GRS

Ermittlung des Standes von Wissenschaft und Technik zur Untersuchung und Bewertung der Auswirkungen von Hochabbrand und Anreicherungserhöhung auf das Betriebs- und Störfallverhalten deutscher Kernkraftwerke

Abschlussbericht 3608R01336



Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) mbH

Ermittlung des Standes von Wissenschaft und Technik zur Untersuchung und Bewertung der Auswirkungen von Hochabbrand und Anreicherungserhöhung auf das Betriebs- und Störfallverhalten deutscher Kernkraftwerke

Abschlussbericht SR 080 1336

M. Behler H.-G. Sonnenburg W. Zwermann

September 2009 - August 2010 Auftrags-Nr.: 820500

Anmerkung:

Das diesem Bericht zu Grunde liegende FE-Vorhaben 3608R01336 wurde im Auftrag des Bundesministeriums 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

Die kontinuierliche Optimierung des Brennstoffeinsatzes in DWR- und SWR-Anlagen führt zur Erhöhung der Entladeabbrände und gleichzeitig zur Erhöhung der Uran-Anreicherung. Die Erhöhungen des Entladeabbrands wirken sich einerseits auf die nuklearen Eigenschaften der Brennelemente und deren Kernkonfigurationen; und andererseits ergeben sich Folgen für die betrieblichen Veränderungen des Brennstoffs und der Hüllrohre, die wiederum Schadensgrenzen im Normalbetrieb und unter Störfall-Bedingungen beeinflussen.

Der Übergang zu höheren Abbränden ist mit einer Erhöhung der Anfangsanreicherung verbunden. Brennelemente mit einer maximalen Anreicherung von 5% werden u.U. in deutschen Anlagen eingesetzt. Es ist deshalb erforderlich, das Reaktivitätsverhalten solcher Brennelemente zu bestimmen und die Genauigkeit der Rechenmethoden zu überprüfen. Die hier durchgeführte Überprüfung des Reaktivitätsverhaltens mit Hilfe der Rechenprogramme HELIOS und KENOREST zeigt, dass gegenüber dem Verhalten bei geringerer Anreicherung dieses Verhalten unwesentlich beeinflusst wird.

Die Betriebserfahrung für den Einsatz der Brennelemente mit den neuen Hüllrohrmaterialien ist ermittelt worden. Hier zeigt sich, dass das Korrosionsverhalten des neueren Hüllrohr-Materials M5 in Anlagen mit hoher Leistungsdichte und ausgeprägtem unterkühltem Blasensieden erheblich abweichen kann.

Das Brennstabverhalten im Reaktivitätsstörfall ist für MOX-Brennstoff hinsichtlich des transienten Brennstoff-Dehnens gegenüber UO2-Brennstoff anscheinend verstärkt. Es werden diverse Aspekte in Bezug auf dieses Brennstoff-Verhalten diskutiert. Hier zeigt sich im Wesentlichen, dass fertigungsbedingte Plutonium-Agglomerate neutronenphysikalisch bedingt die lokale Leistungsdichte anheben und so auf das transiente Brennstoff-Dehnen sich auswirken können. Von diesem Effekt ist zu erwarten, dass er im Hochabbrand in den Hintergrund tritt.

Das Brennstabverhalten im Kühlmittelverluststörfall wird bestimmt von der Hochtemperatur-Oxidation. Diese vermindert die Festigkeit des Hüllrohrs. Im Quench-Versuchsstand des KIT soll diese Festigkeit experimentell bestimmt werden. Dazu sind geeignete Versuchsrandbedingungen erforderlich, um ein prototypisches Verhalten der Brennstabhüllen zu erzielen. In dieser Studie werden Halden-Versuche der Serie IFA 650 ausgewertet, um entsprechende Randbedingungen für die Quench-Versuche abzuleiten.

Für das betriebliche Verhalten bei Lastrampen ist im SWR das PCI-Phänomen (Pellet-Clad-Interaction), das bei Leistungsänderungen oder Leistungsrampen auftritt, von Bedeutung. Hier zeigt ein aktuelles Ereignis in einer SWR-Anlage, dass die PCI-Schadensschwelle bei Hochabbrand insbesondere dann absinkt, wenn die Position des Steuerblattes über eine längere Zeit beibehalten wird. Die hier vorgestellte Analyse kommt zu dem Ergebnis, dass ein Plutonium-Aufbau in Brennstäben nahe dem Steuerblatt lokal die Leistungsentbindung bei einer Lastrampe erhöhen kann, so dass eine Schadensschwelle für benachbarte, hochabgebrannte Brennstäbe erreicht werden kann. Da auch das Hüllrohr-Material durch Wasserstoff-Einlagerung u.U. die plastische Verformbarkeit verliert, ist auch eine Absenkung der PCI-Schadensgrenze durch diesen Wasserstoff-Effekt möglich. Eine abschließende Bewertung ist hier nicht erreicht, da dies weitere Analysen erfordert.

Abstract

The continuous optimization of the fuel used in PWR and BWR plants leads to both increased discharge burn-up and increased uranium enrichment. The increase in the discharge burn-up affects the nuclear properties of the fuel and the core configurations. It also affects the operational behaviour of the fuel and the cladding, which in turn affects the damage limits during normal operation and under accident conditions.

The transition to higher burn is associated with an increase in the initial enrichment. Fuel with a maximum enrichment of 5% may be used in German plants. It is therefore necessary to determine the reactivity behaviour of such fuel and to check the accuracy of the calculation methods. Here the performed analyses with the computer programs HELIOS and KENOREST show that safety relevant parameters are insignificantly varied when compare the safety parameters for lower (4%) and higher enrichments (5%).

The operational behaviour for fuel with the new cladding material has been investigated. This investigation shows that the corrosion behaviour of the new M5 cladding material in systems with high power density and pronounced sub-cooled boiling may differ significantly.

For reactivity initiated accidents the transient fuel rod swelling behaviour is apparently more pronounced for MOX fuel relative to UO2 fuel. Various aspects related to this transient swelling have been reviewed. This review reveals that Pu agglomerates provide neutron-physical effects which raise the local power density. This effect is expected to vanish when the fuel reaches the high burn-up regime.

The fuel rod behaviour under loss of coolant accident condition is determined by the high-temperature oxidation. This oxidation reduces the strength of the cladding. In the Quench test facility at KIT this cladding strength can be determined experimentally. The experimental boundary condition needed to achieve a prototypical behaviour of the fuel rod cladding is deduced from Halden tests. Therefore, Halden IFA-tests of the series 650 are evaluated to derive the appropriate boundary conditions.

The operational performance of the BWR fuel rod cladding at load-follow operation is determined by the PCI (pellet-clad interaction) phenomenon. The PCI failure threshold in the high burn-up regime is lowered, especially when the position of a control blade is

maintained at the same position for a long time. The presented analysis reveals that a Pu accumulation may increase in the fuel near to this control blade. Under Pu accumulation the power density might be increased locally when a load follow operation is initiated. A failure threshold in fuel rods adjacent to the control blade appears to be lowered. Since the cladding material with hydrogen up-take might show reduced plastic deformation capabilities, a reduction of the PCI failure threshold could also be attributed to this hydrogen up-take. A final assessment is not reached, since this requires further analyses.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Bestimmung der nuklearen Eigenschaften von DWR- Brennelementen mit 5% Uran-235 Anreicherung	3
3	Betriebserfahrung für neue Hüllrohrmaterialien	8
4	Brennstabverhalten bei Reaktivitätsstörfällen	11
5	Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen	17
5.1	Halden IFA650.9	18
5.2	Simulation des Halden-Befunds in der KIT-Quench-Versuchsanlage	19
6	Brennstabverhalten bei Lastrampen	23
6.1	Aufbau des Rechenmodells zur Untersuchung der Neutronenkinetik	24
6.1.1	Geometrisches Modell	24
6.1.2	Modellierung der Leistungsgeschichte	25
6.1.3	Abbrand der äußeren Brennelemente	26
6.1.4	Abbrand der Brennelemente nahe am Steuerkreuz	26
6.1.5	Parameter in Abbrand- und Kritikalitätsrechnungen	28
6.2	Resultate der neutronenkinetischen Berechnungen	29
6.2.1	Nuklidinventar	29
6.2.2	Relative Spaltdichte	32
6.2.3	Zeitlicher Leistungsverlauf nach Steuerkreuzbewegung	34
6.3	Folgerung aus den bisherigen neutronenkinetischen Berechnungen	36
6.4	Spannungsanalyse	37
6.5	Hydrid-Verteilung	42
7	Zusammenfassung	46
8	Literatur	49
Abbildur	ngsverzeichnis	52

1 Einleitung

Die kontinuierliche Optimierung des Brennstoffeinsatzes in DWR- und SWR-Anlagen führt zur Erhöhung der Entladeabbrände und gleichzeitig zur Erhöhung der Uran-Anreicherung. Die Betreiber deutscher KKW stellen entsprechende Anträge und haben den Nachweis zu führen, dass der sichere Betrieb, die Störfallbeherrschung und die Beherrschung von ATWS nicht beeinträchtigt werden. Diese Nachweise sind entsprechend dem Stand von Wissenschaft und Technik zu führen.

Diese Hochabbrandstrategien wirken sich einerseits aus auf die nuklearen Eigenschaften der Brennelemente und deren Kernkonfigurationen, andererseits ergeben sich Folgen für die betrieblichen Veränderungen des Brennstoffs und der Hüllrohre, die wiederum das Störfallverhalten beeinflussen.

Der Übergang zu höheren Abbränden ist auch mit einer Erhöhung der Anfangsanreicherung verbunden. Die Anfangsanreicherung wurde schrittweise erhöht, Brennelemente mit einer maximalen Anreicherung von 5% werden auch in deutschen Anlagen eingesetzt werden. Es ist deshalb erforderlich, das Reaktivitätsverhalten solcher Brennelemente zu bestimmen und die Genauigkeit der Rechenmethoden zu überprüfen.

Die betrieblichen Veränderungen des Brennstoffs und der Hüllrohre ergeben sich durch die deutlich verlängerte Einsatzzeit der Brennelemente im Reaktor. Im Brennstoff ergibt sich daraus eine erhöhte Spaltgasfreisetzung, die zu einem Anstieg des Brennstab-Innendruckes führt. Für das Hüllrohr bewirkt die längere Einsatzzeit eine erhöhte Hüllrohrkorrosion, also eine Zunahme der Oxidschichtdicke und der Wasserstoffaufnahme. Um für Brennstäbe im DWR bei Betriebsbedingungen ein günstigeres Verhalten zu erreichen, wurden neue Hüllrohrmaterialien wie z.B. M5 oder Zirlo eingeführt. Im Unterschied zu Zirkaloy-4 enthalten diese Legierungen 1 % Niob-Gehalt, wodurch die Korrosion stark verringert wird.

Die Betriebserfahrung für den Einsatz der Brennelemente mit den neuen Hüllrohrmaterialien ist zu ermitteln. Dazu werden national und international Betriebsberichte und Ereignismeldungen für Brennstabschäden ausgewertet. Für das betriebliche Verhalten ist auch das PCI-Phänomen (Pellet-Clad-Interaction) bei Leistungsrampen von Bedeu-

1

tung. Hier zeigt ein aktuelles Ereignis in einer SWR-Anlage, dass PCI-Schäden bei Hochabbrand zu beachten sind. Daher wird hier der PCI-Schadensmechanismus im Zusammenhang mit einer für Hochabbrand typischen Steuerstab-Stellungsfolge näher untersucht.

Von sicherheitstechnischer Bedeutung bei Hochabbrand sind die beiden Auslegungsstörfälle: Reaktivitätsstörfall und Kühlmittelverluststörfall. Das Brennstabverhalten unter Störfallbedingungen muss durch Experimente untersucht werden. Zum Reaktivitätsstörfall werden neue Experimente im CABRI-Programm und im japanischen NSRR-Programm durchgeführt. Zum Kühlmittelverluststörfall werden Untersuchungen zur Festigkeit von oxidierten Hüllrohren und zum Quenchverhalten z.B. im ANL- und im Halden-Programm durchgeführt. Die in den Versuchsprogrammen bereits gewonnenen experimentellen Ergebnisse sind von großer Bedeutung, so ergeben sich Hinweise, dass der Einfluss des Wasserstoffs auf die Festigkeit des Hüllrohres wesentlich stärker als bisher angenommen ist und deshalb neu bewertet werden muss.

Das Ziel des Vorhabens ist zunächst, die Änderungen des nuklearen Verhaltens der Brennelemente bei Anreicherungserhöhung auf 5% Uran-235 zu bestimmen. Des Weiteren ist die Betriebserfahrung für die Brennelemente mit neuen Hüllrohrmaterialien zu erfassen, sowie das PCI-Verhalten der Brennstäbe bei Leistungsänderungen insbesondere für SWR zu untersuchen. Ein weiteres Ziel ist, die neuen Ergebnisse aus den aktuellen experimentellen Versuchsprogrammen für das Störfallverhalten der Brennstäbe zu sammeln und zu bewerten.

Der bisherige Kenntnisstand zum Einfluss des Hochabbrandes für den Reaktorbetrieb und die sicherheitstechnische Bewertung ist in den RSK-Stellungnahmen /RSK 03/, /BMU 05/dokumentiert. Die geplanten Untersuchungen dienen zur Fortschreibung und Aktualisierung des Standes von Wissenschaft und Technik unter Berücksichtigung der Betriebserfahrung für neue Hüllrohrmaterialien und der Ergebnisse von neuen experimentellen Untersuchungen zum Störfallverhalten.

2 Bestimmung der nuklearen Eigenschaften von DWR-Brennelementen mit 5% Uran-235 Anreicherung

Die Erhöhung der Anreicherung im Brennelement hat Auswirkungen auf die nuklearen Eigenschaften des Brennelementes. Die in Deutschland zum Einsatz kommende höchste U-235-Anreicherung liegt bei 4.45%. Sie ist seit Anfang 2009 mit der 10. Nachtragsgenehmigung für Brokdorf erteilt worden.

Bisher wurden von der GRS detaillierte Berechnungen mit verschiedenen Standard-Rechenverfahren für ein DWR-Brennelement mit 4% Uran-235-Anreicherung durchgeführt. Zur Bestimmung der Unterschiede im nuklearen Verhalten, das sich auch für Transienten auswirkt, werden Abbrand-Berechnungen für ein DWR-Brennelement mit 5%-iger Uran-235-Anreicherung durchgeführt. Für die Abbrand-Rechnungen werden die Programme HELIOS und KENOREST eingesetzt, um den abbrandabhängigen Verlauf des Multiplikationsfaktors, die Reaktivitätskoeffizienten für Brennstofftemperatur, Moderatordichte und Borkonzentration sowie das Nuklidinventar zu berechnen. KENOREST /HES 00/ ist das in der GRS entwickelte Abbrand-Programmsystem, HELIOS /CAS 91/ ein kommerzieller Spektral- und Abbrand-Code von Studsvik-Scandpower. Vergleichsrechnungen mit beiden Rechenprogrammen und international eingesetzten Abbrand-Codes für ein Standard-DWR-Brennelement mit 4% Uran-235-Anreicherung sind in /HES 07/ dokumentiert.



Abb. 2-1 Modellierung der ¼-Brennelement-Geometrie für HELIOS.

In Abb. 2-1 ist das für die HELIOS-Berechnungen verwendete Geometriemodell dargestellt. Diese Geometrie liegt auch den KENOREST-Berechnungen zugrunde. Die aus den KENOREST- und HELIOS-Berechnungen resultierenden Multiplikationsfaktoren in Abhängigkeit vom Abbrand für das Brennelement mit 5% Uran-235-Anreicherung sind in Abb. 2-2 dargestellt und mit den entsprechenden Ergebnissen für das Brennelement mit 4% Anreicherung verglichen. Die jeweiligen Unterschiede zwischen den KENOREST- und den HELIOS-Ergebnissen sind auf Unterschiede in den Berechnungsmethoden und den verwendeten nuklearen Daten zurückzuführen. Sowohl aus den KENOREST- als auch den HELIOS-Berechnungen ergibt sich, dass das frische Brennelement mit 5% Anreicherung eine um ca. 0.05 höhere Multiplikationskonstante besitzt, und dass dem Endabbrand des Brennelements mit 4% Anreicherung von ca. 50 GWd/t SM ein um ca. 10 GWd/t SM (Gigawatt-Tagen pro Tonne Schwermetall) höherer Endabbrand beim Brennelement mit 5% Anreicherung entspricht, da bei diesen Abbrandwerten die jeweiligen Multiplikationsfaktoren übereinstimmen.



Abb. 2-2 Mit KENOREST und HELIOS berechnete Multiplikationsfaktoren in Abhängigkeit vom Abbrand für DWR-Uran-Brennelemente mit 4% und 5% Anreicherung.

Die Sicherheitsparameter Reaktivitätskoeffizient der Brennstofftemperatur, Reaktivitätskoeffizient der Moderatortemperatur und Reaktivitätskoeffizient der Borkonzentration hängen bei sonst gleichen Betriebsbedingungen von der Brennstoffzusammensetzung ab. Sie wurden daher für frische und abgebrannte Brennelemente ermittelt; dabei ist zu beachten, dass für den abgebrannten Zustand beim Brennelement mit 4% Anreicherung 50 GWd/t SM, und beim Brennelement mit 5% Anreicherung 60 GWd/t SM zugrunde gelegt wurden. Die entsprechenden Ergebnisse sind in Abb. 2-2 bis Abb. 2-4 dargestellt.





In allen Fällen ergibt sich, dass die Rückwirkungskoeffizienten wie erforderlich deutlich negativ sind und sich für die Brennelemente mit 4% und 5% Anreicherung nicht wesentlich unterscheiden.





Abb. 2-4 Mit HELIOS berechnete Nukliddichten für Aktiniden (oben) und Spaltprodukte (unten) für abgebrannte DWR-Uran-Brennelemente mit 4% und 5% Anreicherung.

Schließlich wurden die Nuklidinventare der Brennelemente mit 4% und 5% Anreicherung bei den angenommenen Endabbränden von 50 bzw. 60 GWd/t SM mit KENOREST und HELIOS ermittelt. In Abb. 2-4 sind die HELIOS-Ergebnisse für wichtige Aktiniden und Spaltprodukte dargestellt; die entsprechenden KENOREST-Ergebnisse unterscheiden sich nur sehr wenig. Für alle betrachteten Nuklide mit Ausnahme von U-238 ergeben sich beim Brennelement mit 5% Anreicherung etwas höhere Werte; der größte relative Unterschied wird bei Gd-155 mit etwa 55% erreicht. Gemessen an der vorgegebenen Variation der Anreicherung des U-235 von 25% (relativer Unterschied zwischen den Anreicherungen von 4% auf 5%) sind die relativen Unterschiede in den Nuklidinventaren trotz Nichtlinearität der Entstehungs- und Zerfallsprozesse von gleicher oder geringerer Größenordnung. Es sind daher mit Blick auf Nachwärmeabfuhr, Transport und Lagerung von Brennstäben unterschiedlicher Anreicherungen keine Signifikanzen erkennbar. Im Übrigen sind Änderungen im Nuklidinventar bei der Auslegung von Transport und Lagerung zu berücksichtigen.

Ebenfalls wird ersichtlich, dass im betrachteten Bereich der Anreicherungen keine signifikanten Veränderungen in den sicherheitstechnischen Parametern hervortreten.

3 Betriebserfahrung für neue Hüllrohrmaterialien

Zur Verbesserung des betrieblichen Brennstabverhaltens im DWR wurden verschiedene neue Hüllrohrmaterialien entwickelt, um das bisherige Zirkaloy-4-Materialverhalten zu verbessern. In deutschen DWR-Anlagen wird bevorzugt das Material M5 der Firma AREVA mit 1 % Niob-Gehalt verwendet. International werden ähnliche Materialien wie z.B. der Hüllrohrwerkstoff Zirlo von Westinghouse oder MDA von Mitsubishi eingesetzt. Auch diese Werkstoffe beinhalten etwa 1 % Niob und unterscheiden sich zusätzlich durch den Gehalt von weiteren Legierungsstoffen und der Materialbehandlung.

Zirconium- Legierung	Sn	Fe	Cr	Ni	Nb	0	Quelle
Zircaloy-2	1,2 – 1,7	0,07 - 0,2	0,05 - 0,15	0,03 - 0,08-		0,11 - 0,14	/NEA 06/ Table 17
Zircaloy-4	1,2 - 1,7	0,18 - 0,24	0,07 - 0,13			0,11 - 0,14	/NEA 06/ Table 17
E110		0,006- 0,012			0,95 - 1,05	0,05 - 0,07	/YEG 05/ Table 4.5
E635	1,2 – 1,3	0,34 - 0,40			0,95 - 1,05	0,11 - 0,14	/YEG 05/ Table 4.5
M5		0,015 -0,06			1.0	0,11 - 0,14	/YEG 05/ Table 4.5
ZIRLO		0,1			0,9 – 1,3	0,11 - 0,14	/YEG 05/ Table 4.5
MDA	0,7 – 0,9	0,18 – 0,24	0,07 - 0,13		0,45 - 0,55	0,11 - 0,14	/NEA 06/ Table 17
NDA	1,0	0,27	0,16	0,01	0,1	0,11 - 0,14	/NEA 06/ Table 17

Tabelle 3-1	Zusammenstellung v	on Hüllrohr-Werkstoff-	Legierungen
-------------	--------------------	------------------------	-------------

Während die Verwendung von Zircaloy-4-Hüllrohren (DUPLEX-Varianten von Zry-4) in Druckwasserreaktoren zunehmend in den Hintergrund gedrängt wird, treten an die Stelle von DUPLEX-Hüllrohren zunehmend Hüllrohre vom Typ M5 (Tabelle 3-1). Diese Entwicklung beginnt mit ersten Vorläufer-Brennelementen in 1993.

Gestützt wird diese Entwicklung durch das ausgezeichnete Korrosionsverhalten, das üblicherweise auch über 5 bis 6 Standzeiten im Kern nur geringe Oxidschichtdicken um 20 bis 40 µm aufweist (Abb. 3-1).



Abb. 3-1 Korrosion von M5 im Vergleich mit DUPLEX-Varianten

Diese Entwicklung gerät ins Stocken, als anormales Korrosionsverhalten an M5-Hüllrohren bei hohen Leistungsdichten, wie sie in 2005 in der Anlage KKP2 vorlagen, beobachtet wird /SCH 07/, /BFS 05/ innerhalb des ersten Einsatzzyklus erreichten M5-Hüllrohre Oxidschichtdicken von bis zu 70 µm (Abb. 3-2). Ein Einsatz dieser Hüllrohre für einen weiteren Zyklus ist damit ausgeschlossen gewesen, da ansonsten die Auslegungskriterien für Hüllrohr-Oxidation überschritten wären.



Abb. 3-2 Korrosion von M5-Hüllrohren im 20. Zyklus der Anlage KKP 2

Im Rahmen einer Ursachenforschung ist ermittelt worden, dass die betroffenen M5-Hüllrohre hohen Leistungsdichten mit entsprechender Dampfblasenbildung an der Hüllrohr-Oberfläche ausgesetzt waren. Die Nachrechnung mit einem Unterkanal-Modell ergibt, dass der Ort hoher Dampfblasengehalte mit dem Ort verstärkten Auftretens von Korrosion korreliert.

Dampfblasen-Bildung ist ein bekannter korrosionsfördernder Mechanismus. Im Folgezyklus hat man daher durch entsprechende Kernauslegung auf hohe lokale Leistungsdichten (stabgemittelt von 366 W/cm; ~ 475 W/cm im Maximum) verzichtet. Im Ergebnis zeigte sich dann wieder das gewohnte Korrosionsverhalten von M5.

Zusammenfassend kann anhand der vorliegenden Betriebserfahrung festgestellt werden, dass der Einsatz korrosionsfester Hüllrohr-Materialien, wie das vom Typ M5, Sensitivitäten aufweist. Das ausgezeichnete betriebliche Korrosionsverhalten von M5 kann durch Einsatz unter Hochleistungsbedingungen ins Gegenteil verkehrt werden. Die Korrosion von Hüllrohrwerkstoffen mit M5 ist somit auch abhängig von den Leistungsspitzenwerten, die sich aus der Kernbeladestrategie ergeben.

4 Brennstabverhalten bei Reaktivitätsstörfällen

Im Reaktivitätsstörfall kann als Folge des Energieeintrags der Brennstab bersten, der austretende Brennstoff ins Kühlmittel gelangen und dort eine Dampfexplosion auslösen, die die Integrität des Druckbehälters gefährdet. Zur Vermeidung des Brennstab-Versagens werden daher nach Kenntnislage der international verfügbaren RIA-Tests (CABRI, NSRR /OEC 10/) die im Brennstab durch den Reaktivitätsstörfall eingetragenen Enthalpien auf zulässige Werte begrenzt.

Derzeit gilt in Deutschland unabhängig vom Brennstoff, UO2 oder MOX, ein Enthalpieeintrag von 170 cal/g für Brennstoffe mit weniger als 35 MWd/kg als zulässig. Die Grenze für zulässige Enthalpieeinträge nimmt danach stetig bis 50 MWd/kg auf einen Wert von 80 cal/g ab, sofern die Hüllrohre korrosionsbedingte Abplatzungen der Oxidschicht aufweisen. Für Hüllrohre ohne Abplatzungen sinkt die Grenze der Enthalpieeinträge mit zunehmendem Abbrand auf den Wert von 100 cal/g bei einem Abbrand von 65 MWd/kg.

Das Verhalten von Brennstäben mit höheren Abbränden unter Bedingungen eines Reaktivitätsstörfalls ist Gegenstand aktueller Forschungsprogramme. Reaktivitätsstörfälle werden in der französischen CABRI-Versuchsanlage und in der japanischen NSRR-Versuchsanlage untersucht. Die erste Serie von CABRI-Versuchen wurde in einem Natrium-Loop durchgeführt. Für die Fortsetzung der Versuche im Rahmen eines OECD/NEA-Verbundprojektes mit deutscher Beteiligung wird ein Wasser-Kühlkreislauf installiert, um DWR-Bedingungen nachzubilden.

Der erste Versuch im CABRI-Waterloop Projekt ist nach Information vom letzten CABRI-Workshop (24.3.2010) für Ende 2011 geplant. Der Test mit der Bezeichnung CIPQ (Planungsdaten: 30 ms Pulshalbwertsbreite, 156 cal/g Energie-Eintrag) wird mit Mischoxid-Brennstoff (MOX) durchgeführt werden.

In der japanischen NSRR-Versuchsanlage werden kontinuierlich Versuche durchgeführt. Im internationalen ALPS-I Programm im NSRR-Testreaktor werden auch Brennstäbe aus europäischen LWRs untersucht. Zwischen beiden Programmen besteht eine enge Kooperation und Informationsaustausch. Die Versuchsergebnisse werden von der GRS ausgewertet /SON 08/. Die neueren Erkenntnisse aus dem NSRR-Programm ordnen sich in die bisher vorliegenden Versuchsergebnisse ein. Die bisher für RIA-Transienten bekannten Belastungsgrenzen werden durch diese Versuche im Wesentlichen bestätigt. Da die Kühlungsbedingungen für diese NSRR-Tests vergleichsweise gegenüber früheren Tests komplexer geworden sind, hinkt die modelltechnische Beschreibung zu diesen Versuchen hinterher. Eine abschließende Wertung der Tests für die Übertragung von Belastungsgrenzen auf Reaktorverhältnisse ist daher noch nicht möglich.

Eine weitere Hürde in der Übertragung von RIA-Versuchsergebnissen auf Reaktorbedingungen besteht in dem Umstand, dass bisher nur Versuchsdaten aus Tests vorlagen, in den UO2 als Brennstoff verwendet wurde. MOX-Brennstoff ist zwar im Rahmen der CABRI-Tests untersucht worden, diese Daten sind jedoch bisher nicht öffentlich freigegeben worden. Es ist zu erwarten, dass ein erheblicher Unterschied im Materialverhalten zwischen UO2- und MOX-Brennstoff besteht, der Auswirkungen auf das Schadensbild bei RIA hat. Diese Erwartung geht zurück auf die Gegenüberstellung der zwei CABRI-Versuche RepNa2 und RepNa9, in denen unter nahezu identischen Bedingungen bezüglich Abbrands (33 zu 28.1 MWd/kg) und RIA-Energie-Eintrag (199 zu 197 cal/g) vorlagen.

Die dazu veröffentlichten Post-Test-Untersuchungen der Versuche RepNa2 und -9 zeigen, das an den Hüllrohren eine Dehnung von 3.5% bei UO2 gegenüber 7.2% bei MOX verblieben ist. Danach würde die kristallografische transiente Dehnung bei MOX mindestens doppelt so stark ausfallen. Da Versuchsdaten zum MOX-Test RepNa9 nicht vorliegen, werden nachfolgend Unterschiede bezüglich Abweichungen zum transienten Dehnungsverhalten von MOX-Brennstoff diskutiert.

Ein wesentlicher Unterschied zwischen UO2 und MOX ergibt sich aus den sich unterscheidenden Schmelztemperaturen beider Stoffe. Während UO2 bei etwa 2840°C in den flüssigen Zustand wechselt, erfolgt dieser Wechsel in PuO2 bereits bei etwa 2290°C. Bei einem Pu-Anteil von 6 wt% ergibt sich eine Absenkung in der Schmelztemperatur um 40 K (siehe Abb. 4-1). In Bezug auf die transiente Dehnung des Brennstoffs bei hohen Leistungsdichten kann dieser Unterschied ausschlaggebend sein und dieses transiente Dehnen verstärken, da der Beginn der Amorphisierung der PuO2-Kristallstruktur bei geringerer Temperatur einsetzt könnte.

Das thermische Dehnen von UO2 unterscheidet sich nicht von dem des PuO2 (Abb. 4-2). Da auch die mechanischen Eigenschaften hinsichtlich Festigkeit sehr ähnlich

sind, unterscheiden die Pellet-Fragmentierungen sich nicht zwischen UO2 und MOX /LIP 98/ zumindest bis zu einem Abbrand von 30 MWd/kg.



Abb. 4-1 Phasen-Diagramm UO2-PuO2



Abb. 4-2 Thermische Dehnung von UO2 und PuO2

Die Wärmekapazität von PuO2 ist zunächst für beide Stoffe gleich, zeigt jedoch oberhalb von 2000 K keine Zunahme, wie sie für UO2 gemessen wird (Abb. 4-3). Die geringere Wärmekapazität von PuO2 bei Temperaturen oberhalb von 2000 K wird daher das thermische Dehnen des PuO2-Pellets unter RIA-Bedingungen verstärken, da schneller wegen der geringeren Wärmekapazität schneller höhere Brennstoff-Temperaturen erreicht werden können. Da der Pu-Anteil im MOX-Brennstoff im Falle des Versuchs RepNa9 6.559 % beträgt, ist der Effekt aus der geringeren Wärmekapazität relativ begrenzt.



Abb. 4-3 Wärmekapazität von UO2 und PuO2 aus /LAN 05/

Die kristallografischen Strukturen sind für UO2 und PuO2 ebenfalls sehr ähnlich. Die Einheitslänge der Gitterstruktur liegt für UO2 bei 5.470 Angström und bei PuO2 bei 5.396 Angström. Dies entspricht einer geringen volumetrischen Variation von 4.11%, um die das PuO2-Kristall gegenüber dem UO2-Kristall verkleinert ist. Hieraus ist ebenfalls kein Effekt ersichtlich, der das verstärkte transiente Pellet-Dehnen erklären könnte.



Abb. 4-4Gemessene Pu-Verteilung in MIMAS MOX in einer Fläche mit 1 mmKantenlänge /VOS 02/

Es verbleiben die nuklearen Eigenschaften, die den größten Beitrag zu einer Unterscheidung des Pellet-Verhaltens ausmachen könnten. Der Absorptionsquerschnitt ist für UO2-235 bei 344 barn, während er für Pu-239 um den Faktor 4 größer ist und 1203 barn erreicht. Hinzukommt, dass U-235 im thermischen und Pu-239 im schnellen Flussspektrum absorbiert. Hieraus folgt eine unterschiedliche Einkopplung der Leistungsdichte aus dem Treibercore des Versuchsreaktors in den Brennstoff, die die räumliche Verteilung der Leistungsdichte von MOX-Brennstoffgegenüber UO2-Brennstoff erheblich heterogener macht.

Bei gleichem, integralem Energie-Eintrag in UO2 und MOX wird in den Pu-Clustern des MOX-Brennstoffs, die fertigungsbedingt sind, überdurchschnittlich mehr Energie als im restlichen Pellet freigesetzt. Die Leistungsdichte fokussiert sich auf Pu-Cluster.

Diese Pu-Cluster sind bei geringem Abbrand noch stark ausgeprägt, siehe Abb. 4-4. Mit zunehmendem Abbrand entsteht eine zunehmend homogene Pu-Verteilung, da durch Fortgesetzte Konversion von U-238 zu Pu-239 auch Bereiche außerhalb der Pu-Cluster jetzt Pu-Kerne enthalten. Von der mehr homogenen Verteilung ist zu erwarten, dass der Effekt räumlich konzentrierter Leistungsdichten verschwindet.

Das transiente Pellet-Dehnen ist für UO2-Brennstoff gemäß nachstehender Beziehung ermittelt worden /SON 07a/:

$$\frac{dL}{L} = \frac{dL}{L} \left[thermisch + 2.81 * 10^{-29} (\dot{q}''')^{2.3} \right]$$
mit \dot{q}''' in W/m³

Durch Konzentration der Leistungsdichte auf Pu-Agglomerate besteht nach obiger Beziehung wegen des Exponenten von 2.3 auf der Leistungsdichte die Möglichkeit, dass das durchschnittliche Dehnungsverhalten überproportional verstärkt wird. Insofern könnte der bisher festgestellte Zusammenhang zwischen Leistungsdichte und transienter Dehnung auch weiterhin gültig bleiben, wobei dann lediglich eine effektive Dehnung für das Brennstoff-Gemisch aus UO2 und PuO2 in Ansatz zu bringen wäre. Sollte sich dies anhand der kommenden CABRI-MOX-Versuche bestätigen, dann kann das GRS-Rechenprogramm TESPA-ROD /SON 10/ als ausgereiftes Werkzeug zur Bestimmung der Brennstab-Schadensgrenzen für RIA-Transienten verwendet werden.

Zusammenfassend zeigt sich anhand der hier durchgeführten Literaturrecherche, dass das unter RIA-Transienten ausgelöste transiente Dehnen des MOX-Brennstoffs letztlich nur durch die nuklearen Eigenschaften erklärt werden könnte. Von dieser Sonderstellung des MOX-Brennstoffs ist zuwarten, dass diese mit zunehmendem Abbrand (> 30 MWd/kg) in den Hintergrund treten wird, da die räumliche Pu-Verteilung im Pellet homogener wird. Dieser Sachverhalt kann letztlich nur durch entsprechende MOX-Versuche abschließend geklärt werden.

5 Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen

Das Brennstabverhalten im Kühlmittelverluststörfall wird derzeit im Rahmen des ANL-Programms und im Rahmen des Halden-Versuchsprogramms untersucht. Das Ziel dieser experimentellen Programme ist die Bestimmung der mechanischen Festigkeit von modernen Hüllrohrmaterialien bei erhöhten Abbränden und die Bestimmung des Quench-Verhaltens im Verlauf des Kühlmittelverluststörfalles

Die neueren experimentellen Ergebnisse aus dem ANL-Versuchsprogramm zeigen, dass auch Hüllrohr-Materialien bei mäßiger Hochtemperatur-Oxidationum 2 % (ECR – Equivalent Cladding Reacted) die bisherigen Befunde zur Restduktilität bestätigen. Auch bei mäßiger Hochtemperatur-Oxidation werden hohe Wasserstoff-Gehalte in den Hüllrohren am Ende der Temperatur-Transiente gemessen. Das bedeutet, dass diese ANL-Versprödungstests in ihrer Gesamtschau zeigen, dass selbst bei Einhaltung des derzeit gültigen 17% ECR-Kriteriums eine Versprödung der Brennstabhülle nicht wirksam ausgeschlossen wird und somit die Notwendigkeit zur Überarbeitung des bestehenden Notkühl-Kriteriums gegeben ist /SON 07/.

Als Beitrag zur Überarbeitung des Notkühl-Kriteriums werden Quenchtests im Karlsruhe Institut für Technologie (KIT) vorbereitet, in denen prototypische Hüllrohr-Temperatur-Randbedingungen realisiert werden, so wie sie sich in deutschen KKW unter Kühlmittelverlust-Bedingungen einstellen würden. Ziel dieser LOCA-QUENCH-Versuche soll es sein, für die im Einsatz befindlichen Hüllrohr-Typen eine mechanische Rest-Festigkeit nachzuweisen, die geeignet ist, ein Auseinanderbrechen der Hülle unter Quench-Belastung auszuschließen.

Da in der QUENCH-Versuchsanlage des KIT mit Brennstab-Simulatoren die realen Verhältnisse nachgebildet werden, müssen aus technischen Gründen zum Teil auch Kompromisse in der Darstellung der realen Verhältnisse eingegangen werden. In Abstimmung mit dem Versuchsteam des KIT werden daher optimale Lösungen zur Darstellung einer prototypischen Hüllrohr-Temperatur-Transiente gesucht. Hierbei ist ebenso zu klären, was als prototypisch anzusehen ist.

Die neueren Halden-Versuche, wie der Versuch IFA650.9, zeigen, dass im Hochabbrand auch mit Brennstoff-Verlagerung insbesondere beim Dehnen und Bersten der Brennstabhülle zurechnen ist. Für eine realitätsnahe Darstellung der Hochtemperatur-Oxidation ist daher zu prüfen, inwieweit eine solche Brennstoff-Verlagerung auch im Quench-Versuch zu simulieren ist. Zunächst wird daher der Befund des Halden-Versuchs diskutiert und nachfolgend festgestellt, ob eine geeignete Simulation in der Quench-Versuchsanlage möglich ist.

5.1 Halden IFA650.9

Die Halden-Versuche der Serie IFA650 befassen sich mit dem Hochabbrand-Brennstabverhalten unter Kühlmittelverlustbedingungen. Ein einzelner Brennstab wird in einer Versuchsflasche mit den typischen Temperatur-Bedingungen beaufschlagt. Hierbei kommt es beim Erreichen einer Hüllrohr-Temperatur von etwa 800°C zum Hüllrohr-Dehnen und anschließend zum Hüllrohr-Bersten. Die Test-Brennstäbe haben Abbrände zwischen 44 und 90 MWd/kg.

Im Halden-Versuch IFA650.9, einem Testbrennstab mit 90 MWd/kg Abbrand, findet bei etwa 100 s nach Transienten-Beginn das Hüllrohr-Dehnen und bei 133 s Hüllrohr-Bersten statt (siehe Abb. 5-1).



Abb. 5-1 Brennstab-Innendruck (PF1), Hüllrohr-Temperatur (TCC1, TCC3), Hüllrohr-Längung (Extensiometer EC2) und Strahlungsfreisetzung (MON40) im Halden-Versuch IFA650.9

Im Transienten-Verlauf fällt weiterhin eine geringfügig sprunghafte Parameter-Änderung auf, die bei etwa 172 s nach Transienten-Beginn auftritt und alle gemessenen Brennstab-Parameter betrifft. Die wahrscheinlichste Interpretation hierzu ist, dass im Nachgang zum Hüllrohr-Bersten ein Rundum-Abriss der Hülle erfolgt und somit das Hüllrohr in zwei Teile zerlegt worden ist. Der Rundum-Abriss würde sich demnach bei einer Hüllrohr-Temperatur von etwa 1000°C und einem Brennstab-Innendruck von 8 bar ereignet haben. Ein Versatz der Brennstabteile lässt dabei eine erhebliche Brennstoff-Verlagerung aus dem Hüllrohr zu, die vom Gamma-Monitor (MON40) mit einer Zeitverzögerung sichtbar wird.



Abb. 5-2 Unterer Teil des Brennstabs nach einem Rundum-Abriss

Als Ursache für den zeitlich verzögerten Rundum-Abriss ist sicherlich der Brennstab-Innendruck, der sich aufgrund des fein fragmentierten Brennstoffs – RIM-Effekt im Hochabbrand - nur langsam abbauen kann, während gleichzeitig unter der fortbestehenden Innendruck-Belastung auch die Hüllrohr-Temperatur auf 1000°C ansteigt. Ein Hüllrohr-Materialversagen wegen totalem Festigkeitsverlust mit Rundum-Abriss tritt ein.

Zu klären ist nun, was dieser Halden-Befund für die Simulation in der Quench-Versuchsanlage im KIT bedeutet.

5.2 Simulation des Halden-Befunds in der KIT-Quench-Versuchsanlage

Aus dem Halden-Befund kann zunächst geschlossen werden, dass zur Darstellung eines prototypischen Brennstab-Verhaltens im Hochabbrand eine feinkörnige Brennstoff-Fragmentierung simuliert werden sollte. Dabei ist allerdings auch zu klären, ob der Halden-Befund nicht durch ein Artefakt aufgrund der künstlichen Umschließung des Brennstabs im Halden-Versuch mit einem zylindrischen Heizer verursacht ist. Der zylindrische Heizer im Halden-Versuch begrenzt zwar das Hüllrohr-Dehnen, er verhindert jedoch nicht das Bersten. Da aber die Berst-Öffnung vom Heizer bedeckt wird, kann davon ausgegangen werden, dass auch die Brennstoff-Verlagerung bei bedeckter Berst-Öffnung begrenzt bleibt. Der dadurch im Hüllrohr verbleibende feinkörnige Brennstoff kann die Druckentlastung im Brennstab erheblich verzögern. Insofern ist nicht auszuschließen, dass der Versuchsaufbau in Halden mit Umschließung des Brennstabs durch einen zylindrischen Heizer die Druckentlastung beeinflusst hat und letztlich im Verlauf der Transiente bei weiterer Hüllrohr-Temperatur-Zunahme zu einem weiteren Brennstab-Versagen mit Rundum-Abriss geführt hat.

Da es das Ziel ist, den Transienten-Verlauf in der Quench-Versuchsanlage weitgehend prototypisch zu gestalten, sollte das Phänomen Brennstoff-Verlagerung auch in der Quench-Versuchsanordnung realisiert werden. Im Nachgang zum Hüllrohr-Bersten sollte daher der Austritt eines feinkörnigen Pulvers stattfinden, der den Austritt von feinkörnigem Brennstoff simuliert.

Anhand der Halden-Versuche konnte gezeigt werden, dass das Spektrum der Brennstoff-Körnung Körnungen im Mikrometer-Bereich aufweist.



Abb. 5-3 Brennstoff-Körnung am Ende des Versuchs IFA650.9

Die Abb. 5-3 verdeutlicht, dass größere Brennstoff-Mengen sich als feines Pulver darstellen. Reste einer Brennstoff-Matrix sind allenthalben in Abb. 5-2 sichtbar. Dies wirft die Frage auf, welche Abmessung die feinkörnige Hochabbrand-Struktur annehmen kann. Eine keramografische Untersuchung von Tsukuda /TSU 03/ belegt, dass die Dicke der Hochabbrand-Struktur bei 90 MWd/kg voraussichtlich mehr als 300 µm ausmacht (Abb. 5-4). Das entspricht etwa 10% vom ursprünglichen Pellet-Radius (~4mm) und somit etwa 20% vom Pellet-Volumen.



Abb. 5-4 Messungen zur Dicke der Hochabbrand-Struktur /TSU 03/

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass zur Darstellung der feinkörnigen Hochabbrand-Struktur ein Brennstab-Simulator in der Quench-Versuchsanlage 3schichtig aufgebaut sein sollte bestehend aus dem Wolfram-Heizer, den Zirkon-Oxid-Ringen und einem feinkörnigen Zirkon-Oxid-Pulver.



Abb. 5-5: Schematischer Aufbau eines Brennstab-Simulators

In Abb. 5-5 ist hierzu eine schematische Darstellung gegeben. Danach ist eine Füllung zwischen Hüllrohr-Innenseite und den Zirkon-Oxid-Ringen mit einem Zirkon-Oxid-Pulver, das eine Körnung von weniger als 1 µm aufweist, eine geeignete Simulation zur Darstellung der Pellet-Hochabbrand-Struktur.

6 Brennstabverhalten bei Lastrampen

Das Verhalten der Brennstäbe gegenüber betrieblichen Leistungsänderungen, das PCI-Verhalten, wurde von den Brennelement-Herstellern experimentell untersucht und in den Spezifikationen für zulässige Leistungsänderungen umgesetzt. Da sich beim Hochabbrand im Brennstoff-Pellet eine feinkörnige Randschicht ausbildet, die Spannungsspitzen zwischen Pellet und Hüllrohr verringert, verbessert sich grundsätzlich das PCI-Verhalten bei höheren Abbränden. Ein Ereignis in einem deutschen SWR zeigt jedoch, dass PCI-Schäden auch bei Brennstäben mit höheren Abbränden auftreten können /BFS 07/.

Es werden Untersuchungen zum PCI-Verhalten in SWR durchgeführt. Ausgehend von durch Neutronen-Kinetik bedingten zeitlichen Leistungsänderungen werden daneben mit einem Brennstabcode der Spannungsaufbau und dessen Relaxation ermittelt.

Ausgehend vom oben erwähnten Schadensfalls in einem deutschen SWR, wird der Einfluss einer Leistungsänderung nach vorangehender über mehrere Monate unveränderter Steuerkreuzpositionierung auf die lokale Leistungsentwicklung untersucht. Dabei werden insbesondere mögliche Auswirkungen durch das lange Verharren des Steuerkreuzes auf das Nuklidinventar und dessen Einfluss auf die zeitliche Leistungsentwicklung betrachtet.

Die Berechnung der Leistungsverteilung erfolgt hier indirekt mit dem Abbrandcode TRITON und der Sequenz CSAS5 zur Kritikalitätsrechnung aus dem Softwarepaket SCALE6 /SCA 09/. Dazu wird mit dem Abbrandcode das Nuklidinventar zu einem vorgegebenen Zeitpunkt der nachzustellenden Situation bestimmt und anschließend die relative Spaltdichte mit einer Kritikalitätsrechnung ermittelt. Die Spaltdichte ist ein Maß für die zu erwartende Leistung, die mit dieser Methode nicht direkt bestimmt werden kann. Der wesentliche Vorteil dieser Codes besteht darin, die Nuklidinventare und relativen Spaltdichten stabweise zu berechnen, wodurch die relative Leistungsverteilung in den Stäben bestimmt werden kann. So können lokale Effekte im Brennelement aufgelöst werden. Da diese Vorgehensweise hier zum ersten Mal angewendet wird, wird zur Entwicklung und Erprobung dieser Rechenmethode zunächst ein vereinfachtes zweidimensionales geometrisches Modell mit zusätzlich vereinfachenden Annahmen verwendet.

6.1 Aufbau des Rechenmodells zur Untersuchung der Neutronenkinetik

6.1.1 Geometrisches Modell

Betrachtet wird ein 4x4-Brennelementbündel mit zentralem Steuerkreuz. Das Brennelementbündel wird aus generischen 8x8-SWR-Brennelementen mit einem einzelnen Wasserstab gebildet (Abb. 6-1). Durch reflektierende Randbedingungen in der Simulation wird diese Anordnung zu einem unendlichen Gitter fortgesetzt. Die Brennelemente am Steuerkreuz werden stabweise unter Ausnutzung der diagonalen Symmetrieachse modelliert. Die äußeren Brennelemente, die zur Entkoppelung des zentralen 2x2-Brennelementbündels im unendlichen Gitter dienen, werden nur in 3 Stabsorten unterteilt. Die Nummerierung der Stäbe bzw. Materialien in der Simulation ist für das Brennelement neben dem Steuerkreuz wie folgt:

28	29	30	31	32	33	34	35
21	22	23	24	25	26	27	34
15	16	17	18	19	20	26	33
11	12	13	14	99	19	25	32
7	8	9	10	14	18	24	31
4	5	6	9	13	17	23	30
2	3	5	8	12	16	22	29
1	2	4	7	11	15	21	28

Dabei beschreibt der Stab 99 den Wasserkanal und der Stab 1 ist in der Ecke des Steuerkreuzes positioniert. Die Stäbe 1, 28 und 35 haben eine Anfangsanreicherung für ²³⁵U von 3,06%, die Stäbe 2, 21, 29, 34 und 35 eine Anfangsanreicherung von 3,80%. Alle übrigen Stäbe besitzen eine Anfangsanreicherung von 4,12%. Stäbe mit gleichen Nummern werden während der Abbrandrechnung identisch behandelt und mit einem gemäß ihrer Positionen bestimmtem Neutronenspektrum abgebrannt. Für die äußeren Brennelemente ist der Aufbau analog, wobei nur zwischen den Stäben mit verschiedenen Anreicherungen unterschieden wird. Das Steuerkreuz wird aus Stahlröhrchen in axialer Richtung mit Borcarbid-Füllung und einem die Röhrchen einfassenden Stahlblech modelliert. Eine detaillierte Beschreibung ist in /BEH 10/ zu finden.



Abb. 6-1: Quadrant des zweidimensionalen geometrischen Modells des untersuchten 4x4-Brennelementbündels mit dem Steuerkreuz unten links (gelb).

6.1.2 Modellierung der Leistungsgeschichte

Für die Abbrandrechnung ist die durch die Spaltungen zu erzeugende Leistung vorzugeben. Dies kann durch Angabe einer mittleren Leistung für das gesamte Modell oder für einzelne Materialien geschehen. Hier wird die erste Variante genutzt und eine generische Leistungsgeschichte aus 5 Zyklen mit jeweils konstanter mittlerer Leistung vorgegeben, wobei der letzte (5.) Zyklus nur zur Hälfte betrachtet wird. Als 100% Leistung wird 40 MW/t_{SM} angenommen. Die einzelnen Zyklen besitzen folgende Parameter:

- 1. Zyklus: 50% Leistung für 300 Tage ohne Steuerkreuz, 60 Tage Stillstandszeit,
- 2. Zyklus: 100% Leistung für 300 Tage ohne Steuerkreuz, 60 Tage Stillstandszeit,
- 3. Zyklus: 100% Leistung für 300 Tage ohne Steuerkreuz, 60 Tage Stillstandszeit,
- 4. Zyklus: 75% Leistung für 300 Tage ohne Steuerkreuz, 60 Tage Stillstandszeit,
- 5. Zyklus: 50% Leistung für 150 Tage mit Steuerkreuz.

Aus der vorgegebenen mittleren Leistung wird die Leistung der einzelnen Materialien entsprechend der Neutronenflussverteilung bestimmt.

6.1.3 Abbrand der äußeren Brennelemente

In den Berechnungen der Nuklidinventare für die Brennelemente nahe am Steuerkreuz werden die äußeren Brennelemente zur Vereinfachung der Rechnungen nicht mit abgebrannt. Daher wird zunächst für die äußeren Brennelemente der Nuklidvektor zur Mitte des 3. Zyklus in einer gesonderten Rechnung bestimmt und diese Inventare werden in den weiteren Abbrandrechnungen genutzt und konstant gehalten.

6.1.4 Abbrand der Brennelemente nahe am Steuerkreuz

Die Brennelemente nahe am Steuerkreuz werden zunächst entsprechend den ersten vier Zyklen ohne das Steuerkreuz abgebrannt, d.h. im geometrischen Modell wird das Steuerkreuz durch Wasser ersetzt. Die errechneten Nuklidvektoren der einzelnen Stäbe werden extrahiert und in die Modelle für den 5. Zyklus eingefügt. Für den fünften Zyklus werden drei verschiedene Varianten betrachtet. Zum einen wird eine Abbrandrechnung mit Steuerkreuz¹, eine weitere Rechnung mit einem Stahlblech² gleicher Dicke anstelle des Steuerkreuzes und schließlich eine Rechnung ohne Steuerkreuz, d.h. mit Wasser anstelle des Steuerkreuzes, durchgeführt. Jeder dieser drei Rechnungen startet mit dem Nuklidinventar nach dem 4. Zyklus. Der Vergleich dieser Rechnungen ermöglicht es, Rückschlüsse auf die veränderte Nuklidzusammensetzung aufgrund des Steuerkreuzeinsatzes zu ziehen.

Die resultierenden Nuklidinventare dieser drei Rechnungen bilden dann die Grundlage für die Analyse der Situation nach der Bewegung des Steuerkreuzes, die hier als instant angenommenen wird. Dazu werden vier verschiedene Szenarien unterschieden. Die Inventare aus der vorhergehenden Rechnung mit Steuerkreuz werden in je einem Modell mit Wasser bzw. Stahlblech anstelle des Steuerkreuzes eingefügt, womit eine komplette Entfernung des Steuerkreuzes bzw. eine Absenkung des Steuerkreuzes auf die Höhe des Stahlaufbaus beschrieben wird. Diese Situationen werden im Weiteren als "Fall a" bzw. "Fall b" referenziert. Die Inventare aus der Berechnung des fünften Zyklus mit Stahlblech werden in ein Modell mit Wasser übertragen, womit die Brenn-

¹ Der Begriff "Steuerkreuz" steht hier für den absorbierenden Teil des Steuerkreuzes, da in dem verwendeten zweidimensionalen Modell der axiale Aufbau des Steuerkreuzes nicht berücksichtigt wird.

² Das obere Ende des Steuerkreuzes wird durch einen Stahlaufbau zur Stabilisierung der Steuerbewegung gebildet. Zur Untersuchung von Brennstababschnitten, die sich auf der Höhe dieses Stahlaufbaus befinden, werden entsprechende Rechnungen mit Stahl an der Position des Steuerkreuzes durchgeführt.

stabebene, die sich zu Beginn des 5. Zyklus auf der Höhe des Stahlaufbaus und nach der Bewegung oberhalb des Stahlaufbaus befindet, beschrieben wird ("Fall c"). Zusätzlich werden die Inventare aus der Rechnung mit Wasser anstelle des Steuerkreuzes wiederum in ein Modell mit Wasser anstatt Steuerkreuz übertragen, um diese Resultate als Referenz für einen Abbrand komplett ohne Steuerkreuz zu verwenden ("Fall d"). Hier wird die Übertragung der Nuklide vorgenommen, um bei allen Rechnungen gleiche Bedingungen sicher zustellen, da TRITON nur ein Teil der insgesamt bei der Rechnung berücksichtigten Nuklide ausgibt (Kap. 6.1.5).

Diese vier Modelle werden weiteren Abbrandrechnungen mit einer konstanten Leistung von 50% mit nachfolgenden Kritikalitätsrechnungen unterzogen, um die weitere Entwicklung kurzlebiger Spaltprodukte mit hohen Absorptionsquerschnitten und deren Einfluss auf das zeitliche Leistungsverhalten zu bestimmen. Die zu erwartende Erhöhung der mittleren Leistung nach Entfernung des Steuerkreuzes wird vernachlässigt, da dazu zunächst kein genauer Wert vorliegt. Abb. 6-2 gibt den Verlauf schematisch wieder.





6.1.5 Parameter in Abbrand- und Kritikalitätsrechnungen

Für die Abbrandrechnungen mit TRITON wird die Sequenz *t5-depl* verwendet, so dass der Neutronentransport für die Flussberechnung mit Hilfe des Monte Carlo-Codes KENO V.a erfolgt. Die Kritikalitätsrechnungen werden mit der Sequenz CSAS5 durchgeführt. Für beide Module wird die Nordheim Integral Methode (*nitawl*) zur Resonanzbehandlung gewählt und die Wirkungsquerschnittsbibliothek ENDF/B-V in 44 Energiegruppen verwendet. Dies dient zur deutlichen Verringerung der Rechenzeit gegenüber der empfohlenen Standardmethode zur Resonanzbehandlung *centrm* und der neueren Bibliothek ENDF/B-VII in 238 Energiegruppen. Für die Flussberechnung werden 1000 Generationen a 50000 Neutronen genutzt. Aus den Abbrandrechnungen werden die Stoffmengen von 227 Nukliden in die nachfolgenden Rechnungen übertragen, wobei die Nuklide im Wesentlichen durch die verwendete Wirkungsquerschnittsbibliothek ENDF/B-V vorgegeben sind.

Die Brennstofftemperatur wird mit 823 Kelvin in allen Rechnungen (auch nach der Steuerkreuzbewegung) konstant gehalten, ebenso die Moderatordichte, die auf 0,738 g/cm³festgelegt wurde.

6.2 Resultate der neutronenkinetischen Berechnungen

Die Resultate sind aufgrund der stark vereinfachten Simulation (konstante Brennstofftemperatur und Moderatordichte, konstantes Inventar umgebender Brennelemente) vor allem qualitativ zu bewerten. Die errechneten Zahlenwerte hängen maßgeblich von den verwendeten Parametern und Modellannahmen ab, weshalb an dieser Stelle keine detaillierten quantitativen Rückschlüsse auf die Situation einer realen Steuerkreuzbewegung möglich sind.

6.2.1 Nuklidinventar

Durch den Einsatz des Steuerkreuzes ergeben sich in dessen Nähe ein geringerer thermischer Neutronenfluss und so ein deutlich verhärtetes Energiespektrum. Beides führt zu einem veränderten Uranverbrauch bzw. Plutoniumaufbau in den Stäben nahe dem Steuerkreuz. Dies sind vor allem die Stäbe 1, 2, 4, 7, 11, 15, 21 und 28. Abb. 6-3 bis Abb. 6-6 zeigen dies am Beispiel der Nuklide ²³⁹Pu und ²³⁵U. Insbesondere im Vergleich der Abbrandrechnungen mit und ohne Steuerkreuz (Fall a und Fall d) zeigen die Stäbe neben dem Steuerkreuz einen deutlich höheren ²³⁹Pu-Aufbau sowie einen geringeren ²³⁵U-Verbrauch. Im Vergleich zur Situation ohne Steuerkreuz liegt damit in Stäben nahe dem Steuerkreuz deutlich mehr Spaltmaterial vor, so dass nach der Bewegung bzw. Entfernung des Steuerkreuzes, also nach Entfernen des Absorbers und gegebenenfalls dem Hinzufügen von zusätzlichem Moderator, in den betreffenden Stäben eine entsprechend erhöhte Leistung auftritt.



Abb. 6-3Kernzahldichte von 239Pu für die Stäbe 1 bis 35 zur Mitte des fünften
Zyklus berechnet mit Steuerkreuz (Fall a), mit Stahlblech (Fall c) und
Wasser (Fall d) im fünften Zyklus.



Abb. 6-4Verhältnisse der Kernzahldichten von 239Pu für die Stäbe 1 bis 35 zurMitte des fünften Zyklus der Fälle a und d bzw. c und d.



Abb. 6-5 Kernzahldichte von ²³⁵U für die Stäbe 1 bis 35 zur Mitte des fünften Zyklus berechnet mit Steuerkreuz (Fall a), mit Stahlblech (Fall c) und Wasser (Fall d) im fünften Zyklus.



Abb. 6-6Verhältnisse der Kernzahldichten von 2359U für die Stäbe 1 bis 35 zurMitte des fünften Zyklus der Fälle a und d bzw. c und d.

6.2.2 Relative Spaltdichte

Als Indikator für die erzeugte Leistung wird hier die relative Spaltdichte herangezogen, die im Wesentlichen proportional zur erzeugten Leistung ist. Abb. 6-7 zeigt zunächst den Einfluss des Steuerkreuzes selbst auf die Spaltdichte, die für Stäbe nahe dem Steuerkreuz deutlich reduziert wird. Für Stäbe mit großem Abstand zum Steuerkreuz ist dagegen nur ein geringer Einfluss erkennbar.



Abb. 6-7Relative Spaltdichten für die Stäbe 1 bis 35 zur Mitte des fünften Zyklus
vor der Bewegung des Steuerkreuzes für die Fälle a, c und d.

Nach der Bewegung des Steuerkreuzes entfällt in den Fällen a und c dessen absorbierender Einfluss, da in diesen Fällen das Steuerkreuz bzw. Stahlblech durch Wasser, also durch zusätzlichen Moderator, ersetzt wird. Durch das veränderte Nuklidinventar der Fälle a und c, insbesondere dem erhöhtem Spaltstoffanteil in den Stäben nahe dem Steuerkreuz, ist in diesen Fällen eine gegenüber dem Fall d erhöhte Spaltdichte zu erwarten. Abb. 6-8 bzw. Abb. 6-9 zeigen den Vergleich dieser Fälle und bestätigen das erwartete Verhalten. Die Differenz der Fälle a und c zum Fall d ist dementsprechend als Leistungserhöhung aufgrund des reaktiveren Nuklidinventars der Fälle a und c zu interpretieren.



Abb. 6-8Relative Spaltdichten für die Stäbe 1 bis 35 zur Mitte des fünften Zyklus
nach der Bewegung des Steuerkreuzes für die Fälle a, c und d.



Abb. 6-9 Verhältnis der relativen Spaltdichten für die Stäbe 1 bis 35 zur Mitte des fünften Zyklus nach der Bewegung des Steuerkreuzes für die Fälle a und d bzw. c und d.

Im Gegensatz zum Fall a, in dem das komplette Entfernen des Steuerkreuzes betrachtet wird, behandelt der Fall b ein Absenken des Steuerkreuzes, so dass das stark absorbierende Steuerkreuz durch den Stahlaufbau ersetzt wird. Vergleicht man diesen Fall nach der Steuerkreuzbewegung mit einer Abbrandrechnung mit Stahlblech (d.h. Fall c vor der Steuerkreuzbewegung), so zeigt sich wieder eine leicht erhöhte Spaltdichte aufgrund des reaktiveren Nuklidinventars im Fall b (Abb. 6-10). Die Erhöhung der Spaltdichte ist aber deutlich geringer als im Fall a, was vermutlich auf die hier zwar verringerte Absorption aber nicht erhöhte Moderation zurückzuführen ist.



Abb. 6-10 Verhältnis der relativen Spaltdichten für die Stäbe 1 bis 35 zur Mitte des fünften Zyklus von Fall b nach der Bewegung des Steuerkreuzes und Fall c vor der Bewegung des Steuerkreuzes.

6.2.3 Zeitlicher Leistungsverlauf nach Steuerkreuzbewegung

Um das zeitliche Verhalten der Leistungsverteilung bzw. der Spaltdichte nach der Steuerkreuzbewegung zu untersuchen, wurden weitere Abbrandrechnungen mit nachfolgenden Kritikalitätsrechnungen durchgeführt. Wie bereits erwähnt, erfolgt keine Anpassung der vorgegebenen mittleren Leistung in den Abbrandrechnungen. Ferner geben die Kritikalitätsrechnungen nur eine relative Spaltdichteverteilung an, deren Änderungen als relative Leistungsänderungen interpretiert werden können. Für die ersten zwei Stunden nach der Steuerkreuzbewegung wurden Zeitschritte von 15 Minuten, anschließend Zeitschritte von 2 Stunden gewählt. Die kurzzeitige Leistungstransiente aufgrund der durch die Steuerkreuzbewegung freigegeben Reaktivität kann von TRITON bzw. dem hier gewählten System aus statischen Rechnungen nicht bestimmt werden.

Die Entfernung des Steuerkreuzes hat eine deutliche Erhöhung des Neutronenflusses und damit der lokalen Leistung bzw. Spaltdichte zur Folge, wodurch wiederum das Nuklidinventar, insbesondere der Stäbe nahe am Steuerkreuz, beeinflusst wird. Besondere Auswirkungen hat dies vor allem auf kurzlebige Spaltprodukte oder deren Folgeprodukte, wenn diese sehr hohe Absorptionsquerschnitte besitzen. Ein Beispiel ist ¹³⁵Xe, das im Wesentlichen aus dem Spaltprodukt ¹³⁵Te ($t_{1/2} = 19,2$ s) über das Zwischenprodukt ¹³⁵I ($t_{1/2} = 6,53$ h) gebildet wird. Der erhöhte Neutronenfluss führt zunächst zu einem verstärkten Abbau von ¹³⁵Xe aufgrund des sehr hohen Absorptionsquerschnitts. Gleichzeitig werden vermehrt Spaltprodukte gebildet, die aber durch die Lebensdauer von ¹³⁵I erst nach einigen Stunden zu einem verstärkten Aufbau von ¹³⁵Xe führen. Insgesamt ergibt sich so zunächst ein Rückgang der ¹³⁵Xe-Konzentration mit einem anschließenden Anstieg und der Bildung einer neuen Gleichgewichtskonzentration (Abb.6-11).



Abb. 6-11¹³⁵Xe-Konzentration nach der Bewegung des Steuerkreuzes des Stabes1 für den Fall a unter Annahme einer konstanten mittleren Leistung.

Der zunächst auftretende Rückgang der stark neutronenabsorbierenden Nuklide kann seinerseits zu einer weiteren Erhöhung der lokalen Leistung bzw. Spaltdichte führen. Am Beispiel des Stabes 1 für den Fall a zeigt Abb. 6-12 den errechneten Verlauf der relativen Spaltdichte. Insgesamt ist für die ersten Stunden nach der Steuerkreuzbewegung eine geringfügig erhöhte Spaltdichte zu erkennen, die dann wieder abfällt und sogar unter den Ausgangswert sinkt. Da der Anstieg der Spaltdichte aber in der Größenordnung der aufgrund der endlichen Neutronenstatistik bedingten statistischen Unsicherheit der Spaltdichte liegt, ist an dieser Stelle keine genauere Aussage über den zeitlichen Verlauf möglich.



Abb. 6-12 Relative Spaltdichte nach der Bewegung des Steuerkreuzes des Stabes
 1 für den Fall a. Die Spaltdichte wird mit einer relativen Unsicherheit von etwa 2 ‰ berechnet.

6.3 Folgerung aus den bisherigen neutronenkinetischen Berechnungen

Insgesamt zeigen die hier durchgeführten Rechnungen qualitativ die erwarteten Effekte. Ein über lange Zeit eingefahrenes Steuerkreuz führt gegenüber einem Abbrennen ohne Steuerkreuz durch den vermehrten Aufbau von ²³⁹Pu und dem verringerten Abbrand von ²³⁵U zu einem reaktiveren Inventar. Damit wird beim Herausfahren eines Steuerkreuzes, das über einen langen Zeitraum nicht bewegt wurde, eine größere Reaktivität freigesetzt als dies bei einem unter ansonsten gleichen Bedingungen kurzfristig ein- und wieder ausgefahrenen Steuerkreuz der Fall ist. Die sich durch die freigegebene Reaktivität ergebende Leistungstransiente kann allerdings von TRITON bzw. der Sequenz CSAS5 nicht berechnet werden, so dass mit dem hier gewähltem System aus statischen Rechnungen keine quantitativen Aussagen über Auswirkung der erhöhten Reaktivität auf diese kurzzeitige Leistungstransiente möglich sind. Das langfristige Verhalten kann dagegen mit weiteren Abbrand- und Kritikalitätsrechnungen ermittelt werden.

Wie bereits erwähnt, hängen die hier gezeigten Resultate stark von den gewählten Modellparametern ab. Für eine genaue realistische Quantifizierung der beobachteten Effekte ist das hier verwendete zweidimensionale Modell jedoch zu stark vereinfacht. Zusätzlich sind vereinfachende Annahmen, wie konstanter Brennstofftemperatur und Moderatordichte nach der Steuerkreuzbewegung und konstanten Inventaren der äußeren Brennelemente, in die Rechnungen eingeflossen, die die Realität nur bedingt wieder geben. Desweiteren wurden in den Abbrandrechnungen nach der Steuerkreuzbewegung keine Anpassung der mittleren Leistung vorgenommen. Um quantitativ belastbare Resultate zu erzielen, ist der Einfluss dieser Vereinfachungen näher zu untersuchen und gegebenenfalls durch realistischere Modellannahmen zu ersetzen. Da diese Werte, wie Brennstofftemperatur, Moderatordichte oder mittlere Leistung, Eingabeparameter für die Abbrandrechnung mit TRITON sind, sind sie anderweitig zu ermitteln, so dass die hier eingesetzte Rechenmethode geeignet zu erweitern wäre.

6.4 Spannungsanalyse

PCI-Schäden an Hüllrohren entstehen, wenn das Spannungsniveau im Hüllrohr nach einer Leistungsdichte-Anhebung nicht mehr hinreichend abgesenkt werden kann und die nachfolgende Freisetzung von Jod eine erhebliche Spannungsriss-Korrosion an der Hüllrohr-Innenseite mit Riss-Wachstum hervorrufen kann. Diese komplexen Mechanismen sind seit langem bekannt und werden durch gezielte lokale Leistungsdichte-Überwachungen im Vorfeld vermieden.

Untersuchungen zeigen, dass im Hochabbrand weitere Mechanismen hinzukommen, die einen Einfluss auf Schadensgrenzen nehmen /SHI 04/. Wasserstoff, der durch den betrieblichen Einsatz sich im äußeren Bereich der Brennstabhülle konzentriert, kann ebenfalls wie Jod auf der Hüllrohr-Innenseite zu einem Riss-Wachstum, jetzt aber unter Wasserstoff-Beteiligung von außen nach innen, beitragen. Dieser neue Mechanismus wird mit PCMI bezeichnet. Es gibt Hinweise, dass die Wasserstoff-bedingte Schadensgrenze unter der bekannten Grenze für Spannungsriss-Korrosion sinkt. In Abb. 6-13 ist die Schadensgrenze durch Spannungsriss-Korrosion mit "PCI threshold" und die Wasserstoff-bedingte Schadensgrenze mit "PCMI threshold" bezeichnet.

LHGR (kW/m)



Burnup (MWd/kg U)

Abb. 6-13 Schadensgrenzen in Abhängigkeit vom Abbrand

Da mit zunehmendem Abbrand nicht nur die Hüllrohr-Eigenschaften sich verändern, verkompliziert sich das phänomenologische Bild auch durch Veränderungen in der Brennstoff-Matrix.

Auf der einen Seite sorgt eine Hochabbrand-Struktur an der Pellet-Oberfläche für eine Vergleichmäßigung der Spannungen an der Hüllrohr-Innenseite. Auf der anderen Seite kann durch Speicherung von Spaltgasen in der Brennstoff-Matrix das betriebliche Schwellen des Brennstoffs nach einer Leistungsanhebung verstärkt sein.



Abb. 6-14 Pellet- und Hüllrohr-Dehnung nach einer Leistungsanhebung von 230W/cm

Die in Abb. 6-14 dargestellten Pellet-Dehnungen sind anhand von Versuchsdaten rechnerisch ermittelt. Sie geben insofern den gegenwärtigen Kenntnisstand zur Brennstoff-Modellierung wider. Hieraus kann geschlossen werden, dass das Pellet-Schwellen auch im Hochabbrand nicht wesentlich verstärkt ist und dieser Aspekt nicht wesentlich zu einer Schadensgrenzen-Absenkung beiträgt.

Hinzu kommt ein weiterer Aspekt, der durch die Entwicklung des Nuklid-Inventars ebenfalls auf das PCI-Verhalten wirkt. Ein langanhaltender Pu-Aufbau im Schatten eines Steuerstabs kann signifikante Reaktivitätsbeiträge liefern, die nach einer Leistungsanhebung zu einer zusätzlichen lokalen Leistungsanhebung sowie zu einem über Stunden andauernden Leistungszuwachs in der Nachbarschaft zum Steuerstab führen.

Weiterhin ist auch der Beitrag einer möglichen Herabsetzung der Schadensgrenze zu betrachten, der durch das Phänomen Hüllrohr-Kriechen beeinflusst wird. Dieses Kriechen kann zum einen durch den Wasserstoff-Gehalt in der Hülle und zum anderen durch den jeweils lokalen schnellen Neutronenfluss beeinflusst sein. Hier gilt grundsätzlich, dass alles, was die Kriechrate mindert, ein erhöhtes Spannungsniveau in der Hülle bedingt.

In einer generischen Spannungsanalyse mit stufenweiser Anhebung der Leistungsdichte ist der Einfluss des Hüllrohr-Kriechens betrachtet worden(siehe Abb. 6-15).



Abb. 6-15 Spannungsaufbau zu verteilten Leistungshüben - verteilt auf 0.5 bis 4 Tage

In dieser Analyse zeigt sich, dass Maximalwerte der Hüllrohr-Spannungen bei einer Verteilung der Leistungsanhebung auf mehrere Tage nur in einem sehr geringen Umfang reduziert werden. Werden Leistungshübe über vier Tageverteilt, dann ist die Spannungsspitze um 20 MPa gemindert gegenüber einer Verteilung der Hübe über kürzere Zeitspannen von 0.5 bis 2 Tage.

Ist durch Hochabbrand der lokale schnelle Neutronen-Fluss reduziert, dann wird die oben beschriebene Spannungsminderung von 20 MPa weiterhin gemindert, so dass letztlich die Verteilung der Hübe ihre Bedeutung verliert.

Es verbleibt zur Spannungsminderung die plastische Verformbarkeit der Hülle. Durch Hochabbrand-bedingte Wasserstoff-Einlagerung kann diese plastische Verformbarkeit eingeschränkt sein. Hierzu ist mit TespaRod ebenfalls eine generische Untersuchung durchgeführt worden. (Abb. Abb. 6-16 - Abb. 6-18)



Abb. 6-16Umfangsspannung im Hüllrohr nach Leistungshüben von 200 W/cm -
plastische Verformbarkeit ist gegeben



Abb. 6-17 Umfangsspannung über Hüllrohr-Dehnung bei plastischer Verformbarkeit



Abb. 6-18 Umfangsspannung über Hüllrohr-Dehnung bei Verlust der plastischen Verformbarkeit

In der Gegenüberstellung der beiden Rechenfälle zur uneingeschränkten und eingeschränkten plastischen Verformbarkeit wird deutlich, dass eine Lastspitze, die durch den zweiten Leistungshub eingeleitet wird, bei fehlender Verformbarkeit die Bruchspannung erreicht. Dadurch wird erkennbar, dass das Fehlen einer Verformbarkeit zumindest das Entstehen von Anrissen im Hüllrohr begünstigt. Ein nachfolgender Angriff durch Jod kann dann das bekannte Phänomen Spannungsriss-Korrosion einleiten.

Hieraus kann der Schluss gezogen werden, dass eine Wasserstoff-Einlagerung, die die plastische Verformbarkeit der Brennstabhülle maßgeblich reduziert, eine Absenkung der PCI-Schadensschwelle bewirken kann. Dies setzt jedoch voraus, dass der Wasserstoff im Hüllrohr als Hydrid ausgeschieden und hier speziell in Form von radial ausgerichteten Hydrid-Plättchen vorliegt.

6.5 Hydrid-Verteilung

Im SWR sind die betrieblichen Hüllrohr-Temperaturen (280°C – 320°C) zum DWR-Hüllrohr vergleichsweise niedrig. Wasserstoff, der betrieblich aufgenommen worden ist, befindet sich vorrangig als Hydrid-Plättchen im metallischen Gefüge. Abb. 6-19 zeigt die Löslichkeitsgrenze für bestrahltes und unbestrahltes Hüllrohr-Material. Im SWRspezifischen Temperatur-Bereich liegt die Löslichkeitsgrenze bei 50 bis 80 ppm H.



Abb. 6-19Löslichkeitsgrenze für bestrahltes (grün) und unbestrahltes (gelb) Hüll-
rohr-Material

Die betriebliche Wasserstoff-Aufnahme im Hüllrohr bei Hochabbrand liegt nach einer Standzeit von vier bis fünf Zyklen bei etwa 300 bis 400 ppm H.

Im Außenbereich des Hüllrohrs wird diese Wasserstoff-Menge bevorzugt angesammelt. Ursache für diese Wasserstoff-Anreicherung im Hüllrohr-Außenbereich ist die Thermomigration. In Abb. 6-20 ist die Thermomigration für einen Temperatur-Gradienten von 8 K/mm analytische ermittelt.



Abb. 6-20 Thermomigration von Wasserstoff bei 8 K/mm, einer mittleren Temperatur von 320°C und einem mittleren Wasserstoff-Gehalt von 400 ppm.

Die stationäre Wasserstoff-Verteilung zeigt eine Verdreifachung der Wasserstoff-Konzentration im Bereich der niedrigeren Temperatur. In einem Hüllrohr-Außenbereich liegen die Wasserstoff-Gehalte somit deutlich über Sättigung und eine Hydrid-Ausscheidung tritt ein. In Abb. 6-21 wird erkennbar, dass eine radiale Ausscheidung erst bei Umfangsspannungen oberhalb von 100 MPa auftreten.



Radial hydride fraction obtained during a cool down from Tmax to room temperature under stained hoop stress

Abb. 6-21 Anteil radialer Hydride in Abhängigkeit von Umfangsspannung und Hüllrohr-Temperatur – nach Rashid, Machiels, NRC-ANL-EPRI meeting 2004,

Umfangsspannungen oberhalb von 100 MPa können insbesondere im Hochabbrand erreicht werden. Zum einen ist im Hochabbrand durch Brennstoff-Schwellen die Brennstab-Hülle unter Zugspannung. Darüber hinaus ist der schnelle Neutronen-Fluss etwas vermindert und somit ist das strahlungsinduzierte Hüllrohr-Kriechen weniger stark ausgeprägt, so dass ein Spannungsabbau geringer ausfällt. Insofern wird die Brennstabhülle im Hochabbrand trotz einer geringeren Leistungsdichte ein höheres Spannungsniveau erreichen und somit die Ausrichtung radialer Hydride begünstigen. Dies wiederum führt im Ergebnis zu einer verminderten plastischen Verformbarkeit der Hülle, so dass Hüllrohr-Schäden bei Lastrampen bei geringerer Belastung auftreten können.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass im Hochabbrand die veränderten Werkstoff-Eigenschaften der Brennstabhülle einen wesentlichen Anteil an einer Herabsetzung der Schadensschwelle haben. Wenn unter diesen Bedingungen auch noch Neutronen-physikalische Besonderheiten, wie das langzeitige Verbleiben eines Steuerstabs in seiner Einfahr-Position hinzu kommen, dann ist davon auszugehen, dass bei nachfolgenden Lastrampen Schadensschwellen ein scheinbar niedrigeres Niveau als bisher bekannt annehmen. Es empfiehlt sich daher, entweder Steuerblätter in der Nachbarschaft zu Hochabbrand-Brennelementen nicht über längere Zeiträume zu belassen oder derartige Steuerstab-Positionen bei Lastrampen nur in großen Zeitabständen und in kleinen Hüben zu ändern.

7 Zusammenfassung

Eine Anhebung des Entladeabbrands bedingt eine Anhebung der Brennstoff-Anreicherung. Anreicherungen bewegen sich in deutschen Anlagen derzeit zwischen 4% und 4,5%. Welchen Einfluss die veränderte Anreicherung auf sicherheitstechnische Parameter hat ist für den Bereich der Anreicherungen zwischen 4% und 5% untersucht worden. Im Ergebnis wird festgestellt, dass weder der Reaktivitätskoeffizient der Brennstofftemperatur, noch der Reaktivitätskoeffizient der Moderatortemperatur noch der Reaktivitätskoeffizient der Borkonzentration bei sonst gleichen Betriebsbedingungen sich wesentlich verändern. Dabei wurde verglichen, wie ausgehend vom frischen zum abgebrannten Brennstoff (50 MWd/kg bei 4% bzw. 60 MWd/kg bei 5%) diese Parameter sich entwickeln. Es wird festgestellt, dass im betrachteten Bereich der Anreicherungen keine signifikanten Veränderungen in den sicherheitstechnischen Parametern erkennbar sind. Die Veränderungen in den Nuklidinventaren befinden sich im erwarteten Rahmen.

Die Recherche zur deutschen Betriebserfahrung im Hinblick auf besondere Vorkommnisse zu neuen Hüllrohr-Materialien hat ergeben, dass in einem Fall ein ungünstiges Korrosionsverhalten beobachtet worden ist. Das ansonsten korrosionsfeste Hüllrohr-Material M5 korrodierte innerhalb eines Zyklus auf einen Werte bis zu 70 µm und lag damit weit über dem Erwartungswert für dieses Material von etwa 10 µm. Es zeigt sich, dass das Hüllrohr-Material M5 unerwartete Sensitivitäten aufweist. Durch Einsatz von M5 unter Hochleistungsbedingungen mit unterkühltem Blasensieden im oberen Drittel des Brennelements besteht die Möglichkeit, dass die Korrosionsfestigkeit unzureichend ist. Die Nachweisführung sollte daher zur Einhaltung von Korrosionskriterien auch mit Blick auf Leistungsspitzenwerte einer konkreten Kernbeladung erfolgen, sofern Hüllrohrwerkstoffe vom Typ M5 zum Einsatz kommen.

Das Brennstabverhalten bei Reaktivitätsstörfällen ist für den Brennstoff UO2 in verschiedenen Versuchsanlagen untersucht und auch modelltheoretisch bestimmt worden. In Bezug auf MOX-Brennstoff ist dies derzeit nicht der Fall. Versuchsdaten zu MOX sind in nur beschränktem Umfang zugänglich bzw. werden erst in künftigen CABRI-WL-Versuchen untersucht. Trotz des beschränkten Zugangs zu MOX-Untersuchungen gibt es dennoch Veröffentlichungen, die zeigen, dass der MOX- Brennstoff im Reaktivitätsstörfall ein deutlich verstärktes Brennstoff-Schwellen zu haben scheint. In einer vergleichenden Betrachtung sind die Material-Eigenschaften von UO2- und MOX-Brennstoff gegenübergestellt worden, um einen Hinweis auf das unterschiedliche Verhalten im Pellet-Schwellen erkennen zu können. Es zeigt sich, dass letztlich nur die heterogenen Pu-Agglomerate infrage kommen, um den Unterschied im Verhalten zwischen UO2 und MOX erklären zu können. Dieser Aspekt wird daher in künftigen Modellbildungen verstärkt beachtet werden müssen.

Das Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen weist gemäß den jüngsten Halden-Untersuchungen weitere Phänomene auf, die in der sicherheitstechnischen Betrachtung nicht berücksichtigt sind. Die Halden-Versuche haben reproduzierbar gezeigt, dass der Hochabbrand-Brennstoff sich in einem erheblichen Umfang während der Transiente verlagert und aus einer Berst-Öffnung des Brennstabs austreten kann. Dabei weist der Brennstoff eine sehr feine Körnung auf, die im ungünstigsten Fall sich im Bereich der Berst-Öffnung verdichtet und eine Barriere für den Gas-Austritt aus dem Brennstab darstellen kann. Daraus können weitere Belastungen in der Brennstabhülle resultieren, die ein weiteres Versagen der Hülle zur Folge haben können. Im KIT-Quench-Versuchsstand soll prototypisches Brennstab-Verhalten simuliert werden. Es sind hier anhand der Halden-Versuche geeignete Randbedingungen zur prototypischen Darstellung des Brennstoff-Verhaltens ermittelt worden, die später im KIT-Quench-Versuch zum Einsatz kommen sollen. Die Versuche im KIT werden im Rahmen eines BMWi-Vorhabens RS1193 analytisch begleitet /BMW 10/.

Das Brennstabverhalten bei Lastrampen zeigt im Hochabbrand eine verminderte PCI-Schadensschwelle. Diese Schadensschwelle scheint sich weiterhin zu vermindern, wenn in einer SWR-Anlage das Steuerblatt über einen längeren Zeitraum in seiner Einfahr-Position verharrt. Ein nachfolgendes Ausfahren des Steuerblatts kann dann in unmittelbarer Umgebung aufgrund eines bis dahin verstärkten Pu-Aufbaus eine verstärkte Leistungsentbindung bewirken, so dass u.U. Brennstab-Schäden auftreten. Ob es jedoch zu PCI-Schäden kommt, so zeigt die hier vorgestellte Untersuchung, hängt darüber hinaus davon ab, ob Veränderungen im Hüllrohr-Material durch einen betrieblichen Wasserstoff-Eintrag vorliegen. Dabei ist es von Bedeutung, ob das Spannungsniveau in Umfangsrichtung im Hüllrohr oberhalb von 100 MPa liegt und somit zu radial orientierter Hydrid-Anordnung beiträgt, da diese die plastische Verformbarkeit der Hülle erheblich herabsetzen. Wegen der Komplexität der Zusammenhänge ist eine abschließende Bewertung zur PCI-Schadenschwelle im Hochabbrand noch nicht erfolgt, da hierzu weitere Analysen der Hüllrohr-Eigenschaften erforderlich sind. Weitergehende Analysen werden auch im BMWi-Vorhaben RS 1189 durchgeführt /BMW 09/.

8 Literatur

- /BEH 10/ M. Behler, Zeitliches Leistungsverhalten bei Steuerkreuzeinsatz, interner technischer Bericht, GRS, Garching, September 2010.
- /BMU 05/ Empfehlung der Reaktor-Sicherheitskommission "Sicherheitsaspekte des Einsatzes hochabgebrannter Brennelemente unter Reaktivitätsstörfall-Bedingungen" vom 27.01.2005, Rundschreiben des BMU (Aktenz. AG RS I/3 - 14200/29) vom 09.02.2005
- /BFS 05/ Meldepflichtige Ereignisse in Kernkraftwerken und Forschungseinrichtungen, BEVOR-BfS-Datenbank, Ereignisnummer 05/087 vom 22.7.2005
- /BFS 07/ Meldepflichtige Ereignisse in Kernkraftwerken und Forschungseinrichtungen, BEVOR-BfS-Datenbank, Ereignisnummer 07/053 vom 19.5.2007
- /BMW 09/ BMWi-Vorhaben RS1189: Weiterentwicklung und Validierung von Rechenmethoden zu Hochabbrand, Aktivierung und Abschirmung. Vorhabensbeginn 1.6.2009
- /BMW 10/ BMWi-Vorhaben RS1193: Rechenmethoden zu Brennstab-Schadensmechanismen im Betriebsbereich und bei Auslegungsstörfällen. Vorhabensbeginn 1.2.2010
- /CAS 91/ Casal, J.J.; Stammler, R.J.J.; Villarino, E.A.; Ferri, A.A.: HELIOS: Geometric Capabilities of a New Fuel-Assembly Program. Intl. Topical Meeting on Advances in Mathematics, Computations, and Reactor Physics, Pittsburgh, USA, April 1991.
- /HES 00/ U. Hesse, B. Gmal, T. Voggenberger, M. Baleanu, K. Hummelsheim, W. Heinicke, W. Zwermann, S. Langenbuch, "KENOREST, A New Three Dimensional Fuel Assembly Code System Combining KENO-Va and OREST for Reactivity and In-ventory Calculations", ANS International Topical Meeting PHYSOR 2000, Pittsburgh, Pennsylvania, USA, May 2000.

- /HES 07/ U. Hesse, S. Langenbuch, W. Zwermann, D. Porsch, W. Bernnat, "Comparison of Burn-Up Calculations for a UO2 PWR Fuel Assembly", Jahrestagung Kerntechnik, Karlsruhe, May 2007.
- /LAN 05/ Lanning, D.D.; Beyer, C.E.; Geelhood, K.J.: FRAPCON-3 Updates, Including Mixed-Oxide Fuel Properties. NUREG/CR-6534, Vol. 4, PNNL–11513, May 2005
- /LIP 98/ Lippens,M.; Vanderborck, Y.: MOX Fuel Performance BELGONUCLEAIRE Views. OECD/NEA Workshop on the Physics and Fuel Performance of Reactor-based Plutonium Disposition, Paris, September 28-30, 1998
- /NEA 06/ Nuclear Energy Agency, Organisation for Economic Co-Operation and Development: Very High Burn-ups in Light Water Reactors. NEA No. 6224, ISBN 92-64-02303-8, OECD, 2006
- /OEC 10/ OECD NEA: Nuclear Fuel Behaviour under Reactivity-initiated Accident (RIA) Conditions. ISBN 978-92-64-99113-2, 2010
- /RSK 03/ Sicherheitsaspekte des Einsatzes hochabgebrannter Brennelemente unter Kühlmittelverlust-(KMV) Bedingungen, Bericht der AG HOCHABBRAND für den RSK-Ausschuss REAKTORBETRIEB, 21.01.2003
- /SCA 09/ SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluations, ORNL/TM-2005/39, Version 6, Vols.
 I-III, January 2009. Available from Radiation Safety Information Computational Center at Oak Ridge National Laboratory as CCC-750.
- /SCH 07/ Schmidt, C.; Hoffmann, P.: Erfahrungen in KKP 2 mit M5-Hüllrohren. Jahrestagung Kerntechnik 2007
- /SHI 04/ Shimada, S., ET. al.: A metallographic and fractographic study of outside-in cracking caused by power ramp tests. In Journal of Nuclear Materials, Volume 327, Issues 2-3, pp 97-113, May 2004

- /SON 07/ Sonnenburg, H.G.: ECR Kriterium zum Nachweis der Kühlbarkeit des Kerns bei KMV-Störfällen, Behördenseminar "Störfallanalysen", GRS, Garching, 19.-20. November 2007
- /SON 08/ H.-G. Sonnenburg, Brennstabverhalten bei Reaktivitätsstörfällen (RIA), GRS-Fachforum, Köln, 7.-8. April 2008.
- /SON 07a/ H. G. Sonnenburg, et al: Methodenentwicklung zur Analyse des Brennstabverhaltens bei erhöhtem Abbrand. GRS-A-3368, Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Garching, 2007
- /SON 10/ H. G. Sonnenburg, et al: Weiterentwicklung der Methoden zur Analyse des Brennstabverhaltens bei Reaktivitäts- und Kühlmittelverlust-Störfällen - Anschlussvorhaben. GRS-A-3519, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Garching, 2010
- /TSU 03/ Tsukuda, Y., Kosaka, Y., Kido, T., Doi, S., Sendo, T., Gonzalez, P.,
 Malsonso, J.: Performance of Advanced Fuel Materials for High Burnup. In
 Proc. TOPFUEL 2003, Würzburg, Germany, March 16 to 19, 2003
- /VOS 02/ Vos, B.; Leenaers, A.; Verwerft, M.: On the analysis of Pu distribution in MIMAS MOX by EPMA. SCK•CEN, RMO-LHMA, BLG-851, Laboratory for High and Medium Activity (LHMA) Reactor Materials Research department (RMR), Boeretang, 200, B-2400 Mol, Belgium, 2002
- /YEG 05/ L. Yegorowa et al.: Experimental Study of Embrittlement of Zr-1%Nb VVER Cladding under LOCA-Relevant Conditions. U. S. Nuclear Regulatory Commission, NUREG/IA-0211, March 2005

Abbildungsverzeichnis

Abb. 2-1	Modellierung der ¼-Brennelement-Geometrie für HELIOS
Abb. 2-2	Mit KENOREST und HELIOS berechnete Multiplikationsfaktoren in Abhängigkeit vom Abbrand für DWR-Uran-Brennelemente mit 4% und 5% Anreicherung4
Abb. 2-3	Mit HELIOS berechnete Reaktivitätskoeffizienten der Brennstofftemperatur (oben), der Moderatortemperatur (Mitte) und der Borkonzentration (unten) für frische und abgebrannte DWR-Uran-Brennelemente mit 4% und 5% Anreicherung
Abb. 2-4	Mit HELIOS berechnete Nukliddichten für Aktiniden (oben) und Spaltprodukte (unten) für abgebrannte DWR-Uran-Brennelemente mit 4% und 5% Anreicherung
Abb. 3-1	Korrosion von M5 im Vergleich mit DUPLEX-Varianten9
Abb. 3-2	Korrosion von M5-Hüllrohren im 20. Zyklus der Anlage KKP 29
Abb. 4-1	Phasen-Diagramm UO2-PuO213
Abb. 4-2	Thermische Dehnung von UO2 und PuO213
Abb. 4-3	Wärmekapazität von UO2 und PuO2 aus /LAN 05/14
Abb. 4-4	Gemessene Pu-Verteilung in MIMAS MOX in einer Fläche mit 1 mm Kantenlänge /VOS 02/15
Abb. 5-1	Brennstab-Innendruck (PF1), Hüllrohr-Temperatur (TCC1, TCC3), Hüllrohr-Längung (Extensiometer EC2) und Strahlungsfreisetzung (MON40) im Halden-Versuch IFA650.9
Abb. 5-2	Unterer Teil des Brennstabs nach einem Rundum-Abriss19
Abb. 5-3	Brennstoff-Körnung am Ende des Versuchs IFA650.920

Abb. 5-4 Messungen zur Dicke der Hochabbrand-Struktur /TSU 03/.....21

- Abb. 6-5 Kernzahldichte von ²³⁵U für die Stäbe 1 bis 35 zur Mitte des fünften Zyklus berechnet mit Steuerkreuz (Fall a), mit Stahlblech (Fall c) und Wasser (Fall d) im fünften Zyklus.

- Abb. 6-9 Verhältnis der relativen Spaltdichten für die Stäbe 1 bis 35 zur Mitte des fünften Zyklus nach der Bewegung des Steuerkreuzes für die Fälle a und d bzw. c und d.

Abb. 6-10	Verhältnis der relativen Spaltdichten für die Stäbe 1 bis 35 zur Mitte des
	fünften Zyklus von Fall b nach der Bewegung des Steuerkreuzes und Fall c
	vor der Bewegung des Steuerkreuzes

Verteiler

BMU

Engelhardt, Claudia	1 x
RSI3	3 x
BfS	
Prof. Dr. Berg, Heinz Peter	2 x
AG-F 3	2 x

GRS (pdf-Datei)		
Geschäftsführung	(lim, stj)	2 x
Bereichsleiter	(erv, paa, prg, rot, stc, ver, zip)	7 x
TECDO		1 x
AL	(vek, paa)	2 x
Autoren	(beh, son, zww)	3 x

Bibliothek Köln (Druckversion)

Gesamtauflage:

24 Exemplare

1 x

Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) mbH

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

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

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

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

www.grs.de