestimmt. Bei allen statischen Versuchen liegen die maximal gemessenen Kräfte über den Kräften, die zur Durchplastifizierung (Fließgelenkbildung) des höchst beanspruchten Hüllrohrquerschnitts führen würden.

Die Pellets verhindern zwar das lokale Versagen des Querschnitts durch die Ovalisierung, wirken jedoch nicht als ein "geschlossener Biegestab": die Pellets übertragen nur geringe Zugspannungen, die Druckspannungen werden durch Kontaktschluss in Richtung weicherer Stopfen durchgestellt. Der Biege widerstand des Hüllrohrinventars wird dadurch reduziert.

Außerdem bewirken die Pellets zusätzliche sekundäre Effekte, die sich in den Kurvenverläufen widerspiegeln. Besonders für den Standardwerkstoff (Abb. A5-1) und für die statischen Versuche mit dem pilgerharten Zry-2 (Abb. A5-2) ist eine starke Streuung der Versuchskurven ersichtlich. Diese Streuung könnte teilweise auf den bereits diskutierten Einfluss der unterschiedlichen Durchmesser der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ - und  $\text{Y}_2\text{O}_3$ - Pellets zurückgeführt werden. Eine unterschiedliche axiale Verteilung der anfänglichen Spalte zwischen den  $\text{Al}_2\text{O}_3$ - Pellets und dem Hüllrohr oder ein gegenseitiges Rutschen dieser Pellets während der Belastungsphase können zu einer Änderung der "integralen" Reaktion der Biegeprobe und den beobachteten Abweichungen in den Kurvenverläufen führen. Darüber hinaus kann auch die vertikale Ausrichtung des Probekörpers bei den Versuchen zusätzliche Abweichungen bewirken, beispielsweise infolge von Reibungseinflüssen an der Halteplatte.

Da die oben angesprochenen Effekte eine gewisse Trägheit haben, streuen die dynamischen Kurven insgesamt weniger. Die Steigung des Kraftniveaus bei dynamischen Versuchen wird unter anderem dadurch verursacht, dass die Pellets zeitlich nicht genauso stark der Kraft ausweichen können wie beim statischen Versuch. Die Steifigkeit der Pellets hat in diesem Fall einen größeren Anteil in der "integralen" Reaktion der Biegeprobe.

#### **4 Zusammenfassung**

In diesem Forschungsvorhaben wurde das mechanische Brennelementverhalten unter postulierten Unfallbedingungen beim Transport primär im Hinblick auf die die Kritikalitätssicherheit beeinflussenden Effekte betrachtet. Im Vordergrund standen dabei die Untersuchungen des Versagensmodus der Brennstäbe mit einem potenziell maximalen Brennstoffaustritt.

Im Abschnitt 2.1 wurde anhand eines Beispiels die prinzipielle Nachweismethodik bei der mechanischen Analyse des Brennelementverhaltens unter Unfallbedingungen skizziert. Selbst für die Verifizierung einer solchen vereinfachten Analyse fehlen derzeit allgemein zugängliche experimentelle Daten. Ein Ziel dieses Vorhabens war daher die Entwicklung einer geeigneten Apparatur für die experimentellen Untersuchungen des Brennstabverhaltens unter unfalltypischen Belastungen.

Die "Kalterprobung" der Versuchsapparatur erfolgte mit den Stababschnitten aus dem fri-schen, pilgerharten und hydrierten Hüllrohrwerkstoff (Zry-2). Dabei liegt keine eindeutige Korrelation der Werkstoffeigenschaften der während der "Kalterprobung" getesteten Hüllrohrvarianten und den verwendeten Surrogatpellets zu bestimmten Abbrandzuständen vor. Auch die diskutierte Wechselwirkung zwischen den Pellets sowie zwischen den Pellets und dem Hüllrohr ist für die in den Versuchen vorliegenden Verhältnisse spezifisch. Die erzielten experimentellen Ergebnisse können deshalb nicht direkt in der Zulassungspraxis verwendet werden.

Hinsichtlich ihrer Duktilität weichen die getesteten Hüllrohrvarianten wesentlich von den gemäß der Literatur zu erwarteten Werten für hoch bestrahlte Hüllrohrwerkstoffe ab. Ein Versagen bei großen plastischen Verformungen ist für hoch bestrahlte Brennstäbe untypisch. Diesbezügliche Ergebnisse der "kalten" Versuche sind somit nicht abdeckend. Dagegen können die Messergebnisse hinsichtlich des Austritts von Hüllrohrinventar auf Grund des vorhandenen Spaltes zwischen dem Hüllrohr und den Pellets, was diesen Austritt nach dem Bruch der Probe begünstigt, eher als konservativ angesehen werden.

Insgesamt ist festzustellen, dass noch weitere Untersuchungen für eine experimentell abgesicherte Verifikationsbasis hinsichtlich des mechanischen Verhaltens von hoch abgebrannten Brennstäben notwendig sind. Auf Grund der Vielfältigkeit der Einflussparameter können in einem Ersatzprobekörper nicht alle Effekte gleichzeitig und in richtigen Wechselbeziehungen erfasst werden. Die Versuche mit aktiven Brennstababschnitten sind in diesem Zusammenhang wesentlich aussagekräftiger und haben deshalb eine große Bedeutung.

## 5. Literatur

- /ABA 08/ ABAQUS Manual Version 6.8-EF. SIMULIA, (2008)
- /AMM 05/ D. J. Ammerman: persönliche Mitteilung an E. Hörmann am 30.08.05 in Albuquerque (zitiert nach F. Lange et al.: Erfassung, Bewertung und Fortentwicklung der sichereren Beförderung radioaktiver Stoffe, Mechanische Unfallbelastungen beim Transport von frischen und abgebrannten Brennelementen. Arbeitsbericht zum Vorhaben SR 2497, GRS, Nov. 2005)
- /BAM 08/ BAM-Zwischenbericht (Stand Dezember 2007) zum BMU/GRS Forschungsvorhaben SR 2558: Experimentelle Untersuchungen zum Verhalten von Brennstäben mit hohem Abbrand bei mechanischen Unfallbelastungen: (V. Ballheimer, F. Koch, F. Wille: März 2008 )
- /DAL 05/ M. Dallongeville, J. Werle and G. McCreesh: Fuel Integrity Project: Analysis of Results of Tests on Light Water Reactor Fuel Rods. RAMTRANS Vol.16, No.2, pp.125-133 (2005)
- /GOL 09/ Dr. W. Goll (AREVA NP) E-Mail an Dr. E. Schrödl (GRS) vom 05.02.2009 sowie vom 12.02.2009
- /HEI 03/ B. Heine: Werkstoffprüfung. Ermittlung von Werkstoffeigenschaften. Fachbuchverlag Leipzig im Carl Hansen Verlag, 336 S. (2003)
- /IAE 09/ International Atomic Energy Agency (IAEA). Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material, 2009 Edition. Safety Standard Series No. TS-R-1, Vienna, (2009)
- /JUS 08/ A. Jussofie, D. Hoffmann: Alterations in the Mechanic Properties of Zirconium Alloys and Fuel due to the Operating Time in the Reactor Associated with a Burnup Higher than 50 GWd/tHM. Workshop "Behaviour of LWR Spent Nuclear Fuel under Transport Accident Conditions", Hannover, December 4-5, (2009)
- /PAP 09/ D. Papaioannou, R. Nasyrov, V.V. Rondinella, W. Goll, H.-P.I. Winkler, R. Liedtke, D. Hoffmann: Fuel Realise Experiments on Irradiated Fuel Rodlets under Transient Impact Conditions. Jahrestagung Kerntechnik, Dresden, 12-14 Mai (2009)
- /POP 86/ E. П. Попов: Теория и расчёт гибких упругих стержней. М.: Наука, 296 с. (1986)

- /PUR 04/ P. C. Purcell and M. Dallongeville: Testing of LWR Fuel Rods to Support Criticality Safety Analysis of Transport Accident Conditions. RAMTRANS Vol.15, Nos.3-4, pp.163-164 (2004)
- /RAS 05/ J. Y. R. Rashid, A. J. Machiels: A Methodology for the Evaluation of Fuel Rod Failures under Accident Conditions. Packaging, Transport, Storage and Security of Radioactive Material Vol.16, No.3, pp.211-218 (2005)
- /RAS 08/ J. Y. R. Rashid, A. J. Machiels: Review of EPRI's Research Program on the Structural Behavior of High-Burnup Spent Fuel Subjected to Transportation Accidents – Relevance to GRS' Project. Workshop "Behaviour of LWR Spent Nuclear Fuel under Transport Accident Conditions", Hannover, December 4-5, (2009)
- /REI 07/ I. Reiche: Influence of the Accident Behaviour of Spent Fuel Elements on Criticality Safety of Transport Packages – Some Basic Considerations. Proceedings of the 15<sup>th</sup> International Symposium on the Packaging and Transportation of Radioactive Materials, PATRAM 2007, Miami, Florida, USA , October 21 – 26, (2007)
- /SAN 92/ T.L. Sanders et al.: A Method for Determining the Spent-Fuel Contribution to Transport Cask Containment Requirements.SAND90-2406, (1992)

**BAM BUNDESANSTALT FÜR MATERIALFORSCHUNG UND –PRÜFUNG**

Unter den Eichen 87  
12205 Berlin, den 13.07.2009

Arbeitsgruppe  
Transportbehälter für radioaktive Stoffe

Arbeitsgruppe  
Mechanische und thermische Behälterauslegung/Sonderfragen

Der Arbeitsgruppenleiter



Dr.-Ing. F. Wille

Der verantwortliche  
Sachbearbeiter



Dr.-Ing. V. Ballheimer

### Anhang A1: Verifikation des Balkenmodells für große Durchbiegungen

Falls beim Biegeversuch große Durchbiegungen auftreten, ändern sich die Richtung der Reaktionskräfte in den Stützen sowie die effektive Bieglänge des Stabes (aufgrund des Gleitens des Stabes in den Stützen). Es handelt sich damit um ein statisch unbestimmtes System (Abb. A1-1):

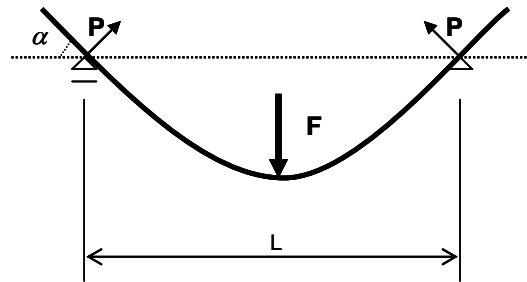


Abb. A1-1: Lagerkräfte bei großen Balkendurchbiegungen

$$P = \frac{F}{2 \cos(\alpha)}, \quad M_{\max} = \frac{F L}{4} + \frac{F w_{\max}}{2} \tan(\alpha)$$

Setzt man jedoch weiterhin ein elastisches Verhalten des Stabes voraus, so kann auch hier eine analytische Lösung gefunden werden, beispielsweise mit Methode der elliptischen Parameter nach /POP 86/. Wird dabei der Neigungswinkel an der Stütze  $\alpha$  als der unabhängige Parameter gewählt, so ergeben sich die folgenden Abhängigkeiten für die effektive Bieglänge des Stabes, die Lagerkraft sowie die maximale Durchbiegung:

$$L_{\text{eff}} = L \left/ \left( \left( 2 \frac{E(k) - E(\psi_0)}{F(k) - F(\psi_0)} - 1 \right) \sin(\alpha) + \frac{2k \cos(\psi_0)}{F(k) - F(\psi_0)} \cos(\alpha) \right) \right.,$$

$$P = \frac{(EJ)_{\Sigma}}{L_{\text{eff}}^2} (F(k) - F(\psi_0))^2,$$

$$w_{\max} = L_{\text{eff}} \left( \frac{2}{\beta} k \cos(\psi_0) \sin(\alpha) - \left( \frac{2}{\beta} (E(k) - E(\psi_0)) - 1 \right) \cos(\alpha) \right).$$

Hierin sind

$$F(\psi) = \int_0^{\psi} \frac{d\psi}{\sqrt{1 - k^2 \sin^2(\psi)}} \quad \text{bzw.} \quad E(\psi) = \int_0^{\psi} \sqrt{1 - k^2 \sin^2(\psi)} d\psi$$

unvollständige und

$$F(k) = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{d\psi}{\sqrt{1 - k^2 \sin^2(\psi)}} \quad \text{bzw.} \quad E(k) = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sqrt{1 - k^2 \sin^2(\psi)} d\psi$$

vollständige elliptische Integrale erster bzw. zweiter Gattung in LEGENDRE-Form.



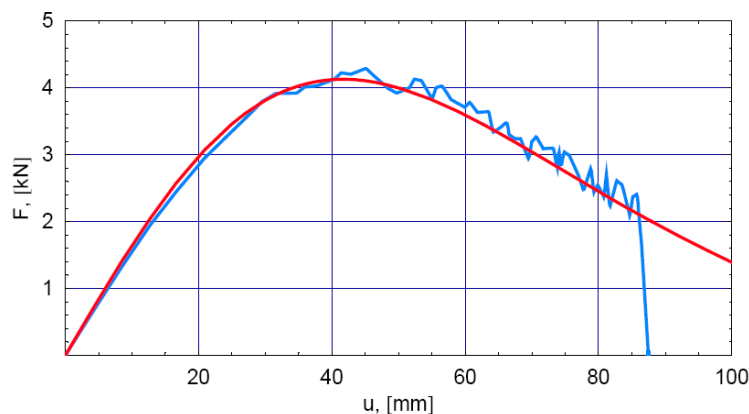
Im betrachteten Fall gilt gemäß /POP 86/ für das elliptische Modul  $k = \sin(45^\circ) = 0,707$  und

für die elliptische Amplitude  $\psi_0 = \arcsin\left(\frac{\sin\left(\frac{90^\circ - \alpha}{2}\right)}{k}\right)$ . Der Parameter  $\beta$  wird durch die

$$\text{Gleichung } \beta = \sqrt{\frac{P L_{eff}^2}{(E J)_\Sigma}} = F(k) - F(\psi_0) \text{ bestimmt.}$$

Für jeden vorgegebenen Winkel  $\alpha$  können somit die Belastung und die entsprechende Durchbiegung berechnet werden.

In der Abbildung A1-2 ist die nach dem hier beschriebenen Ansatz unter Berücksichtigung der geometrischen Abmessungen und des Elastizitätsmoduls des pilgerharten Hüllrohrs ermittelte Kraft-Durchbiegungs-Kurve den Ergebnissen der FE-Berechnungen dem im Abschnitt 3.2.2 beschriebenen Balkenmodell gegenübergestellt. Durch diesen Vergleich wird die ausreichende Qualität der FE-Modellierung bestätigt.



**Abb. A1-2:** Kraft-Durchbiegungs-Kurven für große elastische Balkendurchbiegungen  
(— analytische Berechnung; — FE-Berechnung mit Balkenmodell)

**Anhang A2: Zusammenfassung der bei Finite Elemente Berechnungen berücksichtigten Werkstoffkennwerte von den getesteten Hüllrohrvarianten**

**Tabelle A2-1:** Werkstoffdaten für Std. Zry-2 ( $E=97,20$  GPa,  $R_{p0,2}=384$  MPa,  $R_m=537$  MPa)

	gemessene Werte		Angaben für die FE-Berechnungen	
	$\varepsilon_t$	$\sigma_t$	$\varepsilon_{ln}^{pl} = \ln(1 + \varepsilon_t) - \frac{\sigma_w}{E}$	$\sigma_w = \sigma_t(1 + \varepsilon_t)$
	-	[MPa]	-	[MPa]
1	0,0028	270,0	0,0000	270,8
2	0,0040	320,0	0,0007	321,3
3	0,0060	384,0	0,0020	386,0
4	0,0080	410,0	0,0037	413,2
5a	0,2000	537,0	0,1757	643,6
5b	0,1233		0,1101	602,5

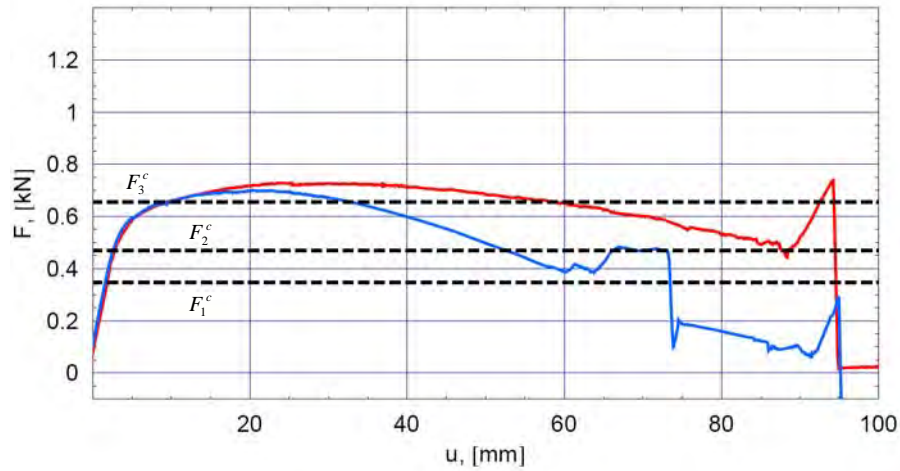
**Tabelle A2-2:** Werkstoffdaten für Zry-2, pilgerhart ( $E=92,11$  GPa,  $R_{p0,2}=784,8$  MPa,  $R_m=889,7$  MPa)

	gemessene Werte		Angaben für die FE-Berechnungen	
	$\varepsilon_t$	$\sigma_t$	$\varepsilon_{ln}^{pl} = \ln(1 + \varepsilon_t) - \frac{\sigma_w}{E}$	$\sigma_w = \sigma_t(1 + \varepsilon_t)$
	-	[MPa]	-	[MPa]
1	0,0037	300,0	0,0000	301,1
2	0,0060	500,0	0,0005	503,0
3	0,0100	784,8	0,0013	792,7
4a	0,0500	889,7	0,0386	934,2
4b	0,0400		0,0296	925,7

**Tabelle A2-3:** Werkstoffdaten für Std. Zry-2, hydriert ( $E=95,92$  GPa,  $R_{p0,2}=373,5$  MPa,  $R_m=584$  MPa)

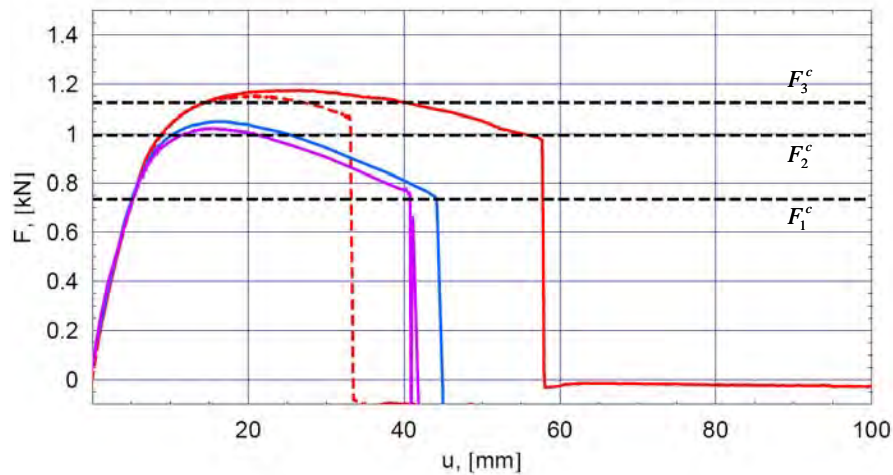
	gemessene Werte		Angaben für die FE-Berechnungen	
	$\varepsilon_t$	$\sigma_t$	$\varepsilon_{ln}^{pl} = \ln(1 + \varepsilon_t) - \frac{\sigma_w}{E}$	$\sigma_w = \sigma_t(1 + \varepsilon_t)$
	-	[MPa]	-	[MPa]
1	0,0017	180,0	0,0000	180,3
2	0,0035	300,0	0,0004	301,1
3	0,0060	373,5	0,0021	375,7
4	0,0085	420,0	0,0040	423,6
5a	0,0600	584,0	0,0518	619,0
5b	0,0300		0,0233	601,5

**Anhang A3:** Gemessene statische Kraft-Durchbiegungs-Kurven im Vergleich zu theoretischen Grenzkraften ( $F_1^c$  - Erreichen der  $R_{p0,2}$ ;  $F_2^c$  - vollplastischer Zustand mit  $R_{p0,2}$ ;  $F_3^c$  - pseudo-vollplastischer Zustand mit  $R_m$ ; vgl. Abschnitt 3.1)



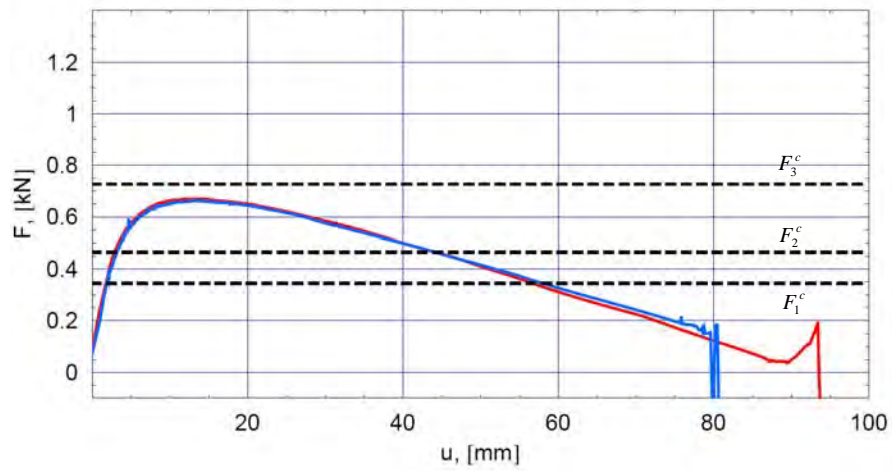
**Abb. A3-1:** Statische Versuche mit Std. Zry-2

— Hauptversuch H5      — Hauptversuch H11



**Abb. A3-2:** Statische Versuche mit Zry-2, pilgerhart

--- Vorversuch V7      — Hauptversuch H1  
— Hauptversuch H7      — Hauptversuch H13



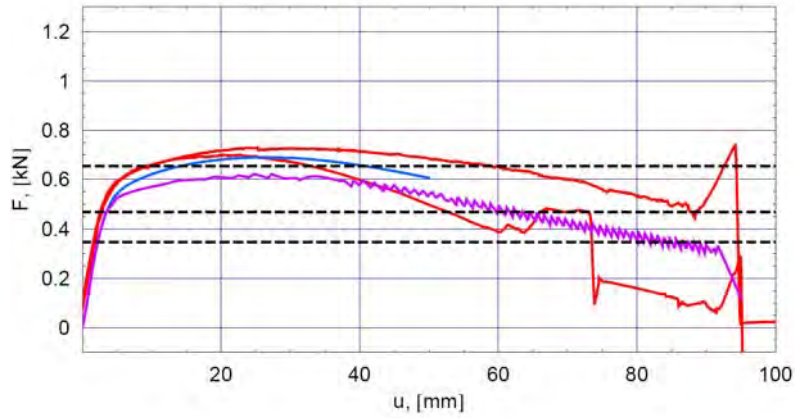
**Abb.A3-3:** Statische Versuche mit Std. Zry-2, hydriert

— Hauptversuch H3

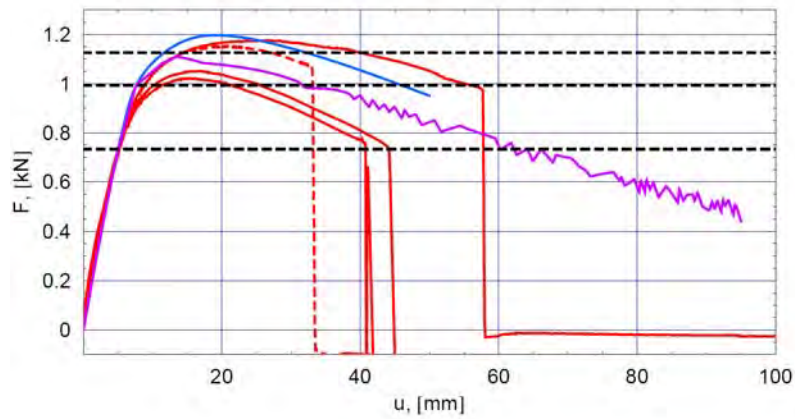
— Hauptversuch H9

**Anhang A4: Zusammenstellung der Ergebnisse der Nachrechnungen von den statischen Biegeversuchen (gestrichelte Linien vgl. Anhang A3)**

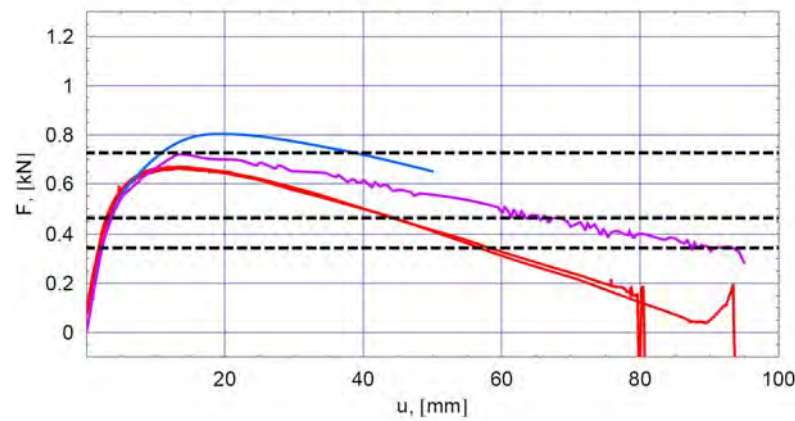
— Versuchsergebnisse, — Balkenmodell, — Kontinuumsmodell.



**Abb. A4-1:** Ergebnisse für Std. Zry-2

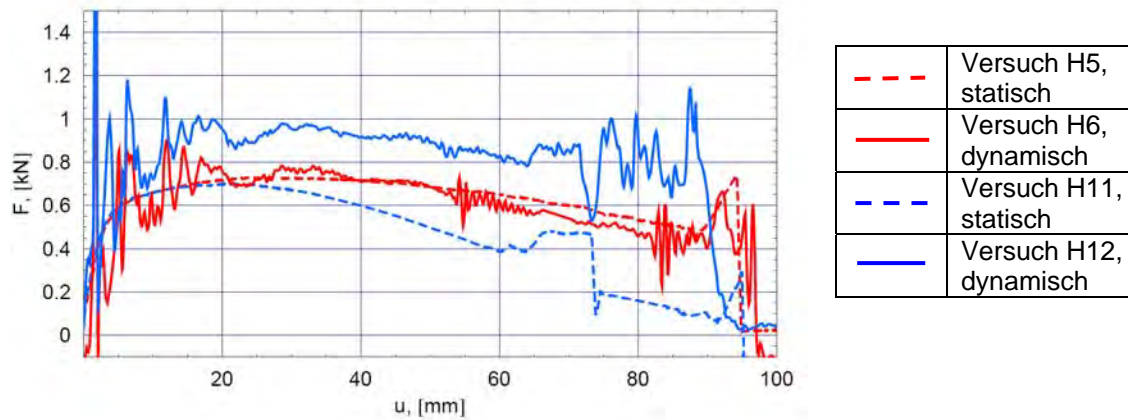


**Abb. A4-2:** Ergebnisse für Zry-2, pilgerhart

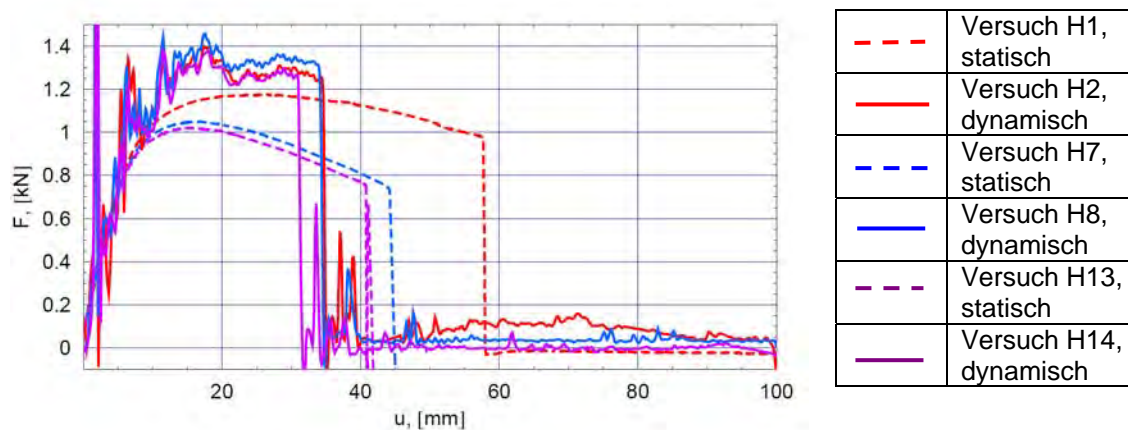


**Abb. A4-3:** Ergebnisse für Std. Zry-2, hydriert

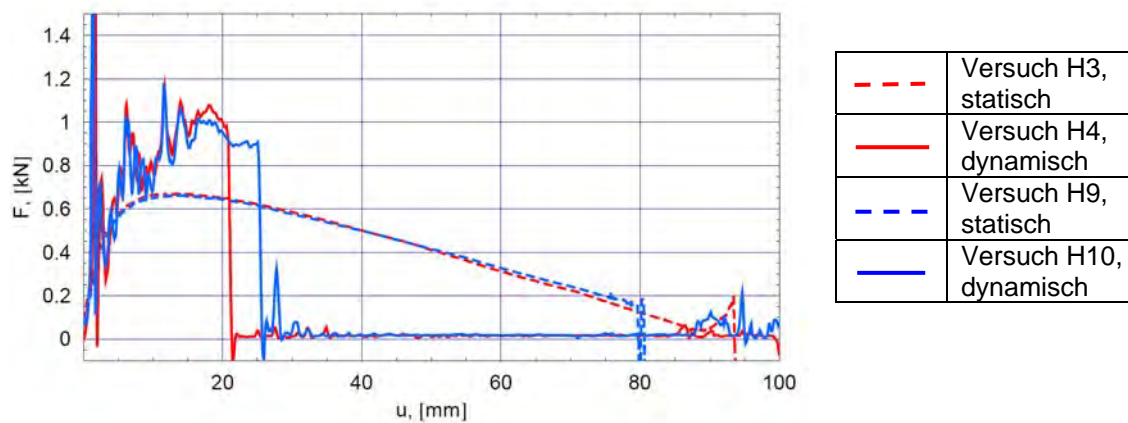
### Anhang 5: Zusammenstellung der experimentellen Ergebnisse:



**Abb. A5-1:** Ergebnisse für Std. Zry-2

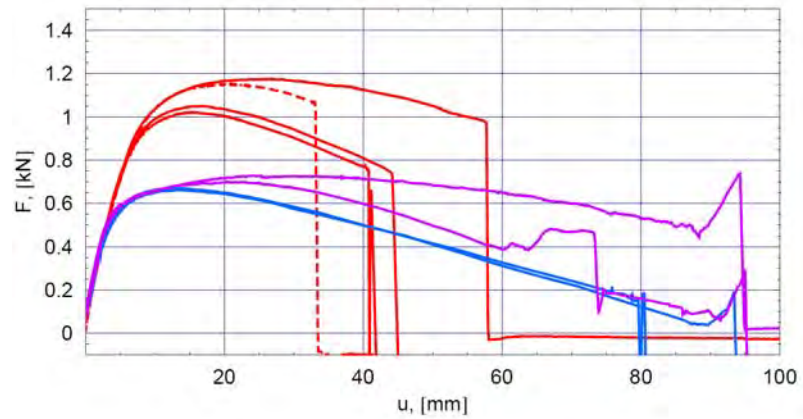


**Abb. A5-2:** Ergebnisse für Zry-2, pilgerhart



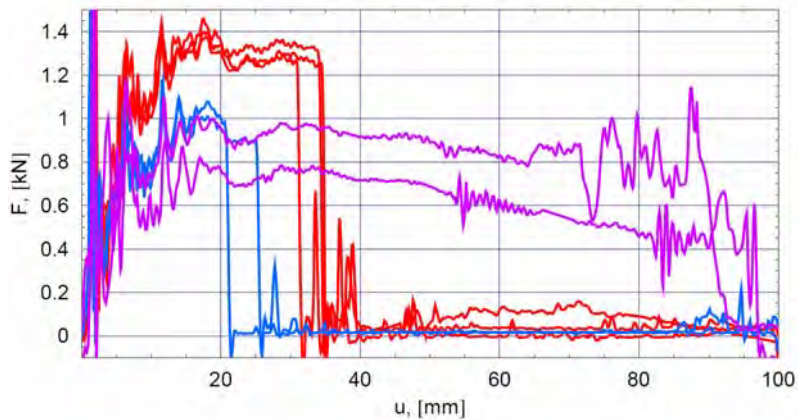
**Abb. A5-3:** Ergebnisse für Std. Zry-2, hydriert





**Abb. A5-4:** Ergebnisse von statischen Versuchen

— Std. Zry-2, — Zry-2, pilgerhart, — Std. Zry-2, hydriert.



**Abb. A5-5:** Ergebnisse von dynamischen Versuchen

— Std. Zry-2, — Zry-2, pilgerhart, — Std. Zry-2, hydriert.