

**Langzeitverhalten
zwischen-gelagerter
Brennelemente bei
deutlich längerer
Zwischenlagerung**

Langzeitverhalten zwischen-gelagerter Brennelemente bei deutlich längerer Zwischenlagerung

Maik Stuke
Felix Boldt
Volker Hannstein
Peter Kaufholz
Marc Péridis
Fabian Sommer
Hans-Günther Sonnenburg

Dezember 2018

Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrundeliegende FE-Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Wirtschaft und Energie (BMWi) unter dem Kennzeichen RS1552 durchgeführt.

Die Arbeiten wurden von der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH ausgeführt. 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.

Deskriptoren:

Brennstab, Langzeitverhalten, Zwischenlagerung

Kurzfassung

Der Bericht enthält eine detaillierte Beschreibung der wesentlichen Arbeiten und Ergebnisse für den Zeitraum von Projektbeginn am 1. April 2017 bis 31. Oktober 2018 im Vorhaben RS 1552 „Langzeitverhalten zwischengelagerter Brennelemente bei deutlich längerer Zwischenlagerung“. Ausführlich dargestellt werden erzielte Zwischenergebnisse und aktuelle Arbeiten. Dieser Zwischenbericht wird in den Abschlussbericht integriert, sodass zum Vorhabensabschluss ein zentrales Referenzdokument verfügbar wird.

Inhaltsverzeichnis

	Kurzfassung.....	I
1	Einleitung	1
2	Temperaturfeldberechnungen	3
2.1	Bestimmung der Nachzerfallswärme.....	3
2.1.1	Berechnungen mit KENOREST	6
2.1.2	Berechnungen mit TRITON	8
2.1.3	Weitere Berechnungen	9
2.2	Temperaturfeldberechnungen im Behälterinnenraum	10
2.2.1	COBRA-SFS.....	10
2.2.2	Modell eines generischen Transport- und Lagerbehälters.....	12
3	Brennstabverhalten	17
3.1	Zirkoniumhydride und Wasserstoff-Festkörperlöslichkeit	17
3.2	TESPA-ROD Weiterentwicklungen	20
3.2.1	Axiale Diffusion von Wasserstoff im Hüllrohr.....	20
3.2.2	Zusammenfassung weiterer Arbeiten.....	25
4	Datenbanken und Schnittstellen	27
4.1	Datenbank der Nachzerfallswärmeleistung im HDF5 Format.....	27
4.2	BR3ZL	28
4.3	TSSd/p Datenbank und Analysewerkzeug.....	29
	Literaturverzeichnis.....	33
	Abbildungsverzeichnis.....	37
	Tabellenverzeichnis.....	39
A	Anhang	41

1 Einleitung

Im Einklang mit dem im "Förderkonzept des BMWi (2015-2018) zur Forschung zur Entsorgung radioaktiver Abfälle" definierten Forschungszielen ist die GRS bestrebt, Methoden zur Simulation des thermischen und mechanischen Langzeitverhaltens von trocken gelagerten Brennelementen zu entwickeln. Ziel des Vorhabens ist, das Wissen um die thermischen und mechanischen Belastungszustände der Brennstabhüllrohre über einen verlängerten Zwischenlagerzeitraum von mehr als 40 Jahren zu erweitern. Somit wird es ermöglicht, relevante Schädigungsmechanismen und die Integrität der Brennstäbe und Brennelemente im Langzeitverhalten zu bewerten und Sicherheitsmargen zu quantifizieren. Der erzielbare Erkenntnisgewinn ist nicht nur für die Zwischenlagerung direkt von Interesse, sondern trägt insbesondere zur Klärung offener Fragestellungen hinsichtlich des unbeschädigten Transports und der anschließenden Konditionierbarkeit der bestrahlten Brennelemente nach verlängerter Dauer der Zwischenlagerung bei.

Die Vorgehensweise für die Bearbeitung der Problemstellung umfasst folgende Einzelziele:

- i) Abbrand-, Inventar- und Zerfallsberechnungen zur Bestimmung der Nachzerfallsleistungen, Alphaaktivitäten, Spaltgasmengen u. ä. für UO₂- und MOX-Brennstoffe inklusive Hochabbrand;
- ii) Entwicklung und Implementierung von geeigneten Behältermodellen zur Analyse der sich aus diesen Daten ergebenden Temperaturen von Brennelementen und Brennstäben sowie des resultierenden Temperaturfeldes innerhalb des jeweiligen Behälters;
- iii) Entwicklung und Implementierung eines Modells zur Bestimmung der Hydridlöslichkeit in Zirkonium unter Berücksichtigung der lokalen thermischen und mechanischen Randbedingungen, sowie der Gestalt von Zirkoniumhydrid-Ausscheidungen und deren Reorientierungsraten;
- iv) Entwicklung und Implementierung eines Modells zum Hüllrohrkriechen bei radial orientierten Zirkoniumhydriden, und von mechanischen Modellen zur Bestimmung des temperaturabhängigen Hüllrohrinnendrucks und der Umfangsspannung des Hüllrohrs in der Langzeitphase;

v) Entwicklung und Implementierung eines Modells zur Bestimmung der Sprödbruch-Übergangstemperatur (DBTT) bei Hydridreorientierung, sowie Vergleich der Ergebnisse mit geeigneten experimentellen Daten zum Riss- und Bruchverhalten der Brennstabhüllrohre.

Ergebnisse der einzelnen Rechnungen werden über die Wahl geeigneter Schrittweiten zeitlich und örtlich so aufgelöst, dass die Verläufe der interessierenden Parameter über die gesamte Lagerzeit ohne Informationsverlust quasikontinuierlich dargestellt werden können. Die Lösung der Einzelschritte erfordert die Anwendung und Kopplung unterschiedlicher Rechencodes, u. a. zur Abbrand- und Zerfallsberechnung, zu Wärmeentwicklung und -ausbreitung, sowie zum Hüllrohrverhalten. So weit möglich und zweckmäßig wird eine vollumfängliche Methodik entwickelt, welche den automatisierten Ergebnistransfer zwischen den unterschiedlichen Programmen erlaubt.

Das Arbeitsprogram umfasst dazu folgende Punkte:

- AP1: Temperaturfeldberechnungen
 - AP1.1: Bestimmung der Nachzerfallsleistung
 - AP1.2: Temperaturfeldberechnung im Behälterinnenraum
- AP2: Brennstabverhalten
 - AP2.1: Zirkoniumhydride und Wasserstoff-Festkörperlöslichkeiten
 - AP2.2: Gestalt der Hydridausscheidung, Hydridreorientierung
 - AP2.3: Hüllrohrkriechen bei radial orientierten Hydriden
 - AP2.4: Sprödbruch-Übergangstemperatur
- AP3: Erstellung von Datenbanken und Schnittstellen
 - AP3.1: Erstellung und Pflege von Datenbasen
 - AP3.2: Schnittstellen zwischen Berechnungsprogrammen
- AP4: Verfolgung aktueller Forschungsarbeiten

Im Anhang A befindet sich ein Verzeichnis der in diesem Vorhaben erarbeiteten Veröffentlichungen.

2 Temperaturfeldberechnungen

Die Arbeiten zur Berechnung der Brennstabhüllrohrtemperaturen können in zwei Kategorien eingeteilt werden: Es muss die Nachzerfallswärmeleistung der Brennelemente bestimmt werden und anschließend die resultierende Wärmeabfuhr im Behälter simuliert werden.

2.1 Bestimmung der Nachzerfallswärme

Die Nachzerfallswärmeleistung variiert als Funktion der Abkühlzeit und kann theoretisch aus nuklearen Daten bestimmt werden. Dies basiert auf Berechnungen des Inventars, also den aus der Betriebsphase resultierenden Radionukliden (hauptsächlich Spaltprodukte und Aktinoide), und deren radioaktiven Zerfallseigenschaften insbesondere nach Bestrahlungsende.

Zur Berechnung der Größen wurde zum einen das in der GRS entwickelte Abbrandprogramm KENOREST /HES 03/ verwendet. Darin wird KENO-Va aus dem SCALE Paket für die dreidimensionale k_{eff} - und Neutronenflussberechnung mit dem eindimensionalen Abbrandprogramm OREST gekoppelt, das aus dem Spektralcode HAMMER für die Wirkungsquerschnittsberechnung und ORIGEN für die Inventarberechnung besteht. Außerdem wurde für Vergleichsrechnungen die aktuelle Version des Abbrandprogramms TRITON aus dem SCALE Paket /REA 16/ verwendet. Die jeweiligen programmspezifischen Einstellungen sind im Folgenden dokumentiert.

Es wurde ein generisches 18x18-24 UO₂ Brennelement mit einem gemittelten Abbrand von 65 GWd/tSM angenommen, und der axiale Abbrand gemäß einem typischen Leistungsprofil aus /CAC 97/ berechnet. Dabei wurde das Brennelement in 32 äquidistante Axialzonen eingeteilt und die Nachzerfallswärmeleistung Pin- und Axialzonenweise ermittelt. Zusätzlich wurde axial- und pinweise aufgelöst der lokale Abbrand, die lokale Aktivität [Bq] und das lokale Inventar von 56 wichtigen Nukliden ausgelesen. Diese sind: ²³⁴U, ²³⁵U, ²³⁶U, ²³⁸U, ²³⁷Np, ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu, ²⁴²Pu, ²⁴¹Am, ^{242m}Am, ²⁴³Am, ²⁴³Cm, ²⁴⁴Cm, ²⁴⁵Cm, ⁹⁰Sr, ⁹⁵Mo, ⁹⁹Tc, ¹⁰¹Ru, ¹⁰³Rh, ¹⁰⁹Ag, ¹¹³Cd, ¹²⁹I, ¹³¹Xe, ¹³³Xe, ¹³³Cs, ¹³⁴Cs, ¹³⁵Cs, ¹³⁷Cs, ¹⁴⁴Ce, ¹⁴³Nd, ¹⁴⁴Nd, ¹⁴⁵Nd, ¹⁴⁶Nd, ¹⁴⁸Nd, ¹⁵⁰Nd, ¹⁴⁷Pm, ^{148m}Pm, ¹⁴⁸Pm, ¹⁴⁹Pm, ¹⁴⁷Sm, ¹⁴⁹Sm, ¹⁵⁰Sm, ¹⁵¹Sm, ¹⁵²Sm, ¹⁵⁴Sm, ¹⁵¹Eu, ¹⁵³Eu, ¹⁵⁴Eu, ¹⁵⁵Eu, ¹⁵⁴Gd, ¹⁵⁵Gd, ¹⁵⁶Gd, ¹⁵⁷Gd, ¹⁵⁸Gd. Die berechneten Größen wurden zum Abschaltzeitpunkt und nach zehn

unterschiedlichen Abklingzeiten dokumentiert: 2, 5, 10, 20, 30, 40, 50, 75, 100, und 150 Jahre.

Basierend auf öffentlich zugänglichen Daten wurde ein typisches 18 x 18-24 Brennelementmodell entwickelt. Für die verwendeten Zahlenwerte wurden für diesen Typ von Brennelement typische Werte angenommen. Das Brennelement (BE) mit 300 Brennstäben (BS) ist achtersymmetrisch aufgebaut. Das Modell besitzt insgesamt 24 wassergefüllte Führungsrohre, die an den jeweiligen Positionen Brennstäbe ersetzen. Abb. 2.1 zeigt das untere linke Viertel des symmetrisch aufgebauten Brennelements. Dabei sind die sechs wassergefüllten Führungsrohre ohne Brennstoff in Dunkelrot ersichtlich. Unter Ausnutzung der zusätzlichen diagonalen Symmetrie (links unten bis rechts oben) des Viertelbrennelements ergeben sich 41 individuelle Brennstabpositionen. Um diese einzeln berechnen zu können, wurden die Materialien des Brennstoffs, der Hüllrohre und des Moderators in den Computermodellen individuell definiert, was durch die unterschiedlichen Farben in Abb. 2.1 ersichtlich gemacht wurde. In Tab. 2.1 sind die Werte der verwendeten Größen für das BE mit den zugehörigen Quellen angegeben.

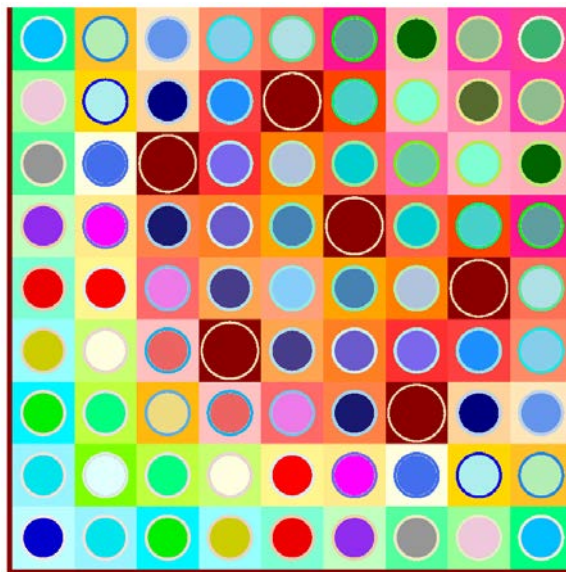


Abb. 2.1 Linkes unteres Viertel des 18x18-24 Brennelements

Tab. 2.1 Verwendete Größen mit Quellenangabe

Größe	Wert
BS Geometrie	18 x 18
Anzahl der BS	300
Anzahl der Führungsrohre	24
Länge der aktiven Zone	390,0 cm
Brennstoff Durchmesser	0,80 cm
Brennstoff Temperatur	500° C (773° K)
Hüllrohr Material	Zr-Legierung
Hüllrohr Dichte	6,56 g/cm ³
Hüllrohr Durchmesser innen	0,83 cm
Hüllrohr Durchmesser außen	0,95 cm
Hüllrohr Temperatur	332,8° C (605,8° K)
Moderator Material	H ₂ O
Moderator Temperatur	310° C (583° K)
Moderator Druck	158,0 bar
Gitterabstand BS	1,27 cm
Gitterabstand BE	23,1 cm
Führungsrohr Durchmesser innen	1,1 cm
Führungsrohr Durchmesser außen	1,2 cm

Es wurde zunächst reiner Uran-Brennstoff (UO₂) untersucht. In Tab. 2.2 sind die für den Uranbrennstoff verwendeten spezifischen Größen und ihre Werte angegeben.

Tab. 2.2 Brennstoffspezifische Details UO₂

Größe	Wert
Brennstoff Material	UO ₂
Brennstoff Dichte	10,7 g/cm ³
Anreicherung ²³⁵ U	4,65 wt%

Für die Abbrandrechnungen wurden fünf gleiche Zyklen á 325 Tagen Brenndauer, gefolgt von jeweils 50 Tagen Stillstandszeit angenommen. Diese Abbrandhistorie führt zu einer Gesamtbestrahlungszeit von 1625 Tagen und zu einem Gesamtabbrand von 65 GWd/tSM. Nach dem letzten Zyklus wurden die Inventare nach zehn Abklingzeiten von 2, 5, 10, 20, 30, 40, 50, 75, 100, und 150 Jahren berechnet.

2.1.1 Berechnungen mit KENOREST

Für die Berechnung der Nachzerfallswärmeleistung mit KENOREST wurden die Einstellungen in Tab. 2.3 gewählt. In diesem Programm wurde das komplette Brennelement gerechnet, siehe Abb. 2.2.

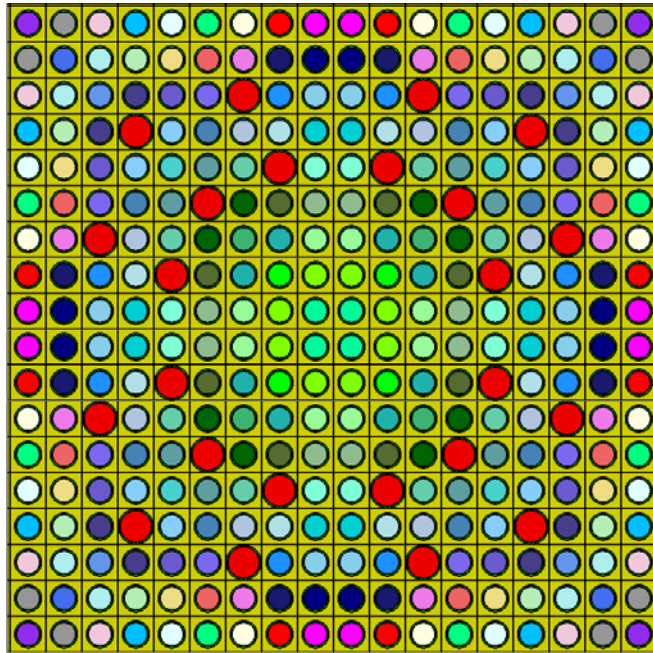


Abb. 2.2 Modellierung des 18x18-24 DWR Brennelements in KENOREST

Für eine bessere Bestimmung der Ergebnisse wurden die Abbrandzyklen zusätzlich unterteilt. Neben zwei anfänglichen Zeitschritten von 0,1 und 4,9 d um das Xenon-Gleichgewicht zu erreichen, wurde der erste Zyklus von insgesamt 325 d in 1 x 20 d und 3 x 100 d unterteilt, die restlichen Zyklen in 1 x 25 d und 2 x 150 d.

Tab. 2.3 Einstellungen für KENOEST

Größe	Bedeutung	Wert
\$sepsxlal	Konvergenzkriterium für Reaktivität (startup)	0,001
	Konvergenzkriterium für Reaktivität (Abbrand)	0,01
	Konvergenzkriterium für Stableistungsverteilung (startup)	0,01
	Konvergenzkriterium für Stableistungsverteilung (Abbrand)	0,05
\$nbamin	Minimale Anzahl der Neutronengenerationen	1.000
\$nbpmin	Minimale Anzahl der Neutronen pro Generation	5.000
XSDIRECTORY	Wirkungsquerschnittsbibliothek	endf7-corr

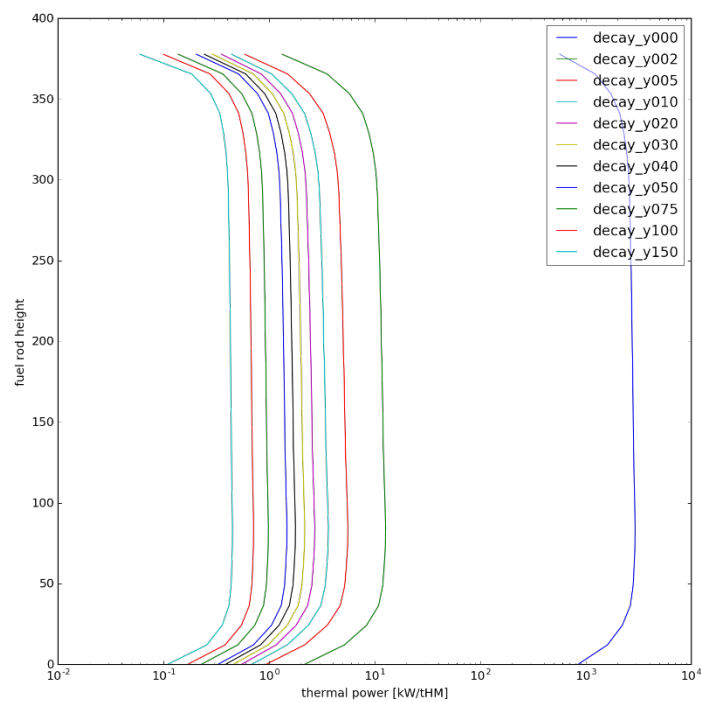


Abb. 2.3 Berechnete axiale thermische Leistung eines mittleren Brennstabs [kW/tSM] für 0 bis 150 Jahre Abklingzeit

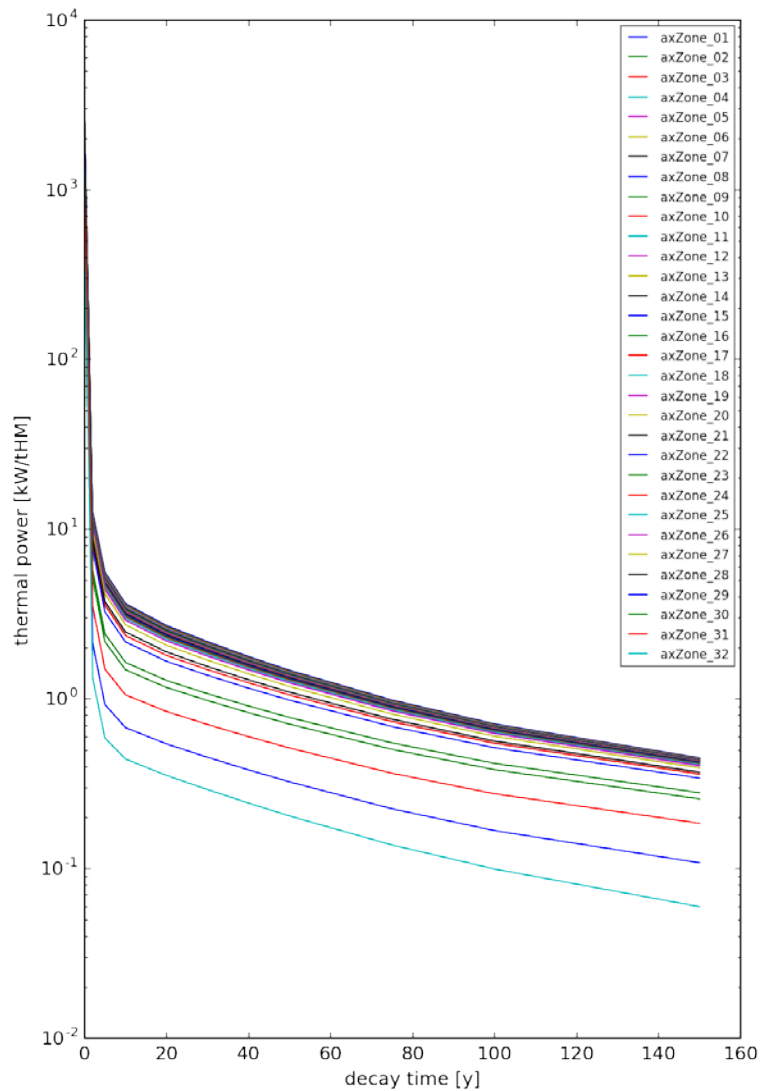


Abb. 2.4 Zerfallszeit in Jahren aufgetragen gegen die thermische Leistung [kW/tSM] für jede der 32 axial Zonen eines mittleren Brennstabs

2.1.2 Berechnungen mit TRITON

Für die Berechnung der Nachzerfallswärmeleistung mit TRI-TON aus dem SCALE 6.2.2 Paket wurden ebenfalls die Parameter gem. Tab. 1.5 gewählt. In diesem Programm wurde $\frac{1}{4}$ des gesamten Brennelements modelliert.

Für eine bessere Bestimmung der Ergebnisse wurden die Abbrandzyklen zusätzlich unterteilt. Dabei wurde jeder der fünf Zyklen mit dem Keyword „nlib“ in 10 gleiche Zeitschritte von jeweils 32,5 d unterteilt.

Tab. 2.4 Einstellungen für TRITON

Größe	Bedeutung	Wert
	Rechensequenz für die Abbrandrechnung	t-depl (2D TRITON)
	Wirkungsquerschnittsbibliothek	ENDF/B-VII.1, 252 Energiegruppen
sn	Sn quadratische Ordnung für die Transportrechnung	4
inners	Maximale Anzahl an inneren Iterationen pro Energiegruppe	1000
outers	Maximale Anzahl an äußeren Iterationen.	500
epsinner	Räumliches Konvergenzkriterium für innere Iterationen	0,003
epsouter	Räumliches Konvergenzkriterium für äußere Iterationen	0,003
epseigen	Konvergenzkriterium für k_{eff}	0,003
kguess	Anfängliche Schätzung für k_{eff}	1,33
xycmfd	Anzahl der Einteilungen des globalen NEWT-Gitters pro grober Gitterzelle in x- und y-Richtung	8
pn (Brennstoff, Hüllrohre)	Legendreordnung für die Momentberechnung der Streuquerschnitte für Brennstoff und Hüllrohre	1
pn (Moderator)	Legendreordnung für die Momentberechnung der Streuquerschnitte für den Moderator H ₂ O	3

2.1.3 Weitere Berechnungen

Neben der Berechnung der Nachzerfallsleistung mittels Summationscodes wurde ebenfalls ein Programm zur Berechnung der Nachzerfallsleistung von LWR Brennelementen anhand von verschiedenen Nachzerfallsleistungsstandards erstellt. Implementiert sind folgende Standards:

- ANSI/ANS-5.1-2005,
- DIN 25463-1:1990,
- DIN 25463-1:1990 vereinfachte Formel,
- DIN 25463-1:2014 (für DWR UO₂ Brennstoffe) und
- DIN 25463-2:2014 (für DWR MOX Brennstoffe).

Die Standards schätzen die Nachzerfallwärmeleistung prinzipiell konservativ, also im Vergleich zu den Summationscodes typischerweise überhöht ein. Ein exemplarischer Vergleich der ANSI/ANS-5.1-2005 Normen mit realistischeren "Best-Estimate" Rechnungen unter Verwendung von OREST /HES 03/ für ein 18x18-24 DWR Brennelement ist in Abb. 2.5 gezeigt.

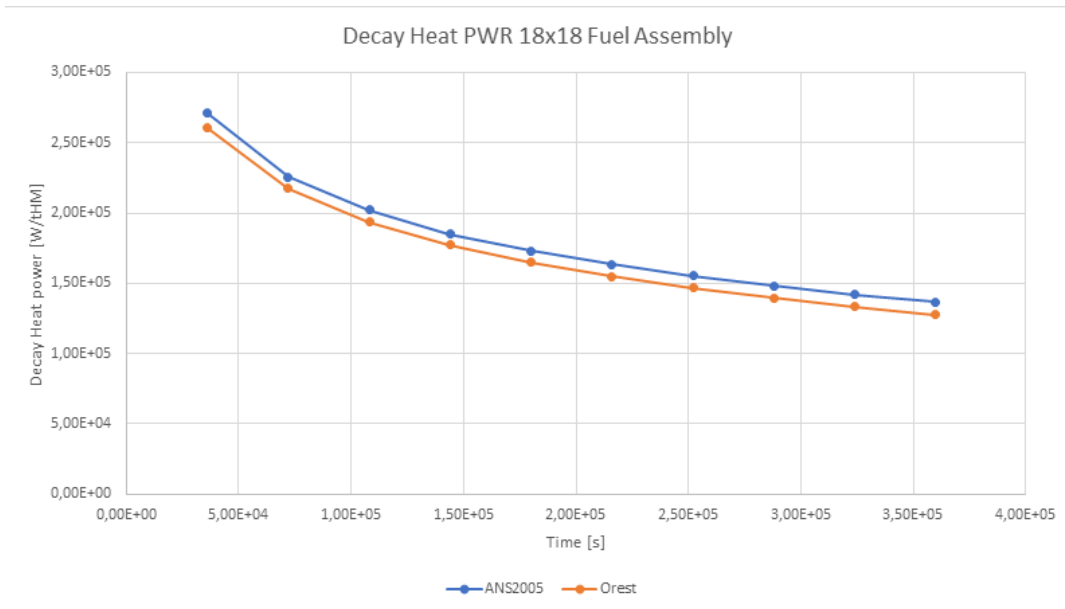


Abb. 2.5 Vergleich der Ergebnisse zwischen OREST und ANSI/ANS-5.1-2005

2.2 Temperaturfeldberechnungen im Behälterinnenraum

Zur Berechnung der Temperaturfelder wurde das Programm COBRA-SFS CYCLE 4A /MIC 15/ herangezogen. Das Programm wurde am Pacific Northwest National Laboratory, USA entwickelt. Mit dem Programm wurden zwei Behälter modelliert und für Analysen benutzt.

2.2.1 COBRA-SFS

Bei dem Code COBRA-SFS CYCLE 4A (**C**oolant **B**oiling in **R**od **A**rray – **S**pent **F**uel **S**torage) handelt es sich um ein z. B. über die NEA Datenbank verfügbares Codesystem für die thermo-hydraulische Analyse von mit bestrahlten Brennelementen beladenen Behältern. Das Programm liefert Vorhersagen von Wärmefluss- und Temperaturverteilungen unter Berücksichtigung von natürlicher Konvektion und erzwungenen Wärmetransportbedingungen sowohl für statische Gleichgewichts- als auch für transiente Bedingungen.

Das Programm wird seit 1973 entwickelt, und ist gut dokumentiert und validiert /MIC 15/. Ein besonderer Vorteil ist die kurze Berechnungsdauer von wenigen Minuten.

Die Validierung des Programms fand u. a. mit der Nachrechnung eines TN-24P Behälters beladen mit 24 Brennelementen aus dem Surry Reaktor (Virginia, USA) statt. Ausgehend von diesen Rechnungen wurden im vorliegenden Projekt weitere Analysen durchgeführt. Das Modell des Behälters ist in Abb. 2.6 dargestellt. Die Ergebnisse für eine homogene Beladung (alle Stäbe haben identische Leistung und identisches Leistungsprofil) sind in Abb. 2.7 dargestellt. Eine homogene Beladung bietet die Möglichkeit der Symmetrieüberprüfung, wie die eingezeichneten Achsen im linken Bild von Abb. 2.7 zeigen. Das rechte Bild zeigt die axiale Temperaturverteilung für die farblich gekennzeichneten Stäbe eines Viertels des Behälters.

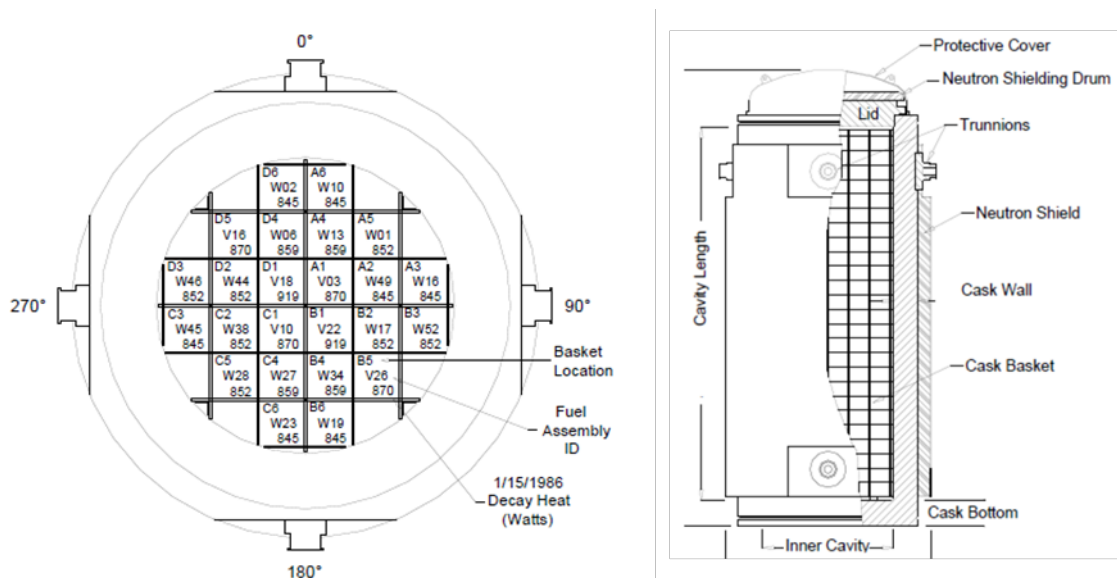


Abb. 2.6 Horizontales und vertikales Schnittbild des TN-24P Behälter mit Beladungsschema, nach PNNL-1183

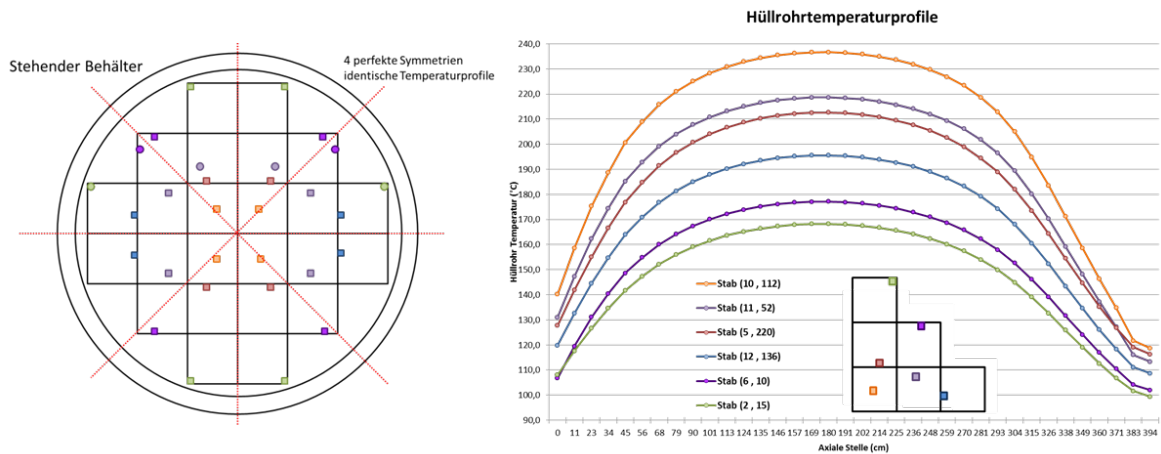


Abb. 2.7 Horizontale Symmetrieachsen des TN-24P Behälters sowie die axiale Temperaturverteilung ausgewählter Stäbe bei homogener Beladung

2.2.2 Modell eines generischen Transport- und Lagerbehälters

Als ein weiteres Behältermodell in COBRA-SFS wurde ein generisches Modell entwickelt, das an den Typ GNS CASTOR^(R) V/19 angelehnt ist. Letzterer ist der gebräuchlichste Behälter für DWR Brennelemente in Deutschland. In ihm finden bis zu 19 Brennelemente mit einer maximalen Gesamtleistung von 39 kW Platz. Das entwickelte Modell besteht aus 568 Nodes (siehe Abb. 2.8) und ist für die folgende Analyse mit 19 DWR-Brennelementen (18x18-24) und jeweils 36 Axialzonen konzipiert.

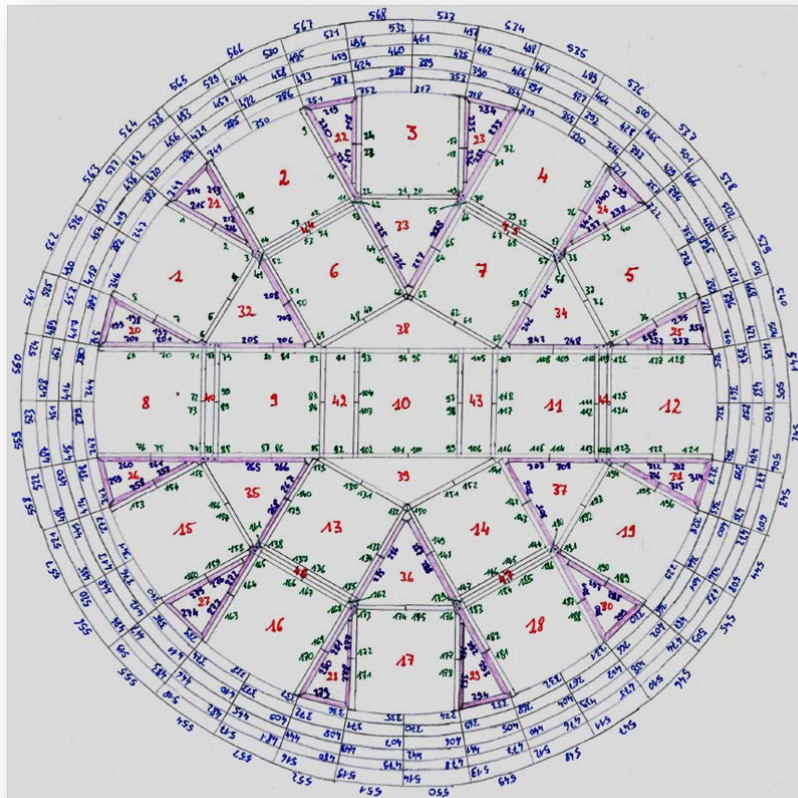


Abb. 2.8 Graphische Darstellung der horizontalen Nodes in COBRA-SFS

Die Symmetrie wurde wieder mit einer homogenen Beladung überprüft. Die dreidimensionale Visualisierung erfolgt dabei mit BR3ZL, ein auf ParaView /PAR 18/ basierendes Analyseprogramm (siehe Kapitel 4.2). Die Ergebnisse sind erwartungsgemäß symmetrisch, was es erlaubt einzelne, symmetriebrechende Modellierungsfehler auszuschließen. Exemplarisch dargestellt für eine Gesamtleistung von 39 kW und 18x18-24 DWR Brennelemente (6,8 Watt pro Stab) ist die Visualisierung in Abb. 2.9. Ein weiteres Analysewerkzeug wurde auf Basis der Codebibliothek Matplotlib /HUN 07/ in der Programmiersprache Python geschrieben. Der generelle Ablauf der Temperaturanalyse ist in Abb. 2.10 dargestellt.

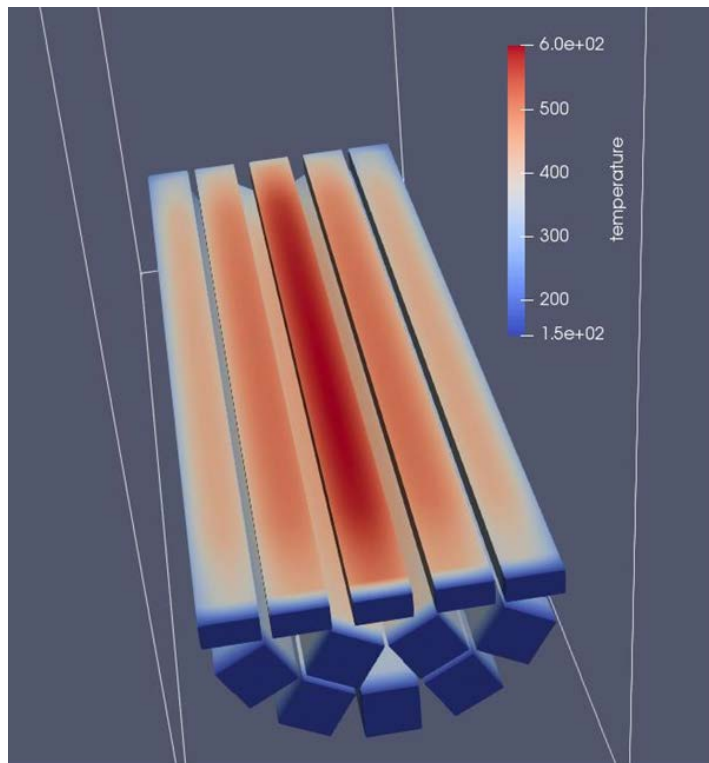


Abb. 2.9 Bildschirmausschnitt der mit BR3ZL erstellten dreidimensionalen Visualisierung der Temperaturverteilung der Brennelemente eines homogen beladenen Behälters

Eine direkte Validierung des Modells ist auf Grund mangelnder Verfügbarkeit von experimentellen Ergebnissen derzeit nicht möglich. Dagegen können die Ergebnisse mit denjenigen anderer Codes verglichen werden. Dazu wurden Ergebnisse des gleichen Behälters und gleicher Beladung berechnet mit den Codes COCOSYS /COC 01/ und ANSYS-CFX /Zitat/ herangezogen /STE 14/. Die Modellierung in den Codes unterscheidet sich prinzipiell, so dass hier nur die Brennstäbe des inneren Brennelements (Nr. 10 in Abb. 2.8) sinnvoll verglichen werden können. Die Modellierung in COCOSYS erfolgte hierbei in zwei Dimensionen. Das zentrale Brennelement wurde durch neun verschiedenen Brennstäbe simuliert, während die übrigen Brennelemente als homogenisierte Wärmequellen angenommen wurden. Die durchgeführten Berechnungen unterschätzen den konvektiven Wärmeaustausch durch Helium, so dass die Lösungen als konservativ, also die Temperatur überschätzend, angenommen werden können. Die Modellierung mit ANSYS-CFX benutzt ein dreidimensionales Modell der heißesten Axialzone. Dabei wird das zentrale Brennelement sehr detailliert modelliert mit 1,5 Millionen Elementen. Die weiteren Brennelemente werden als homogenisierte Einheiten angenommen. Weiterführende Details zu den Modellen und Rechnungen sind in /STE 14/ beschrieben.

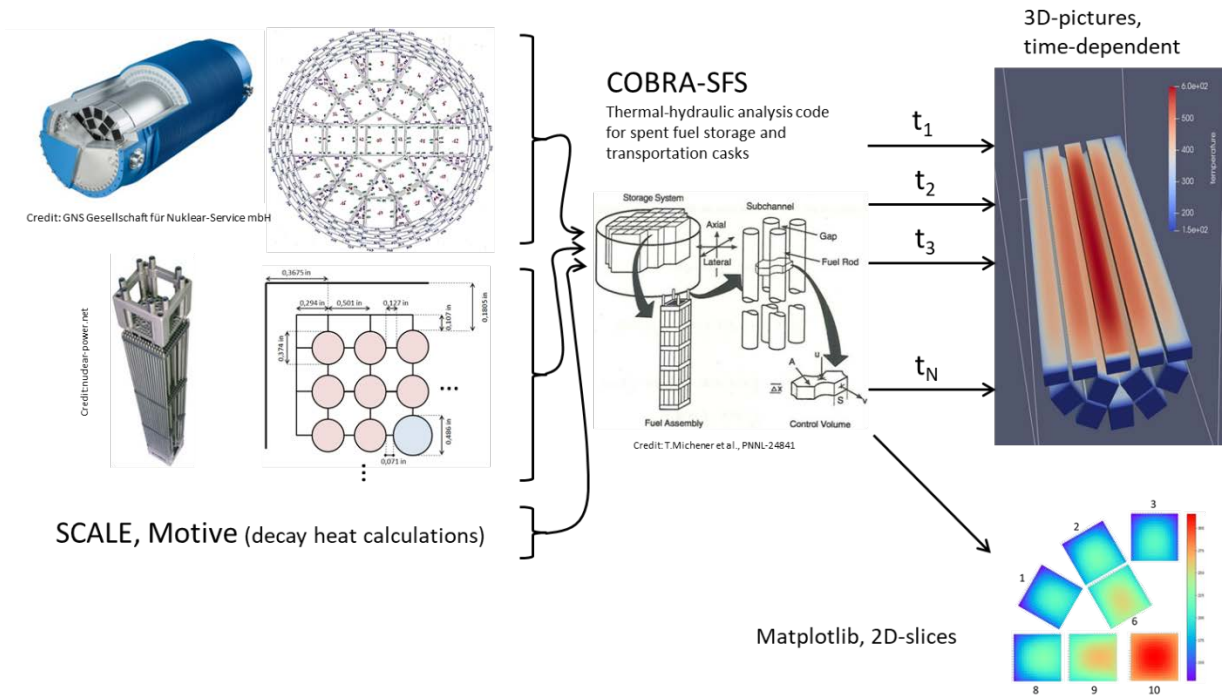


Abb. 2.10 Grafische Zusammenfassung des Ablaufs der Temperaturanalyse

Die Ergebnisse der Hüllrohrtemperaturen aus den drei Rechnungen wurden für das heißeste Brennelement verglichen. Die Ergebnisse sind grafisch in Abb. 2.11 dargestellt. Die Abbildung zeigt die Hüllrohrtemperaturen des zentralen Brennelements an der heißesten Stelle einer homogenen Beladung. Die unterschiedlichen Temperaturverläufe sind mit den unterschiedlichen Modellierungsannahmen und Rechenmethoden zu erklären. Innerhalb dieser Unterschiede sind die Ergebnisse gut miteinander vergleichbar.

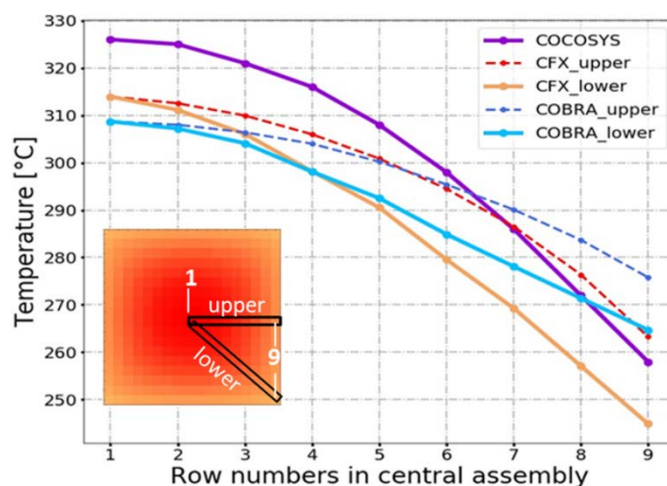


Abb. 2.11 Vergleich der Hüllrohrtemperaturen für die heißeste Axialzone zwischen den Codes COBRA-SFS, ANSYS-CFX und COCOSYS

In Abb. 2.11 sind die Ergebnisse der COBRA-SFS Rechnung für die heißeste axiale Zone dargestellt. Die Temperaturen variieren von 150° C (blau) bis 325° C (rot). Man kann gut erkennen, dass sich die heißesten Zonen der jeweiligen Brennelemente in Richtung der Behältermitte einstellen.

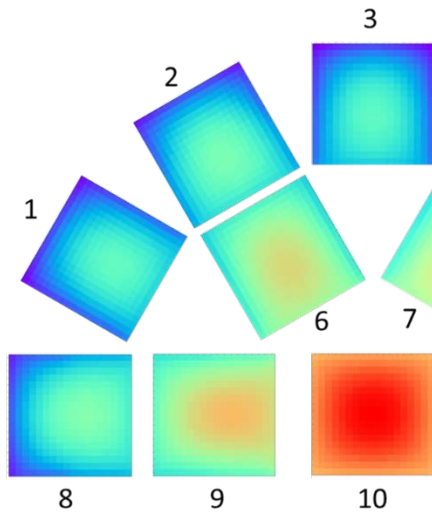


Abb. 2.12 Temperaturverteilung der heißesten axialen Zone, berechnet mit COBRA-SFS

Eine weitere Darstellung der Temperaturen ist in Abb. 2.13 gegeben. Betrachtet man die gesamte axiale Länge, dann variieren für die homogene Beladung unter Annahme eines generischen und typischen Abbrandprofils die Hüllrohrtemperaturen von ca. 70° C (FA8) bis 325° C (FA10). Ebenfalls lässt sich ein großer Temperaturgradient innerhalb eines Brennelementes feststellen.

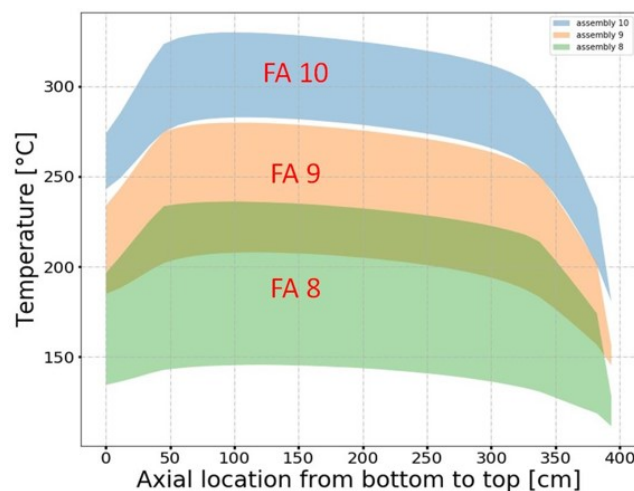


Abb. 2.13 Hüllrohrtemperaturdomänen für die Brennelemente 8, 9, und 10

3 Brennstabverhalten

3.1 Zirkoniumhydride und Wasserstoff-Festkörperlöslichkeit

Für die Beschreibung der Zirkoniumhydride im Brennstabhüllrohr werden Kenntnisse über das Lösungs- und Ausscheidungsverhalten von Wasserstoff in der Zirkoniumlegierung benötigt. Verschiedene Experimente haben gezeigt, dass die Löslichkeit stark temperaturabhängig ist. Die gemessenen Werte lassen sich über einen exponentiellen Fit analog zur Arrhenius-Gleichung darstellen. Die Löslichkeit in Gewichtsanteil ergibt sich zu

$$C = A \exp \left[-\frac{Q}{RT} \right] \quad (3.1)$$

mit C als Konzentrationsmassenanteil in ppm, A als Fitfaktor, Q als Aktivierungsenergie in Joule, R als Gaskonstante in J/(mol·K) und T als Temperatur in K. Da es sich um einen Fit handelt, sind alle nicht separat erfassten Informationen in den Größen A und Q enthalten. In der Literatur finden sich mehrere Computer-Codes, die für die Hydridausscheidung erweitert wurden und deren Löslichkeitsmodelle auf den Messungen von McMinn /MCM00/ beruhen, z. B. der Code BISON /STA 15/. Das kann darauf zurückgeführt werden, dass McMinn in der Literatur als einer der ersten bestrahlte und unbestrahlte Proben von zwei häufig verwendeten Hüllrohrwerkstoffen (Zry-2 und Zry-4) untereinander vergleichen hat.

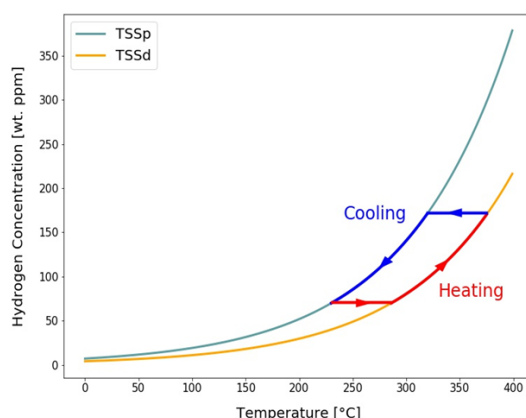


Abb. 3.1 TSSd und TSSp Kurve mit eingezeichneter Hysterese

Es wurde eine Literaturrecherche über die verfügbaren Experimente durchgeführt und mit den entsprechenden Werten eine Datenbank aufgebaut. Zur experimentellen Bestimmung der Löslichkeitsgrenzen TSSp (Terminal Solid Solubility precipitation) und TSSd (Terminal Solid Solubility dissolution) wurden verschiedenen Verfahren angewandt. Eine Übersicht der betrachteten Experimente ist Kapitel 4.3 dargestellt.

Deutsche DWR verwenden hauptsächlich die vier Hüllrohrmaterialien Zry-4, ZIRLO, M5 und DUPLEX. Bei Zry-4 handelt es sich dabei um die Varianten PCA-2A und -2B. Die vorliegenden Experimente sind nicht in Deutschland durchgeführt worden, und es gibt kein Hinweis darauf, dass darin genau die deutsche Zry-4-Spezifikation verwendet wurde. Experimente mit DUPLEX, einem Material mit einer Beschichtung (engl. *liner*) fehlen ebenfalls. Hier gibt es jedoch vergleichbare Anhaltspunkte, bei Untersuchungen von Une et al. /UNE 09/ bei dem Zry-2 mit einem Zirkonium-Liner auf Löslichkeitsunterschiede untersucht wurde. Die moderneren Werkstoffe M5 und ZIRLO sind trotz ihrer relativ großen Verbreitung nur einmal bzw. gar nicht in der Literatur näher untersucht worden. Die verwendeten Messverfahren beinhalten die Diffusionsmethoden, Dynamische-Differenz-Kalorimetrie (DSC, engl. *Differential scanning calorimetry*), Messung des E-Moduls (DEM, engl. *Dynamic elastic modulus*), Dilatometrie (Messung von Dehnungen) sowie Röntgendiffractometrie (in-situ XRD, engl. *X-ray diffraction*).

Trägt man die einzelnen Messungen der Löslichkeit über die Temperatur auf, zeigen sich die zum Teil großen Abweichungen (Abb. 3.2). Hierbei haben verschiedene Experimente gezeigt, dass der Einfluss der Legierungselemente nur gering ist. So leiten z. B. Kearns, McMinn und Une jeweils nur eine Korrelation für mehrere Materialien ab. Das ist bemerkenswert, da es sich teilweise Legierungen handelt, die deutliche Unterschiede in ihrer Textur und ihrem Verhalten aufweisen. So geht McMinn z. B. auf verschiedene Wärmebehandlungen von Zry-2 und Zry-4 ein, und kommt zu dem Schluss, dass es keine signifikanten Unterschiede im Löslichkeitsverhalten gibt /MCM 00/.

Zircaloy-2

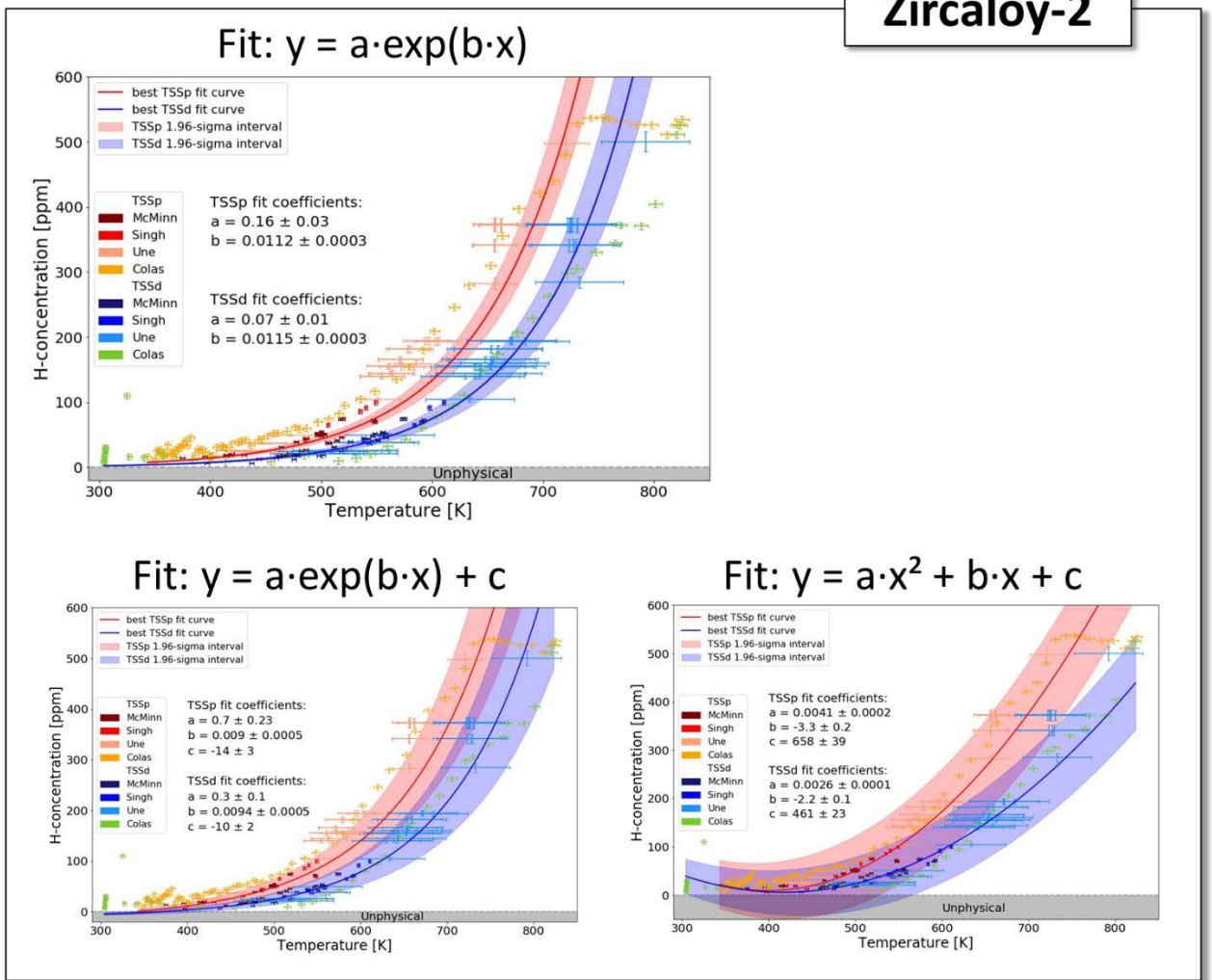


Abb. 3.2 Unterschiedliche Fitfunktionen angewendet auf Datenpunkte zu Zircaloy-2

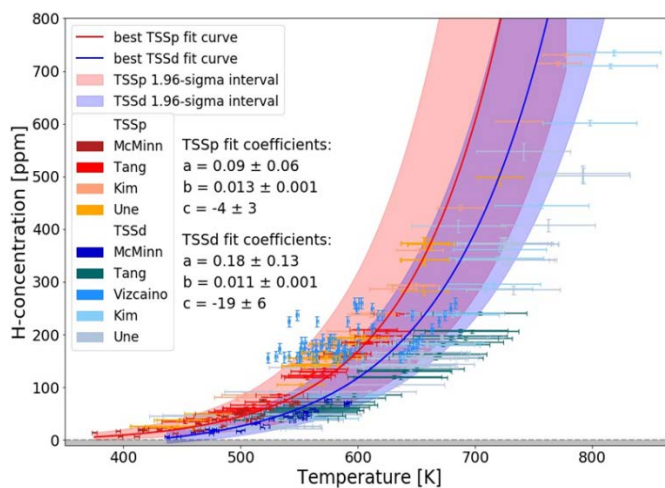


Abb. 3.3 TSSd und TSSp Kurven für Datenpunkte generiert durch die DSC Methode

Für langsame Abkühlraten kann man erwarten, dass sich die TSSp Kurve der TSSd Kurve annähert. In den oben diskutierten Experimenten sind Abkühlraten der Größenordnung von ein bis zehn Grad pro Minute untersucht worden. Tatsächlich erwartet man unter Bedingungen der längerfristigen Zwischenlagerung noch wesentlich langsamere Abkühlprozesse, so dass sich die Hydride unter Gleichgewichtsbedingungen ausbilden können. Ein Szenario ist in Abb. 3.4 dargestellt.

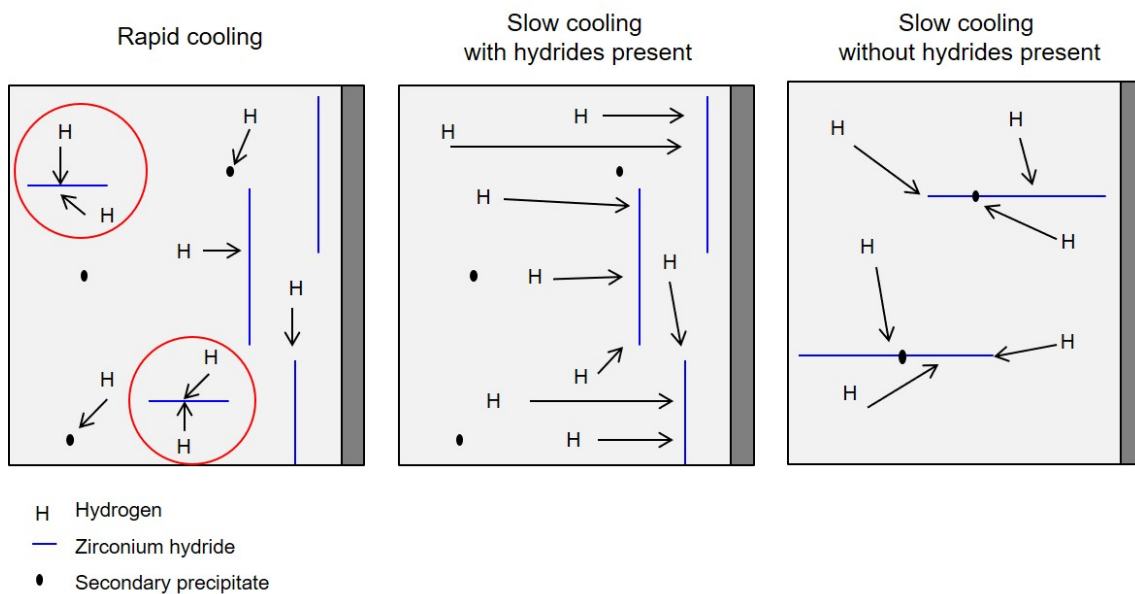


Abb. 3.4 Ansicht von drei möglichen Szenarien der Hydridbildung in Abhängigkeit der Kühlrate und Hydridkonzentration. Bild aus /KAU 18/

3.2 TESSA-ROD Weiterentwicklungen

3.2.1 Axiale Diffusion von Wasserstoff im Hüllrohr

Im Projekt RS1557 ist eine Implementierung von Diffusionsgleichungen für den axialen Transport von Wasserstoff im Brennstabhüllrohr in den Code TESSA-ROD durchgeführt worden. Für das Projekt RS1552 wurden damit erste Analysen über die axiale Diffusion während der Langzeitlagerung durchgeführt. Das bisherige Berechnungsmodell berücksichtigt die Diffusion nach dem Konzentrations- sowie dem Temperaturgradienten.

Nicht berücksichtigt sind bisher Spannungsgradienten. Die ersten Analysen haben ergeben, dass der Effekt der Diffusion aufgrund des Konzentrations- und Temperaturgradienten gering ist.

Der Code TESP-ROD ermöglicht die Unterteilung des Brennstabs in einzelne axiale Ebenen. Jede Brennstabebene besitzt alle Eigenschaften des Brennstabs und lässt detaillierte Analysen des Brennstabverhaltens aufgeteilt in Ebenen zu. In jeder Ebene existiert eine gemittelte Wasserstoffkonzentration und eine gemittelte Temperatur. Für die Berechnung der axialen Wasserstoff-Diffusion im Hüllrohr wird zwischen den Ebenen eine Wasserstoffbilanz erstellt. Temperatur- oder Konzentrationsunterschiede erzeugen einen diffusionsgetriebenen Fluss J von einer Ebene zur anderen. Für die Bestimmung des Flusses zwischen zwei Ebenen werden gemittelte Werte von Temperatur und Wasserstoffkonzentration verwendet, wie in Abb. 3.5 schematisch dargestellt, wobei die Ebenen E_n und E_{n+1} mit ihren jeweiligen Temperaturen T und Wasserstoffkonzentrationen C dargestellt sind. Der Diffusionsfluss J wird über die Mittelwerte von Temperatur T_m und Konzentration C_m berechnet.

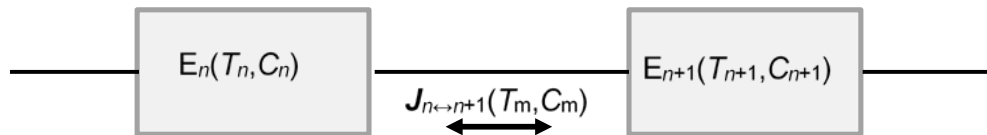


Abb. 3.5 Schematische Darstellung des Flusses zwischen zwei Ebenen n und $n+1$

Zur Darstellung der Diffusionseffekte werden im Folgenden zwei beispielhafte Rechnungen für die Diffusion im Hüllrohr vorgestellt. Die erste Rechnung findet unter konstanten Temperaturen statt, um den Effekt der reinen konzentrationsgetriebenen Temperatur darzustellen. Die zweite Rechnung enthält zusätzlich die temperaturgetriebene Diffusion (nach dem Soret-Effekt/Thermo-Migration).

Für die erste Rechnung wird ein 60 cm langes Hüllrohr in vier gleich lange Teilstücke eingeteilt. Eine Ebene enthält eine hohe Konzentration von Wasserstoff, und die anderen Ebenen enthalten zunächst keinen Wasserstoff. Unter gleichbleibender Temperatur wird ein Konzentrationsausgleich stattfinden, bis der Anteil an gelöstem Wasserstoff im Hüllrohr sich immer weiter annähert.

Tab. 3.1 Anfangsbedingungen für Beispielrechnung 1

Ebene	1	2	3	4
Wasserstoff-Gehalt zu Beginn (ppm)	400	0	0	0
Konstante Hüllrohrtemperatur (°C)	400	400	400	400
Länge der Ebene (m)	0,15	0,15	0,15	0,15

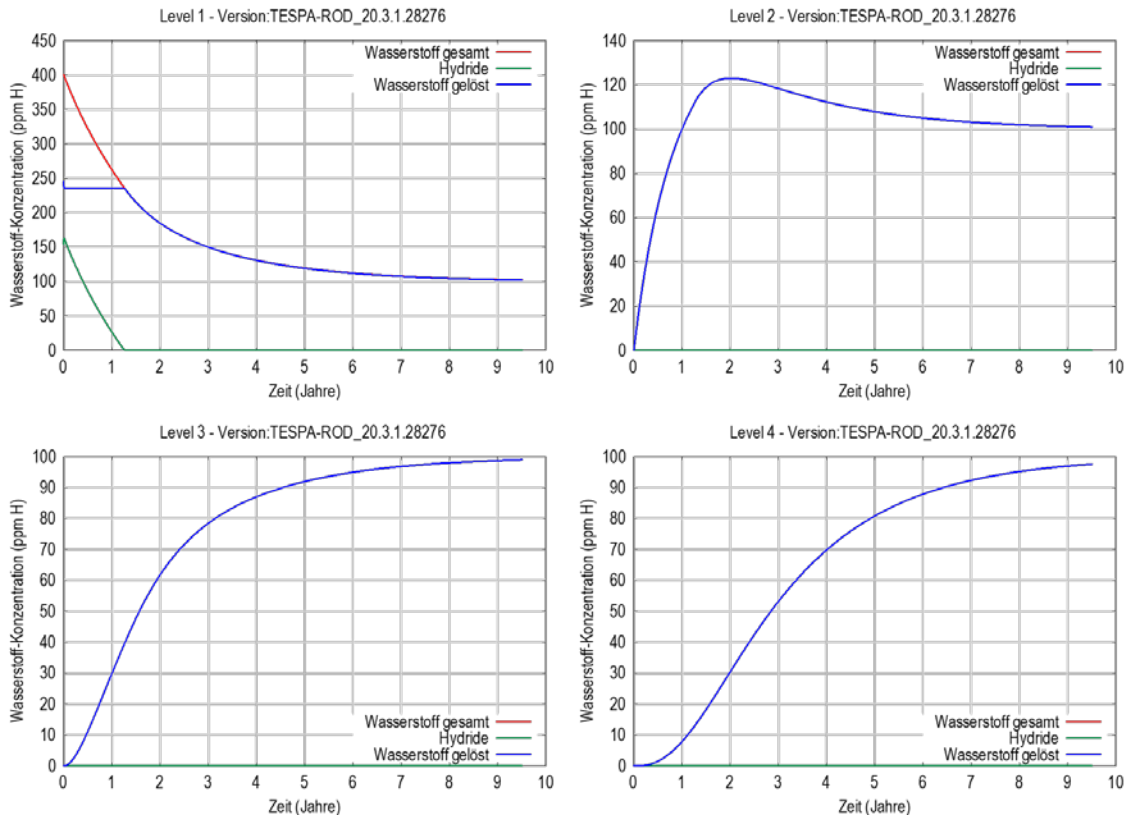


Abb. 3.6 Ergebnisse der Beispielrechnung 1, berechnet mit TESP-ROD

Es zeigt sich, dass ohne Verzögerung Wasserstoff von der ersten Ebene (in der Abbildung: Level 1) in die anderen Ebenen transportiert wird. In Ebene 1 befindet sich zudem der gesamte Wasserstoffgehalt von anfänglich 400 ppm oberhalb der Löslichkeitsgrenze für die gegebene Temperatur von 400 °C. Der Konzentrationsunterschied zwischen Ebene 1 und Ebene 2 wird durch den gelösten Wasserstoff ausgeglichen. In Ebene 1 ist zu sehen, dass der Anteil des gelösten Wasserstoffs zunächst konstant bleibt (blaue Linie), jedoch die Hydride sich im Metall lösen (grüne Linie). Das liegt daran, dass bei dem Vorhandensein von Hydriden die Löslichkeitsgrenze des Metalls ausgeschöpft ist, d. h., dass das Metall mit gelöstem Wasserstoff gesättigt ist. Fließt, wie in diesem Fall, gelöster Wasserstoff durch Diffusion in eine andere Ebene ab, wird dieser Unterschied durch das Auflösen von Hydriden ausgeglichen, bis die Löslichkeitsgrenze wieder erreicht ist. Eventuelle Ungleichgewichte sind in diesen langen Zeiträumen nicht zu erkennen.

Sobald Wasserstoff von der Ebene 1 zu 2 wandert, stellt sich ein Konzentrationsgradient zwischen den Ebenen 2 und 3 ein. Betrachtet man die Ebene 2, so nimmt sie anfänglich sehr viel Wasserstoff aus Ebene 1 auf, erkennbar an dem steilen Anstieg der Konzentration innerhalb der ersten zwei Jahre. Gleichzeitig gibt die Ebene 2 Wasserstoff an die

Ebene 3 ab, was den Anstieg verlangsamt. Dieser Effekt wiederholt sich in abgeschwächter Form für die Ebenen 3 und 4. Die Ebene 4 kann diffusionsgetrieben nur Wasserstoff aufnehmen, da es keine weiteren anschließenden Ebenen gibt und diese als letzte den Wasserstoff empfängt.

Die Ebene 2 zeigt ein lokales Maximum nach ca. zwei Jahren, was bedeutet, dass die Aufnahme von Wasserstoff bis zu diesem Punkt größer war als die Abgabe. Auf Dauer streben alle Ebenen einen Ausgleich auf einen Wasserstoffgehalt von 100 ppm an.

Tab. 3.2 Anfangsbedingungen für Beispielrechnung 2

Ebene	1	2	3	4
Wasserstoff-Gehalt zu Beginn (ppm)	250	250	250	250
Konstante Hüllrohrtemperatur (°C)	400	390	380	370
Länge der Ebene (m)	0,15	0,15	0,15	0,15

In einem zweiten Rechenbeispiel wird die Diffusion aufgrund von Temperaturgradienten dargestellt. Hierbei werden alle Ebenen mit einem gleichmäßigen Wasserstoffgehalt beladen. Jede Ebene besitzt eine konstante Temperatur, die sich jeweils um 10 °C von der nächsten Ebene unterscheidet. Die treibende Kraft ist der Temperaturgradient. Bei einem konstanten Temperaturgradienten diffundiert Wasserstoff so lange, bis die Konzentration des gelösten Wasserstoffs in der wärmeren Zone gleich der Wasserstoff-Konzentration in der kälteren Zone ist.

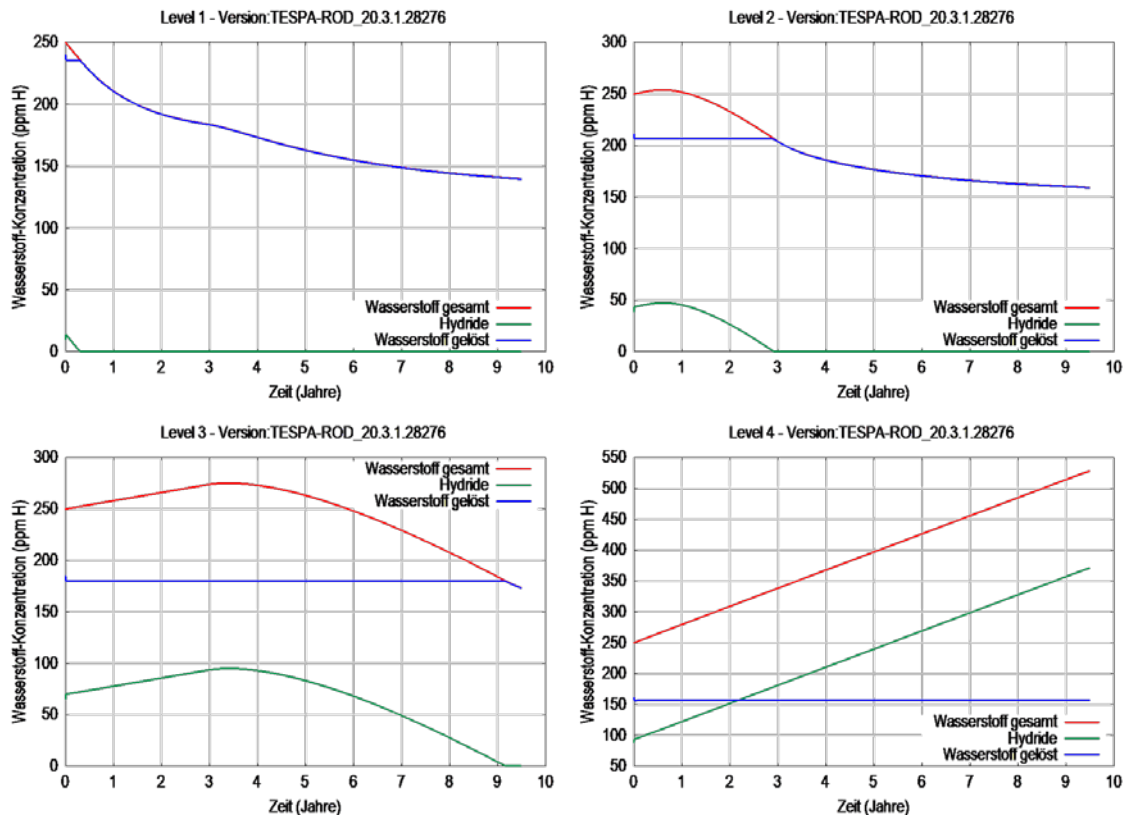


Abb. 3.7 Ergebnisse der Beispielrechnung 2, berechnet mit TESP-ROD

In dem 2. Rechenbeispiel ist die Ebene 1 (Level 1) die Zone mit der höchsten Temperatur, und folglich wird Wasserstoff abgegeben. Analog zum ersten Rechenbeispiel lösen sich die Hydride bis die Löslichkeitsgrenze bei ca. 240 ppm erreicht ist, anschließend sinkt auch der Anteil des gelösten Wasserstoffs.

In Ebene 2 steigt der Gesamt-Wasserstoffgehalt (rote Linie) innerhalb des ersten halben Jahres und zusätzliche Hydride entstehen (grüne Linie). Die Ebene 3 weist eine noch geringere Temperatur auf, weshalb der Wasserstoff von Ebene 2 zu 3 diffundiert.

Die Ebene 4 ist die kälteste Zone an der sich der Wasserstoff konzentriert. Der Anteil des gelösten Wasserstoffs liegt bei ca. 160 ppm. Durch die konstanten Temperaturen ändert sich dieser Wert nicht. Der aus Zone 3 aufgenommene Wasserstoff scheidet als Hydrid aus. Dieser Vorgang schreitet so lange voran, bis der gesamte Wasserstoff aus den Zonen 1 bis 3 in der vierten Zone ankommt, in diesem Fall wird sich in der Ebene 4 eine Wasserstoff-Menge von 1000 ppm einstellen. Ein endliches Diffusionsgleichgewicht zwischen der Soret-Diffusion (Temperatur getrieben) und der Fick'schen-Diffusion (Konzentration getrieben) ist mit den gewählten Zonen-Längen von 0.15 m nicht darstellbar, so dass in diesem Fall der gesamte Wasserstoff die 4. Zone erreicht.

Diese Ergebnisse zeigen anschaulich den Effekt der Diffusion aufgrund von Konzentrations- und Temperaturgradienten. Die hier dargestellten Beispiele wurden unter sehr hohen Temperaturen berechnet, wie sie in Realität nie oder nur kurzzeitig auftauchen würden. Zu beachten ist hier weiterhin, dass der Beispiel-Brennstab nur 60 cm misst und daher die Diffusion schneller einen Gleichgewichtszustand liefert als z. B. bei einem LWR-Brennstab voller Länge.

3.2.2 Zusammenfassung weiterer Arbeiten

Es wurde ein Modell zur Vorhersage der Hydridausscheidung in den Brennstab-Code TESP-ROD implementiert. Ebenfalls wurden Kriterien bezüglich Hüllrohrspannungen und -temperaturen für die Orientierung gebildet und in das Modell implementiert. Die mit diesen Modellen durchgeführten Analysen zeigen den Effekt der neuen Modelle: Hohe Temperaturgradienten über die Hüllrohrwanddicke, wie sie z. B. während des Betriebs auftreten, führen zu umfangsgerichteten (= azimuthalen) Hydriden. Hohe Umfangsspannungen führen zu radialen Hydriden, wobei der Spannungseffekt gegenüber dem Temperatureffekt in der Langzeitlagerung überwiegt. Niedrige Spannungen und flache Temperaturgradienten führen zu keiner bevorzugten Richtung, also einer gleichverteilten Ausscheidung von Hydriden.

Es wurde ferner das Pelletschwellen während der Langzeitlagerung und die resultierenden Spannungszustände näher untersucht. Das im abgeschlossenen Vorhaben RS1518 entwickelte TESP-ROD Modell für Pelletschwellen durch Alpha-Zerfälle wurde auf Langzeittransienten in einer Parameterstudie angewendet. Es wurden zwei verschiedene Betriebsweisen für die simulierten Brennstäbe im letzten Zyklus miteinander verglichen: Betriebsende unter nahezu Vollast, sowie einem Betriebsende im sog. Stretch-out-Betrieb. Weiterhin wurden die Auswirkung verschiedener betrieblicher Spaltgasfreisetzungen auf das Verhalten während der Langzeitlagerung ausgewertet. Es hat sich gezeigt, dass das Modell für das Brennstoffschwellen großen Einfluss auf die Spannungsentwicklung im Brennstabhüllrohr haben kann. Ein Betriebsende unter (nahezu) Vollast führt generell zu hohen Spannungen im Hüllrohr während der Langzeitlagerung. Ein Betriebsende im Stretch-out-Betrieb führt zu einer Konditionierung des Hüllrohrs, wobei schon während des Betriebs Hüllrohrspannungen durch Bestrahlungskriechen langsam abgebaut werden können. Die Parametervariationen für die Spaltgasfreisetzung haben gezeigt, dass kleine Freisetzungen während des Betriebs zu einem geringen Brennstabinnendruck führen. Während der Lagerung führt dies in Kombination mit dem Brennstoffschwellen zu einem frühen Spaltschluss und daraus resultierenden hohen

Festkörperspannungen. Umgekehrt führt eine hohe Spaltgasfreisetzung während des Betriebs zu einem verzögerten oder ausbleibenden Spaltschluss, was die Hüllrohrspannungen insgesamt begrenzt.

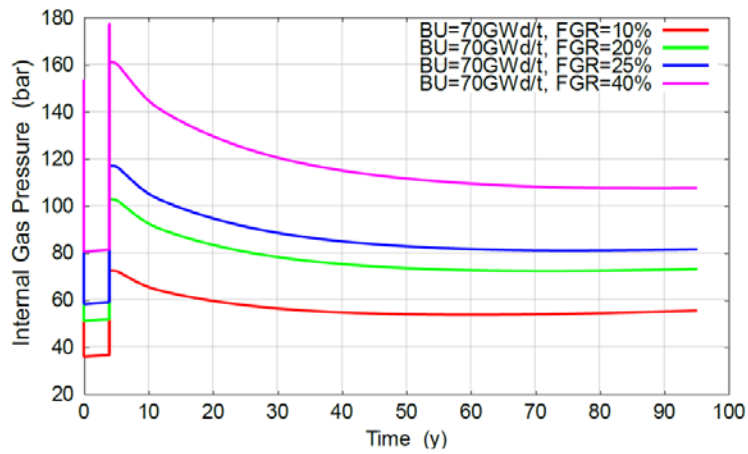


Abb. 3.8 Beispielhafte Entwicklung des Gasinnendruckes, abgebildet für verschiedene Abbrände (BU) und betriebliche Spaltgasfreisetzungen FGR

4 Datenbanken und Schnittstellen

Bisher wurden zwei Datenbanken erstellt. Eine Datenbank für die berechneten Eigenschaften des bestrahlten Brennstoffs wurde im HDF5 -Format erstellt. Eine weitere mit experimentellen Daten zu den TSSp und TSSd Werten wurde als Datenbank erstellt. Zu beiden gibt es Schnittstellen und Auswertungsprogramme in Python. Zusätzlich wurde ein Programm namens BR3ZL zur Visualisierung der Ergebnisse der COBRA-SFS Rechnungen erstellt.

4.1 Datenbank der Nachzerfallswärmeleistung im HDF5 Format

Für die übersichtliche und kompakte Speicherung und Weiterverwendung der berechneten axial und pinweise aufgelösten Nachzerfallswärmeleistungen, Aktivitäten, Abbrände und Inventare wurde eine Datenbank entwickelt. Das binäre Dateiformat HDF5 /HDF 05/ wurde als besonders geeignet für diese Verwendung identifiziert. Es wurde für eine flexible und effiziente Ein- und Ausgabe für sehr umfangreiche und komplexe Daten entwickelt. Für zahlreiche Computerprogramme und Programmiersprachen stehen Schnittstellen zur Verfügung, sodass die Datenbank sehr flexiblen Zugriff erlaubt. Die Datenbank ermöglicht das nachträgliche Hinzufügen oder Löschen von Daten auf allen Ebenen. Somit können im Laufe der Zeit Rechnungen von zusätzlichen Brennelementgeometrien, Materialien, Abbränden oder Rechencodes der bestehenden Datenbank ohne Probleme hinzugefügt werden, oder einzelne Rechnungen ersetzt werden.

Die Datenbank ist hierarchisch mit acht Ebenen aufgebaut, um einen übersichtlichen Zugriff auf die Daten zu ermöglichen, dargestellt in folgender Aufzählung:

- Brennelementtyp: 18 x 18, ...
- Brennstoff: UO₂, ...
- Maximale Anreicherung: 4,65, ...
- Zielabbrand: 65 GWd/tSM, ...
- Abklingzeiten: 0, 2, 5, 10, 20, 30, 40, 50, 75, 100, 150 Jahre
- Brennstabposition: 1 bis 52, ...
- Axialzone: 1 bis 32
- Computercodes: KENOREST, TRITON, ...
 - Lokaler Abbrand [GWd/tSM]
 - Lokale Wärmeleistung [Watt/tSM]
 - Lokale Aktivität [Bq/tSM]
 - Kernzahldichten von 55 Nukliden [Atome/barn-cm]

Zum Ein- und Auslesen der Daten wurde eine Schnittstelle in Python3 geschrieben. Ein Beispiel des Programmcodes ist in Abb. 4.1 zu sehen.

```
1 import h5py as h5 # import hdf5 package
2
3 idH5file = h5.File( 'library.h5', 'w' ) # create HDF5 file
4
5 idH5file.attrs['date'] = '20.05.2017' # add attribute
6 idH5file.attrs['time'] = '20:17' # add attribute
7
8 idH5GroupFa = idH5file.create_group( '18x18' ) # add data group FA
9 idH5GroupFuel = idH5GroupFa.create_group('UOX4') # add data group fuel type
10 # .
11 # .
12 # .
13 idH5GroupCode = idH5GroupFa.create_group('Triton') # add data group code
14
15 iTmp = idH5GroupCode.create_dataset( 'burnup', data = dataBurnup) # add dataset of group
16 iTmp.attrs['unit'] = 'GWd/tHM' # add attribute of dataset
17 # .
18 # .
19 # .
20
21 idH5file.close() # close HDF5 file
22
```

Abb. 4.1 Beispiel der erstellten HDF5 Schnittstelle zum Erstellen eines Datensatzes

4.2 BR3ZL

Zur Visualisierung der Ergebnisse der Temperaturrechnungen mit COBRA-SFS wurde basierend auf der Software ParaView /AHR 05/ ein Auswertewerkzeug für das generische Behältermodell erstellt. ParaView ist ein Open-Source Datenanalyse- und Visualisierungsprogramm. Besonders die Visualisierungen können vergleichsweise schnell erstellt werden, um Daten mithilfe von qualitativen und quantitativen Techniken zu analysieren. Die Datenermittlung kann interaktiv in 3D oder programmgesteuert mit den Verarbeitungsfunktionen von ParaView durchgeführt werden. ParaView wurde entwickelt, um extrem große Datenmengen mit verteilten Speicher-Computing-Ressourcen zu analysieren. Es kann auf Supercomputern ausgeführt werden, um Datensätze mit Peta-scale-Größe sowie auf Laptops für kleinere Daten zu analysieren.

Für das entwickelte generische Behältermodell wurde ein entsprechendes dreidimensionales geometrisches Modell für ParaView erstellt. Berechnungsgrößen wie Temperaturen von Hüllrohren oder Strukturteilen können nun schnell und einfach in dreidimensionalen Bildern dargestellt werden.

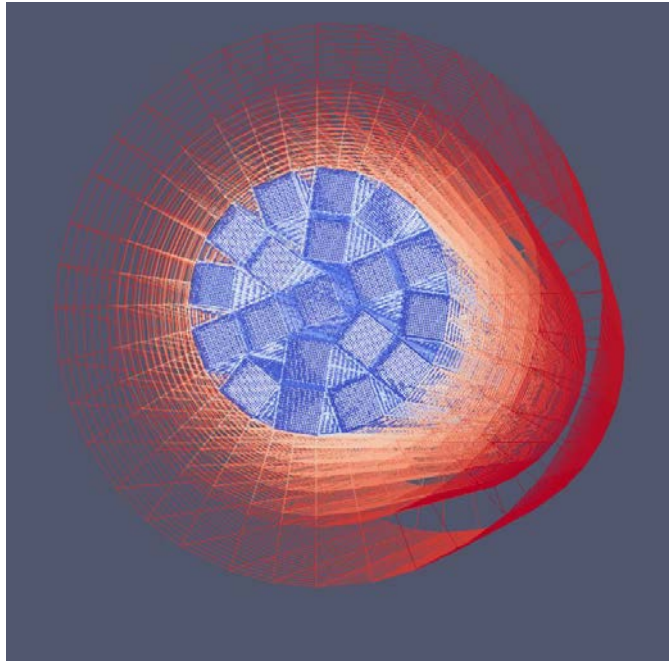


Abb. 4.2 Gitternetzlinien der definierten Nodes im ParaView Model

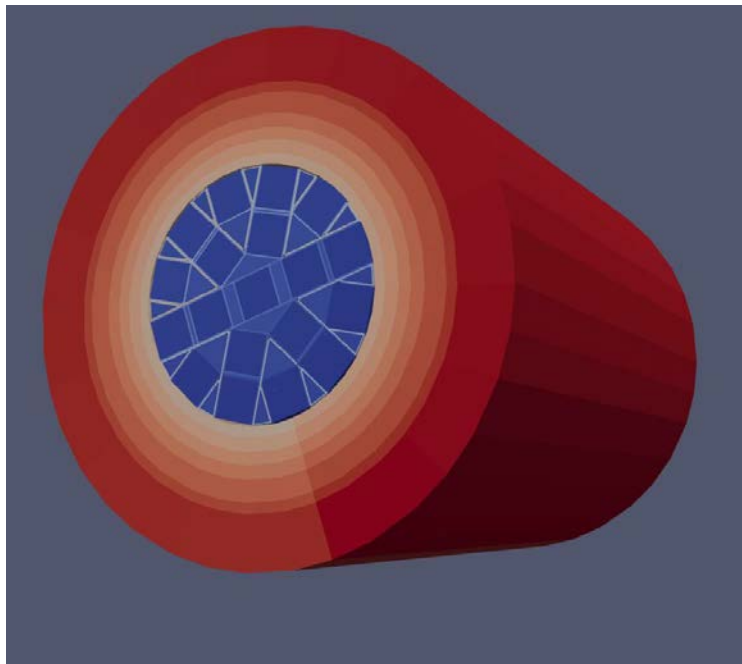


Abb. 4.3 Flächendarstellung des ParaView Modells

4.3 TSSd/p Datenbank und Analysewerkzeug

Die experimentellen Daten zur Untersuchung der TSSp und TSSd Werte sind oftmals nur schwer direkt miteinander vergleichbar, und nicht immer direkt auf die Situation in der verlängerten Zwischenlagerung zu beziehen. Das liegt zum einen an der Vielzahl an

Hüllrohrmaterialien, experimentellen Methoden und damit verbundenen Messgenauigkeiten, als auch oftmals an den betrachteten Zeitskalen der Temperaturänderungen. Da es keine experimentellen Daten zu Abkühlzeiten vergleichbar der Zeitskalen während der längerfristigen Zwischenlagerung gibt, wurden in einem ersten Schritt alle der GRS bekannten, frei zugänglichen Daten zur TSSd/p gesichtet und in eine Excel-Datenbank aufgenommen. Zusätzlich zu den Daten die in Tab. 5 dargestellt sind, wurden ebenfalls die zugehörigen Unsicherheiten mit aufgenommen. Falls die Unsicherheiten nicht in der Publikation angegeben waren, wurde versucht den Autor zu kontaktieren und falls das nicht möglich war, wurde eine Schätzung der Unsicherheit vorgenommen. Die aktuelle Datenbasis besteht aus

- Werten aus 48 experimentellen Serien
- Mehr als 650 Datenpunkten
- Zugehörigen Unsicherheiten
- Sieben Materialien, bestrahlt und unbestrahlt

Alle Messpunkte inklusive der Unsicherheiten sind in Abb. 4.2 dargestellt. Auf der Basis dieser Datenpunkte können statistische Aussagen getroffen werden, wie in Kapitel 3.1 dargestellt. Die Schnittstelle zum Auslesen der Excel-Daten sowie deren statistische Weiterverarbeitung wurde in Python implementiert. Um die experimentellen Daten inklusive der asymmetrischen x-y Fehler zu fitten, wurde eine Orthogonale-Abstandsregressions-Methode (Orthogonal-Distance-Regression, ODR) implementiert. Damit lassen sich verschiedenen Datensätze analysieren, z. B. bezüglich einer Versuchsmethode, eines Materials oder eines Autors.

Tab. 4.1 Daten

Author	Year	Material	Method	TSS
Kearns	1967	Zr, Zry2, Zry4	Diffusion	D
Kammenzind	1996	Zry-4	Diffusion	D
Pan	1996	Zr-2,5Nb	DEM	D & P
McMinn	2000	Zry-2, Zry-4	DSC	D & P
Vizcaino	2002	Zry-4	DSC	D & P
Une	2003	Zry-2, HighFeZry	DSC	D & P
Singh	2004	Zry-2, Zr-2,5Nb	DEM	D & P
Une	2009	Zry-2	DSC	D & P
Tang	2009	M5, N18, Zry-4	DSC	D & P
Colas	2012	Zry-2	In-situ XRD	D & P
Kim	2014	Zry-4	DSC	D & P
Blackmur	2015	Zry-4	In-situ XRD	P

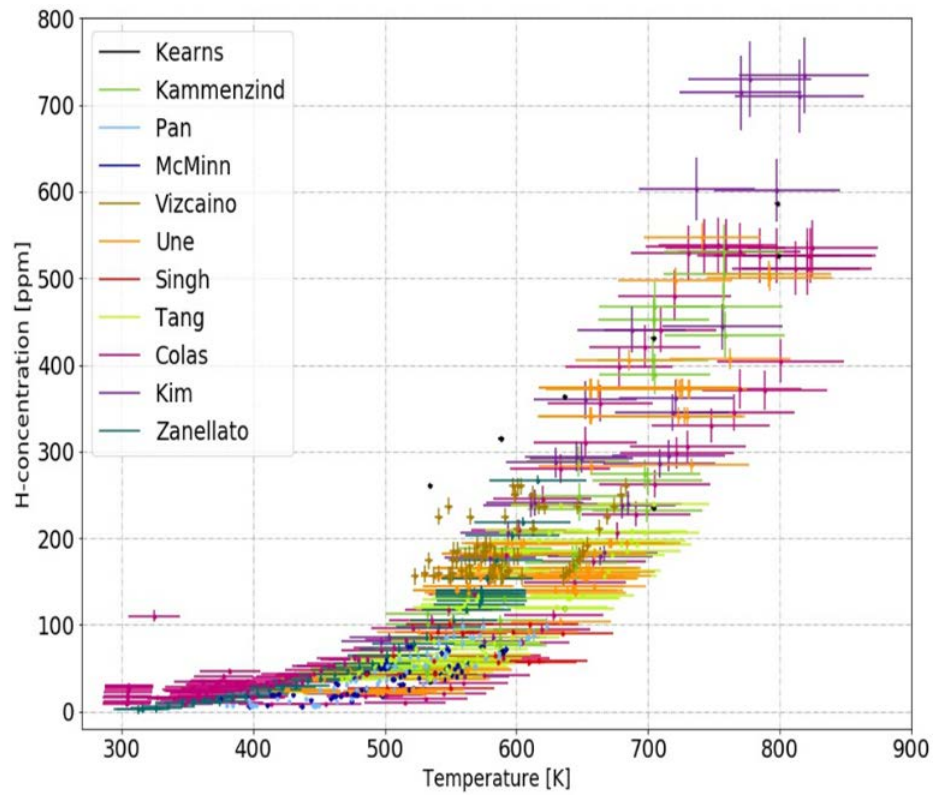


Abb. 4.4 Darstellung aller Messpunkte

Literaturverzeichnis

- /KEA 67/ Kearns, J.J.: "Terminal Solubility and Partitioning of Hydrogen in the Alpha-Phase of Zirconium, Zircaloy-2 and Zircaloy-4", Journal of Nuclear Materials, Vol. 22, pp 292-303, Elsevier, Amsterdam, 1967
- /KAU 18/ P. Kaufholz, M. Stuke, F. Boldt, M. Péridis: Influence of kinetic effects on terminal solid solubility of hydrogen in zirconium alloys, arXiv:1805.00529, Journal of Nuclear Materials 510 (2018) 277-281, 2018.
- /MCM 00/ McMinn, Darby, Schofield: "Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth Int. Symp." ASTM STP1354, p. 173, 2000.
- /PAN 95/ Pan, Richie, Puls: The terminal solid solubility of hydrogen and deuterium in Zr-2.5 alloys, Journal of Nuclear Materials, 228, Elsevier, Niederlande, Amsterdam, 1995.
- /SLA 67/ Slattery, G. F.: The Terminal Solubility of Hydrogen in Zirconium Alloys between 30 and 400°C, Journal of the Institute of Metals, Großbritannien, London, 1967.
- /STA 15/ Stafford, D.: Multidimensional simulations of hydrides during fuel rod lifecycle, Journal of Nuclear Materials, 466, Elsevier, Amsterdam, 2015.
- /TAN 09/ Tang, R., Yang, X.: Dissolution and precipitation behaviors of hydrides in N18, Zry-4 and M5 alloys, International Journal of Hydrogen Energy, 34, Elsevier, Amsterdam, 2009.
- /UNE 03/ Une, Ishimoto: Dissolution and precipitation behavior of hydrides in Zircaloy-2 and high Fe Zircaloy, Journal of Nuclear Materials, Vol. 322, 66–72, Elsevier, Niederlande, Amsterdam, 2003.
- /UNE 04/ Une, Ishimoto: "Terminal Solid Solubility of Hydrogen in Unalloyed Zirconium by Differential Scanning Calorimetry", Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 41, No. 9, Japan, 2004.

- /UNE 04a/ Une, et al.: "Crystallography of Zirconium Hydrides in Recrystallized Zircaloy-2 Fuel Cladding by Electron Backscatter Diffraction", Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 41, No. 7, Japan, 2004.
- /UNE 09/ Une et al.: "The terminal solid solubility of hydrogen in irradiated Zircaloy-2 and microscopic modeling of hydride behavior", Journal of Nuclear Materials Vol. 389, Elsevier, Niederlande, Amsterdam, 2009.
- /VIZ 02/ P. Vizcaino, A. Banchik, J. Abriata, Solubility of Hydrogen in Zircaloy-4: Irradiation Induced Increase and Thermal Recovery, Journal of Nuclear Materials, 304, Elsevier, Amsterdam, Niederlande, 2002.
- /VIZ 11/ P. Vizcaino, A. Rios, Hydrogen Solubility and Microstructural changes in Zircaloy-4 due to neutron irradiation. Journal of ASTM International, USA, 2011.
- /ZAN 12/ Zanellato, O. et al: Synchrotron diffraction study of dissolution and precipitation kinetics of hydrides in Zircaloy-4, Journal of Nuclear Materials, 420, Elsevier, Amsterdam, Niederlande, 2012.
- /COC 01/ <http://www.grs.de/content/cocosys>, aufgerufen am 19.10.2018.
- /STE 14/ J. Stewering, S. Schwarz, M. Sonnenkalb, *Berechnung der Brennstabhüllrohrtemperaturen in einem generischen Transport- und Lagerbehälter*. Technischer Bericht, GRS-A-3739, April 2014.
- /HDF 05/ <https://www.hdfgroup.org/HDF5/>, aufgerufen am 19.10.2018.
- /MIC 15/ T.E. Michener, D.R. Rector, J.M. Cuta, H.E. Adkins, Jr.: *Cobra-Sfs: A Thermal-Hydraulic Analysis Code For Spent Fuel Storage And Transportation Casks Cycle 4*, PNNL-24841 PNNL (October 2015).
- /SCA 16/ B.T. Rearden and M.A. Jessee, Eds., SCALE Code System, ORNL/TM-2005/39, Version 6.2, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee (2016). Available from Radiation Safety Information Computational Center as CCC-834.

- /SCA 97/ R.J. Cacciapouti, S.Van Volkinburg, Axial Burnup Profile Database for Pressurized Water Reactors, YAEC-1937, Mai 1997.
- /AHR 05/ Ahrens et al., ParaView: An End-User Tool for Large Data Visualization, 2005, ISBN-13: 978-0123875822
<https://www.paraview.org/>, aufgerufen am 19.10.2018.
- /HUN 07/ J.D. Hunter; Matplotlib: A 2D Graphics Environment, Computing in Science & Engineering Vol.9, Issue: 3, May-June 2007.
- /HES 03/ U. Hesse, S. Langenbuch, and W. Zwermann, "Nuclear Codes and Data Libraries at GRS for Reactivity and Nuclide Inventory Calculations," in "Eurosafes 2003," Paris, France (November 2003).
- /HAN 17/ Hannstein, V., Behler, M., Sommer, F.: MOTIVE - A New Modular Burnup Code. In: American Nuclear Society (ANS): International Conference on Mathematics & Computational Methods Applied to Nuclear Science & Engineering. M&C 2017, Jeju, Korea, April 16-20, 2017.

Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.1	Linkes unteres Viertel des 18x18-24 Brennelements	4
Abb. 2.2	Modellierung des 18x18-24 DWR Brennelements in KENOEST	6
Abb. 2.3	Berechnete axiale thermische Leistung eines mittleren Brennstabs [kW/tSM] für 0 bis 150 Jahre Abklingzeit.....	7
Abb. 2.4	Zerfallszeit in Jahren aufgetragen gegen die thermische Leistung [kW/tSM] für jede der 32 axial Zonen eines mittleren Brennstabs	8
Abb. 2.5	Vergleich der Ergebnisse zwischen OREST und ANSI/ANS-5.1-2005.....	10
Abb. 2.6	Horizontales und vertikales Schnittbild des TN-24P Behälter mit Beladungsschema, nach PNNL-1183	11
Abb. 2.7	Horizontale Symmetrieachsen des TN-24P Behälters sowie die axiale Temperaturverteilung ausgewählter Stäbe bei homogener Beladung	12
Abb. 2.8	Graphische Darstellung der horizontalen Nodes in COBRA-SFS.....	13
Abb. 2.9	Bildschirmausschnitt der mit BR3ZL erstellten dreidimensionalen Visualisierung der Temperaturverteilung der Brennelemente eines homogen beladenen Behälters	14
Abb. 2.10	Grafische Zusammenfassung des Ablaufs der Temperaturanalyse	15
Abb. 2.11	Vergleich der Hüllrohrtemperaturen für die heißeste Axialzone zwischen den Codes COBRA-SFS, ANSYS-CFX und COCOSYS	15
Abb. 2.12	Temperaturverteilung der heißesten axialen Zone, berechnet mit COBRA-SFS.....	16
Abb. 2.13	Hüllrohrtemperaturdomänen für die Brennelemente 8, 9, und 10.....	16
Abb. 3.1	TSSd und TSSp Kurve mit eingezeichneter Hysterese	17
Abb. 3.2	Unterschiedliche Fitfunktionen angewendet auf Datenpunkte zu Zircaloy-2.....	19
Abb. 3.3	TSSd und TSSp Kurven für Datenpunkte generiert durch die DSC Methode	19
Abb. 3.4	Ansicht von drei möglichen Szenarien der Hydridbildung in Abhängigkeit der Kühlrate und Hydridkonzentration. Bild aus /KAU 18/	20

Abb. 3.5	Schematische Darstellung des Flusses zwischen zwei Ebenen n und n+1	21
Abb. 3.6	Ergebnisse der Beispielrechnung 1, berechnet mit TESPА-ROD.....	22
Abb. 3.7	Ergebnisse der Beispielrechnung 2, berechnet mit TESPА-ROD.....	24
Abb. 3.8	Beispielhafte Entwicklung des Gasinnendruckes, abgebildet für verschiedene Abbrände (BU) und betriebliche Spaltgasfreisetzungen FGR.....	26
Abb. 4.1	Beispiel der erstellten HDF5 Schnittstelle zum Erstellen eines Datensatzes.....	28
Abb. 4.2	Gitternetzlinien der definierten Nodes im ParaView Model.....	29
Abb. 4.3	Flächendarstellung des ParaView Modells.....	29
Abb. 4.4	Darstellung aller Messpunkte.....	32

Tabellenverzeichnis

Tab. 2.1	Verwendete Größen mit Quellenangabe.....	5
Tab. 2.2	Brennstoffspezifische Details UO2.....	5
Tab. 2.3	Einstellungen für KENOREST.....	7
Tab. 2.4	Einstellungen für TRITON.....	9
Tab. 3.1	Anfangsbedingungen für Beispielrechnung 1.....	21
Tab. 3.2	Anfangsbedingungen für Beispielrechnung 2.....	23
Tab. 4.1	Daten.....	31

A Anhang

Publikationsliste

Im Folgenden sind die bisher in diesem Projekt realisierten Veröffentlichungen aufgelistet.

Journal Artikel und Proceedings

- (1) F. Boldt, K. Hummelsheim, M. Péridis, F. Rowold, M. Stuke: Safety of long-term dry storage in Germany - Challenges and Perspectives, Proceedings EUROSAFE2017, Paris, 2017
- (2) H.G. Sonnenburg: TESP-ROD prediction of the fuel rod behaviour during long-term storage, 49th Annual Meeting of Nuclear Technology (AMNT), in: atw Vol. 63, Ausgabe 6-7, 2018
- (3) P. Kaufholz, M. Stuke, F. Boldt, M. Péridis: Influence of kinetic effects on terminal solid solubility of hydrogen in zirconium alloys, arXiv:1805.00529, Journal of Nuclear Materials 510 (2018) 277-281, 2018
- (4) F. Boldt, P. Kaufholz, M. Péridis, H. G. Sonnenburg and M. Stuke: Research activities at GRS on fuel rod behaviour during extended dry storage; Proceedings of SEDS, KERNTSCHNIK, in press, 2018.
- (5) F. Rowold, K. Hummelsheim and M. Stuke: Open questions on the road to reliable predictions of cladding integrity; Proceedings of SEDS, KERNTSCHNIK, in press, 2018.

Konferenz- und Seminarbeiträge, Vorträge

Poster:

- (1) M. Peridis, R. Kilger, M. Sonnenkalb, J. Stewering, M. Stuke; "Detailed temperature elds in loaded dry storage casks", Poster zur Konferenz NuMat2018,
- (2) F. Boldt, B. Grimaldi, P. Kaufholz, M. Peridis, M. Stuke; Statistical analysis of experimental data on terminal solid solubility of hydrogen in Zr-Alloys", Poster zur Konferenz Nu-Mat2018.

Vorträge:

- (1) M. Stuke: Aktuelle Modellierungsansätze - Entwicklung der Inventare und Hüllrohrtemperatur; Symposium "Verlängerte Zwischenlagerung", GRS, Juni 2018.

- (2) F. Boldt: Symposium "Verlängerte Zwischenlagerung", GRS, Juni 2018
- (3) M. Stuke: Safety of long-term dry storage in Germany - Challenges and Perspectives, EUROSAFE2017, Paris 2017.
- (4) M. Stuke: Temperaturfelder in beladenen Transport- und Lagerbehältern, 17. AAA Workshop, GRS, Dezember 2017
- (5) M. Stuke: Overview of Recent Research and Developments at GRS, EPRI ESCP International Subcommittee Meeting, Garching, GRS, Juni 2018.
- (6) M. Stuke: Current Activities and Results, Safety of Extended Dry Storage (SEDS) Workshop, GRS, Juni 2018.
- (7) M. Stuke: Langzeitverhalten zwischengelagerter Brennelemente bei deutlich längerer Zwischenlagerung, 13. Projektstatusgespräch zu BMWi-geförderten FuE-Arbeiten zur Entsorgung radioaktiver Abfälle, KIT Karlsruhe, Juni 2018.

Abschlussarbeiten

- (1) M. Péridis: Fuel Cladding Temperature Distribution in Dry Storage Casks, Génie Atomique, ENSTA ParisTech Université Paris-Saclay, INSTN, GRS, August 2018.

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

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

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

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

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

www.grs.de