

**Langzeitverhalten
zwischenlagerter
Brennelemente bei
deutlich längerer
Zwischenlagerung**

Langzeitverhalten zwischenlagerter Brennelemente bei deutlich längerer Zwischenlagerung

Maik Stuke
Jens Arndt
Felix Boldt
Volker Hannstein
Peter Kaufholz
Marc Péridis
Jürgen Sievers
Fabian Sommer

Juni 2020

Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrunde liegende Forschungsvorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Wirtschaft und Energie (BMWi) unter dem Kennzeichen RS1552 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.

Deskriptoren

Brennstab, Hydrid-Reorientierung, Langzeitverhalten, Temperaturfeld, Zwischenlagerung

Kurzfassung

Durch das Standortauswahlgesetz ist ein neues Auswahlverfahren zur Bestimmung eines Endlagerstandortes eingeführt worden, mit der Konsequenz einer wesentlich späteren Inbetriebnahme eines Endlagers und der Notwendigkeit einer Verlängerung der Zwischenlagerzeiten über die bisher genehmigten Zeiten hinaus. Dabei deuten Prognosen deutlich längere Zeiträume von mehreren zusätzlichen Dekaden an. Die in Deutschland für die Zwischenlagerung nach § 6 AtG erteilten Aufbewahrungsgenehmigungen für bestrahlte Kernbrennstoffe laufen jedoch ab Ende 2034 aus, so dass eine Verlängerung der Zwischenlagerdauer für die Transport- und Lagerbehälter mit voriger Befassung des deutschen Bundestags um teilweise mehrere Jahrzehnte erforderlich werden wird. Für die Verlängerung der Aufbewahrungsgenehmigungen, also der Lagerdauern, sind rechtzeitig die notwendigen Voraussetzungen zu schaffen, die aus belastbaren, technisch-wissenschaftlichen Erkenntnissen zum Nachweis der Einhaltung der sicherheitstechnischen Anforderungen bestehen. Wesentlich für den Aufbau der nötigen technisch-wissenschaftlichen Erkenntnisse ist das Wissen über Eigenschaften und Zustand sowohl der Behälter als auch ihrer nicht direkt zugänglichen Inventare, insbesondere der Brennelemente unter den Bedingungen verlängerter Lagerzeiten.

In diesem Forschungsvorhaben wurde ein Werkzeug zur Unterstützung bei Fragen zur Integrität und Handhabbarkeit von Brennelementen nach der trockenen Zwischenlagerung entwickelt. Der Anwendungszweck dieses Werkzeuges ist die Identifikation und Analyse von interessierenden Zeitskalen, Brennstäben und -elementen sowie der Behälterbeladungen. Zur umfänglichen Berücksichtigung der möglichst gesamten Phänomenologie des Hüllrohrverhaltens während der Lagerphase, bestehend aus der Nasslagerung und Zwangskühlung nach der Bestrahlung, dem anschließenden Trocknungsprozess sowie dem langsamen Abkühlen während der Lagerphase in trockener Inert-Umgebung, soll das zu schaffende Werkzeug umfassend und konsistent die relevanten Größen wie Abbrände, Hüllrohrmaterialien, Behälterbeladungen, Zeitdauern, Temperaturen Drücke und Spannungen berücksichtigen.

Für UO_2 - und MOX-Brennstoffe werden für die in Deutschland zulässigen Abbrände die relevanten Abbrand-, Inventar- und Zerfallsberechnungen zur Bestimmung der Nachzerfallsleistung, Alphaaktivitäten, Spaltgasmengen und ähnlichem durchgeführt. Geeignete Behältermodelle zur Simulation und Analyse der aus diesen Daten sich ergebenden Temperaturfeldern beladener Behälter werden entwickelt. Modelle zur Bestimmung der Hyd-

ridlöslichkeit in Zirkonium unter Berücksichtigung der lokalen thermischen und mechanischen Randbedingungen sowie der Gestalt von Zirkoniumhydrid-Ausscheidungen und deren Reorientierungsraten und Modellen zur Bestimmung des temperaturabhängigen Hüllrohrinnendrucks und der Tangentialspannung des Hüllrohrs in der Langzeitphase, entwickelt und in TESPА-ROD implementiert. Die Sprödbruchübergangstemperatur bei Hydridreorientierung wird untersucht und mit Ergebnissen geeigneter experimenteller Daten zum Riss- und Bruchverhalten der Brennstabhüllrohre verglichen.

Abstract

The German *Site Selection Act* introduced a new selection procedure for determining a repository site, with the consequence that a repository will be operational much later and the need to extend the storage duration beyond the previously approved timescales. This might lead to significantly longer periods of several additional decades. However, the storage licenses for irradiated nuclear fuels issued in Germany for storage in accordance with Section 6 of the German Atomic Law (AtG) will expire at the end of 2034. The storage period for the transport and storage casks will have to be extended by several decades. For the extension of the storage periods, the necessary prerequisites must be created in advance, which consist of reliable, technical-scientific knowledge to prove compliance with the safety requirements. Knowledge of the properties and condition of both the casks and the not directly accessible inventories, in particular of the fuel assemblies under the conditions of extended storage times, is essential for building up the necessary technical and scientific knowledge.

In this research project, a software-based tool was developed to support questions concerning the integrity and manageability of fuel assemblies after dry storage. The purpose of this tool is the identification and analysis of interesting time scales, fuel rods and assemblies, as well as the cask loading schemes. In order to take into account the entire phenomenology of the cladding behavior during the storage phase (consisting of wet storage and forced cooling after irradiation, the subsequent drying process and slow cooling during the storage phase in a dry, inert environment) the tool to be created should comprehensively and consistently take into account the relevant parameters such as burnups, cladding materials, container loads, time periods, temperatures, pressures and stresses.

For UO₂ and MOX fuels, the relevant burn-up, inventory and decay calculations to determine the decay heat, alpha activities, fission gas quantities and the like are carried out for the characteristic burnups permitted in Germany. Suitable casks models for the simulation and analysis of the temperature fields of loaded casks resulting from this data are developed. Models for determining the hydrogen solubility in zirconium taking into account the local thermal and mechanical boundary conditions as well as the shape of zirconium hydride precipitates and their reorientation rates and models for determining the temperature-dependent cladding internal pressure and the tangential stress of the cladding tube in the long-term phase are developed and implemented in TESP-ROD.

The ductile-to-brittle transition temperature (DBTT) during hydride reorientation is investigated and compared with suitable experimental data on the crack and fracture behavior of the fuel rod cladding.

Inhaltsverzeichnis

	Kurzfassung	I
	Abstract.....	III
1	Einleitung.....	1
1.1	Stand von Wissenschaft und Technik zu Beginn des Vorhabens	4
1.1.1	Rechenverfahren.....	10
1.1.2	Arbeiten anderer Arbeitsgruppen	11
1.1.3	Zuvor durchgeführte Arbeiten des Antragstellers.....	11
1.2	Strukturierung des Arbeitsprogramms	14
2	Temperaturfeldberechnungen	17
2.1	Bestimmung der Nachzerfallswärme.....	17
2.1.1	Berechnungen mit KENOREST	20
2.1.2	Berechnungen mit TRITON.....	23
2.1.3	Weitere Berechnungen	24
2.2	Beteiligung am <i>Decay Heat Blind Test</i> von SKB.....	25
2.2.1	Beschreibung des Benchmarks und der Ergebnisse	26
2.3	Temperaturfeldberechnungen beladener Behälter.....	29
2.3.1	Das Rechenprogramm COBRA-SFS	32
2.3.2	Modell eines generischen Transport- und Lagerbehälters	32
2.3.3	Vergleichsstudie des COBRA-SFS-Modells.....	38
2.3.4	Semi-analytisches vereinfachtes Modell	40
2.3.5	Transiente Temperaturverteilungen: Exemplarische Ergebnisse eines Trocknungsprozesses	42
3	Brennstabverhalten	45
3.1	Zirkoniumhydride und Wasserstoff-Festkörperlöslichkeit.....	45
3.2	Gestalt der Hydridausscheidungen bzw. der Hydridorientierung	50
3.3	Hüllrohrkriechen bei radial orientierten Hydriden	50

3.4	Molekulardynamische Simulation der Wasserstoff-Zirkonium-Kristalle.....	58
3.4.1	Embedded Atom Method	59
3.4.2	Ausgewählte Ergebnisse.....	64
3.4.3	Weitere Untersuchungen: Steuerungsparameterstudie	69
3.4.4	Zusammenfassung und Ausblick	73
3.5	Sprödbruchübergangstemperatur	74
3.5.1	Testschema für Ringdrucktests zur Bestimmung der DBTT	75
3.5.2	Ringdrucktests an M5	79
3.5.3	Ringdrucktests an Zircaloy-4.....	80
3.5.4	Ringdrucktests an Zirlo	81
3.5.5	Zusammenfassung der Ergebnisse der Ringdrucktests.....	82
3.6	Weiterentwicklung von TESP-ROD	85
3.6.1	Axiale Diffusion von Wasserstoff im Hüllrohr	85
3.6.2	Zusammenfassung der weiteren Arbeiten.....	90
4	Datenbanken und Schnittstellen.....	93
4.1	Datenbank der Nachzerfallswärmeleistung.....	93
4.2	BR3ZL	94
4.3	TSSd/p-Datenbank und Analysewerkzeug	96
5	Internationaler Rechenbenchmark zum Brennstabverhalten	99
6	Zusammenfassung und Ausblick	101
	Literaturverzeichnis	105
	Abbildungsverzeichnis	111
	Tabellenverzeichnis	117
A	Publikationsliste.....	119
A.1	Journal-Artikel und Konferenzbeiträge	119
A.2	Konferenz- und Seminarbeiträge	120
A.3	Weitere	121

B	Verwendete Python Scripte zur Erstellung der Potentiale für LAMMPS.....	123
B.1	Anhang 1: Python script zum Erstellen des tabellierten Potentials	123
B.2	Anhang 2: Eingabe Datei zur Simulation von reinem Zirkonium	126
B.3	Anhang 3: Eingabe Datei zur Simulation von Zirkonium mit 50 wppm Wasserstoff	127
C	Benchmark for thermo-mechanical fuel rod behaviour during dry storage Specifications	129
C.1	Introduction	129
C.2	General aim.....	129
C.3	Codes	130
C.4	Fuel rod state	133
C.5	Shutdown, wet storage and drying procedure.....	137
C.6	Dry storage period.....	140
C.7	Parameters to be calculated	142
C.8	File format of parameters	143
C.9	Schedule	143

1 Einleitung

Genehmigungen der Transportbehälterlager für bestrahlte Brennelemente wurden in Deutschland in der Regel für 40 Jahre ab der ersten Einlagerung eines Behälters erteilt. So erlischt die Genehmigung des Transportbehälterlagers in Gorleben zum Ende des Jahres 2034, die der Standortzwischenlager individuell später, so z. B. am Kernkraftwerk Emsland 2042. Die bestehenden Sicherheitsnachweise sind für 40 Jahre geführt. Aus dem Standortauswahlgesetz /SAG 17/ ergibt sich, dass eine Standortentscheidung im Jahr 2031 getroffen wird. Im Anschluss erfolgt dann die Errichtung der erforderlichen Infrastruktur und die Inbetriebnahme. Es erscheint möglich, dass die Inbetriebnahme erst nach dem Auslaufen der ersten Genehmigungen der Transportbehälterlager erfolgt und sich somit der Zeitraum der Zwischenlagerung über die 40 Jahre hinaus verlängert. Nicht nur national, auch weltweit gibt es keine praktische Erfahrung mit der Zwischenlagerung und dem Transport für Zeiträume die wesentlich über die in Deutschland vorliegenden hinausgehen.

Die das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit (BMU) beratende Entsorgungskommission (ESK) hat in ihrer Leitlinie für die trockene Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente und Wärme entwickelnder radioaktiver Abfälle in Behältern vom 10.06.2013 /ESK 13/ festgestellt: „Ist dieser Zeitraum (40 Jahre) absehbar nicht ausreichend, sind geeignete zusätzliche Nachweise (z. B. zum Langzeitverhalten von Werkstoffen und Komponenten der Behälter und Inventare unter den lagerspezifischen Beanspruchungsbedingungen) zu erbringen.“

Konkret bedeutet dies eine Erweiterung der technischen Basis in Bezug auf

- Physikalische Randbedingungen
- Materialverhalten
- Alterungseffekte
- Nicht direkt zugängliche Komponenten, wie z. B. Brennstabhüllrohre

Die Brennstabhüllrohre werden während der trockenen Zwischenlagerung stetig thermisch und mechanisch durch die auftretende Strahlung, die Nachzerfallsleistung und den vorherrschenden Hüllrohrinnendruck belastet. Letzterer setzt sich aus der Druckbeaufschlagung v. a. bei Druckwasserreaktor-Brennelementen, sowie den während des

Einsatzes im Reaktor freigesetzten Spaltgasen und aus Helium aus Alpha-Zerfällen zusammen.

Während der Zwischenlagerung erfahren die Brennstabhüllrohre eine Materialversprödung durch Strahlung und Einlagerung von Wasserstoff, eine Verformung durch Kriechprozesse und eine Herabsetzung der Duktilität des Hüllrohrs auf Grund der kontinuierlichen Temperaturabnahmen. Die möglichen Konsequenzen daraus können der Verlust der Dichtheit und der mechanischen Integrität der Hüllrohre sein. Dies wird vor allem bei einem Transport der Behälter und den dabei entstehenden Kräften als auch bei der Konditionierung bezüglich eines Endlagers eine wichtige Rolle spielen.

Im Einklang mit den 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. In dem Vorhaben wurde das Wissen um die thermischen und mechanischen Belastungszustände der Brennstabhüllrohre über einen verlängerten Zwischenlagerzeitraum von mehr als 40 Jahren erweitert.

Die Vorgehensweise für die Bearbeitung der Problemstellung umfasst prinzipiell folgende Schritte:

- I. Abbrand-, Inventar- und Zerfallsberechnungen zur Bestimmung der Nachzerfallsleistungen, Alpha-Aktivitäten, Spaltgasmengen u.ä. für UO₂- und MOX-Brennstoffe inklusive der in Deutschland zulässigen hohen Abbrände;
- II. Entwicklung und Implementierung von geeigneten Behältermodellen zur Analyse der sich aus diesen Daten ergebenden Temperaturen von Brennelementen und Brennstäben sowie des resultierenden Temperaturfelds innerhalb des jeweiligen Behälters;
- III. Entwicklung und Implementierung von Modellen zur Bestimmung des Brennstabverhaltens. Dies umfasst z. B. die Wasserstofflöslichkeit in Zirkonium unter Berücksichtigung der lokalen thermischen und mechanischen Randbedingungen, sowie der Gestalt von Zirkoniumhydrid-Ausscheidungen und deren Reorientierungsraten; bis hin zur Entwicklung und Implementierung geeigneter Modelle zur Bestimmung der Spröbruchübergangstemperatur (*Ductile-to-Brittle Transition Temperature*, DBTT) bei Hydridreorientierung sowie Vergleich der Ergebnisse mit geeigneten experimentellen Daten zum Riss- und Bruchverhalten der Brennstabhüllrohre.

Die für die Lösung der Einzelschritte erforderlichen Anwendungen und Rechenprogramme zur Abbrand- und Zerfallsberechnung, zu Wärmeentwicklung und -ausbreitung, sowie zum Hüllrohrverhalten können prinzipiell zu einer Rechenkette gekoppelt werden.

Dieser Ansatz ist in dem vorliegenden Bericht beschrieben. In den folgenden zwei Unterkapiteln wird der Stand von Wissenschaft und Technik zu Beginn des Vorhabens sowie die Strukturierung des Arbeitsprogramms skizziert. Im zweiten Kapitel werden die durchgeführten Entwicklungen und Berechnungen zur Bestimmung der relevanten Temperaturen beschrieben. Hierzu wurden typische Abbrand-Codes zur Bestimmung der Brennstoffzusammensetzung angewendet. Im Rahmen der Arbeiten wurde an einem internationalen Blind-Benchmark teilgenommen, um eine bessere Vergleichbarkeit und Einschätzung der Ergebnisse vor allem im Langzeitbereich zu erhalten. Die Temperaturfelder beladener Behälter wurden mit dem Berechnungsprogramm COBRA-SFS modelliert und untersucht. Hierzu wurde das Modell eines generischen Behälters erstellt und die Ergebnisse mit Werten aus einem semi-analytischen Modell verglichen. Ebenfalls sind im zweiten Kapitel erste Ergebnisse zur Berechnung eines exemplarischen Temperaturverlaufs während des Trocknungsprozesses dargestellt.

Im dritten Kapitel sind die Entwicklungsarbeiten zum Brennstabverhalten zusammengefasst. Ein Schwerpunkt der Arbeiten umfasste die Betrachtung des Wasserstoffverhaltens in Zirkoniumlegierungen. Es wird die Wasserstoff-Festkörperlöslichkeit, die Ausscheidung der Hydride sowie die Orientierung der entstehenden Zirkonium-Hydride ausführlich beschrieben. Zur Erlangung eines detaillierteren Verständnisses von einzelnen Prozessen wurden u. a. die Aussagekraft von molekulardynamischen Simulationen der Wasserstoff-Zirkonium-Kristalle untersucht. Die Erweiterungen und Neuentwicklungen in dem Programm TESP-ROD werden ebenfalls im Kapitel 3 beschrieben.

Das Kapitel 4 beschreibt die in diesem Vorhaben erstellten Datenbanken zur Nachzerfallsleistung und der experimentellen TSSd/TSSp-Werte sowie das eigens angepasste Analysewerkzeug zur dreidimensionalen grafischen Darstellung der Temperaturfelder beladener Behälter, *BR3ZL*.

Im Rahmen der Arbeiten zu diesem Projekt wurde basierend auf der Anwendung der hier erstellten Rechenkette ein internationaler Rechenbenchmark definiert. Die Beschreibung des Benchmarks befindet sich im Kapitel 5 und die Benchmark Definition im Anhang C.

In Anhang A befindet sich ein Verzeichnis der in diesem Vorhaben erarbeiteten Veröffentlichungen und im Anhang B die erstellten und verwendeten Python-Skripte, die für die molekulardynamischen Simulationen mit dem Programm LAMMPS verwendet wurden. Im Anhang C befindet sich die Spezifikation des im Rahmen dieses Projektes erstellten internationalen *Benchmark for thermo-mechanical fuel rod behaviour during dry storage Specifications*.

1.1 Stand von Wissenschaft und Technik zu Beginn des Vorhabens

Die Betrachtung der relevanten Materialbelastungen und -belastbarkeiten während der Zwischenlagerung erfordert die Berücksichtigung von Parametern aus der gesamten Historie des Brennelements. In der Regel hängt die Ausprägung und somit Relevanz der zu untersuchenden Effekte vom Zusammenspiel mehrerer Parameter ab, deren Anfangs- und Randbedingungen z. T. schon durch die Bestrahlungshistorie während des Leistungsbetriebs festgesetzt werden, z. B. durch Hochabbrand. Eine grobe Einteilung der Historie eines Brennelements lässt sich folgendermaßen festlegen:

1. die Bestrahlungshistorie im Reaktorkern,
2. die zwangsgekühlte Nasslagerung der Brennelemente im Abklingbecken,
3. das Beladen und Trocknen der Transport- und Lagerbehälter,
4. die (längerfristige) trockene Lagerung im Behälterlager.

Im Folgenden werden die einzelnen Eckpunkte näher beschrieben. Dabei wird der Fokus auf die für die längerfristige Zwischenlagerung relevanten Effekte und Parameter gelegt.

Ad 1: Bestrahlungshistorie

UO₂-Brennelemente aus Druckwasserreaktoren sind zum Zeitpunkt der Berichtserstellung in Deutschland als Standard-Brennelemente bis zu einem mittleren Brennelement-Abbrand von 55 GWd/tSM und als Sonder-Brennelemente bis zu einem mittleren Abbrand von 65 GWd/tSM für die trockene Zwischenlagerung genehmigt. MOX-Brennelemente sind ebenfalls als Sonder-Brennelemente klassifiziert und bis zu einem mittleren Brennelement-Abbrand von 65 GWd/tSM genehmigt. Diese Daten und Parameter beeinflussen die späteren stabweisen Kenngrößen wie Zerfallsleistung, Spaltgas-

mengen, Langzeit-Heliumaufbau durch Alphazerfälle und damit direkt wie indirekt sicherheitsrelevante Kenngrößen der Hüllrohre wie deren Temperaturen, Umfangsspannungen u. a. Die Klassifizierung ist für die spätere Behälterbeladung maßgebend, welche als Vollbeladung mit Standard-Brennelementen oder als Mischbeladung mit Standard- und Sonder-Brennelementen erfolgen kann. Die unterschiedlichen Bestrahlungshistorien führen zusammen mit den unterschiedlichen Eigenschaften der Brennstoffe UO_2 und MOX zu variierenden, je Behälter individuellen Inventaren und Nachzerfallsleistungen sowie deren unterschiedlichen zeitlichen Entwicklungen. Daraus resultiert für jede Behälterbeladung ein individueller zeitlicher Ablauf der Temperaturverteilung für im Prinzip jeden einzelnen Brennstab (vgl. auch *Ad 4*).

Die für Abbrand, Inventare und Nachzerfallsleistung relevanten Effekte sind weitgehend gut bekannt und beschrieben, und in den gegenwärtig verfügbaren aktuellen Rechenprogrammen zur Abbrand- und Inventarberechnung nach dem gegenwärtigen Stand von Wissenschaft und Technik umgesetzt.

Weiterhin können Vorschädigungen aus dem Reaktorbetrieb eine Rolle spielen, die im Rahmen dieses Vorhabens nicht berücksichtigt werden.

Ad 2: Nasslagerung der Brennelemente im Abklingbecken

Bestrahlte Brennelemente verbleiben nach ihrem Reaktoreinsatz für mehrere Jahre im Nasslager unter Zwangskühlung. Die Umgebungsbedingungen der Brennelemente unterscheiden sich dabei deutlich von denen des Reaktorbetriebs. Die durch den radioaktiven Zerfall entstehende Nachzerfallsleistung wird über das Kühlmittel im Lagerbecken abgeführt, wobei die Temperatur des Kühlmittels im Nasslager im Normalbetrieb unterhalb einer zulässigen Temperatur von typischerweise 45 °C gehalten wird. Dem hohen Gasdruck im Inneren des Hüllrohrs steht auf der Außenseite, anders als im laufenden Reaktorbetrieb, nur ein geringer geodätischer Druck der Wassersäule im Nasslager zugänglich des Umgebungsluftdrucks gegenüber. Diese Druckdifferenz erzeugt im Hüllrohr eine hohe Zugspannung in Umfangsrichtung, die sog. Tangentialspannung.

Während der Phase der Nasslagerung erfährt der Brennstoff im Brennstab weitere Zustandsänderungen. Durch die Alphazerfälle in der Brennstoffmatrix schwillt das Pellet im Brennstab an, was bei einem Spaltschluss zu einem Festkörperdruck am Hüllrohr führen kann. Ein Festkörperdruck kann, gegenüber dem Spaltgasdruck, deutliche höhere Tangentialspannungen im Hüllrohr erzeugen.

Die Mindestdauer der Nasslagerung ist je nach Brennelement unterschiedlich und hängt neben konzeptionellen Fragen von der Leistungshistorie, dem Abbrand und dem verwendeten Brennstoff ab. Typisch sind in Deutschland fünf bis zehn Jahre.

Ad 3: Beladung und Trocknung der Behälter

Das Beladen der Behälter erfolgt nass im Abklingbecken unter Wasser. Dabei wird auch die abschirmende Wirkung des Kühlmittels ausgenutzt. Die Auswahl und Anordnung der einzuladenden Brennelemente im Behälter wird u. a. entsprechend den zulässigen Maximaltemperaturen in dessen Inneren, in der Struktur und an der Außenseite festgelegt. Dabei sind für die Sonder-Brennelemente nur bestimmte Schachtpositionen im Behälter zugelassen. Innerhalb der Vorgaben kann die Beladung variabel erfolgen. Anschließend wird der Primärdeckel aufgebracht und der Behälter entwässert und getrocknet. Die Nachzerfallsleistung und die geringe Wärmeabfuhr im Vakuum sorgen für ein rasches Aufheizen der Brennelemente. In Deutschland ist keine zulässige Maximaltemperatur explizit vorgegeben, jedoch dürfen maximale Tangentialdehnungen von 1 % und Tangentialspannungen von 120 MPa nicht überschritten werden. Dies kann beispielsweise für ein Brennelement mit 55 GWd/tSM und einer Abklingzeit von ca. fünf Jahren zu einer Temperatur von ca. 360 °C an der Hüllrohroberfläche führen /IAE 15/. Zur Kühlung und Feuchtigkeitsabfuhr wird der Behälterinnenraum zyklisch abwechselnd mit Helium gespült und vakuumgetrocknet. Abb. 1.1 zeigt einen exemplarischen Temperaturverlauf während eines Trocknungsprozesses.

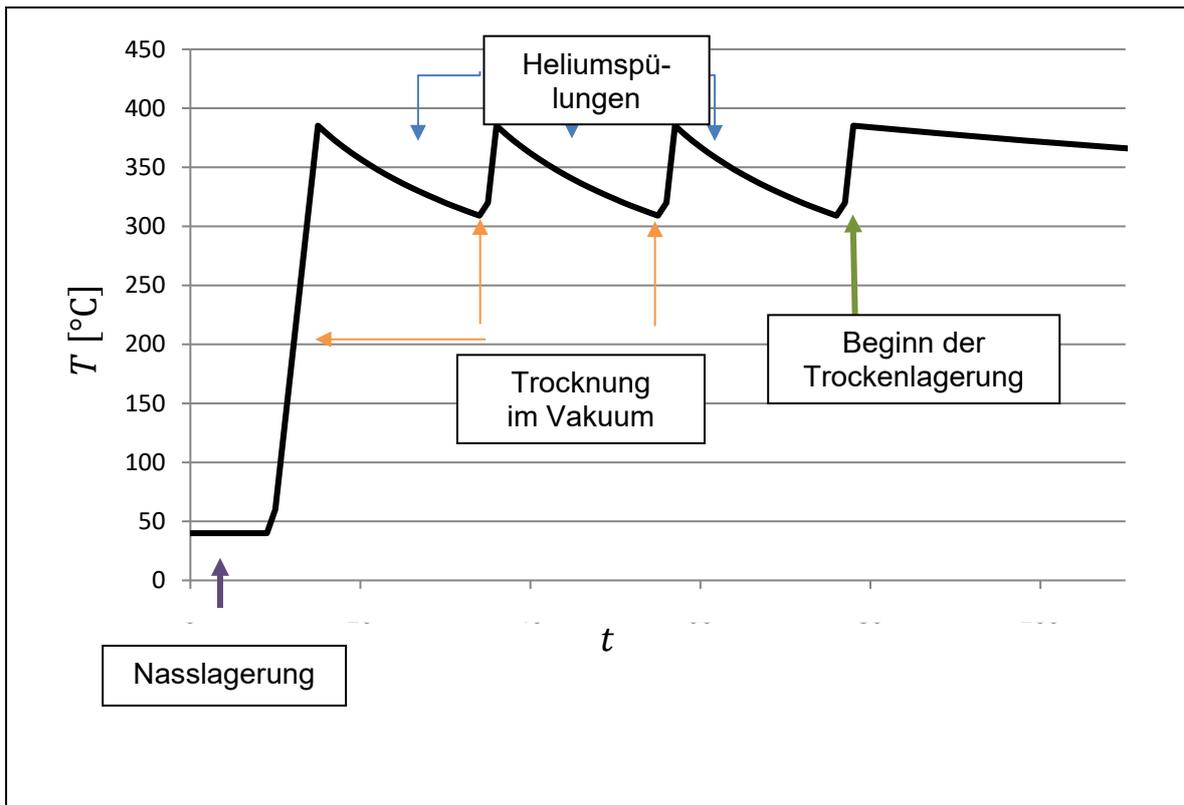


Abb. 1.1 Schematische Darstellung der Temperaturentwicklung während eines exemplarischen Trocknungsprozesses in drei Zyklen

Die Temperaturerhöhung der Brennstäbe bewirkt thermische Ausdehnungen des Brennstoffs, der Hüllrohre und Gase im Inneren der Brennstäbe, die zu einer dauerhaften Verformung des Hüllrohrs durch thermisches Kriechen auch unterhalb der Fließgrenze führen können. Das Kriechen wandelt bei Festkörperdruck die bestehende elastische Dehnung in plastische Dehnung um und baut so Spannungen im Hüllrohr ab. Da Kriechen ein temperatur- und spannungsabhängiger Prozess ist, wird dieser Effekt entscheidend von der Wärmeabfuhr der Nachzerfallsleistung beeinflusst. Effekte, die dies direkt beeinflussen, wie z. B. konkrete Beladungsschemata, müssen bei der Untersuchung berücksichtigt werden.

Des Weiteren wirken die hohen Temperaturen während der Trocknung auf den während des Leistungsbetriebs eingelagerten Wasserstoff im Hüllrohr: Bei Wasserstoffkonzentrationen oberhalb der Löslichkeitsgrenze fällt dieser in Form von Zirkoniumhydriden aus. Die Festkörper-Löslichkeit von Wasserstoff im Kristallgitter der Zirkoniumlegierung erhöht sich mit steigender Temperatur, so dass weitere Hydride während der Trocknungsphase in diesen Lösungszustand übergehen und werkstoffabhängige maximale Löslichkeiten erreicht werden können (z. B. für Zr-4, Zirlo, M5).

Ad 4: Lagerphase, Abkühlung, Hydridreorientierung

Während der Lagerung wird die in ihrem jeweiligen Inneren entstehende Zerfallswärme der Behälter, die dort in mehreren Reihen aufgestellt sind, durch Naturkonvektion abgeführt. Die Abkühlrate des Behälterinventars verringert sich im Laufe der Lagerzeit und wird zusätzlich durch die tages- und jahreszeitlichen Schwankungen der Umgebungstemperatur beeinflusst. Im Brennstoff kommt es zu weiterem Schwellen sowie Hüllrohrkriechen, wobei das Pellet eine Maximalausdehnung erreicht.

Bezüglich der zeitlichen Entwicklung des Drucks in den Brennstäben gibt es zwei konkurrierende Effekte: Mit sinkender Nachzerfallsleistung nehmen die Brennstoff- und Hüllrohrtemperaturen ab. Dies bewirkt thermodynamisch einen Abfall des Gasdrucks innerhalb der Brennstäbe. Andererseits bewirken Alphazerfälle und Spontanspaltungen im Brennstoff die Bildung von Helium und geringen Mengen an zusätzlichen Spaltgasen, und bedingen damit ein Pellet-Schwellen. Zu einem Druckerhöhung im Hüllrohr kann es kommen, wenn die Rückhaltung des Heliums und der Spaltgase in der Brennstoffmatrix endet und diese freigesetzt werden. Bei MOX-Brennstoffen ist das Schwellen stärker ausgeprägt als bei UO_2 -Brennstoffen, und die Freisetzung von Gasen deutlich höher.

Welcher Effekt dominiert, hängt von den jeweils vorliegenden Randbedingungen sowie z. T. von der individuellen Vorgeschichte der Brennstoffe ab. Dies beinhaltet auch die Position des betrachteten Stabs im Behälter und die Temperaturen der benachbarten Brennstäbe bzw. Brennelemente sowie die konkrete Anordnung in der Behälterstruktur.

Parallel dazu kann es aufgrund der beschriebenen Temperaturabsenkung zu erneutem Ausfällen der Zirkoniumhydride entlang des Spannungsgradienten kommen. Letzterer verläuft bei entsprechend hohen Spannungen in radialer Richtung, so dass man von einer Reorientierung der ehemals umlaufend orientierten Hydriden sprechen kann. Dieses Phänomen ist qualitativ gut bekannt und insbesondere für Kurzzeiteffekte v. a. im Reaktorbetrieb gut beschrieben. Für längere Lager- und Abklingzeiten ist die heute verfügbare quantitative Datenbasis noch gering ausgeprägt, doch es werden national und international (u. a. USA, Japan, Südkorea etc.) umfangreiche Forschungsarbeiten in diese Richtung geführt.

Beispielhaft zur Hydridreorientierung sind in Abb. 1.2 Ausschnitte von Querschnitten eines Hüllrohres mit Hydriden in vorwiegend umlaufender Richtung ((a), (b) und (b')) sowie radialer Ausrichtung (c) /AOM 08/ für einen Abbrand von etwa 50 GWd/tSM dargestellt.

Untersuchungen zeigen eine Zunahme der durchschnittlichen Hydridlänge bei abnehmenden Abkühlraten (Abb. 1.3); betrachtet wird die Gesamtlänge aller Hydride pro Fläche. Experimentelle Ergebnisse für sehr niedrige Abkühlraten, wie sie während der Lagerung auftreten, existieren noch nicht.

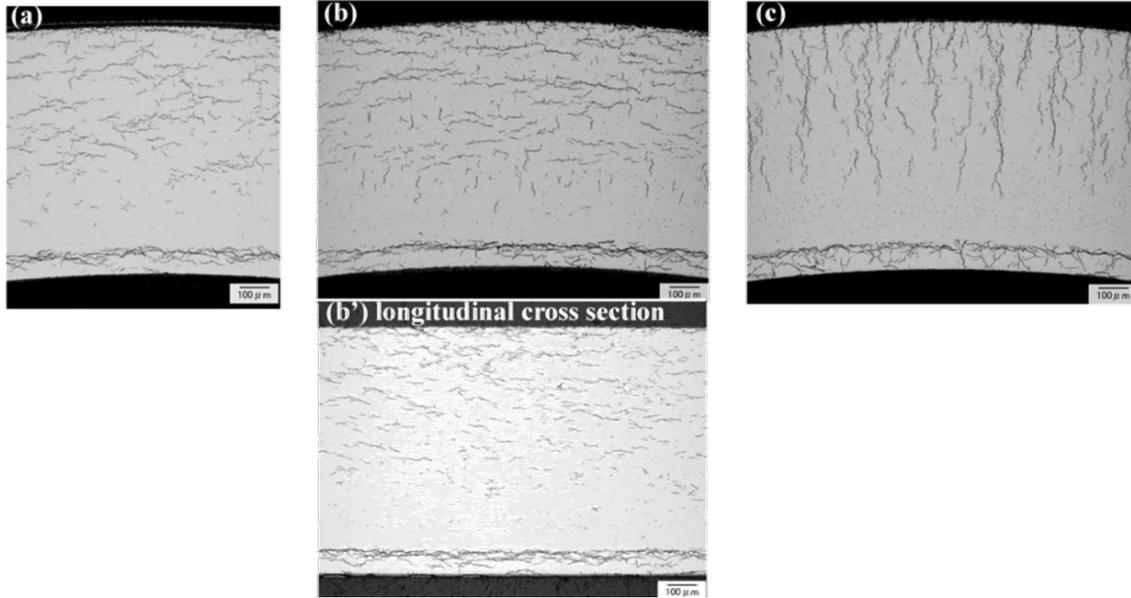


Abb. 1.2 Beispielhafte Hydridanordnungen im Hüllrohr /AOM 08/

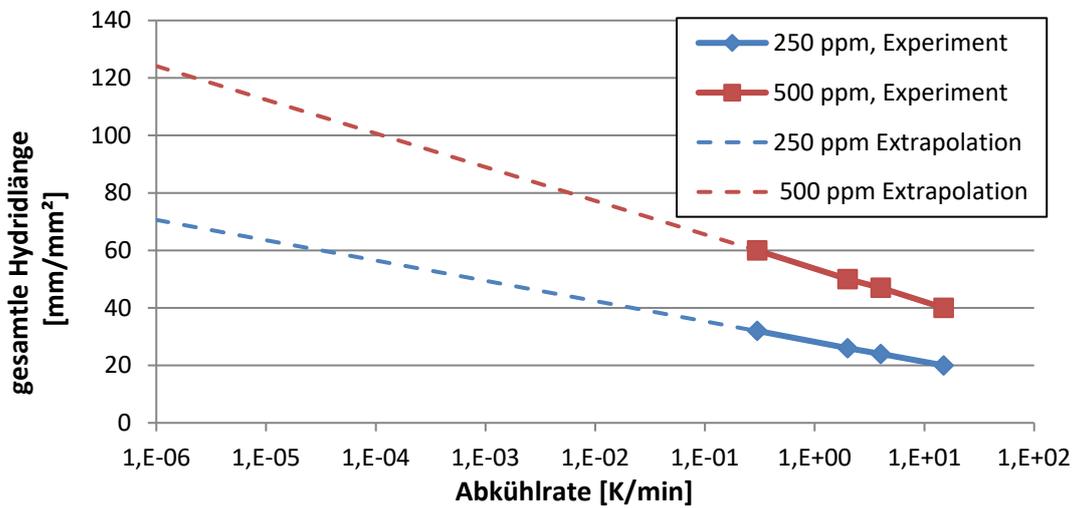


Abb. 1.3 Abhängigkeit der Hydridlänge in Zr-Nb-Hüllrohren von der Abkühlrate nach /CHA 15/ und extrapolierte Hydridlänge für kleine Abkühlraten in logarithmischer Darstellung

1.1.1 Rechenverfahren

Nuklidinventare und Zerfallsleistungen

Zur Berechnung der Zerfallsleistung einzelner Brennstäbe eines Brennelements werden vom Abbrand abhängige Nuklidinventare unter Berücksichtigung axialer Leistungsverteilungen berechnet. Die Kopplung von ein- und zweidimensionalen Inventar- und Abbrand-Programmen wie KENOREST und MOTIVE der GRS oder TRITON aus dem SCALE-Paket mit experimentellen und theoretischen axialen Abbrandprofilen zur Darstellung von quasi-dreidimensionalen Abbränden ist ein gängiges Verfahren. Dies wurde in der GRS zum Beispiel in /BEH 14/, /BOC 14/, hier für Kritikalitätsbetrachtungen, realisiert und beschrieben. Die axialen Profile der ggf. erforderlichen dreidimensionalen Abbrand- und Inventarberechnungen lassen sich entweder in öffentlich zugänglichen Datenbanken auf Basis experimenteller Werte finden, wie z. B. in /SCA 97/ und /NEA 00/, oder durch theoretische Modelle beschreiben wie z. B. in /NEU 03/ dargestellt.

Temperaturfeldberechnungen

Die Berechnung der Hüllrohrtemperaturen für abgebrannte Brennstoffe in Lagerbehältern in Abhängigkeit der einzelnen Nachzerfallsleistungen der Stäbe kann in zweidimensionalen Betrachtungen mit dem Code COCOSYS /COC 01/ der GRS sowie in dreidimensionalen Betrachtungen mit dem vom Pacific Northwest National Laboratory (PNNL) entwickelten Programmsystem COBRA-SFS /LOM 86/, /MIC 15/ realisiert werden. Letzteres Programm ist speziell ausgelegt für thermohydraulische Analysen im Themenkomplex bestrahlter Brennelemente in Lager- und Transportbehältern. Die zu lösenden physikalischen Gleichungen beruhen auf der Erhaltung von Masse, Impuls und Energie. Dabei wird eine Reihe von auftretenden Effekten berücksichtigt, wie z. B. Wärmeleitung fester und flüssiger Stoffe, natürliche Konvektion und Wärmestrahlung. Das Programm wurde bereits auch für höhere Zielabbrände validiert /LOM 86/.

Mechanisches Brennstabverhalten

Der Brennstab-Code TESP-ROD entspricht dem Stand von Wissenschaft und Technik bezüglich des Brennstabverhaltens im Reaktoreinsatz und insbesondere bei LOCA und RIA. Das derzeit bereitgestellte Rechenprogramm TESP-ROD ist als etabliertes Werkzeug bei den Technischen Überwachungsvereinen (TÜV NORD, TÜV SÜD etc.) für die

Analyse des Schadensumfangs anerkannt, und wird regelmäßig zur Beurteilung von Folgekernen genutzt.

1.1.2 Arbeiten anderer Arbeitsgruppen

Eine vollumfängliche Methodik zur Berechnung und Darstellung des Langzeitverhaltens von bestrahlten Brennelementen in Lagerbehältern (Inventare, Kritikalität, Nachzerfallsleistung, Temperaturfelder usw.) ist international Gegenstand aktueller Forschungs- und Entwicklungsarbeiten. Am weitesten fortgeschritten ist nach unseren bisherigen Erkenntnissen das am Oak Ridge National Laboratory (ORNL) entwickelte Codepaket *UNF-ST&DARDS* (Used Nuclear Fuel – Storage, Transportation & Disposal Analysis Resource and Data System) /SCA 15/. Dieses Programmsystem greift u. a. auf umfangreiche Datensammlungen aus dem realen Reaktorbetrieb in den USA zu und erlaubt die thermische und radiologische Analyse individueller Behälterbeladungen. Die Ankopplung an ein Programm zur Berechnung von Brennstabkenngrößen ist nach unserer Kenntnis zum Zeitpunkt der Antragstellung zu diesem Forschungsvorhaben noch nicht erfolgt. *UNF-ST&DARDS* ist speziell auf amerikanische Verhältnisse angepasst und zudem aktuell und auf absehbare Zeit nicht frei verfügbar. Auch hier ist – das frei verfügbare – COBRA-SFS zur Berechnung des Temperaturfeldes modular implementiert.

Der am *Institute for Transuranium Elements* (ITU) gepflegte Code TRANSURANUS /LAS 01/, /JRC 09/, der von zahlreichen Institutionen angewendet wird, ist ein Computerprogramm zur thermischen und mechanischen Analyse von Brennstäben in Kernreaktoren und vom Leistungsspektrum her in gewissem Maß mit dem GRS-Code TESPA-ROD vergleichbar.

1.1.3 Zuvor durchgeführte Arbeiten des Antragstellers

Im Rahmen mehrerer BMWi-geförderter Vorhaben, zuletzt RS1189, wurde von der GRS das zweidimensionale Abbrand- und Inventarberechnungssystem KENOREST entwickelt, verifiziert und qualifiziert /GRS 11/, welches auch stabweise Zerfallsleistungen berechnen kann. In den Vorhaben RS1513 /GRS 14b/ und RS1542 sowie gegenwärtig RS1582 wurde und wird dessen modernisierte Nachfolgeversion MOTIVE entwickelt, die zum Beginn des vorliegenden Vorhabens RS1552 im Betastatus mit noch eingeschränktem Funktionsumfang zur Verfügung stand.

Im Rahmen der Vorhaben 3607R02599, 3612R03300 und 3615E3310 befasst sich die GRS im Auftrag des BMUB seit 2007 mit sicherheitstechnischen Aspekten und Fragestellungen der langfristigen Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente und verglaster hochradioaktiver Abfälle. Der Schwerpunkt der Vorhaben lag auf der Verfolgung und Darstellung des Standes von Wissenschaft und Technik auf dem Gebiet der trockenen Zwischenlagerung national und international sowie auf den Gebieten Alterung von sicherheitstechnisch relevanten Komponenten und Alterungsmanagement /GRS 10/. Bezüglich der Fragestellungen zur Hüllrohrintegrität wurden in dem Vorhaben 3612R03300 neben der Ermittlung des Standes von Wissenschaft und Technik auch erste sondierende analytische Ansätze entwickelt und erprobt /GRS 15/. Die bisher durchgeführten Arbeiten, auf deren Erfahrungen im Rahmen des aktuellen Projektes zurückgegriffen und soweit möglich aufgebaut werden kann, umfassten:

- eindimensionale Abbrand- und Zerfallsrechnungen für UO₂- und MOX-Brennelemente mit Brennelement-gemittelten Inventaren mit dem GRS-Rechencode OREST-V08,
- manuelle Überführung der Ergebnisse in mittlere Nachzerfallsleistungen pro Brennstab,
- thermodynamische Modellerstellung eines generischen Transport- und Lagerbehälters und Brennelements, und zeitschrittweise stationäre Zustandsrechnungen mit dem Programm COCOSYS /COC 01/ sowie exemplarische Vergleichsrechnungen mit ANSYS CFX /ANS 01/,
- zeitschrittweise manuelle Temperatúrauswertungen für den Zentralstab des betrachteten Brennelementes,
- Überführung der Temperatur-Nachzerfallsleistung-Funktion in Temperatur-Zeit-Funktion,
- Entwicklung und Anwendung eines einfachen Rechenprogrammes zur Lösung der Zustandsgleichung realer Gase in dem zu spezifizierenden, jeweils interessierenden Brennstab.

Die bisher durchgeführten Arbeiten zur thermodynamischen Simulation wurden in einem technischen Bericht dokumentiert /GRS 14a/, auf internationalen Konferenzen präsentiert /VOE 13/, /HUM 14/ und in einem Fachjournal publiziert /ROW 15/.

Mit den v. a. in 3612R03300 bisher durchgeführten Arbeiten wurde die grundlegend notwendige Methodik zur Analyse der thermomechanischen Randbedingungen von Hüllrohren über lange Zeiträume bis einhundert Jahre nach der Entladung aus dem Reaktorkern grundsätzlich demonstriert (vgl. Abb. 1.4).

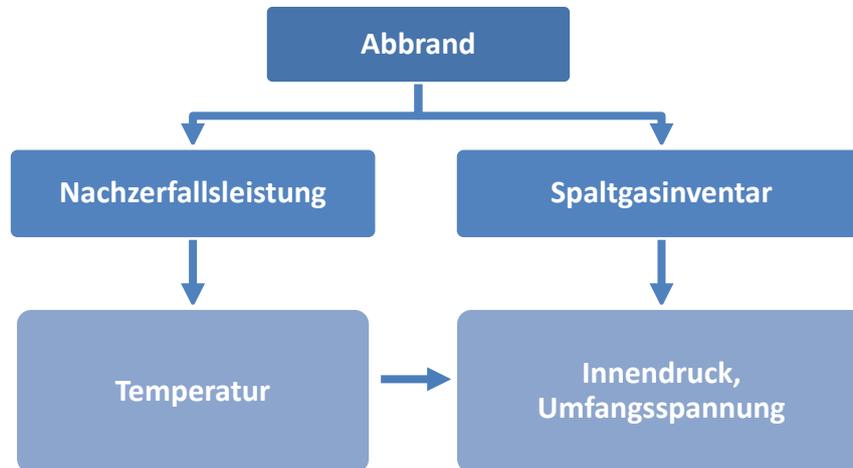


Abb. 1.4 Vereinfachte Darstellung der einfachen Rechenkette zur Ermittlung der thermomechanischen Randbedingungen

Aus /HUM 14/.

Dabei mussten ursprünglich beim Durchlaufen der Methodik zahlreiche, potentiell fehleranfällige manuelle Eingriffe innerhalb und zwischen den einzelnen Arbeitsschritten durchgeführt werden. Ferner wurden bisher nicht allen relevanten physikalisch-technischen Aspekten Rechnung getragen sowie eine Reihe von Näherungen getroffen, so dass durch diese vereinfachten Ansätze noch erhebliche Unsicherheiten hinsichtlich einer sicherheitstechnischen Bewertung bestehen. Mit der Weiterentwicklung, Optimierung und Automatisierung der Methodik können die Unsicherheiten abgebaut werden bei gleichzeitigem Zugewinn an Leistungsfähigkeit und Flexibilität des Verfahrens. Um belastbare Aussagen bezüglich der Hüllrohrintegrität treffen zu können, müssen umfassendere Modellannahmen berücksichtigt werden und wie in der Einleitung geschildert auch niedrigere Hüllrohrtemperaturen betrachtet werden. Die Erweiterung und der Einbau eines Brennstab-Codes zur Berücksichtigung und Berechnung relevanter Effekte ist unumgänglich.

Das Rechenprogramm TESP-ROD wurde von der GRS im Rahmen der Vorläufer-Vorhaben RS1117, RS1149, RS1175, RS1193 /SON 13/ und zuletzt RS1518 (derzeit

RS1557) zunehmend ausgebaut, so dass jetzt über das Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfall und Reaktivitätsstörfall hinaus auch das Brennstabverhalten bei Transienten des Lastfolgebetriebs als auch bei der Langzeit-Lagerung analysiert werden können.

Das TESPА-ROD-Kriechmodell wurde insbesondere im Zuge des Vorhabens RS1518 für das Langzeitkriechen überprüft und entsprechend erweitert. Somit stehen in TESPА-ROD für unterschiedliche Hüllrohr-Typen spezifische Kriechmodelle zur Verfügung. Eine Modellierung zur Wirkung der Brennstoff-Verlagerung, die im Zusammenhang mit hohen Hüllrohr-Dehnungen steht, ist im Rahmen des Vorhabens RS1518 in TESPА-ROD implementiert worden. Ebenso ist im Vorläufer-Vorhaben ein Modell für die Produktion von Helium durch Alphazerfälle sowie dessen Freisetzung aus der Brennstoff-Matrix in TESPА-ROD implementiert worden. Darüber hinaus sind erste Modellansätze für das Brennstoffschwellen unter Bedingungen der Langzeitlagerung im Programm implementiert worden.

1.2 Strukturierung des Arbeitsprogramms

Die realistischen Bandbreiten aller relevanten Eingangsparameter werden im Rahmen der Entwicklung – soweit möglich – belastbar quantifiziert bzw. auf Basis von Experteneinschätzungen anderweitig sinnvoll spezifiziert und den Erfordernissen entsprechend geeignet berücksichtigt. Die Einbindung des Unterauftragnehmers TÜV NORD EnSys GmbH & Ko. KG (i. F. TÜV NORD) dient hierbei der fachlichen Unterstützung und wird in den folgenden Arbeitspaketen ausgewiesen. Der Unterauftragnehmer TÜV NORD hat über seine Beteiligung an den deutschen Aufsichtsverfahren besondere Kenntnisse zur gegenwärtigen Praxis in Deutschland sowie darauf basierend fundierte Erkenntnisse bzgl. der tatsächlichen wissenschaftlich-technischen Herausforderungen einer Verlängerung der Zwischenlagerungszeiten. Diese Erfahrungen werden zur zielgerichteten Definition und Umsetzung der Aufgabenstellungen in dieses Vorhaben eingebracht.

AP1 - Temperaturfeldberechnung

In diesem Arbeitspaket wird das Temperaturfeld sowie die Nachzerfallsleistung mit bestrahlten Brennelementen verschieden beladener Behälter zeit- und orts aufgelöst erstellt. Das Arbeitsprogramm wird dazu in zwei Pakete eingeteilt:

- AP1.1 Bestimmung der Nachzerfallsleistung und
- AP1.2 Temperaturfeldberechnung im Behälterinneren

AP2 – Brennstabverhalten

Ziel dieses Arbeitspaketes ist, die für die Hüllrohrintegrität entscheidenden mechanischen Parameter (Dehnung, Spannung, Festigkeit) für Bedingungen der Langzeitlagerung zu beschreiben. Die entsprechenden Modelle zum mechanischen Brennstabverhalten in der Langzeitlagerung werden entwickelt und in das Brennstabprogramm TESP-ROD implementiert. Das Arbeitspaket wurde in Abschnitte eingeteilt:

- AP2.1: Zirkoniumhydride und Wasserstoff-Festkörperlöslichkeit,
- AP2.2: Gestalt der Hydridausscheidung, Hydridreorientierung
- AP2.3: Hüllrohrkriechen bei radial orientierten Hydriden
- AP2.4: Sprödbruch-Übergangstemperatur

AP3 – Erstellung von Datenbanken und Schnittstellen

Die in den Arbeitspaketen AP1 und AP2 gewonnenen Daten für die Nachzerfallsleistungen, Temperaturen und Hüllrohrbelastungen werden in einer hierarchischen Struktur in einer Datenbank hinterlegt. Die Strukturierung folgt dabei z. B. der Einteilung Brennstofftyp, Brennelement, Abbrand, Stab und ggf. Axialzone bzw. Beladungskonfiguration, Brennelement, Hüllrohrtemperatur, Brennstabinnendruck, Hüllrohrumfangsspannung. Aufgrund der zu erwartenden Datenmenge bietet sich die Ablage als verzweigende Strukturen in Formaten wie dem HDF5-Format /HDF 05/ an.

AP4 – Verfolgung aktueller Forschungsarbeiten

Die während des Vorhabens zu erwartenden neuen Erkenntnisse aus Forschung und Entwicklung zur Langzeitlagerung werden kontinuierlich zusammengetragen und auf

ihre Relevanz für das deutsche Konzept der trockenen Zwischenlagerung überprüft. Es ist davon auszugehen, dass im Laufe des Vorhabens neue Daten bereitgestellt werden, welche für die Entwicklungsarbeit relevant sein können oder Validierungsmöglichkeiten bieten. Diese Daten werden aufbereitet und in die Entwicklungsprozesse eingebracht.

Durch die Teilnahme an geeigneten Fachkonferenzen und Arbeitsgruppentreffen zu den Themengebieten der Arbeitspakete 1 und 2 wird der fachliche Austausch auf internationaler Ebene sichergestellt, so dass bei entsprechendem Feedback auch die Möglichkeit besteht, Anpassungen und Optimierungen vorzunehmen.

2 Temperaturfeldberechnungen

Die Arbeiten zur Berechnung der Brennstabhüllrohrtemperaturen können in zwei Kategorien aufgeteilt werden: Es muss die Nachzerfallswärmeleistung der Brennelemente bestimmt 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 dieser 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. Weiterhin wurde für Vergleichsrechnungen das Abbrandprogramm TRITON aus dem SCALE 6.2.2 Paket /REA 16/ verwendet. Die jeweiligen programmspezifischen Einstellungen sind im Folgenden dokumentiert.

Es wurde ein generisches 18 x 18-24 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 stabweise axial aufgelöst der lokale Abbrand berücksichtigt, und die lokale Aktivität [Bq] und das lokale Inventar von 56 wichtigen Nukliden ausgelesen. Die berücksichtigten Nuklide 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 Bestrahlungsende und zu zehn unterschiedlichen Abklingzeiten dokumentiert: 2, 5, 10, 20, 30, 40, 50, 75, 100 und 150 Jahre.

Basierend auf frei zugänglichen Daten wurde ein typisches 18 x 18-24 Brennelementmodell entwickelt. Das Brennelement (BE) mit 300 Brennstäben (BS) ist achtersymmetrisch aufgebaut. Das Modell besitzt insgesamt 24 Steuerstab-Führungsrohre, die an den jeweiligen Positionen Brennstäbe ersetzen. Abb. 2.1 zeigt das untere linke Viertel des symmetrisch aufgebauten Brennelements. Dabei sind die sechs im Modell mit Wasser gefüllten 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.

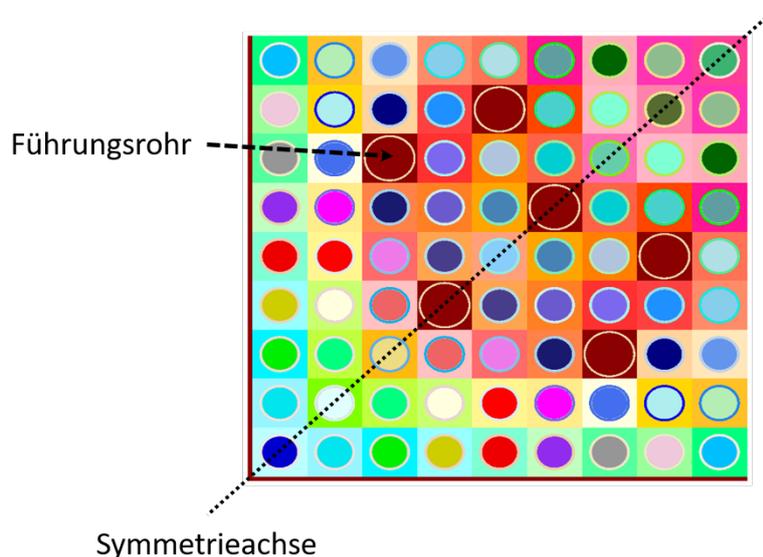


Abb. 2.1 Linkes unteres Viertel des für die Berechnung der Nachzerfallsleistung betrachteten 18 x 18-24 Brennelements

Tab. 2.1 In der Modellierung verwendete Größen des Brennelements

Größe	Wert
BS Geometrie	18 × 18
Anzahl der BS	300
Anzahl der Führungsrohre	24
Länge der aktiven Zone (kalt)	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 des betrachteten 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 identische Zyklen zu je 325 Tagen Brenndauer, gefolgt von jeweils 50 Tagen Stillstandszeit angenommen. Diese Abbrandhistorie führt zu einer Gesamtbestrahlungszeit von 1.625 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 wurde nicht ein Viertel, sondern das komplette Brennelement modelliert, siehe Abb. 2.2.

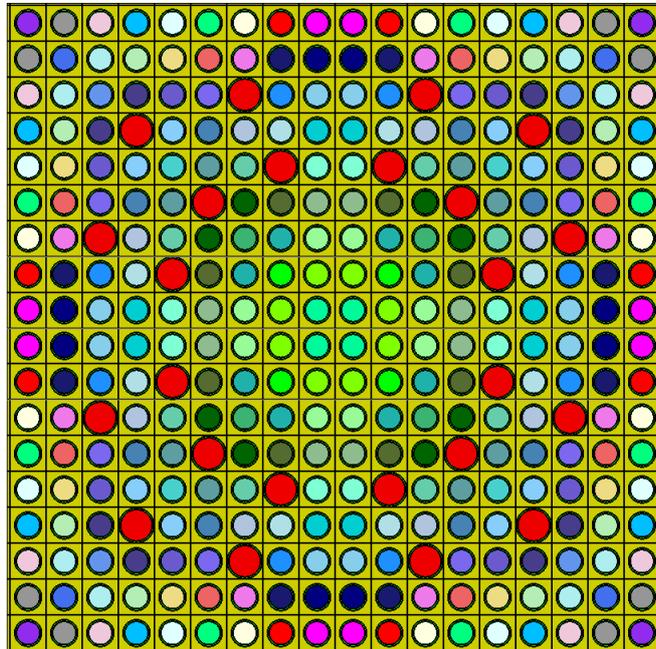


Abb. 2.2 Modellierung des 18 x 18-24 DWR-Brennelements in KENOREST

Dargestellt ist das gesamte Brennelement. Die unterschiedlichen Farben symbolisieren die individuellen Materialdefinitionen im Berechnungsprogramm. Die größeren roten Kreise symbolisieren die Führungsrohre.

Dazu wurden die Parameter gem. Tab. 2.3 gewählt. Für eine genauere Modellierung der Ergebnisse wurden die Abbrandzyklen zusätzlich unterteilt, um betrieblich bedingte Randbedingungen besser abbilden zu können. Das umfasste neben zwei anfänglichen Zeitschritten von 0,1 und 4,9 d um das Xenon-Gleichgewicht zu erreichen auch die Unterteilung des ersten Zyklus von insgesamt 325 d in zusätzlich 1 x 20 d und 3 x 100 d und der restlichen Zyklen in 1 x 25 d und 2 x 150 d.

Tab. 2.3 Einstellungen für die Berechnung der Zerfallsleistung mit 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

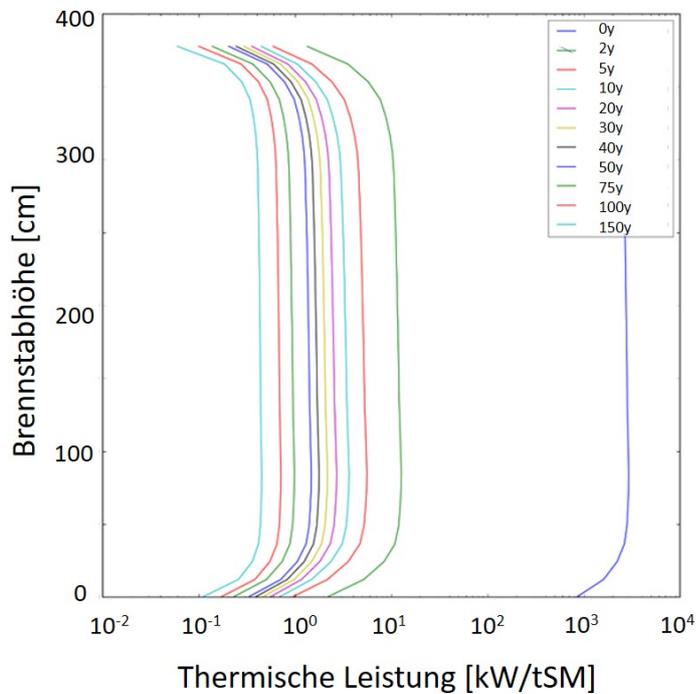


Abb. 2.3 Berechnete axiale thermische Leistung eines mittleren Brennstabs in kW/tSM für 0 bis 150 Jahre Abklingzeit

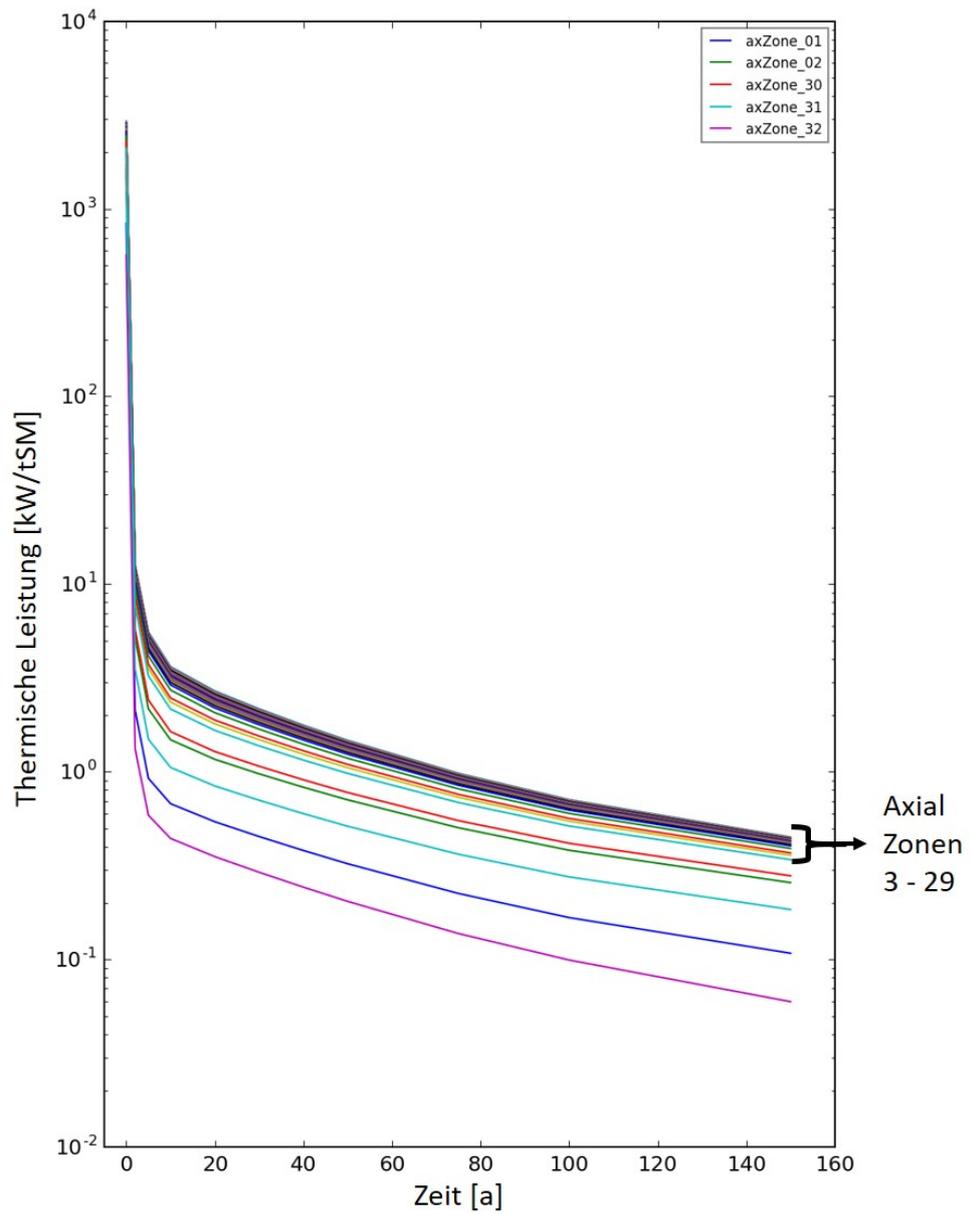


Abb. 2.4 Zerfallszeit in Jahren aufgetragen gegen die thermische Leistung in kW/tSM für jede der 32 axialen Zonen eines mittleren Brennstabs

2.1.2 Berechnungen mit TRITON

Für die Berechnung der Nachzerfallswärmeleistung mit TRITON aus dem SCALE 6.2.2 Paket wurden ebenfalls die Parameter gemäß Tab. 2.4 gewählt. In diesem Programm wurde ein Viertel des gesamten Brennelements mit entsprechenden symmetrischen Randbedingungen modelliert.

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

Tab. 2.4 Einstellungen für die Berechnung der Zerfallsleistung mit TRITON

Größe	Bedeutung	Wert
	Rechensequenz für die Abbrandrechnung	t-depl (2D TRITON)
	Wirkungsquerschnittsbibliothek	ENDF/B-VII.1, 252 Energiegruppen
Sn	S _n quadratische Ordnung für die Transportrechnung	4
Inners	Maximale Anzahl an inneren Iterationen pro Energiegruppe	1.000
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)	Legendre-Ordnung für die Momentberechnung der Streuquerschnitte für Brennstoff und Hüllrohre	1
pn (Moderator)	Legendre-Ordnung für die Momentberechnung der Streuquerschnitte für den Moderator H ₂ O	3

2.1.3 Weitere Berechnungen

In KENOREST und in TRITON basiert die Inventarberechnung neben der Flussberechnung auf unterschiedlichen Versionen des ORNL-Codes ORIGEN, wobei beide die Nachzerfallsleistung durch nuklidweise Summation ermitteln. Neben der Berechnung der Nachzerfallsleistung mittels dieser Summationscodes wurde zusätzlich 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)
- DIN 25463-2:2014 (für DWR-MOX-Brennstoffe)

Die Standards schätzen die Nachzerfallswärmeleistung 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 18 x 18-24 DWR-Brennelement ist in Abb. 2.5 gezeigt.

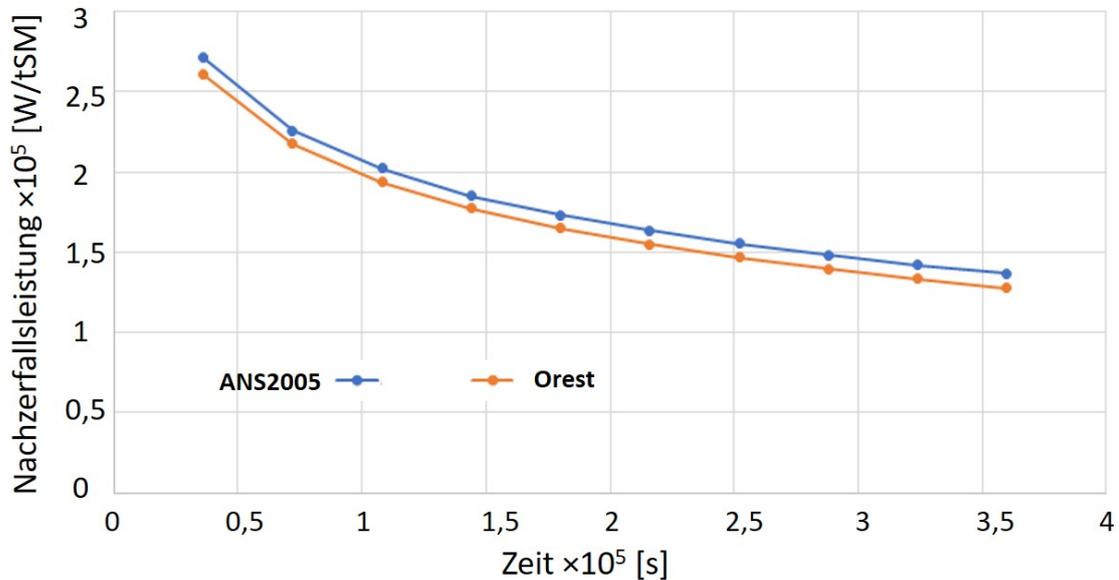


Abb. 2.5 Vergleich der Ergebnisse zwischen OREST und ANSI/ANS-5.1-2005

2.2 Beteiligung am *Decay Heat Blind Test* von SKB

Im Jahr 2017 wurde von SKB (Svensk Kärnbränslehantering), der Organisation, die mit der Lagerung und Entsorgung der bestrahlten Brennelemente in Schweden beauftragt ist, eine Initiative für einen sogenannten *Blind Test* zur Berechnung der Nachzerfallsleistung bestrahlter Brennelemente gestartet. Der Begriff *Blind Test* beschreibt hierbei einen Rechenbenchmark, bei dem die Teilnehmer ein reales Experiment, dessen Ergebnis ihnen nicht vorab bekannt ist, nachrechnen. Die Rechenergebnisse werden dann im Nachhinein mit den experimentellen Daten verglichen.

Konkret wurden im vorliegenden Fall im schwedischen zentralen Zwischenlager für bestrahlte Brennelemente CLAB fünf bestrahlte Brennelemente mit unterschiedlicher Lagerdauer am dort installierten Kalorimeter vermessen und deren integrale Wärmeleistung bestimmt. Einem internationalen Teilnehmerkreis von Experten europäischer und US-amerikanischer Forschungseinrichtungen wurden die für eine Berechnung der Nachzerfallswärme notwendigen Eingabegrößen mitgeteilt. Diese haben mit den ihnen zur Verfügung stehenden beziehungsweise von ihnen entwickelten Simulationswerkzeugen die zu erwartende Nachzerfallswärme berechnet und bei SKB eingereicht. Von SKB wurden die Ergebnisse ausgewertet und mit den Messdaten verglichen. Ziel des *Blind Tests*

war, eine möglichst realistische Einschätzung der heutzutage erreichbaren Genauigkeit bei der Nachzerfallswärme zu bekommen und gegebenenfalls einen möglichen Bedarf für weitere Verbesserungen in der Rechenmethodik zu identifizieren. Die GRS nahm an dem *Blind Test* mit den beiden hauseigenen Programmen MOTIVE /HAN 17/ und OREST /HES 05/ teil. Im Folgenden werden einige Details zum Benchmark und einige Ergebnisse präsentiert. Aufgrund einer Vertraulichkeitsvereinbarung können momentan nicht alle Daten und Ergebnisse zu diesen Aktivitäten gezeigt werden. Eine gemeinsame Veröffentlichung, in der die Randbedingungen und Ergebnisse des Benchmarks präsentiert und diskutiert werden, ist in Arbeit.

Die Initiative zum Benchmark wurde im Jahr 2017 gestartet. In der Folge fanden zwei Treffen zur Organisation des *Blind Tests* statt, bei denen unter anderem diskutiert und festgelegt wurde, welche Ergebnisgrößen von den Teilnehmern zu berechnen waren. Nachdem die Messungen Anfang 2019 abgeschlossen waren, wurde das Dokument mit den Benchmark-Aufgaben an die Teilnehmer versendet. Die Rechenergebnisse waren im Frühjahr 2019 abzugeben, so dass im Juli 2019 ein weiteres Treffen abgehalten wurde, auf dem die Ergebnisse präsentiert wurden. Seitdem ist eine Veröffentlichung zur Darstellung der Ergebnisse und den daraus zu ziehenden Schlüssen in Arbeit.

2.2.1 Beschreibung des Benchmarks und der Ergebnisse

Für die längerfristige Zwischenlagerung, aber auch für die Planung eines künftigen Endlagers ist neben einer Reihe anderer Parameter die Höhe der Wärmeentwicklung der Brennelemente von großem Interesse. Die Nachzerfallsleistung der Brennelemente bestimmt letztlich die Abstände, die die einzulagernden Brennelemente im Endlager haben müssen und damit die notwendige Größe des Endlagers. Zur stichprobenweisen Bestimmung der integralen Nachzerfallsleistung einzelner Brennelemente ist in CLAB ein Kalorimeter installiert. Mit diesem wurden bereits in der Vergangenheit umfangreiche Messungen an Brennelementen durchgeführt /SVE 06/.

Dieses Kalorimeter wurde auch für den hier vorgestellten Benchmark verwendet. Dabei wurden fünf Druckwasserreaktor-(DWR)-Brennelemente mit unterschiedlichen Anfangsanreicherungen, Abbränden und Lagerzeiten verwendet. Eines der Brennelemente enthielt Brennstäbe mit beigemischtem abbrennbaren Neutronengift in Form von Gadoliniumoxid Gd_2O_3 . Die Abklingzeiten umfassen einen Bereich von etwa 5 bis 25 Jahren. Die Brennelemente sind im Folgenden mit BT01 bis BT05 bezeichnet, wobei die Brennelemente in aufsteigender Abklingdauer sortiert sind.

Den Benchmark-Teilnehmern wurden zur Durchführung der Berechnungen die relevanten geometrischen Abmessungen, das Brennstablayout und die Materialzusammensetzungen der Brennelemente zur Verfügung gestellt. Weiterhin wurden Leistungs geschichtedaten in Form von Zykluslängen, Standzeiten und gemittelten Leistungen je Zyklus sowie die Borkonzentration im Kühlmittel zu Beginn und Ende jedes Zyklus bereitgestellt. Ursprünglich war geplant, in einer zweiten Phase detailliertere Leistungs geschichte-Daten zur Verfügung zu stellen. Da die zusätzlichen Daten allerdings nicht geeignet waren, eine höhere Genauigkeit der Simulation zu ermöglichen, wurde die zweite Phase des Benchmarks abgebrochen.

Die GRS hat am Benchmark mit den Programmen MOTIVE und OREST teilgenommen. MOTIVE ist ein Programm zur Abbrandberechnung, das aktuell im Rahmen eines BMWi-Vorhabens in der GRS entwickelt wird. Es koppelt ein externes Monte-Carlo-Neutronen-transportprogramm – aktuell sind KENO-VI aus dem SCALE-Paket /REA 17/ und OpenMC /ROM 15/ verwendbar – zur Flussberechnung an das in Zusammenarbeit mit dem PSI entwickelte Programm Ventina zur Nuklidinventarberechnung. MOTIVE ermöglicht eine detaillierte dreidimensionale Modellierung des Brennelements und lässt sich flexibel mit verschiedenen aktuellen Datenbibliotheken verwenden. Zum Benchmark wurde einerseits jeweils eine Rechnung unter Verwendung von KENO-VI und mit ENDF/B-VII.1-Daten und andererseits jeweils eine Rechnung mit OpenMC und ENDF/B-VIII-Daten eingereicht. Das Programm OREST ist eine frühere Eigenentwicklung der GRS und entstammt dem Vorgängerprogrammssystem zu MOTIVE, namentlich OREST/KENOREST. OREST verwendet ein eindimensionales effektives Stabzellenmodell zur Neutronenflussberechnung und ermöglicht deswegen sehr kurze Rechenzeiten bei entsprechend geringerer Genauigkeit hinsichtlich des Geometriemodells gegenüber MOTIVE. Die zugrundeliegende Datenbibliothek basiert auf den älteren JEF2.2-Daten für die Wirkungsquerschnitte und ENDF/B-VI für die Zerfallsdaten. Für das Brennelement mit Gadoliniumstäben wurde ein dreidimensionales Modell mit dem Programm KENOREST verwendet, da hier das OREST zugrundeliegende Geometriemodell zu ungenau ist.

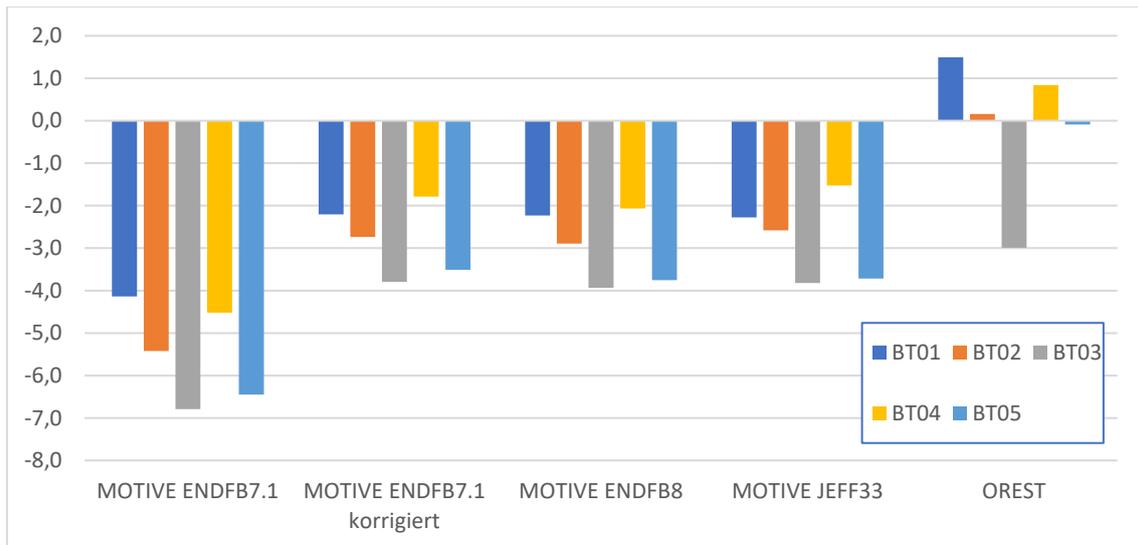


Abb. 2.6 Ergebnisse der Benchmarkrechnungen für OREST und MOTIVE mit verschiedenen Bibliotheken der nuklearen Daten

Angegeben sind relative Abweichungen zwischen Rechnung und Experiment in Prozent

Die Ergebnisse der eingereichten Rechnungen sind in Abb. 2.6 gezeigt. Für alle fünf zu betrachtenden Brennelemente ist jeweils die relative Abweichung zwischen den Ergebnissen von Rechnung (C) und Experiment (E) in der Form $C/E-1$ gezeigt. Es ist zu erkennen, dass bei den Rechnungen mit MOTIVE die experimentell ermittelten Ergebnisse mehr oder weniger stark unterschätzt werden. Die Abweichungen liegen dabei zwischen 2 und 4 Prozent für ENDF/B-VIII. Die mit der Bibliothek ENDF/B-VII.1 eingereichten Ergebnisse unterschätzen die experimentellen Ergebnisse noch stärker. Hier liegen die Abweichungen zwischen 4 und 7 Prozent. Bei der nachträglichen Analyse der Daten hat sich gezeigt, dass hierbei ein Fehler in der ENDF/B-VII.1 Originalbibliothek vorlag, der zu einer zu geringen Konzentration von ^{90}Sr geführt hat. Nach Korrektur dieses Fehlers entsprechen die Ergebnisse für die ENDF/B-VII.1 Daten den mit ENDF/B-VIII erzielten Daten. Die Graphik in Abb. 2.6 zeigt außerdem die Ergebnisse einer Rechnung mit JEFF-3.3-Daten, die jedoch nicht zum Benchmark eingereicht wurden. Die Ergebnisse liegen im Bereich der anderen Bibliotheken. Insgesamt zeigt sich, dass der Einfluss der unterschiedlichen Bibliotheken gering ist.

Die ebenfalls in Abb. 2.6 gezeigten OREST-Ergebnisse zeigen insgesamt geringere Abweichung zum Experiment. Es ist kein eindeutiger Trend bezüglich Unter- oder Überschätzung auszumachen. Dieses Ergebnis ist zunächst überraschend, da der OREST-Rechnung ein weniger genaues Modell und ältere nukleare Daten zugrunde liegen. Bei der Interpretation sind allerdings mehrere Dinge zu beachten. Zum einen waren die im

Benchmark zur Verfügung stehenden Leistungsgeschichtedaten eventuell nicht umfangreich genug, um eine genaue Berechnung der Nachzerfallsleistung zu ermöglichen. Weiterhin fehlt für die vorliegende Analyse der Vergleich mit den anderen Benchmarkteilnehmern zu einer weitergehenden Bewertung der Ergebnisse. Schließlich ist auch zu bedenken, dass die in OREST verwendete Bibliothek eine Optimierung bezüglich der Berechnung der Nachzerfallsleistung durchlaufen hat, während bei den in MOTIVE verwendeten Daten die Originalevaluationen ohne spezifische Anpassungen zugrunde liegen.

2.3 Temperaturfeldberechnungen beladener Behälter

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

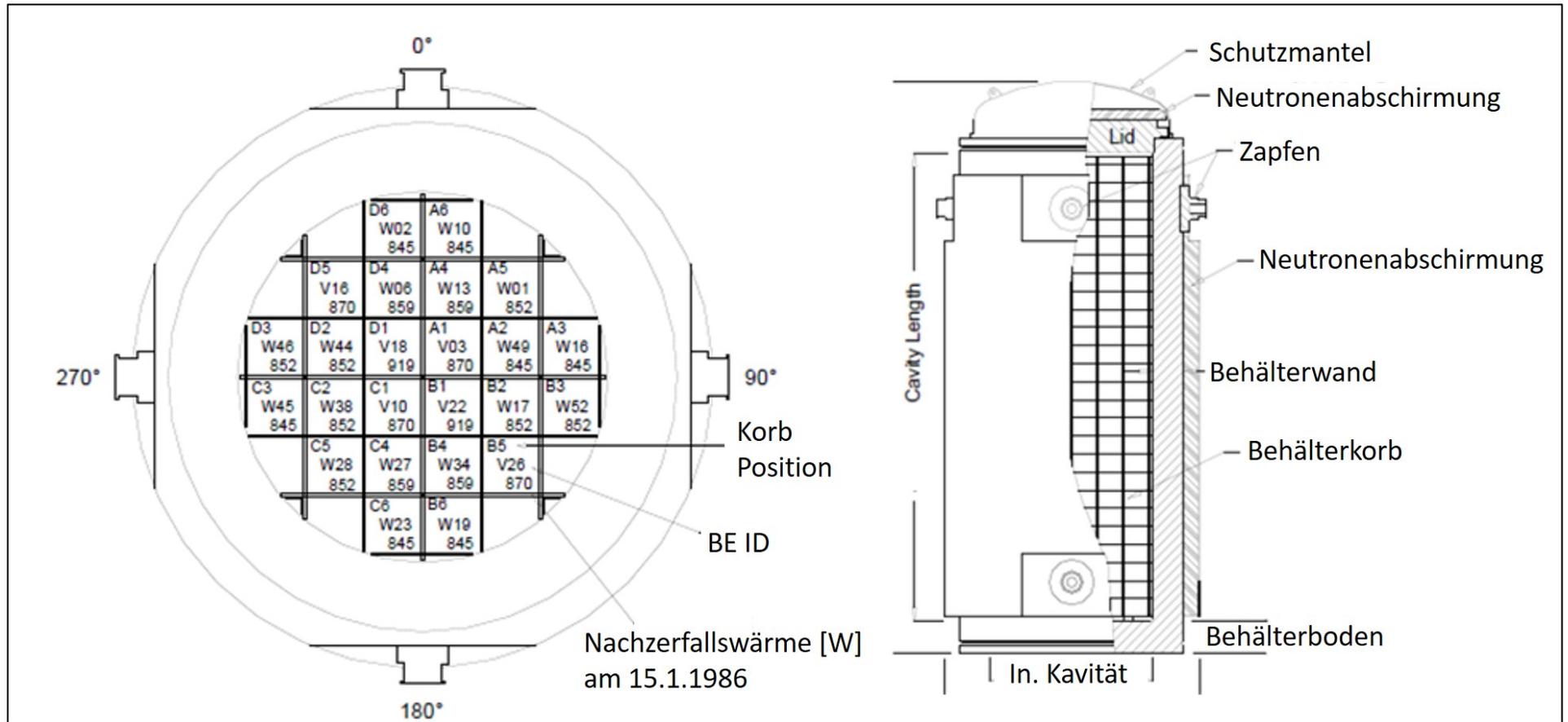


Abb. 2.7 Horizontales und vertikales Schnittbild des TN-24P-Behälters mit Beladungsschema, nach PNNL-1183

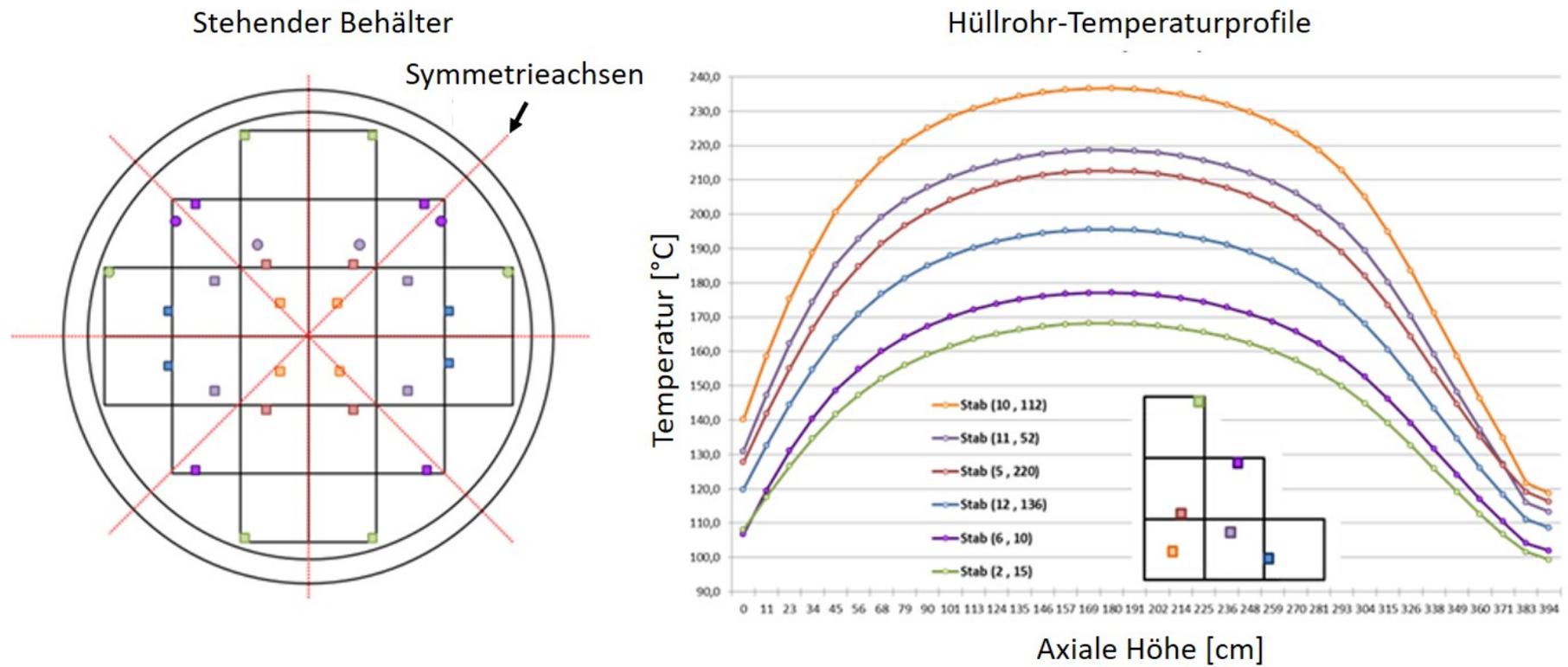


Abb. 2.8 Horizontale Symmetrieachsen des TN-24P-Behälters sowie die axiale Temperaturverteilung ausgewählter Stäbe bei homogener Beladung

2.3.1 Das Rechenprogramm 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 Codesystem für die thermo-hydraulische Analyse von mit bestrahlten Brennelementen beladenen Transport- und Lagerbehältern. Das Programm liefert Vorhersagen von Wärmefluss- und Temperaturverteilungen unter Berücksichtigung von natürlicher Konvektion und erzwungenen Wärmetransportbedingungen, Wärmestrahlung, sowohl für statische Gleichgewichts- als auch für transiente Bedingungen. Das Programm wird seit 1973 am Pacific North National Laboratory (PNNL) entwickelt, und ist gut dokumentiert und validiert /MIC 15/. Ein besonderer Vorteil ist die im Vergleich zu Berechnungen mit z. B. *Computational Fluid Dynamic* (CFD) Codes durchgeführten Berechnungen kurze Berechnungsdauer von nur wenigen Minuten. So lassen sich mit COBRA-SFS Parameter über einen geeigneten Bereich variieren und deren Einfluss auf die resultierende Temperatur numerisch untersuchen.

Die Validierung des Programms fand u. a. mit der Nachrechnung eines TN-24P Behälters statt, beladen mit 24 Brennelementen aus dem Kernkraftwerk Surry (Virginia, USA) /MIC 15/. Ausgehend von diesen Rechnungen wurden im vorliegenden Projekt weitere Analysen durchgeführt. Die Visualisierung des in diesem Projekt erstellten TN-24P Behältermodells ist in Abb. 2.7 dargestellt. Die Ergebnisse für eine homogene Beladung (alle Stäbe haben identische Leistung und identisches Leistungsprofil) sind in Abb. 2.8 dargestellt. Eine homogene Beladung bietet die Möglichkeit der Symmetrieüberprüfung, wie die eingezeichneten Achsen im linken Bild von Abb. 2.8 zeigen. Das rechte Bild zeigt die axiale Temperaturverteilung für die farblich gekennzeichneten Stäbe eines Viertels des Behälters.

2.3.2 Modell eines generischen Transport- und Lagerbehälters

Als ein weiteres Behältermodell in COBRA-SFS wurde ein generisches Modell entwickelt, das an den Typ GNS CASTOR® V/19 angelehnt ist. Letzterer ist der häufigste Behälter für DWR-Brennelemente in Deutschland. In ihm finden bis zu 19 Brennelemente mit einer maximalen Gesamtleistung von 39 kW Platz. Das entwickelte COBRA-SFS-Modell besteht aus 568 Nodes (siehe Abb. 2.9) und ist für die folgende Analyse mit 19 DWR-Brennelementen in der typischen 18 x 18 Geometrie mit 24 Steuerstäben und jeweils 36 Axialzonen konzipiert.

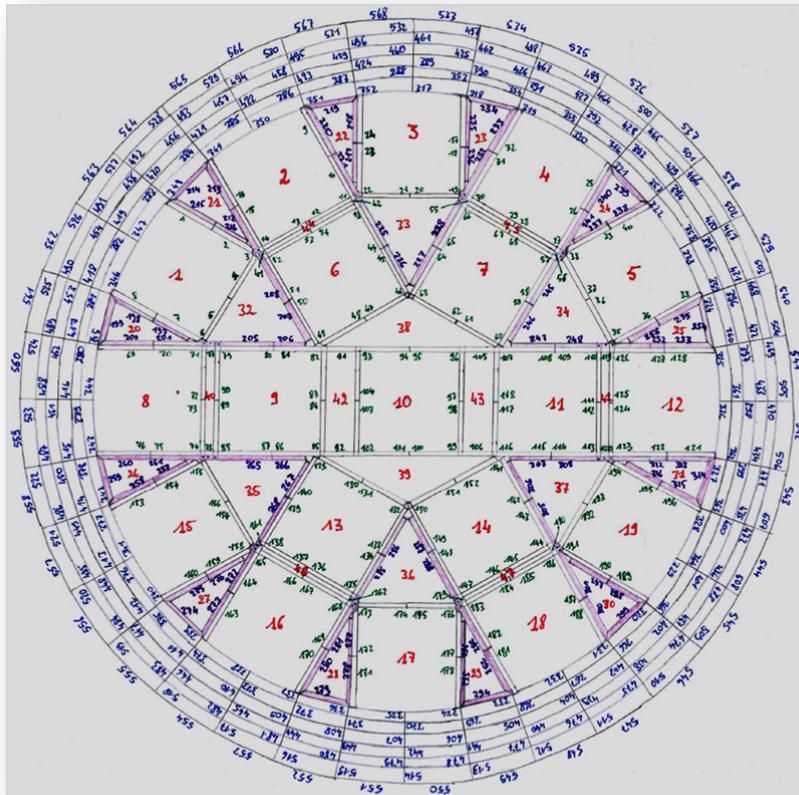


Abb. 2.9 Graphische Darstellung der horizontalen Nodes und deren Nummerierung des COBRA-SFS-Modells für den generischen CASTOR® V/19-Behälter

Wie aus der Abb. 2.9 ersichtlich, ist das erstellte Modell für COBRA-SFS hinreichend aufwendig und detailliert. Eine Überprüfung und Verifizierung der Richtigkeit des Modells bzw. seiner Eingabedatei ist unerlässlich. Trotzdem jedes Node einzeln definiert ist, ist das Behältermodell Viertel-symmetrisch in der horizontalen Ebene. Die korrekte Symmetrie des erstellten Modells wurde mittels einer homogenen Beladung und der daraus resultierenden homogenen Leistungsverteilung überprüft und verifiziert. Die Visualisierung der Ergebnisse erfolgte mit dem in diesem Projekt entwickelten Visualisierungsprogramm *BR3ZL* (sprich als: *BREZL*), 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 18 x 18-24 DWR-Brennelemente (6,8W pro Stab) ist die Visualisierung in Abb. 2.11. Ein weiteres Analyserwerkzeug wurde auf Basis der Codebibliothek *Matplotlib* /HUN 07/ in der Programmiersprache Python geschrieben. Der generelle Ablauf der Temperaturanalyse ist in Abb 2.10 dargestellt.

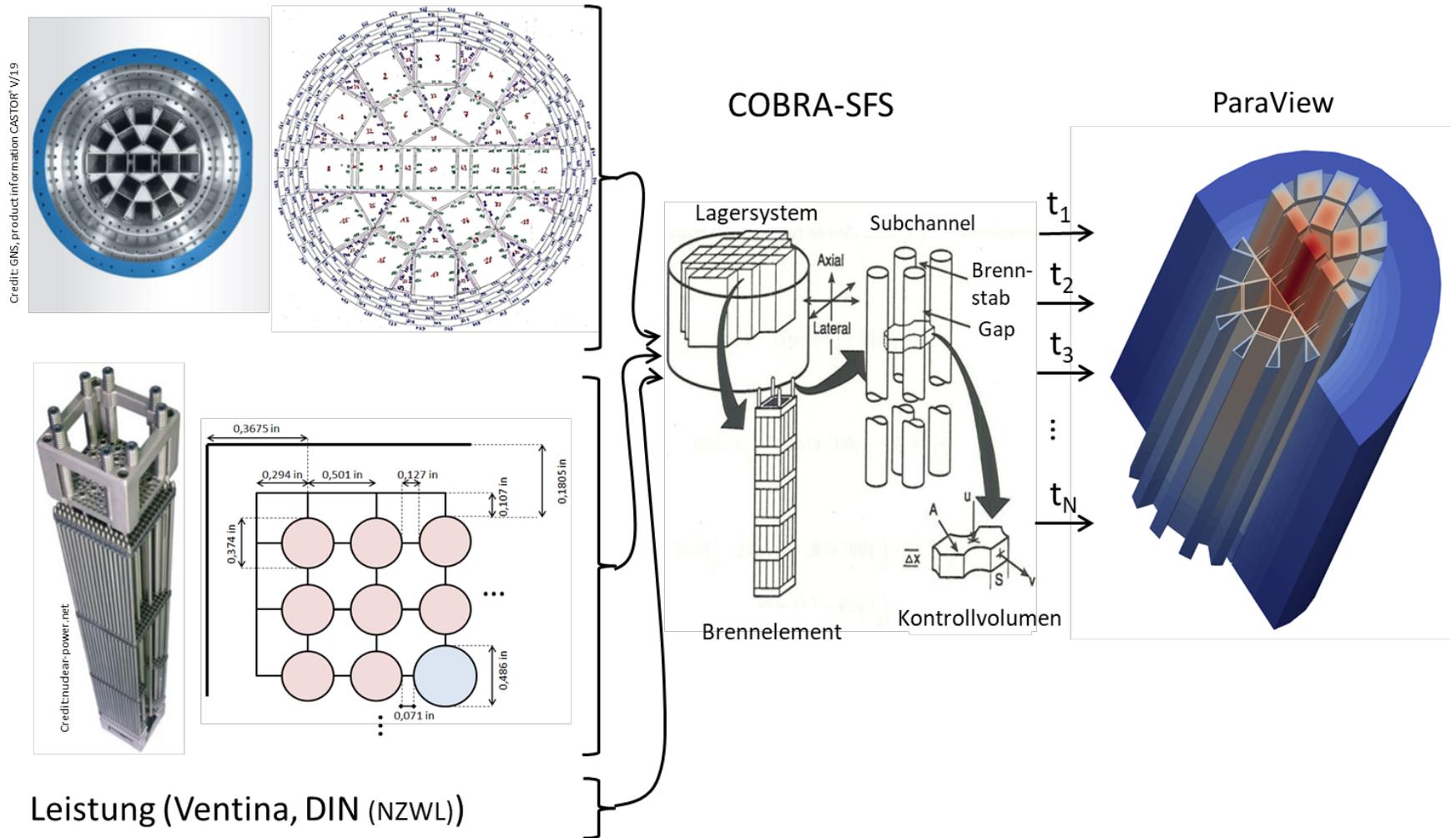


Abb. 2.10 Grafische Zusammenfassung des Ablaufs der Temperaturanalyse für das beladene, generische CASTOR® V/19-Modell

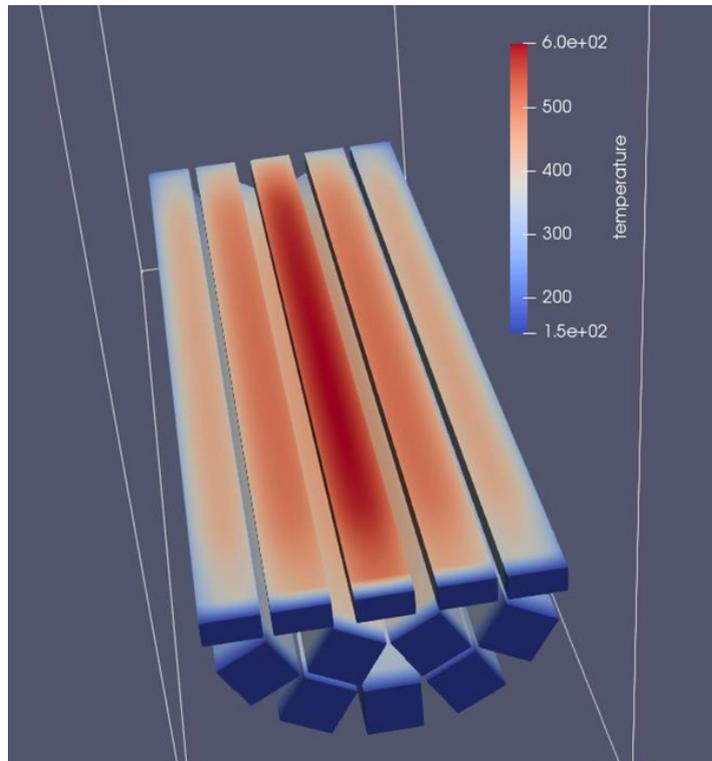


Abb. 2.11 Bildschirmausschnitt der mit BR3ZL erstellten dreidimensionalen Visualisierung der Temperaturverteilung der Brennelemente eines homogen beladenen Behälters

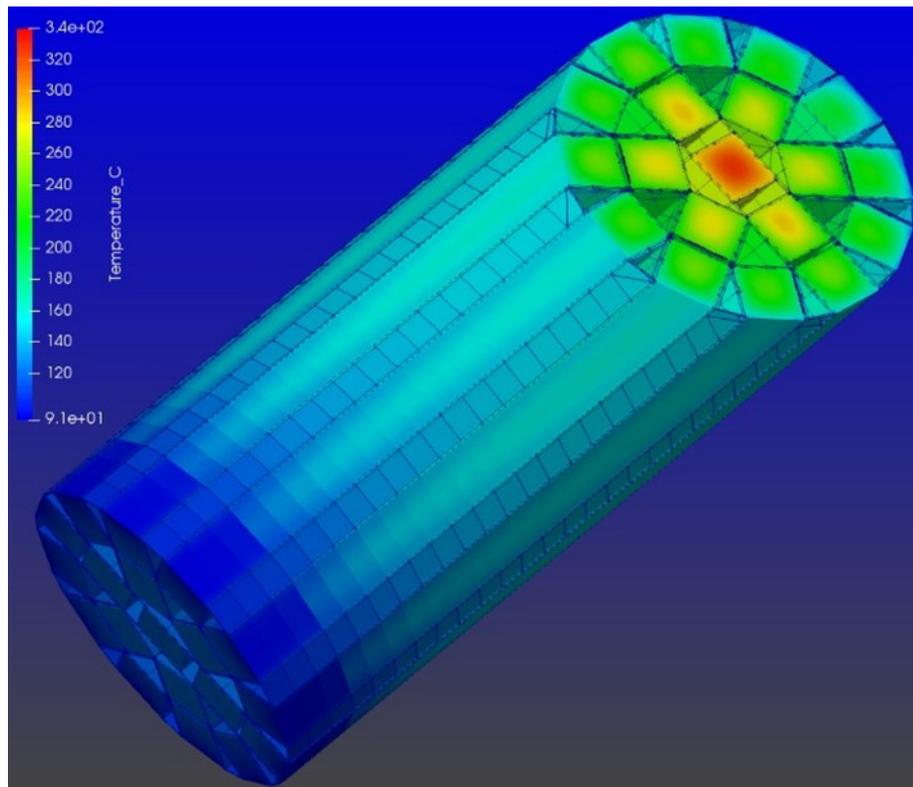


Abb. 2.12 Visualisierung der Temperaturverteilung für die homogene Beladung durch einen schrägen horizontalen Schnitt

In Abb. 2.13 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.

Eine weitere Darstellung der Temperaturen ist in Abb. 2.14 gegeben. Betrachtet man die gesamte axiale Länge, dann variieren für die homogene Beladung unter Annahme eines generischen und typischen Abbrand Profils die Hüllrohrtemperaturen von ca. 70 °C (FA8) bis 325 °C (FA10). Ebenfalls lässt sich ein großer Temperaturgradient innerhalb eines Brennelementes feststellen.

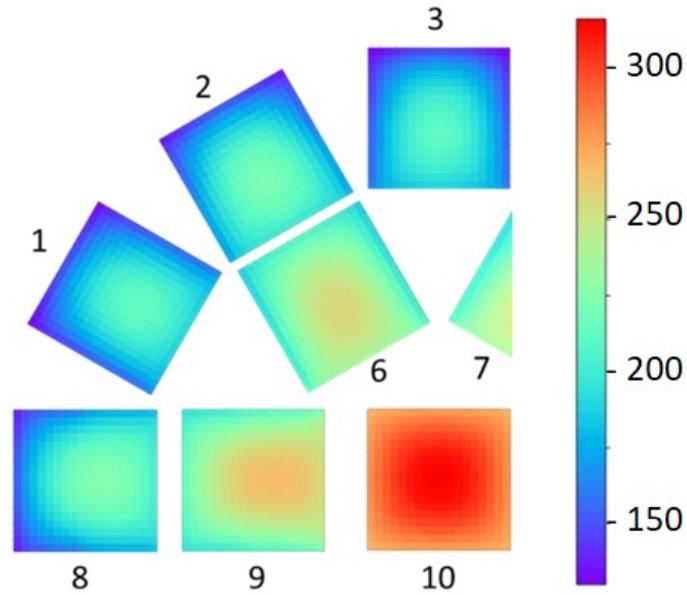


Abb. 2.13 Temperaturverteilung der heißesten axialen Zone in dem betrachteten generischen CASTOR® V/19-Modell, berechnet mit COBRA-SFS

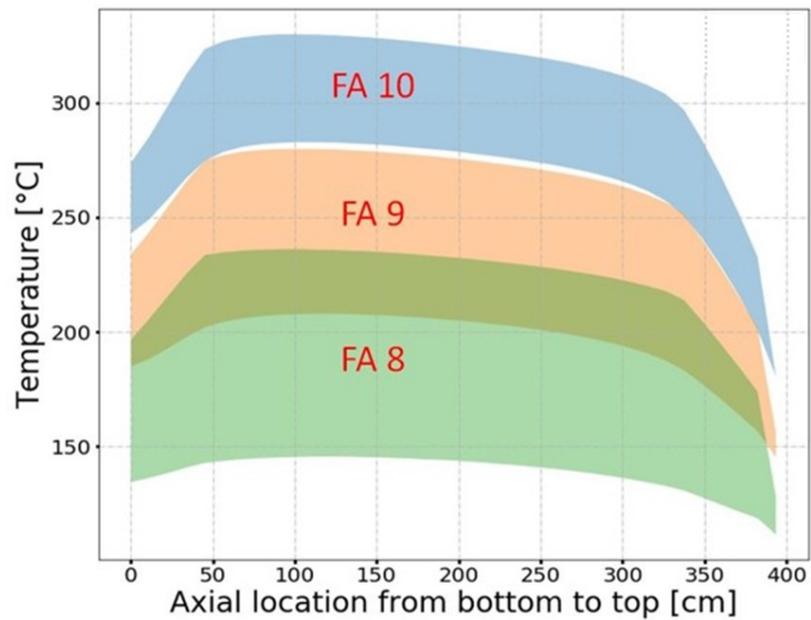


Abb. 2.14 Hüllrohrtemperaturdomänen für die Brennelemente 8, 9 und 10 der COBRA-SFS-Modellierung

2.3.3 Vergleichsstudie des COBRA-SFS-Modells

Eine direkte Validierung des Modells ist auf Grund mangelnder Verfügbarkeit von experimentellen Ergebnissen derzeit nicht möglich. Dagegen können die Ergebnisse mit denen anderer Codes verglichen werden. Dazu wurden Ergebnisse des gleichen Behälters und gleicher Beladung berechnet, mit den Codes COCOSYS /COC 01/ und ANSYS-CFX /CFX 01/ herangezogen und mit den Ergebnissen der COBRA-SFS-Berechnungen verglichen /PER 19/. Die zu modellierenden Daten wie Behälter- und Brennelement-Geometrien und Materialien und deren Charakteristika sowie die Leistung sind in allen Fällen identisch. Die Modellierung in den Codes unterscheidet sich jedoch prinzipiell, so dass hier nur die Brennstäbe des inneren Brennelements (Nr. 10 in Abb. 2.9) sinnvoll verglichen werden können. Die Modellierung in COCOSYS erfolgte hierbei in nur zwei anstatt drei Dimensionen. Das zentrale Brennelement wurde durch neun verschiedene Brennstabzonen 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, d. h. 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 mit 1,5 Millionen Elementen modelliert. Die weiteren Brennelemente wurden einfachheitshalber als homogenisierte Einheiten angenommen. Weiterführende Details zu den Modellen und Rechnungen sind in /STE 14/ und /PER 19/ beschrieben.

Die Ergebnisse der Hüllrohrtemperaturen aus den drei Rechnungen wurden für das heißeste Brennelement verglichen. Die Ergebnisse der Modellierung mit COCOSYS, ANSYS-CFX und COBRA-SFS sind in Abb. 2.15 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. Die Hüllrohrtemperatur ist für zwei verschiedene Reihen von Brennstäben angegeben, die den heißesten („oberen“ Temperaturen) und kältesten („unteren“ Temperaturen) Brennstäben entsprechen (siehe Diagramm in der unteren linken Ecke der Abbildung). Nur eine Kurve entspricht COCOSYS, da alle Stäbe einer Reihe homogenisiert modelliert wurden. Für die beiden anderen Modelle sind jeweils zwei Kurven dargestellt.

Das COCOSYS-Modell wurde unter Verwendung konservativer Annahmen in den Brennelementen erstellt: Keine Heliumkonvektion, dafür Wärmeleitung innerhalb des Heliums, und Strahlungsaustausch; jedoch beschränkt auf direkt benachbarte Stäbe. Das ANSYS-CFX-Modell enthält weitere Konservativitäten aufgrund einer Homogenisierung, einer begrenzten Berücksichtigung der Konvektion und einer festen, auf den COCOSYS-Ergebnissen basierenden Temperatur der Korbstruktur. Dieser Konservatismus erklärt

- kleine Temperaturunterschiede des zentralen Brennstabs,
- stärkere Temperaturgradienten zwischen dem inneren und dem äußeren Stab,
- eine größere Temperaturschwankung innerhalb der Brennelemente: COCOSYS ca. 70 °C, ANSYS CFX ca. 65 °C und COBRA-SFS ca. 45 °C und
- prinzipiell niedrigere Temperaturen für die äußersten Reihen der Brennstäbe.

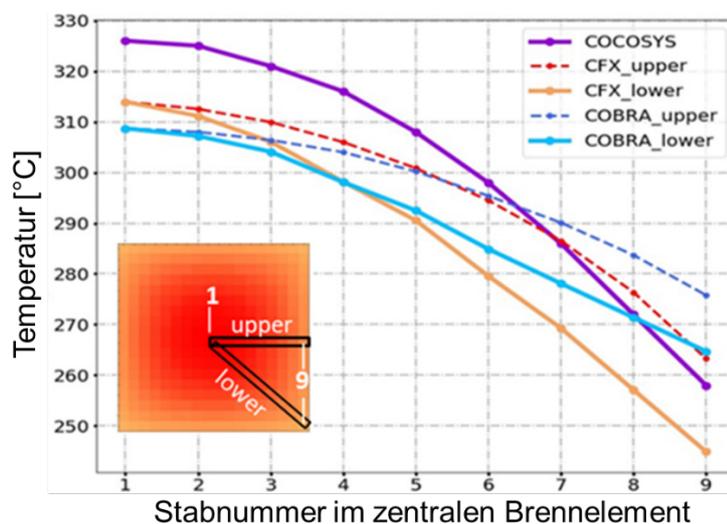


Abb. 2.15 Vergleich der Hüllrohrtemperaturen für die heißeste Axialzone zwischen den Codes COBRA-SFS, ANSYS-CFX und COCOSYS

Das COBRA-SFS-Modell berücksichtigt den strahlenden und konvektiven Anteil der Wärmeübertragungen sowie die natürliche Konvektion des Heliums. Die geometrische Beschreibung enthält eine detaillierte Darstellung der Brennelemente (alle Stäbe und Heliumkanäle werden unabhängig voneinander modelliert), der die Brennelemente umgebenden Korbstrukturen und des Behälterkörpers. Die vertikale Abmessung ist in 36 Zonen unterteilt, wodurch ein typisches axiales Leistungsprofil der Brennelemente in das Modell aufgenommen werden kann.

Als allgemeine Beobachtung weist das COBRA-SFS-Modell kleinere Temperaturgradienten auf als das ANSYS-CFX-Modell, das wiederum einen kleineren Temperaturgradienten als das COCOSYS-Modell aufweist. Dies könnte hauptsächlich eine Folge des Konservatismus in den ANSYS-CFX- und COCOSYS-Modellen sein, durch höhere Wärmewiderstände innerhalb der Modellierungsgruppen und andere Vereinfachungen. Trotz dieses Konservatismus liegt die aus dem COBRA-SFS-Modell resultierende Gesamttemperatur für die Zentralbaugruppe in der gleichen Größenordnung wie die von COCOSYS und ANSYS-CFX berechneten Temperaturen. Zwei Faktoren wurden identifiziert, um die relativ hohe Temperatur von COBRA-SFS zu erklären:

- Die für den Vergleich der Modelle verwendeten Temperaturen entsprechen der heißesten vertikalen Position im COBRA-SFS-Modell. Die Modelle von COCOSYS und ANSYS-CFX berücksichtigen die Heliumkonvektion programmbedingt nicht oder nur teilweise.
- Das COBRA-SFS-Modell enthält Wärmewiderstände zwischen den inneren Strukturen und dem Behälterkörper, um deren unvollständige Verbindung zu berücksichtigen. Schon ein kleiner Spalt führt zu einem deutlichen Anstieg der modellierten Behältertemperatur.

Schließlich liefert das COBRA-SFS-Behältermodell detaillierte dreidimensionale Temperaturverteilungen, die einen großen Bereich von Hüllrohrtemperaturen aufweisen. So kann für eine homogene Beladung mit einem typischen axialen Leistungsprofil der Temperaturbereich innerhalb eines Brennelementes über die gesamte Höhe des Elements etwa 200 °C erreichen. Für eine gegebene axiale Position des Behälters ist der Temperaturbereich ebenfalls groß: 45 °C für das zentrale Brennelement und bis zu 90 °C für die außen stehenden. Aufgrund der zahlreichen am Modell beteiligten und für die Ergebnisse relevanten Parameter wird eine detaillierte Sensitivitätsanalyse notwendig, konnte in diesem Rahmen jedoch nicht durchgeführt werden.

2.3.4 Semi-analytisches vereinfachtes Modell

Eine weitere Möglichkeit die berechneten COBRA-SFS-Ergebnisse zu beurteilen ergibt sich aus der Anwendung eines einfachen, aber effizienten semi-analytischen Modells. Dieses Modell ist bei weitem nicht so detailliert wie das COBRA-SFS-Modell, dafür ist es einfacher, den Überblick über die Modellierung und den Verlauf der Berechnungen zu behalten. Das Modell ist grafisch in Abb. 2.16 dargestellt. Es besteht aus sechs Behäl-

terzonen: Eine entspricht dem Behälterkörper und die restlichen fünf dem Behälterinnenraum. Jede Zone ist als homogen angenommen. Das bedeutet, sie ist jeweils mit einer einzigen Temperatur, einer einzigen Wärmekapazität und einer einzigen Wärmeleitfähigkeit charakterisiert. Die fünf inneren Zonen wurden als konzentrische Hohlzylinder gleichen Mantelvolumens definiert. Die gesamte Leistung P_{tot} wird zwischen den fünf Zonen angenommen als: $P_1 = P_2 = P_3 = P_5 = 4/19 P_{\text{tot}}$ und $P_4 = 3/19 P_{\text{tot}}$. Das entspricht der geometrischen Verteilung der 19 Brennelemente im Behälter, im Verhältnis zu den fünf Zonen (siehe Abb. 2.16). Der Wärmetransport in diesem einfachen Modell wird durch den Strahlungsanteil $\phi_{\text{rad}} = \epsilon \sigma T^4$, der Konduktion $\phi_{\text{cond}} = -\lambda dT/dr$ sowie der Konvektion $\phi_{\text{conv}} = h (T_{\text{solid}} - T_{\text{fluid}})$ beschrieben.

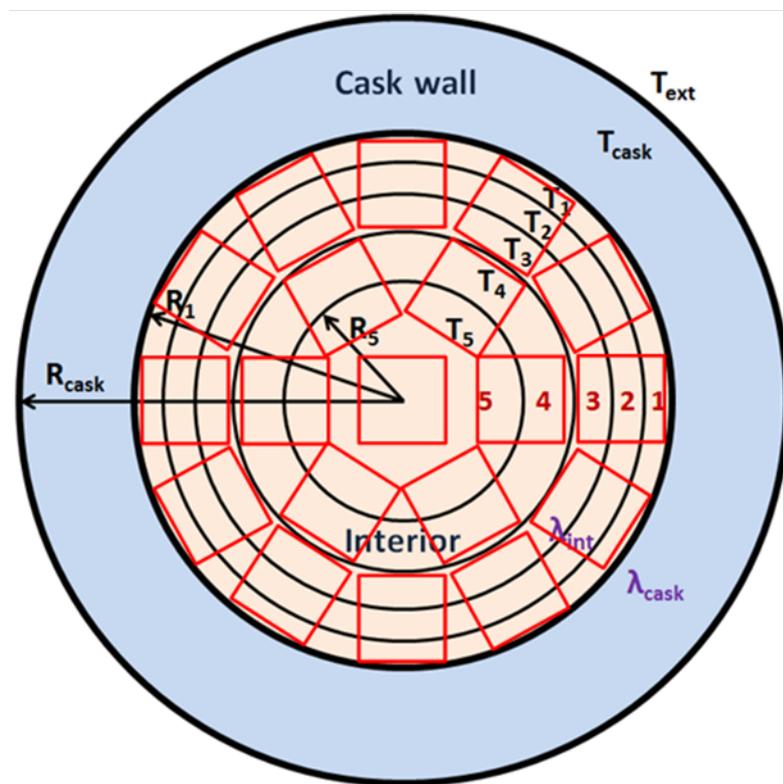


Abb. 2.16 Grafische Darstellung des semi-analytischen Modells zur Temperaturfeldberechnung

Die roten Linien deuten die tatsächliche Brennelementverteilung im generischen Behältermodell an, sind jedoch kein direkter Bestandteil des semi-empirischen Modells.

Dieses semi-analytische Modell ermöglicht, andere Temperaturwerte mit den COBRA-SFS-Ergebnissen zu vergleichen. Abb. 2.17 zeigt den Ergebnisvergleich der beiden Modelle für den Fall einer Gesamtleistung von 39 kW homogen über die 19 Brennelemente

verteilt. Die grüne gestrichelte Linie auf dem Hintergrundbild entspricht dem Behälterschnitt, wobei die roten und blauen Kurven die Temperaturprofile nach dem semi-analytischen bzw. COBRA-SFS Modell zeigen. Die rote Kurve ist eine Treppenfunktion, da das semi-analytische Modell homogenisierte Zonen betrachtet und dementsprechend nur eine Temperatur pro Zone liefert. Wie in Abb. 2.17 ersichtlich, stimmen trotz des deutlichen Unterschieds in den Modellierungsannahmen die Ergebnisse des semi-analytischen Modells mit denen aus COBRA-SFS gut überein. Das analytische Modell ist insbesondere von Vorteil, um nicht-statische Rechnungen mit COBRA-SFS zu überprüfen, wie zum Beispiel transiente Rechnungen des Trocknungsprozess.

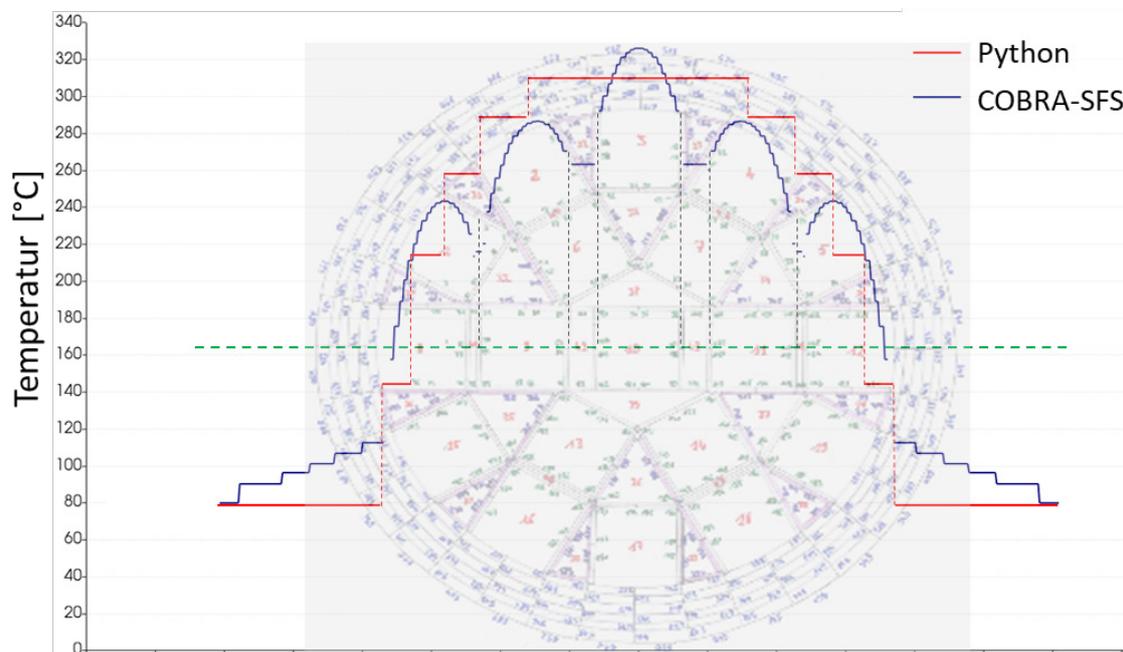


Abb. 2.17 Ergebnisvergleich der Hüllrohrtemperaturen zwischen dem semi-analytischen Modell in Python (rot) und den detaillierten numerischen Berechnungen mit COBRA-SFS (blau)

2.3.5 Transiente Temperaturverteilungen: Exemplarische Ergebnisse eines Trocknungsprozesses

Beim Übergang von der Nasslagerung der bestrahlten Brennelemente im Abklingbecken zur Zwischenlagerung im Behälter werden die Brennelemente in diesem Behälter getrocknet. Dazu wird ein Vakuum im Behälter erzeugt und dieser nach einer gewissen Zeit mit Helium befüllt. Der genaue zeitliche Ablauf variiert, so dass hier nur exemplarische Ergebnisse für einen theoretisch angenommenen Trocknungsprozess gezeigt wer-

den. Dazu wird angenommen, dass die Brennelemente der oben beschriebenen homogenen Beladung zum Zeitpunkt des Beginns des Trocknungsprozesses eine Temperatur von 40 °C, also der ungefähren Kühlmitteltemperatur des Lagerbeckens haben. Anschließend wird angenommen, dass für 81 Stunden im Inneren des Behälters ein Vakuum anliegt. Danach wird für 22 Stunden der Behälter mit Helium gefüllt. Diese Zahlen orientieren sich zwar an Erfahrungswerten, sind hier aber willkürlich gewählt. Insbesondere sind diese Bedingungen im Vergleich zur Realität vereinfacht, genügen aber, um die generelle Modellierung zu betrachten.

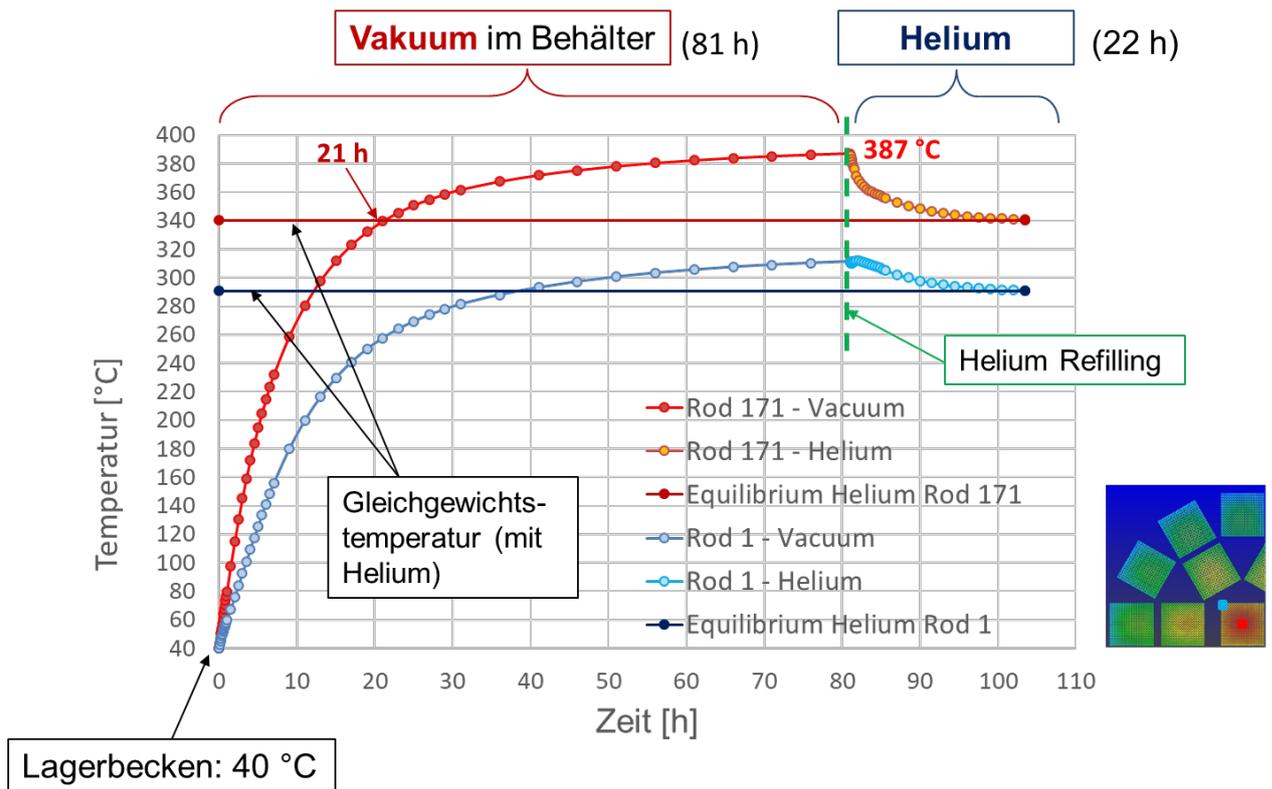


Abb. 2.18 Temperaturverlauf des zentralen (rot) und Eckstabes (blau) während eines fiktiven Trocknungsprozesses in dem generischen CASTOR® V/19-Modell

Zum Vergleich sind die Gleichgewichtstemperaturen des Modells als rote und blaue durchgezogene Linien dargestellt

Die Ergebnisse für den zentralen (rot) und Eckstab (blau) des zentralen Brennelementes (siehe auch Abbildung unten rechts in Abb. 2.18) zeigen, dass wie zu erwarten die Temperatur für beide betrachtete Stäbe zunächst ansteigen und nach 21 bzw. 38 Stunden die Hüllrohrtemperatur über der Gleichgewichtstemperatur des verschlossenen und mit Helium gefüllten Behälter liegt. Wird Helium als Trägergas eingefüllt, sinkt die Temperatur wieder auf die Gleichgewichtstemperatur ab. Die exakten Zeitpunkte und Temperaturen variieren mit den tatsächlichen Trocknungsbedingungen.

Ein Plausibilitätsvergleich der Ergebnisse kann mit dem semi-analytischen Modell durchgeführt werden. In Abb. 2.19 sind die beschriebenen COBRA-SFS-Ergebnisse als gepunktete Linien dargestellt und werden mit den Temperaturverläufen der fünf Zonen des semi-analytischen Modells verglichen. Interessant ist hier der Vergleich der blauen Kurven, die für die beiden Modelle am ehesten direkt miteinander vergleichbar sind. Die Lösung des analytischen Modells hat für die Zone 4 einen zeitlichen Verzug im Vergleich zu dem Temperaturverlauf des mit COBRA-SFS modellierten Eckstabes des zentralen Brennelementes von weniger als drei Stunden. Die maximale Differenz der beiden blauen Kurven beträgt 25 °C und wird nach ca. zehn Stunden erreicht. Auch hier zeigt sich, dass für eine erste Abschätzung das semi-analytische Modell gute Ergebnisse im Vergleich zu der wesentlich aufwendigeren Berechnung mittels COBRA-SFS liefert.

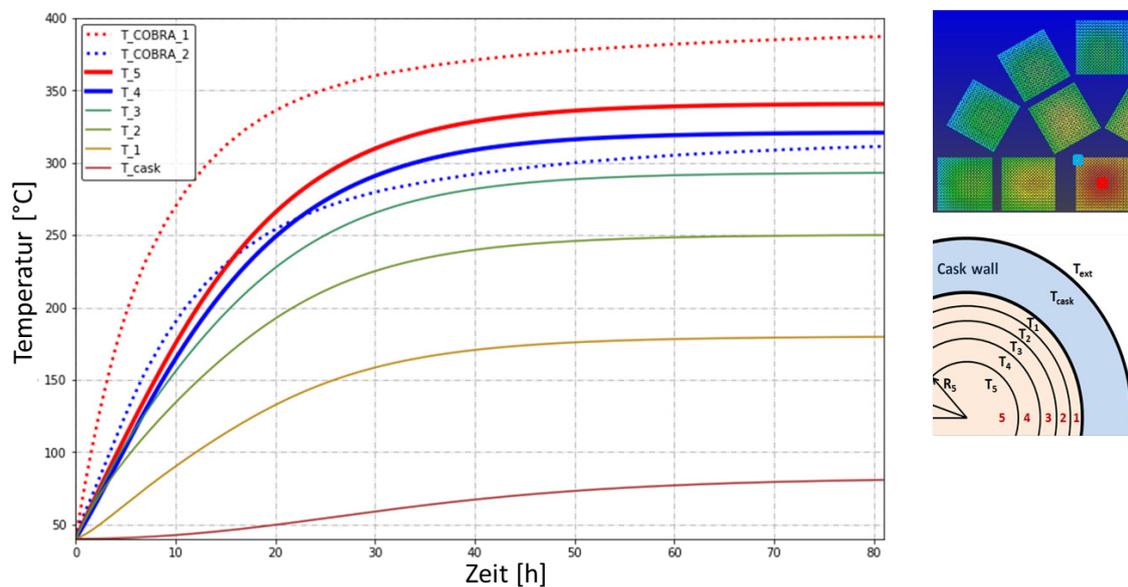


Abb. 2.19 Vergleich der Temperaturverläufe während des fiktiven Trocknungsprozesses zwischen den 5 Zonen des semianalytischen Modells (durchgezogene Linien) und dem zentralen und Eckstab des zentralen Brennelementes aus COBRA-SFS (gepunktete Linien)

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 C pro Gewichtsanteil ergibt sich zu

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

mit C als Konzentrationsmassenanteil in ppm, A als Faktor, Q als Aktivierungsenergie in Joule, R als Gaskonstante in $J/(\text{mol K})$ 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 /MCM 00/ 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) miteinander verglichen hat. Das generelle Verhalten der Löslichkeit des Wasserstoffs mit sich ändernder Temperatur ist in Abb. 3.1 dargestellt.

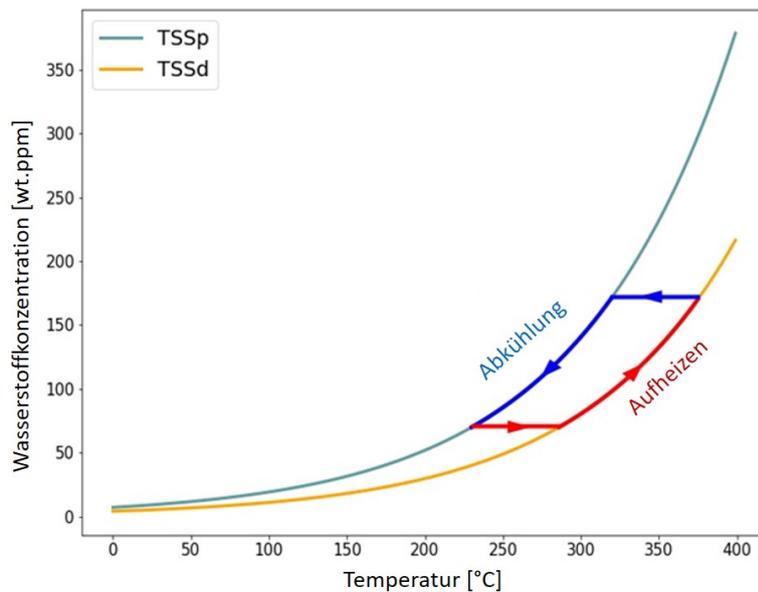


Abb. 3.1 TSSd (Terminal Solid Solubility for dissolution) und TSSp (Terminal Solid Solubility for precipitation) Kurven mit eingezeichneter Hysterese

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 for precipitation*) und TSSd (*Terminal Solid Solubility for dissolution*) wurden verschiedene Verfahren angewandt. Eine Übersicht der betrachteten Experimente ist in 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 keinen Hinweis darauf, dass darin genau die deutsche Zry-4-Spezifikation verwendet wurde. Experimente mit DUPLEX, einem Material mit einer Beschichtung (engl. *liner*) auf der Außenseite 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 der Hüllrohrinnenseite auf Löslichkeitsunterschiede untersucht wurde. Die moderneren Werkstoffe M5 und Zirlo sind nach unserer Kenntnis trotz ihrer relativ weiten Verbreitung nur einmal bzw. gar nicht in der Literatur näher beschrieben 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 Röntgendiffraktometrie (in-situ XRD, engl. *X-ray diffraction*).

Trägt man die einzelnen Messungen der Löslichkeit über die Temperatur auf, zeigen sich zum Teil große Abweichungen (Abb. 4.4). 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 um 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/.

Eigene statistische Untersuchungen sind in Abb. 3.2 gezeigt. Die experimentell bestimmten Wasserstoff-Konzentrationen bei verschiedenen Temperaturen sind für Zry-2 Materialien aufgetragen. Anschließend wurden die TSSp und TSSd Daten jeweils mittels der *Orthogonal Distance Regression* (ODR) Methode gefittet. Die Fitfunktionen zeigen auch innerhalb des dargestellten 95 % Vertrauensintervalls eine klare Separation. Die Messunsicherheiten der einzelnen Punkte sind jedoch stark unterschiedlich, abhängig von der verwendeten Methode. Dieser Effekt ist in Abb. 3.3 dargestellt. Hier ist unabhängig von dem Hüllrohrmaterial aber in Abhängigkeit der jeweiligen Messmethode die Fitfunktion für die resultierenden TSSp-/TSSd-Kurven dargestellt. Eine klare Separation innerhalb der Fitunsicherheit (dargestellt ist das 95 % Vertrauensintervall) lässt sich hier nicht mehr ohne weiteres vornehmen.

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 dort unter quasi-Gleichgewichtsbedingungen ausbilden können. Ein Szenario ist in Abb. 3.4 dargestellt. Das linke Bild in der Abbildung soll zeigen, wie sich der Wasserstoff im Hüllrohr bei einer schnellen Abkühlung verhält. Der Wasserstoff wird sich den lokal energetisch günstigsten Punkt im Gitter zur Ausfällung suchen. Das können naheliegende Sekundärphasen oder bestehende Zirkonium-Hydride sein. Es kann ebenfalls zu spontanen Ausfällungen in radialer Richtung unter Ausbildung einer Hysterese kommen. Dieses gemischte Vorliegen von radialen und umläufigen Hydriden ist bei zahlreichen Schnittbildern von Hüllrohrabschnitten experimentell gefunden worden. Sehr langsame Abkühlprozesse, wie sie in der längerfristigen Zwischenlagerung vorkommen, führen jedoch zu einer Wasserstoffdiffusion des gelösten

Wasserstoffs und Hydridbildung unter thermodynamischer Kontrolle als (Quasi-)Gleichgewichtsprozesse. Je nachdem, ob bei diesen Abkühlraten noch umläufige Hydride vorliegen (mittleres Bild in Abb. 3.4) oder der gesamte Wasserstoff gelöst wurde (rechtes Bild in Abb. 3.4), bilden sich vorwiegend lange Hydride aus. Im mittleren Bild wird sich der gelöste Wasserstoff bevorzugt unter einem gewissen Winkel an die noch bestehenden, umläufigen Zirkonium-Hydride anbinden. Sollte der gesamte Wasserstoff gelöst sein, dann könnte ein sehr langsames Abkühlen dazu führen, dass sich lange, radiale Hydride an z. B. den Sekundärphasen ausbilden. Weiter Details dazu finden sich z. B. in /KAU 18/.

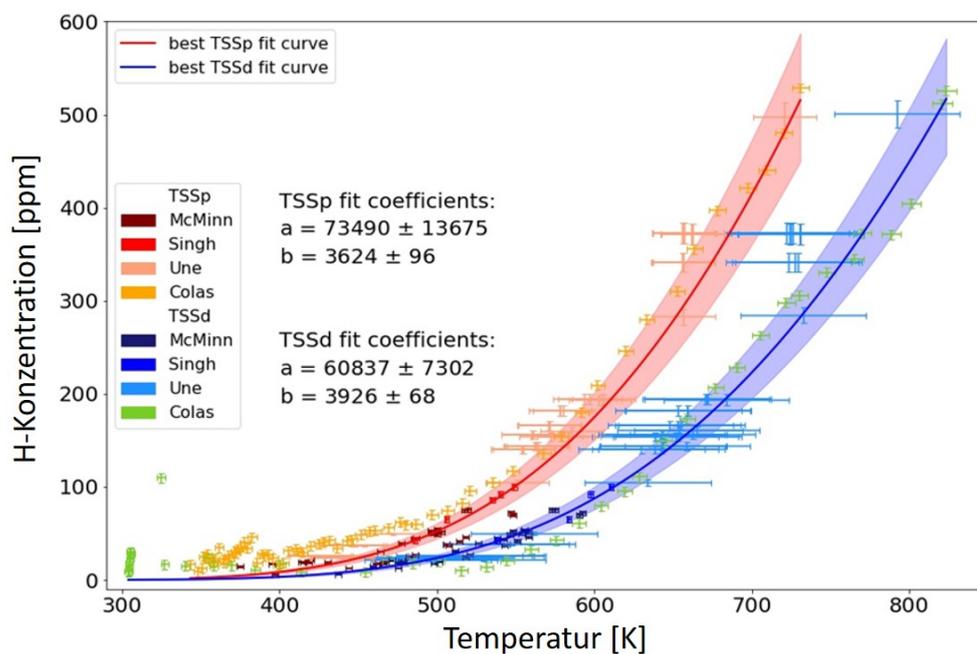


Abb. 3.2 Unterschiedliche Fitfunktionen angewendet auf Datenpunkte zu Zircaloy-2

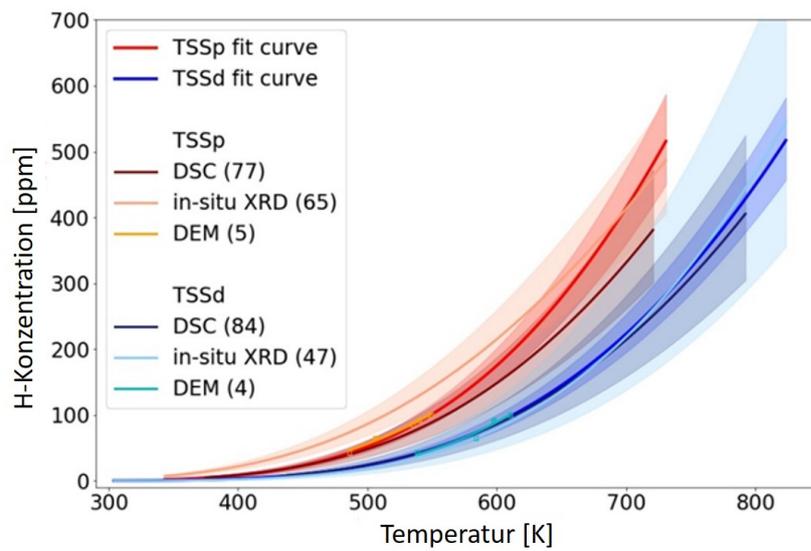


Abb. 3.3 Fitfunktionen unterschiedlicher Messverfahren der TSSd und TSSp im Vergleich

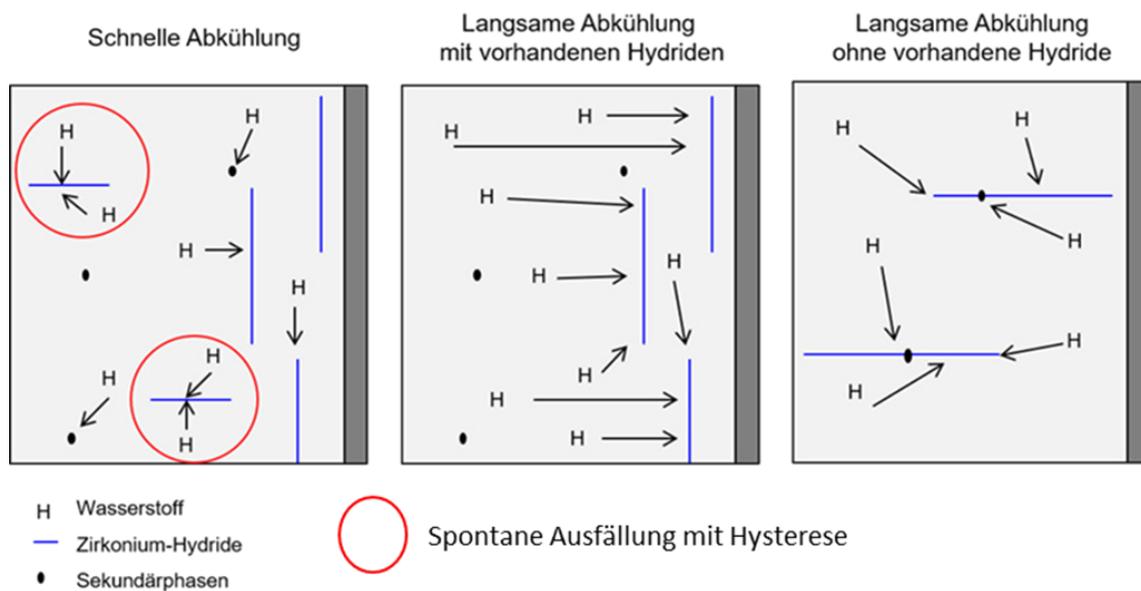


Abb. 3.4 Ansicht von drei möglichen Szenarien der Hydridbildung in Abhängigkeit der Kühlrate und Hydridkonzentration

Bild aus /KAU 18/

3.2 Gestalt der Hydridausscheidungen bzw. der Hydridorientierung

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 /BOL 19/.

3.3 Hüllrohrkriechen bei radial orientierten Hydriden

Das Hüllrohrkriechen begleitet den Brennstab während der gesamten Einsatzdauer. Für die verschiedenen Hüllrohrlegierungen gibt es unterschiedliche Kriechkorrelationen in Abhängigkeit von Druck, Temperatur, Spannung, usw., jedoch ist bisher der Einfluss der Orientierung von Zirkoniumhydriden auf das Kriechen nicht untersucht worden.

Durch Unterschiede von Innen- und Außendruck oder durch Kontaktdruck des Pellets auf das Hüllrohr werden Spannungen auf das Hüllrohr abgetragen. Diese Spannungen sorgen bei ausreichend hohen Temperaturen zum Kriechen des Hüllrohrs. Die Kriech Eigenschaften von Zirkoniumlegierungen der Hüllrohre sind in der Regel nicht isotrop. Die Hauptkriechrichtung ist die Umfangsrichtung (azimutale Richtung). Die Zirkoniumlegierung kann trotz unterschiedlicher Legierungsbestandteile und unterschiedlichen Gefügeausrichtungen hier als einheitliche Materialphase betrachtet werden, die durch einheitliche Kriechkorrelationen beschrieben werden können. Durch die Zirkoniumhydride kommt eine zusätzliche Materialphase in das Metall, die selbst nicht metallischer, sondern keramischer Natur ist. Diese weist ein deutlich geringeres Kriechvermögen, eine deutliche höhere Härte und ein spröderes Verhalten gegenüber dem metallischen Zirkonium auf. Unter reaktortypischen Betriebsbedingungen liegt ein Großteil der Hydride in flocken- oder blattförmiger Struktur vor. Um den Einfluss der Hydridorientierung auf das Kriechen des Hüllrohrs zu untersuchen, wurden Finite-Element-Modelle benutzt. Hierbei

wird untersucht, inwieweit sich die Kriechraten des Hüllrohrs unterscheiden, wenn Zirkoniumhydride in unterschiedlicher Ausrichtung vorliegen.

In Abb. 3.5 ist ein Schema für die unterschiedlichen Hydridorientierungen unter Umfangsspannungen dargestellt. Für das reine Zircaloy sind die Kriecheigenschaften bekannt. Die Kriecheigenschaften für Zirkoniumhydride werden vernachlässigt. Dieser Schritt ist gerechtfertigt, da das E-Modul von Zirkoniumhydrid deutlich höher ist und Hydride zu geringerem Kriechen neigen, als Metalle es tun.

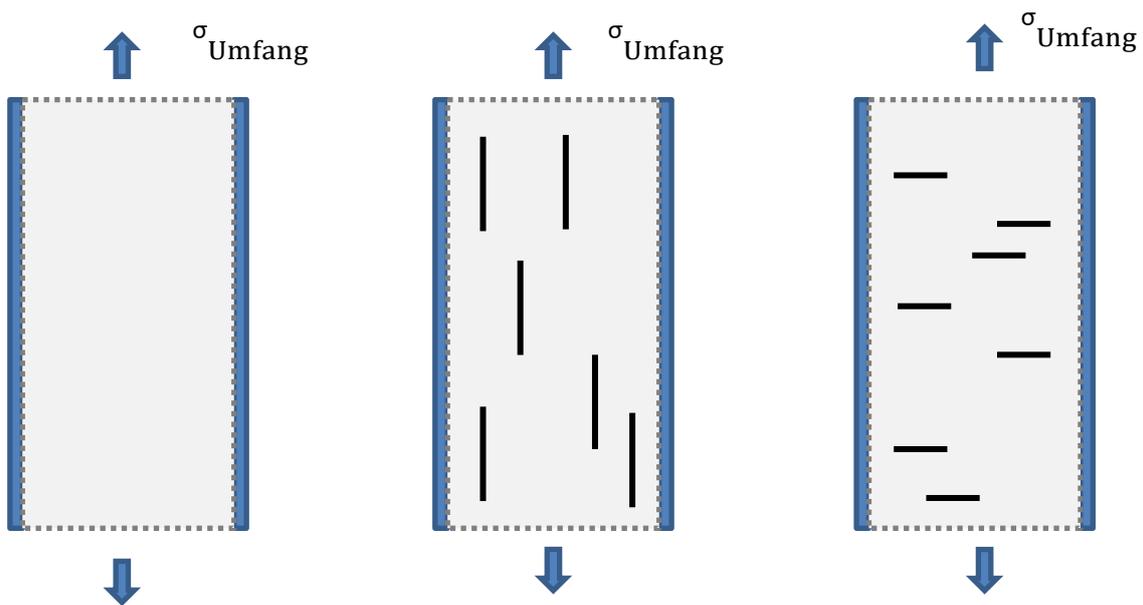


Abb. 3.5 Vergleich der bekannten Kriechraten zu den kombinierten Kriechraten von Zircaloy inklusive Hydriden

Links: Reines Zircaloy, nur eine Materialgruppe. Mitte: Umfangsgerichtete Hydride (parallel zur Zugrichtung) aus zwei Materialgruppen. Rechts: Radiale Hydride aus zwei Materialgruppen

In der Literatur wurde der Effekt von Zirkoniumhydriden auf das Kriechverhalten bereits beschrieben /MAL 12/, jedoch fehlen hier die Betrachtungen unterschiedlicher Hydridorientierungen. Um diese Orientierungen zu berücksichtigen, wurde ein Finite-Elemente-Modell mit dem Simulationsprogramm ADINA erstellt /ADI 19/. Die Untersuchung wird auf einem Quadrat mit 0,3 mm Kantenlänge durchgeführt, die die radiale und azimutale (umfangsgerichtet) Richtung im Hüllrohr darstellt. Das Hydrid besitzt eine Kantenlänge von 50 μm und eine Breite von 2 μm . Der hier dargestellte Bereich ist klein genug, um den inneren Teil des Hüllrohrs abzubilden, Randeffekte werden vernachlässigt. Mit

50 µm Kantenlänge hat das Hydrid eine Länge ca. 1/12 der Wandstärke eines Hüllrohrs. Die verwendeten Materialdaten sind in Tab. 3.1 aufgeführt.

Tab. 3.1 Materialdaten für Zircaloy-4 und Zirkoniumhydrid im FE-Modell

Materialdaten bei 673,2 K	Zircaloy -4	Zirkoniumhydrid
E-Modul	71.942 MPa	105.282 MPa (nach /YAM 02/)
Dichte	6.500 kg/m ³	56.630,25 kg/m ³
Querkontraktionszahl	0,4	0,4 (von Zry-4 übernommen)
Thermischer Ausdehnungskoeffizient	6,67 10 ⁻⁶ K ⁻¹	6,67 10 ⁻⁶ K ⁻¹ (von Zry-4 übernommen)

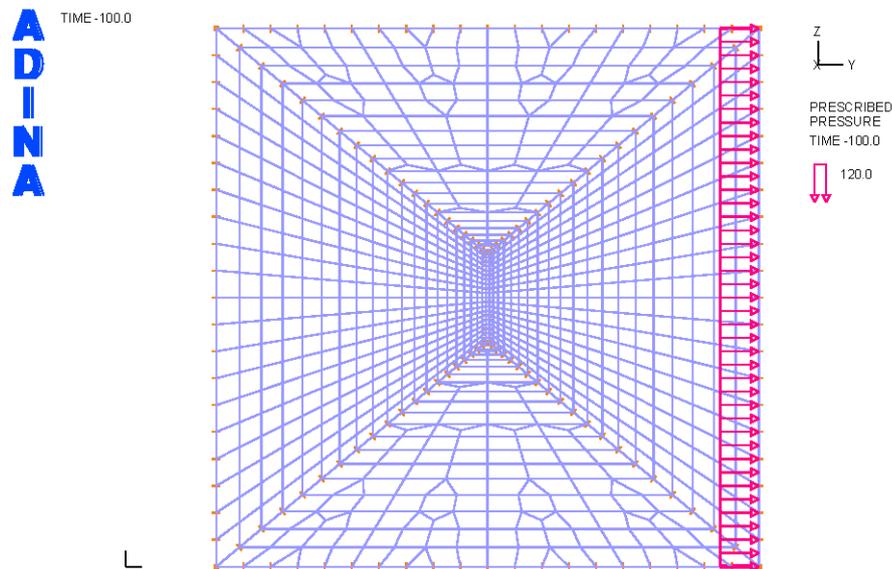


Abb. 3.6 ADINA-Modell eines Hydrids (mittig) in einer Zirkonium-Matrix mit aufgebrachter Zugspannung auf der rechten Seite

Die FE-Modelle bestehen aus jeweils einem Zirkoniumhydrid in unterschiedlicher Orientierung, und einer Zugspannung wie in Abb. 3.6 dargestellt. Das Hydrid in Abb. 3.6 steht quer zur Zugrichtung, was im Hüllrohr einer radialen Ausrichtung der Hydride entspricht. Neben der radialen Ausrichtung (90°) wurden auch umfangsgerichtete Hydride (0° und 5° Neigung) untersucht. Die leichte Neigung von 5° dient der Verifikation und der Untersuchung von möglichen anisotropen Effekten in der Spannungsverteilung entlang des Hydrids. Die Untersuchungen werden unter einer gleichmäßigen Temperatur von T = 400 °C durchgeführt. Das Modell enthält Zwangsbedingungen für die Beschränkung

der Freiheitsgrade, so dass eine Kriechbewegung nur entlang der Zugrichtung ermöglicht wird.

In der Simulation wird dem Modell eine Temperaturlast angelegt und nach 100 s Verzögerung eine Zuglast von 120 MPa aufgebracht und für 250 h aufrecht gehalten. Im Ergebnis werden die einzelnen akkumulierten Kriechdehnungen der verschiedenen Simulationen miteinander verglichen.

Im Folgenden werden Ergebnisse der Simulation vorgestellt. Hierbei wird nach den einzelnen Orientierungen unterschieden. In Abb. 3.7 ist die akkumulierte Kriechdehnung für das Gesamtmodell mit 0° Orientierung (umfangsgerichtetes Hydrid) und in Abb. 3.8 dessen Hydridausschnitt dargestellt.

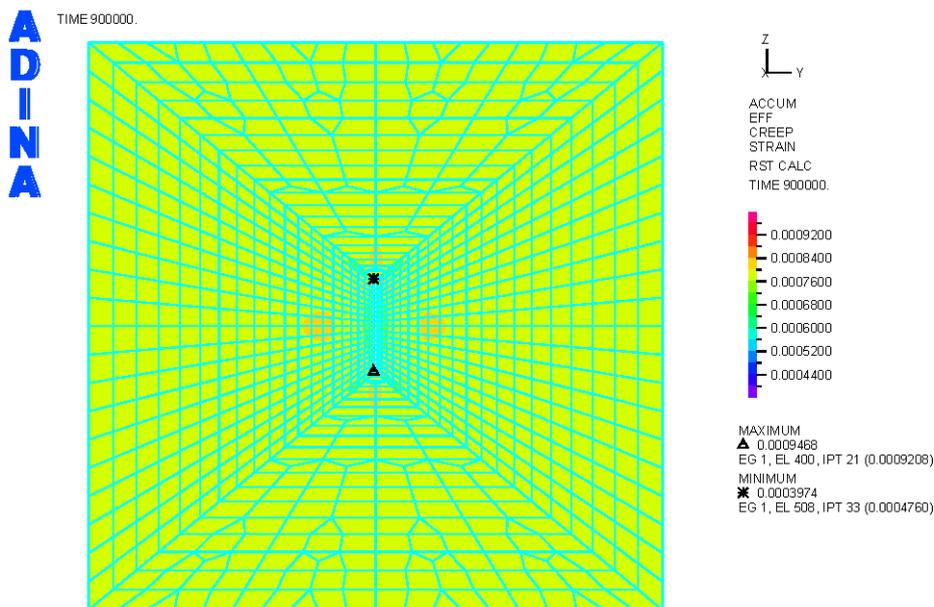


Abb. 3.7 Akkumulierte Kriechdehnung (0° Orientierung, 250 h, Gesamtmodell) für ein mit einem Hydrid belegten Zirkonium-basierten Hüllrohrmodell

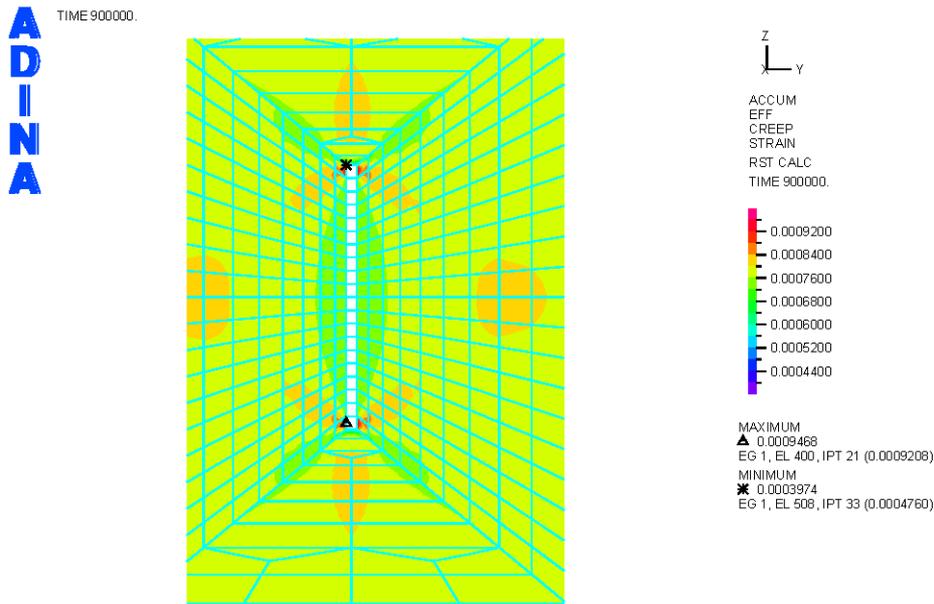


Abb. 3.8 Akkumulierte Kriechdehnung (0° Orientierung, 250 h, Ausschnitt Hydrid) für ein mit einem Hydrid belegten Zirkonium-basierten Hüllrohrmodell

Die Bereiche mit geringer Kriechdehnung sind in den Abbildungen grün dargestellt, so z. B. links und rechts neben dem Hydrid. Höhere (orange) und hohe (rot) Kriechdehnungen sind dagegen in der Nähe der Hydridspitzen zu finden. Hier stehen die Bereiche mit hoher und niedriger Kriechdehnung nah beieinander und bilden symmetrische strahlenförmige Zonen ausgehend von der Hydridspitze.

Die Abb. 3.9 und Abb. 3.10 zeigen das Ergebnis des 5° geneigten Hydrids. Es ist hier nicht mehr symmetrisch und zeigt deutlich die Zonen mit der höchsten Kriechdehnung (roter Bereich).

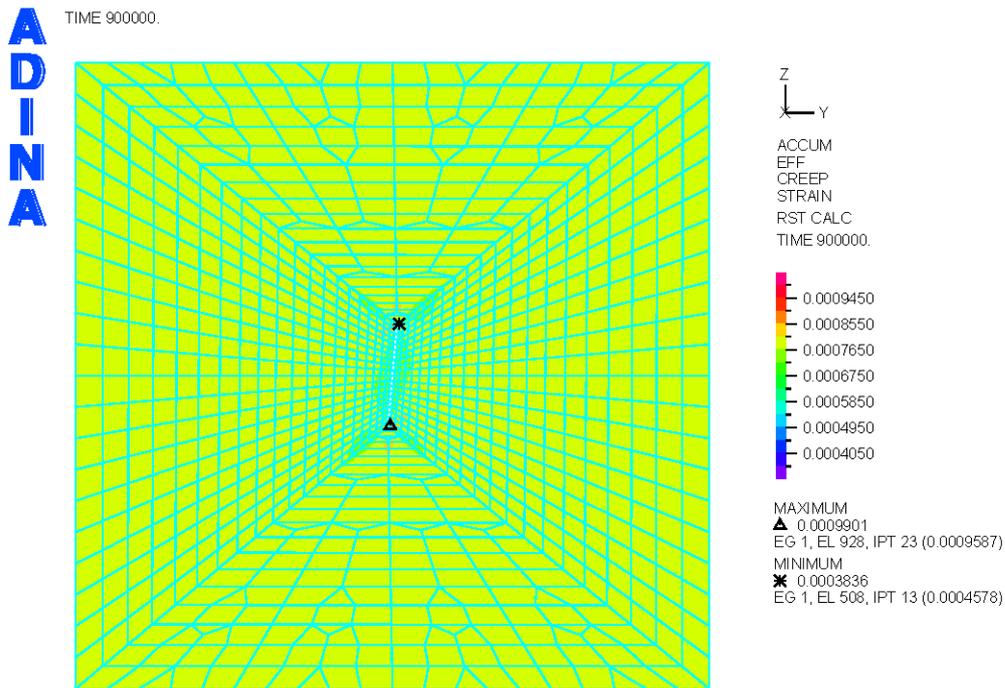


Abb. 3.9 Akkumulierte Kriechdehnung (5° Orientierung, 250 h, Gesamtmodell) für ein mit einem Hydrid belegten Zirkonium-basierten Hüllrohrmodell

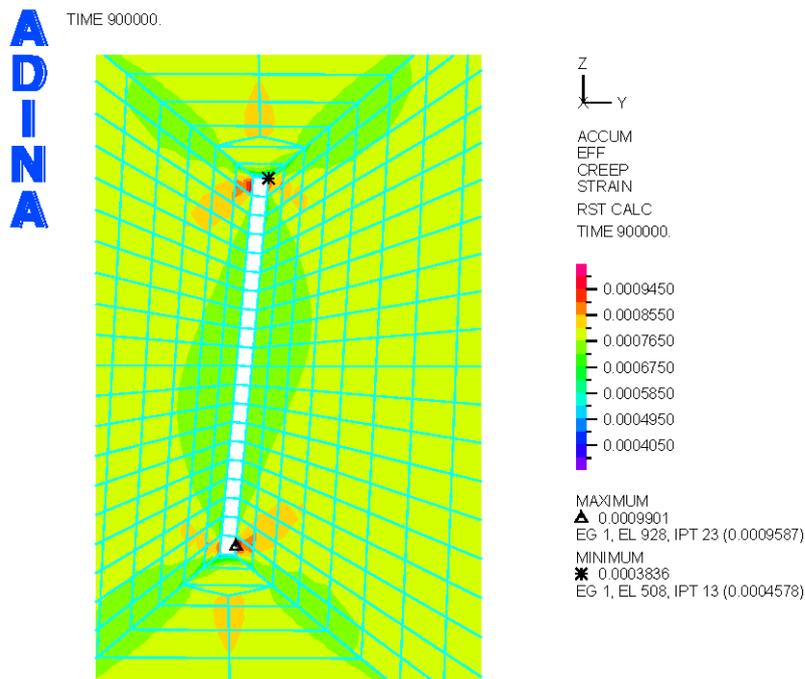


Abb. 3.10 Akkumulierte Kriechdehnung (5° Orientierung, 250 h, Ausschnitt Hydrid) für ein mit einem Hydrid belegten Zirkonium-basierten Hüllrohrmodell

Das Ergebnis der Rechnung mit um 90° gedrehten Hydriden (radiale Ausrichtung) ist in Abb. 3.11 und Abb. 3.12 dargestellt, und weicht stärker von der 0°- und der 5°-Rechnung ab. Die geringsten Kriechdehnungen ergeben sich auch hier entlang des Hydrids mit der Ausnahme der Hydridspitze. Strahlenförmige Zonen wie in den ersten beiden Simulationen gibt es hier nicht, dahingegen existiert ein großer Bereich vor der Hydridspitze mit einer leicht erhöhten Kriechdehnung.

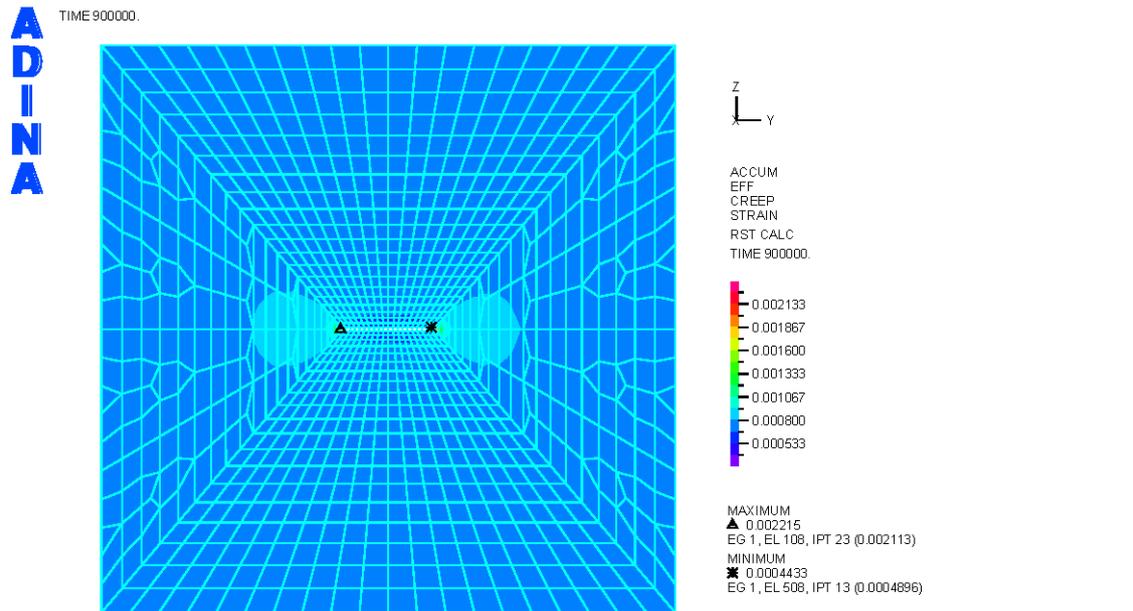


Abb. 3.11 Akkumulierte Kriechdehnung (90° Orientierung, 250 h, Gesamtmodell) für ein mit einem Hydrid belegten Zirkonium-basierten Hüllrohrmodell

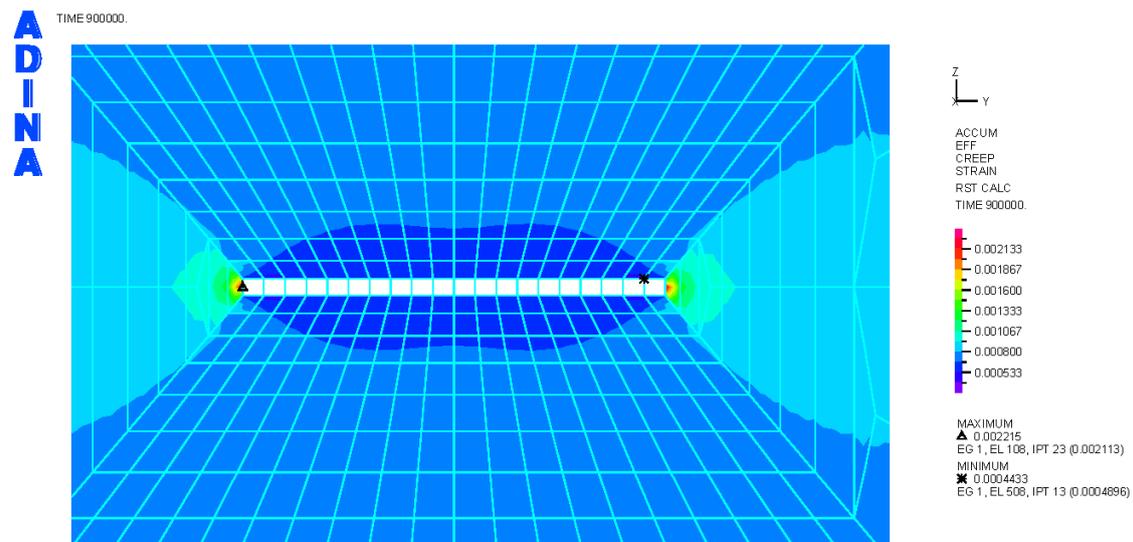


Abb. 3.12 Akkumulierte Kriechdehnung (90° Orientierung, 250 h, Ausschnitt Hydrid) für ein mit einem Hydrid belegten Zirkonium-basierten Hüllrohrmodell

Die Ergebnisse der drei Rechnungen sind in Tab. 3.2 zusammengefasst. Der Zeitpunkt $t = 100$ s entspricht dem Zeitpunkt der Temperaturaufprägung, bei $t = 0$ s wird die Zugspannung angelegt und bei $t = 900.000$ s endet die Simulation. Die maximale Kriechdehnung wird bei dem 90° gedrehten Modell erreicht, d. h. bei umfangsgerichteten Hydriden, und liegt dabei etwa doppelt so hoch wie bei den anderen Orientierungen.

Tab. 3.2 Zusammenfassung der Ergebnisse (0° -, 5° - und 90° -Hydridorientierung)

Hydrid-Drehwinkel		0°	5°	90°
Max. Vergleichsspannung [MPa] bei anliegender Zugspannung P				
T = 673,2 K, P = 0 MPa	t = -100 s	0,64	0,64	0,64
T = 673,2 K, P = 120 MPa	t = 0 s	148,5	148,7	173,2
T = 673,2 K, P = 120 MPa	t = 900.000 s	185,5	189,8	239,7
Max. akk. Kriechdehnung [%]	t = 900.000 s (250h)	0,095	0,099	0,222

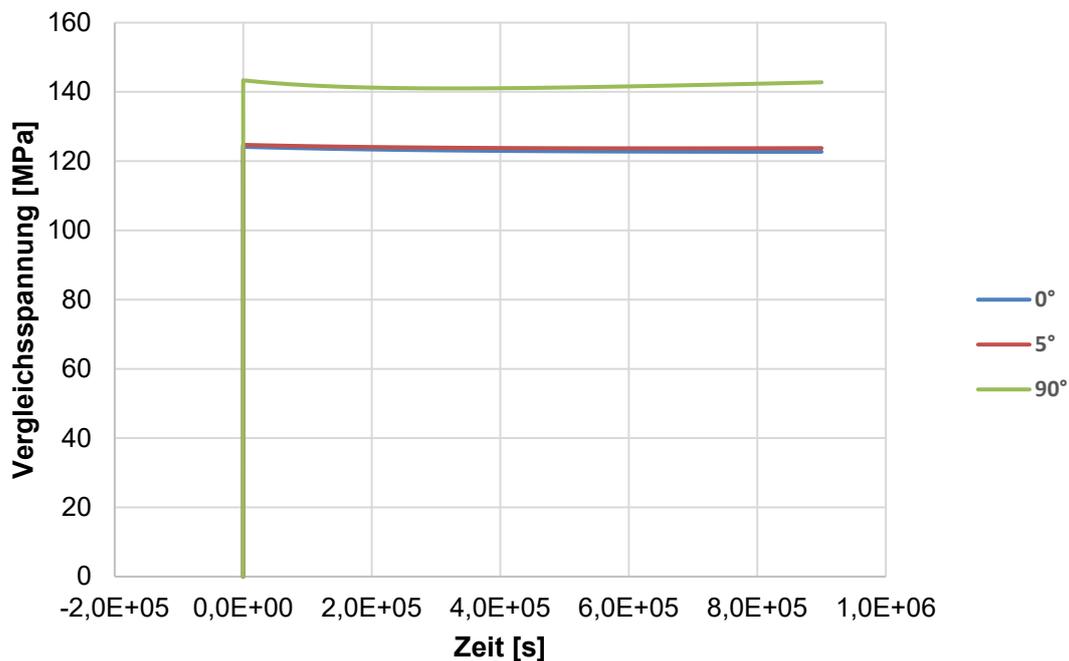


Abb. 3.13 Zeitliche Entwicklung der Vergleichsspannung für Hydridorientierungen in 0° , 5° und 90°

Der zeitliche Verlauf der Kriechdehnung ist in Abb. 3.13 dargestellt. Nach Aufbringung von Temperatur- und Zugbelastung kann im untersuchten Zeitbereich ein annähernd

linearer zeitlicher Verlauf der Kriechdehnung bei allen Hydridorientierungen beobachtet werden. Daher kann der zeitliche Verlauf durch eine Linearisierung approximiert werden, mit

$$\varepsilon = a \cdot t + b \quad (3.2)$$

mit t als Zeit in Sekunden und a und b als Konstanten, dargestellt in Tab. 3.3, mitsamt der abgeleiteten Kriechrate.

Tab. 3.3 Koeffizienten der linearen Kriechdehnungsfunktion (0°, 5° und 90°)

Hydridorientierung	a [1/s]	b [-]	Kriechrate [1/s]
0°	1E-09	2E-08	1E-9
5°	1E-09	2E-08	1E-9
90°	2E-09	5E-08	2E-9

Die hier dargestellten Rechnungen im Rahmen des Modells den fundamentalen Einfluss von Hydriden auf die Gesamtkriechrate in unmittelbarer Umgebung um das Modell. Es zeigt sich, dass im Vergleich zu radialen Hydriden die umfangsgerichteten Hydride zu einer höheren Kriechrate führen. Jedoch wurde hier nur ein einzelnes Hydrid in einer Zirkoniummatrix untersucht. Reale Hüllrohrproben weisen meist ein feines Netzwerk aus parallelen und teilweise sich kreuzenden Hydriden auf. Um weitere Aussagen über die Übertragbarkeit der hier gewonnenen Erkenntnisse auf reale Hüllrohre zu erhalten, müssen Rechnungen mit FE-Modellen mit mehreren Hydriden durchgeführt werden, um deren Wechselwirkung genauer zu untersuchen. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit war dies nicht mehr möglich.

3.4 Molekulardynamische Simulation der Wasserstoff-Zirkonium-Kristalle

Molekulardynamik (MD) beruht auf Newtonschen Bewegungsgleichungen, die für jedes einzelne Teilchen gelöst werden. Diese können geschrieben werden zu:

$$\mathbf{f}_i = m_i \ddot{\mathbf{r}}_i \quad (3.3)$$

$$\mathbf{f}_i = -\frac{\partial V}{\partial \mathbf{r}_i} \quad (3.4)$$

wobei \mathbf{f} die auf das einzelne Teilchen wirkende Kraft, \mathbf{r} der Positionsvektor und V die potentielle Energiefunktion sind.

Eine der Hauptaufgabe besteht darin, ein richtiges Potential V zu finden, um die Kraft zu bestimmen, die zu jedem Zeitschritt angewandt wird. Viele Potential-Dateien wurden veröffentlicht und sind frei verfügbar; leider sind sie meistens nicht übertragbar, da sie sehr spezifisch sind. Das *National Institute of Standards and Technology* (NIST) stellt in seinem *Interatomic Potentials Repository* /BEC 13/, /HAL 18/ mehrere Potentiale für Zirkonium zur Verfügung: fünf Potential-Dateien für reines Zirkonium, vier Dateien für das Cu-Zr-System, eine für das Nb-Zr-System, zwei für das Ni-Zr-System und eine für das U-Zr-System. Leider ist keine H-Zr-Potential-Datei vorhanden, um die Simulationen im Rahmen dieses Vorhabens durchzuführen. Es wurde deswegen eine EAM-Potential-Datei anhand verfügbarer Literatur für das System Zr-H erstellt.

Die in diesem Projekt vorgestellten MD-Simulationen wurden mit LAMMPS durchgeführt, einer MD-Software, die vom Sandia National Laboratory frei zur Verfügung gestellt wird /LAM 19/. Sie ermöglicht sowohl zwei- als auch dreidimensionale Simulationen, und nimmt verschiedene Typen von Potentialen auf, die auf Flüssigkeiten, Festkörpern oder Gasen angewandt werden können. Zur Visualisierung der Simulationen wurde OVITO benutzt, eine Visualisierungs- und Analyse-Software /STU 10/.

3.4.1 Embedded Atom Method

Die *Embedded Atom Method* (EAM) wurde von Baskes und Daw /BAS 83/ entwickelt und ist ein semi-empirisches Multi-Atom-Potential für die Berechnung der gesamten Energie eines metallischen Systems. Die wichtigste Annahme der EAM ist, dass die Energie eines Metalls der Summe der Energien von in der lokalen Elektronendichte eingebetteten (engl. *embedded*) Atomen und den paarweisen Interaktionen entspricht. Die Energie kann also wie folgt ausgedrückt werden:

$$E_{coh} = \sum_i F_i \left(\sum_{i \neq j} \rho_j^a(\mathbf{r}_{ij}) \right) + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \phi_{ij}(\mathbf{r}_{ij}) \quad (3.5)$$

mit F_i der Energie Funktion, ρ^a der sphärisch gemittelten Elektronendichte und ϕ_{ij} den paarweisen Interaktionen.

3.4.1.1 Erstellung einer Potential-Datei für das Zr-H System

Ruda, Farkas und Abriata haben ihr eigenes EAM-Potential für Wasserstoff in intermetallischen Legierungen, unter anderem in Zirkonium, entwickelt. Sie liefern die notwendigen Fit-Parameter in /RUD 96/, ausgenommen von den paarweisen H-H-Interaktionen und der H-Elektronendichte. Zhou et al /ZHO 08/ haben ein EAM-Potential für das Pd-H System entwickelt, in dem die Wasserstoffelektronendichte und eine paarweise Interaktion der Parameter enthalten sind. Eine neue EAM-Potential-Datei wurde für dieses Vorhaben anhand der Python-Library *atsim.potentials* erstellt. Dazu wurden folgende Funktionen und Parameter benutzt:

- Cutoff-Funktion (für Wasserstoff paarweises Potential, /ZHO 08/):

$$f_{cutoff}(r) = \left(1 + \cos \left[\pi \frac{r - r_c + r_s}{r_s} \right] \right) / 2 \quad (3.6)$$

r_c	r_s
5,35 Å	0,30 Å

- Elektronendichte-Funktion für Wasserstoff (/ZHO 08/):

$$\rho_H^a(r) = C_H \cdot \exp [-\delta_H \cdot r] \quad (3.7)$$

C_H	δ_H
11,0025	1,30927

- Einbettende Energie-Funktion für Wasserstoff (/ZHO 08/):

$$F_{H,u}(\rho) = -c_H \cdot \left(\frac{1}{2 + d_H} \cdot (\rho + \varepsilon_H)^{2+d_H} - \frac{a_H + b_H}{1 + d_H} \cdot (\rho + \varepsilon_H)^{1+d_H} + \frac{a_H * b_H}{d_H} \cdot (\rho + \varepsilon_H)^{d_H} \right) \quad (3.8)$$

Normalisierte Form (Null-Steigung an der Equilibrium-Elektronendichte):

$$F_H(\rho) = F_{H,u}(\rho) - F'_{H,u}(\rho_{0,H}) \cdot \rho \quad (3.9)$$

a_H	b_H	c_H	d_H	ε_H	$\rho_{0,H}$
9,99780	60,0155	0,000197047	1,18860	0,0540638	7,98909

- Paarweises Potential für H-H (/ZHO 08/):

$$\begin{aligned} \phi_{HH}(r) = D_{HH} & \\ & \cdot (\beta_{HH} \cdot \exp[-\alpha_{HH}(r - r_{0,HH})] - \alpha_{HH} \\ & \cdot \exp[-\beta_{HH}(r - r_{0,HH})]) \end{aligned} \quad (3.10)$$

D_{HH}	α_{HH}	β_{HH}	$r_{0,HH}$
0,0661496	3,67263	1,47797	2,51980

- Normalisierte Elektronendichte Funktion für Zr (/RUD 96/):

$$\rho_{Zr}^a(r) = \sum_k b_k (rb_k - r)^3 H(rb_k - r) \quad (3.11)$$

k	1	2	3	4
b_k	0,005659	-0,03008	0,09795	0,3912
rb_k	8,00	6,40	4,60	2,00

- Einbettende Energie Funktion für Zirkonium (/RUD 96/):

$$F_{Zr}(\rho) = a + b\sqrt{\rho} + c \cdot \rho \quad (3.12)$$

a	b	c	ρ_{cutoff}
0	-15,41	13,21	1,2639

- Paarweises Potential für Zr-Zr (/RUD 96/):

$$\phi_{ZrZr}(r) = \sum_k a_k (ra_k - r)^3 H(ra_k - r) \quad (3.13)$$

k	1	2	3	4	5
a_k	-0,0324	9,8611	9,755	-2,6295	0,2896
ra_k	5,50	3,35	2,90	2,50	1,50

- Paarweises Potential für Zr-H (/RUD 96/):

$$\phi_{ZrH}(r) = \sum_k a_k (ra_k - r)^3 H(ra_k - r) \quad (3.14)$$

k	1	2	3	4	5
a_k	-0,0018339	0,5541	0,4610	0,2093	4,4860
ra_k	5,50	3,35	2,90	2,50	1,50

3.4.1.2 Python-Library *atsim.potentials*

Die oben gelisteten Funktionen wurden in Python implementiert (siehe auch Anhang B):

- *makeHeavisideSum* entspricht den Formeln (3.11), (3.13), und (3.14).
- *makeEmbedZr* entspricht der Formel (3.12).
- *makeEmbedH* entspricht der Formel (3.8).
- *makePairPotZrZr* entspricht der Formel (3.13).
- *makePairPotHH* entspricht der Formel (3.10) und benutzt dazu die cutoff Funktion (3.6).
- *makePairPotZrH* entspricht der Formel (3.14).
- *makeDensityFuncH* entspricht der Formel (3.7).
- *makeDensityFuncZr* entspricht der Formel (3.11).

In der Python-Funktion *makePotentialObjects* sind alle genannten Parameter entsprechend implementiert. Damit wurde dann ein *eamPotentials*-Objekt (Atomzahlen, Massenzahlen, einbettende Funktionen, Elektronendichte Funktionen, Kristallstruktur) und ein *pairPotentials* Objekt (paarweise Interaktionen für H-H, Zr-Zr, und H-Zr) erstellt, die von der Funktion *makePotentialObjects* zurückgegeben werden.

Schließlich liefert die *main()* Funktion die Potential-Datei, abhängig von:

- **nrho**: Anzahl an Werten für die Elektronendichte (von Einbettenden Funktionen benutzt)
- **drho**: Schritt zwischen den Werten der Elektronendichten
- **nr**: Anzahl an Werten für den Radius (von Elektronendichte und paarweisen Interaktionen-Funktionen benutzt)
- **dr**: Schritt zwischen den Werten der Radii

Mit diesen vier Parametern und den Objekten *eamPotentials* und *pairPotentials* wird die tabulierte Potential-Datei anhand der *atsim.potentials* Funktion *writeSetFL* geschrieben.

3.4.2 Ausgewählte Ergebnisse

3.4.2.1 Erste Simulationen mit EAM-Potential für reines Zirkonium

Die ersten Simulationen wurden für reines Zirkonium durchgeführt, also keine Zirkaloy-Legierung. Ziel war, das geometrische Model (Simulationsbox) zu erstellen und dabei ein schon vorhandenes und überprüftes Potential zu benutzen. In dem Fall wurde die EAM-Potential-Datei *Zr_3.eam.fs* von M. I. Mendeleev und G. J. Ackland /MEN 07/, aus dem *NIST Interatomic Potentials Repository* übernommen.

Zwei Systemgrößen wurden für die Simulationsbox benutzt: 16 x 16 x 16 (16.384 Zr-Atome, da es vier Zirkonium-Atome pro Elementarzelle gibt), und alternativ 24 x 24 x 24 (55.296 Zr-Atome). Für jede Größe wurden drei Temperaturen getestet: 300 K, 500 K und 700 K. Am Anfang der Simulation sind die Atome in einer Position eines perfekten hcp-Gitters (kompaktes hexagonales Kristallsystem) ausgerichtet, mit einem Gitterparameter von 3,23 Å. Die gewählte Temperatur bestimmt die Geschwindigkeit der Atome, über die Simulationslaufzeit sind Temperatur und Druck fixiert. Dafür kann das Volumen der Simulationsbox (und dementsprechend das Gitterparameter) variieren. Es wird so dann eine Energieminimierung durchgeführt, um den Equilibrium-Zustand mit den entsprechenden Parametern zu bestimmen. Abb. 3.14 stellt die Start-Konfiguration für die 16 x 16 x 16 Box dar. Die Simulation wurde über 100.000 Zeitschritte von je 10^{-3} ps durchgeführt. Abb. 3.15 zeigt die Simulationsbox am Ende der Simulation bei einer Temperatur von 700 K. Die Struktur des Materials ist fast unverändert, außer durch sehr kleine Änderungen der Atompositionen (die Atome sind nicht mehr perfekt ausgerichtet). In der Tab. 3.4 sind die Ausgangsdaten der Simulationen zusammengefasst: Gitterparameter a und c und kohäsive Energie. Die Gitterparameter sind in sehr guter Übereinstimmung mit experimentellen Daten, die in Tab. 3.5 zu finden sind /VER 91/, /FOI 86/, /SZP 99/. Die durch die Simulationen ergebenden kohäsiven Energien sind größer als die Werte aus Experimenten, sie bleiben aber innerhalb einer maximalen Abweichung von 5 Prozent. Die Größe der Simulationsbox hat hier keinen Einfluss auf die Ergebnisse der Simulationen.

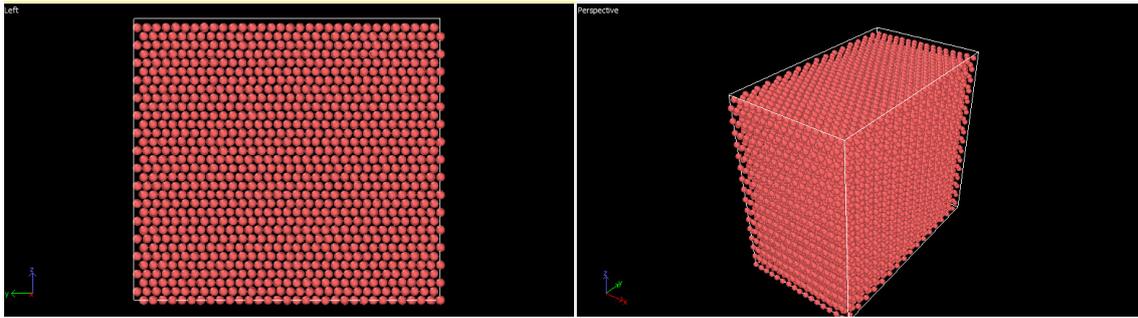


Abb. 3.14 Simulationsbox am Anfang der Simulation

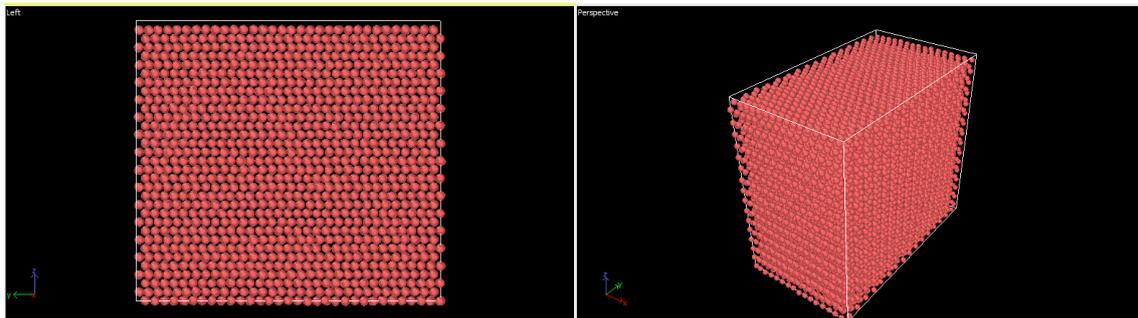


Abb. 3.15 Simulationsbox am Ende der Simulation, bei einer Temperatur von 700 K

Tab. 3.4 Ausgangsdaten der Simulationen für das reine Zirkonium mit dem Potential von Mendeleev et al /MEN 07/

Simulations-box	Temperatur [K]	a [Å]	c [Å]	c/a	Ec [eV]
16 x 16 x 16	300	3,231	5,174	1,602	-6,595
16 x 16 x 16	500	3,233	5,184	1,604	-6,569
16 x 16 x 16	700	3,236	5,187	1,603	-6,538
24 x 24 x 24	300	3,230	5,174	1,602	-6,596
24 x 24 x 24	500	3,232	5,182	1,604	-6,568
24 x 24 x 24	700	3,236	5,188	1,603	-6,538

Tab. 3.5 Gitterparameter für die Molekulardynamik Simulation aus Experimenten (Wertebereiche) aus /VER 91/, /FOI 86/, /SZP 99/

Temperatur [K]	a [Å]	c [Å]	a [Å]	c [Å]	E _{coh} [eV]
300	3,231 – 3,236	5,144 – 5,153	3,231 bis 3,233	5,148 bis 5,182	-6,32 bis -6,36
500	3,233 – 3,237	5,153 – 5,158			
700	3,235 – 3,239	5,163 – 5,168			
Quelle	/VER 91/		/FOI 86/ und /SZP 99/		

3.4.2.2 Anwendung des gemischten Potentials für die Simulation von reinem Zirkonium

Die EAM-Potential-Datei, die im Rahmen dieses Vorhabens erstellt wurde, wurde als nächstes getestet. Sie wurde erstmals für die Simulation von reinem Zirkonium angewandt. Dafür wurden die gleichen Simulationen wie im vorherigen Kapitel durchgeführt, aber mit der neuen Potential-Datei. Der Startpunkt der Simulation ist identisch, wie in der Abb. 3.14 dargestellt. Aber insgesamt haben die Simulationen zu größeren Gitterparametern geführt, die weiter entfernt zu den experimentellen Daten liegen: Die Simulationen ergeben erhöhte Gitterparameter, überschätzt von bis 4 % für a und bis 7 % für c. Die kohäsive Energie, die mit dem ersten Potential leicht zu stark war, ist mit diesem neuen Potential unterschätzt, aber auch innerhalb von 5 %. Die Ausgangsdaten sind in der Tab. 3.6 zusammengefasst und Abb. 3.16 zeigt die Simulationsbox für den Fall einer Temperatur von 700 K und mit 16 x 16 x 16 Atomen. Die Struktur des Zirkoniums ist immer noch gut zu beobachten.

Tab. 3.6 Ausgangsdaten der Simulationen für reines Zirkonium mit dem neu entwickelten Potential

Box-Größe	Temperatur [K]	a [Å]	c [Å]	c/a	E _c [eV]
16 x 16 x 16	300	3,336	5,487	1,645	-6,114
16 x 16 x 16	500	3,349	5,488	1,639	-6,090
16 x 16 x 16	700	3,360	5,498	1,636	-6,068
24 x 24 x 24	300	3,339	5,490	1,644	-6,117
24 x 24 x 24	500	3,353	5,494	1,639	-6,098
24 x 24 x 24	700	3,362	5,505	1,637	-6,072

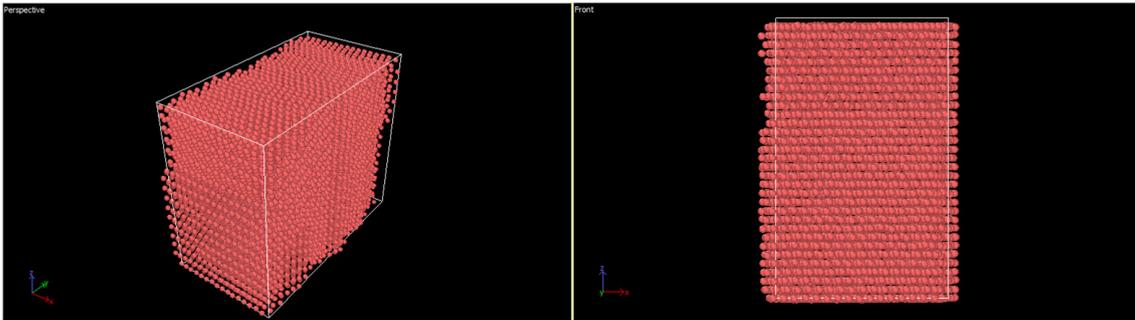


Abb. 3.16 Simulationsbox am Ende der Simulation mit dem neu entwickelten Potential, bei einer Temperatur von 700 K

3.4.2.3 Anwendung des gemischten Potentials für die Simulation von Zirkonium mit gelöstem Wasserstoff

Nach den Testen des gemischten Potentials auf reines Zirkonium wurden Simulationen mit gelöstem Wasserstoff im Zirkonium-Gitter durchgeführt (siehe Anhang). Dafür wurde erstmal eine Zirkonium Box wie in den vorherigen Simulationen definiert. Dazu wurden dann Wasserstoffatome in der Box zufällig verteilt. Im $16 \times 16 \times 16$ Box (bzw. $24 \times 24 \times 24$ Box) wurden 75 Atome (bzw. 253 Atome) von Wasserstoff hinzugefügt, was einer Konzentration von 50 wppm entspricht. Zu dieser Konzentration ist normalerweise der Wasserstoff bei 700 K komplett gelöst, zum Teil aufgelöst und zum Teil ausgefällt bei 500 K und fast komplett ausgefällt bei 300 K. Die Startkonfiguration ist auf der Abb. 3.17 dargestellt. Die Wasserstoffatome werden als blaue Kügelchen dargestellt.

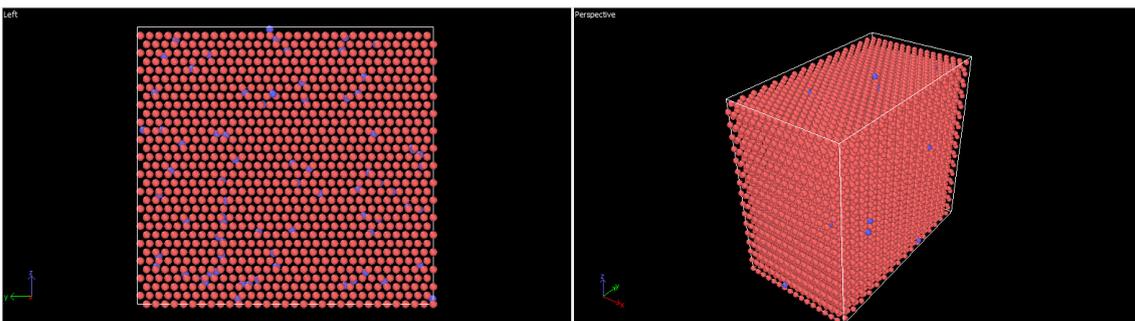


Abb. 3.17 Startkonfiguration der Simulation mit 50 wppm Wasserstoff (75 Atome, mit blauen Kügelchen dargestellt) zufällig verteilt

Die meisten Simulationen haben sich als instabil erwiesen. Am Ende der Rechnungen hatte das Zirkonium seine Gitterstruktur komplett verloren und die Wasserstoffatome hatten sich zum größten Teil außerhalb der Simulationsbox verteilt. Die Abb. 3.18 zeigt ein Beispiel eines solchen (unphysikalischen) Endzustands.

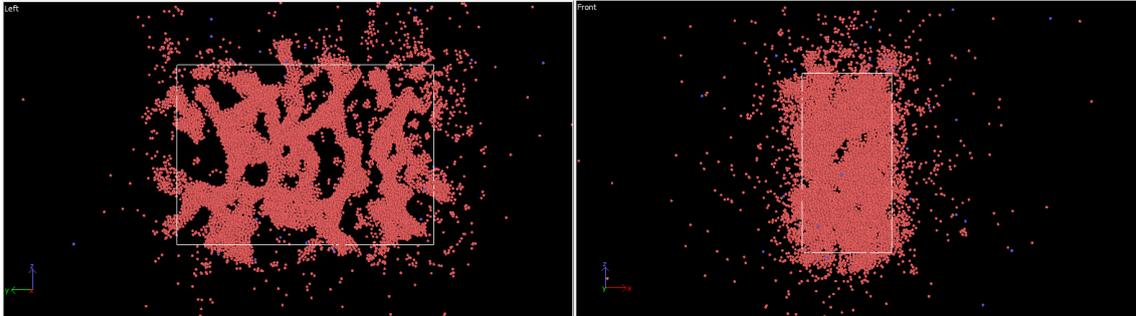


Abb. 3.18 Endzustand der Simulationen für Zirkonium mit Wasserstoff, mit instabilem Rechnungsergebnis

Eine Simulation hat trotzdem ein gutes Ergebnis gezeigt: Bei einer Temperatur von 700 K hat die $16 \times 16 \times 16$ Box eine Kristallstruktur bis zum Ende der Simulation (200.000 Zeitschritte, insgesamt 20 ns) behalten, wie in der Abb. 3.19 dargestellt. Das gesamte Zr-Gitter ist nicht mehr perfekt eingerichtet, sondern weist gewisse Trennflächen auf (besonders sichtbar auf dem oberen linken Bild der Abb. 3.19). Dazu bilden sich Zirkonium-Clusters um die Wasserstoffatome (ersichtlich auf dem unteren linken Bild in Abb. 3.19). Die Ausgangsparameter der Simulation sind in der Tab. 3.7 zusammengefasst.

Leider hat die äquivalente Simulation (50 wppm Wasserstoff bei 700 K) mit der $24 \times 24 \times 24$ Box zu einem Endzustand ohne erhaltende Struktur geführt, was die Effizienz des gemischten Potentials wieder in Frage stellt. Vermutlich sind die Interaktionen zwischen Zirkonium und Wasserstoff noch nicht korrekt festgelegt, oder nicht geeignet. Die in Abb. 3.19 dargestellte Simulation könnte wahrscheinlich mit längerer Simulationszeit ebenfalls instabile Lösungen produzieren. Eine genauere Betrachtung der Reproduzierbarkeit der Simulationsergebnisse konnte in der vorliegenden Arbeit nicht mehr untersucht werden.

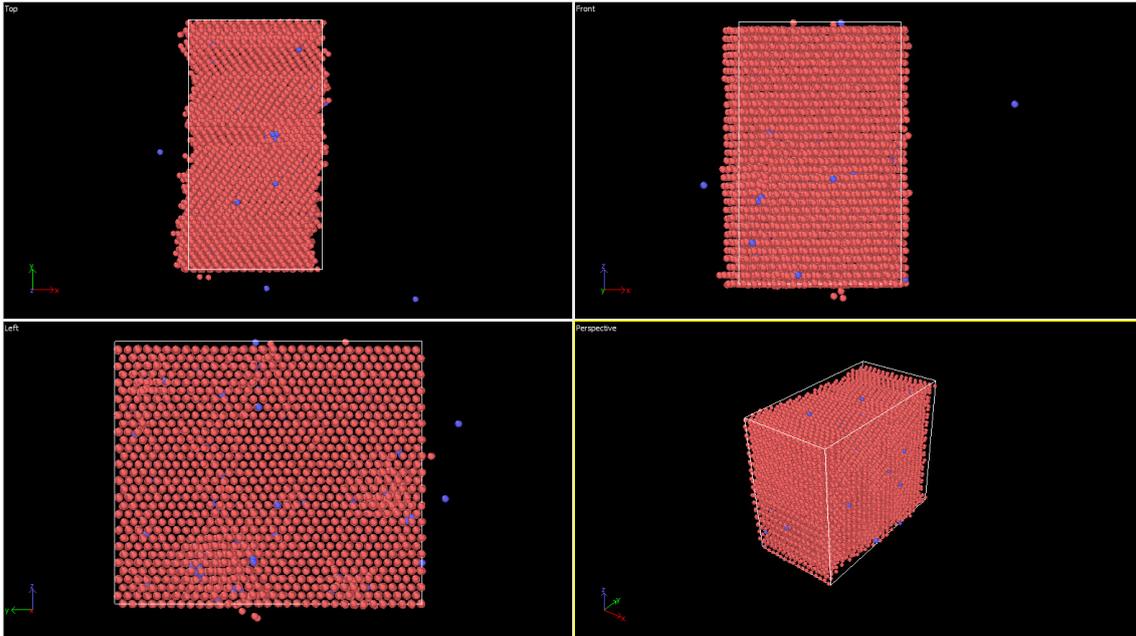


Abb. 3.19 Endzustand der Simulation mit 16 x 16 x 16 Zr-Atome, 75 H-Atome, und bei 700 K

Tab. 3.7 Ausgangsparameter der Simulation mit 16 x 16 x 16 Zr-Atome, 75 H-Atome, und bei 700 K

Simulationsbox	Temperatur [K]	a [Å]	c [Å]	c/a	Ec [eV]
16 x 16 x 16	700	3,392	5,515	1,626	-6,003

3.4.3 Weitere Untersuchungen: Steuerungsparameterstudie

Zwei Rechenparameter, die von LAMMPS zu jedem Zeitschritt benutzt wurden, wurden untersucht:

- *Drag*: dieser Steuerungsbefehl ermöglicht, Druck- oder Temperaturosillationen zu dämpfen. Je größer der Koeffizient ist, desto stärker ist der Dämpfungseffekt.
- *nve/limit x_{max}* : Nach jedem Zeitschritt, wenn Positionen und Geschwindigkeiten der Atome aktualisiert werden, ist eine Grenze (x_{max}) bezüglich der maximalen Distanz (in Å) aufgezwängt, dass ein Atom während eines Zeitschrittes zurücklegen kann. Das soll vermeiden, dass sehr nah beieinanderliegende Atome (besonders am Start der Simulation, aufgrund der zufälligen Wasserstoff-Verteilung) herausgeschleudert werden aufgrund der resultierenden starken Abstoßungskräfte.

Beide Parameter haben eine gewisse Auswirkung auf die Ergebnisse der Simulation aufgewiesen, jedoch hat bislang keine Kombination von diesen Steuerungsparametern ermöglicht, ein stabiles Zirkonium-Gitter zu behalten. In Tab. 3.8 sind 5 Bereiche unterschieden, die verschiedenen Verhalten der Simulationen entsprechen, welche danach kurz beschrieben sind.

Tab. 3.8 Unterscheidung von verschiedenen Verhaltensbereichen für die Simulationen, abhängig von den Parametern Drag und nve/limit

Drag \ nve limit	0,05	0,1	0,2	0,4	0,7	1,0
0,1	1	2	3	5		
0,2			4			
0,4						
0,7						
1,0						

Bereich 1

In diesem Bereich, wo die Atombewegungen am stärksten beschränkt sind (0,05 Å), bilden sich während der Simulationen Wasserstoff-Clusters. Die Zirkonium Atome verteilen sich homogen, ohne Struktur zu behalten, und die Wasserstoff-Atome versammeln sich in kleinen Haufen.

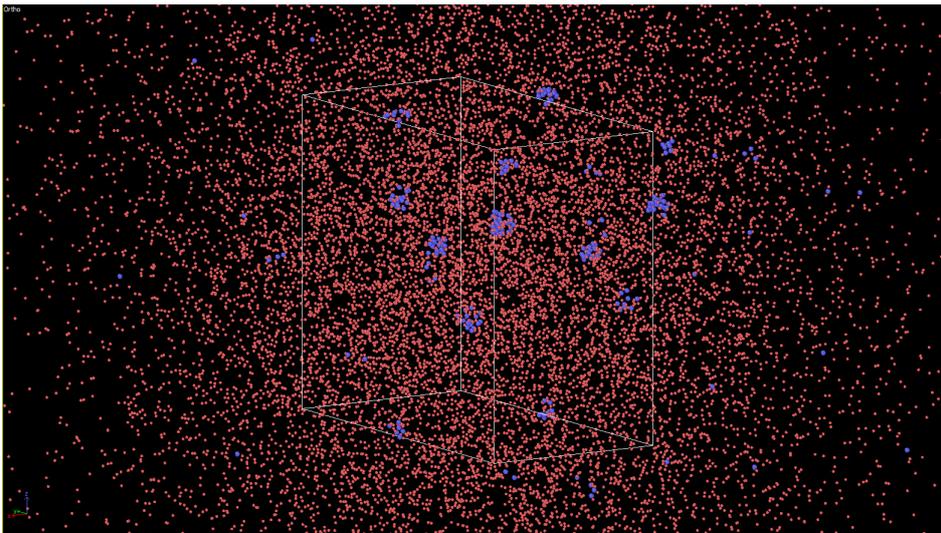


Abb. 3.20 Grafische Darstellung des Bereiches 1

Bereich 2

Dieser zweite Fall ergibt sich mit einer leicht höheren maximalen Bewegungsmöglichkeit per Zeitschritt ($0,1 \text{ \AA}$). Hier sind dann sowohl die Zirkonium- als auch die Wasserstoffatome ohne Struktur homogen verteilt am Ende der Simulationen.

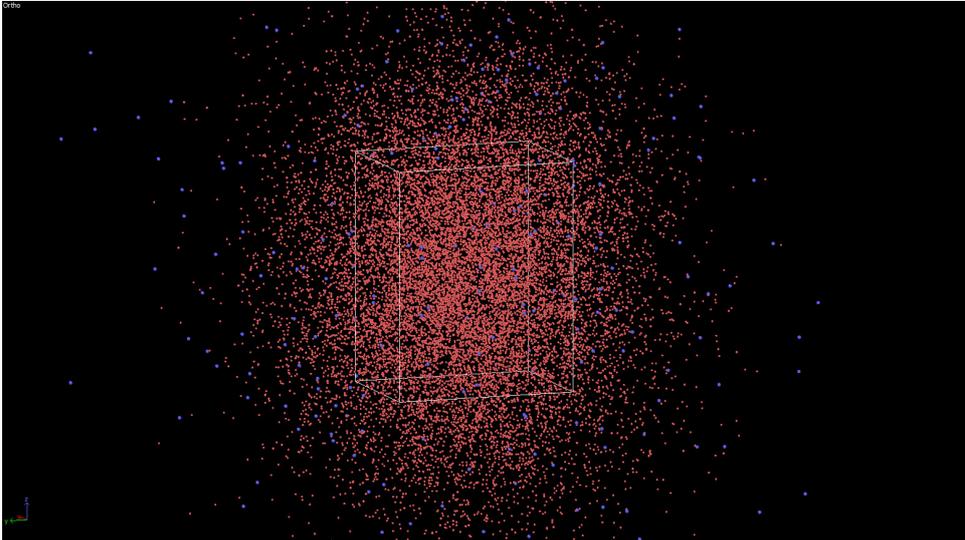


Abb. 3.21 Grafische Darstellung des Bereiches 2

Bereich 3

Dieser Fall wurde mit $x_{\text{max}} = 0,2 \text{ \AA}$ und einem Dämpfen Faktor von $0,1$ erhalten. Die Wasserstoffatome verteilen sich weit aus der Simulationsbox, während die Zirkoniumatome ein periodisches Muster bilden. Möglicherweise könnte dieser Fall mit einer längeren Simulationszeit unter den Fällen des Bereiches 4 zählen.

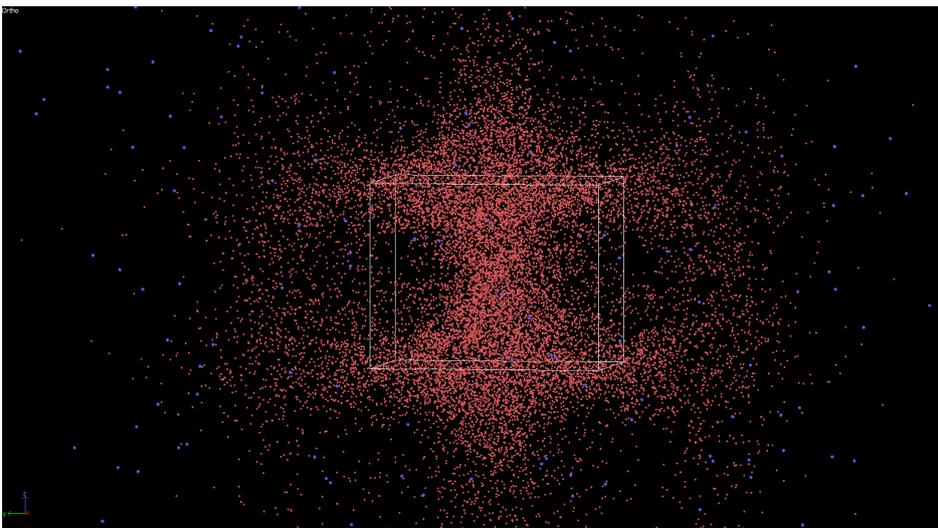


Abb. 3.22 Grafische Darstellung des Bereiches 3

Bereich 4

Hier fangen die Simulationen wie im vorherigen Fall an, die Wasserstoffatome verteilen sich weit aus der Simulationsbox und die Zirkoniumatome bilden ein periodisches Muster. Jedoch verschwindet das Muster vor dem Ende der Simulation, indem die Zirkoniumatome sich auch homogen verteilen. Verglichen zum Bereich 3 ist nur der Dämpfungsfaktor etwas höher (0,2 und 0,4).

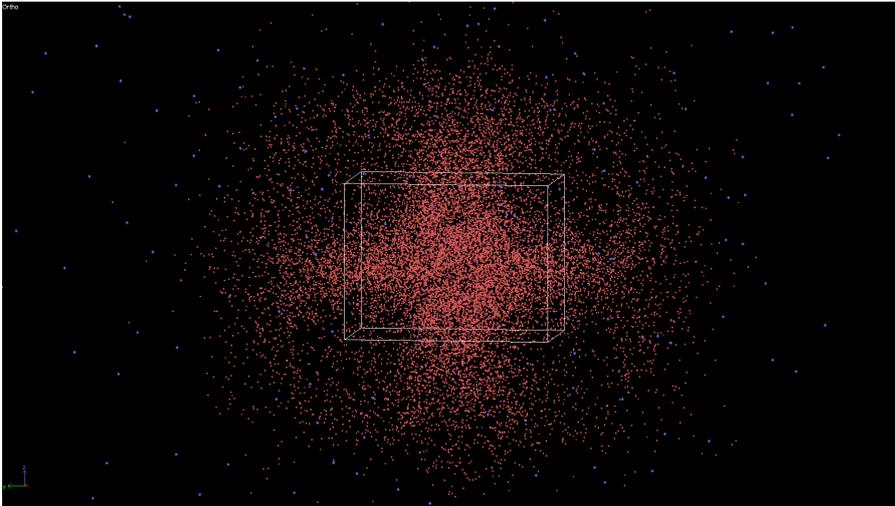


Abb. 3.23 Grafische Darstellung des Bereiches 4 während der Simulation

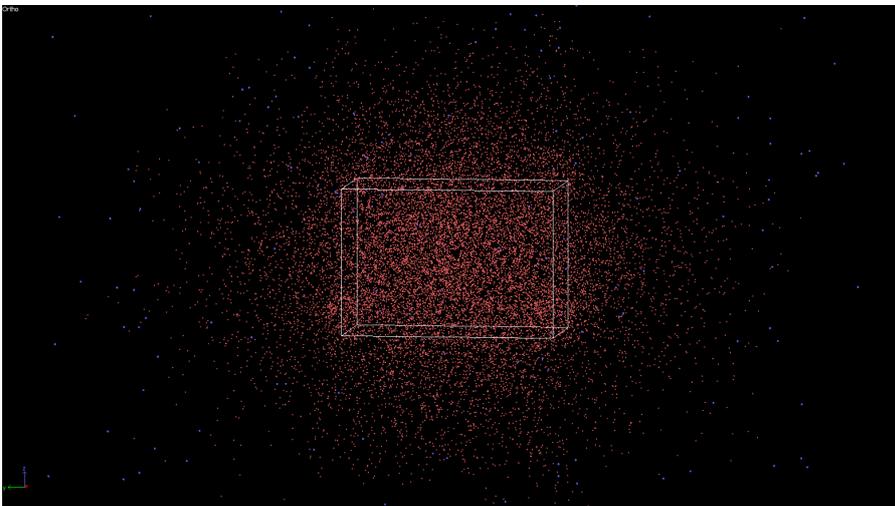


Abb. 3.24 Grafische Darstellung des Bereiches 4 zum Ende der Simulation

Bereich 5

Dieser Bereich betrifft die Simulationen mit einem $x_{\max} \geq 0,4 \text{ \AA}$. Hier verteilen sich die Wasserstoffatome auch weit aus der Simulationsbox, diesmal bilden die Zirkoniumatome Clusters.

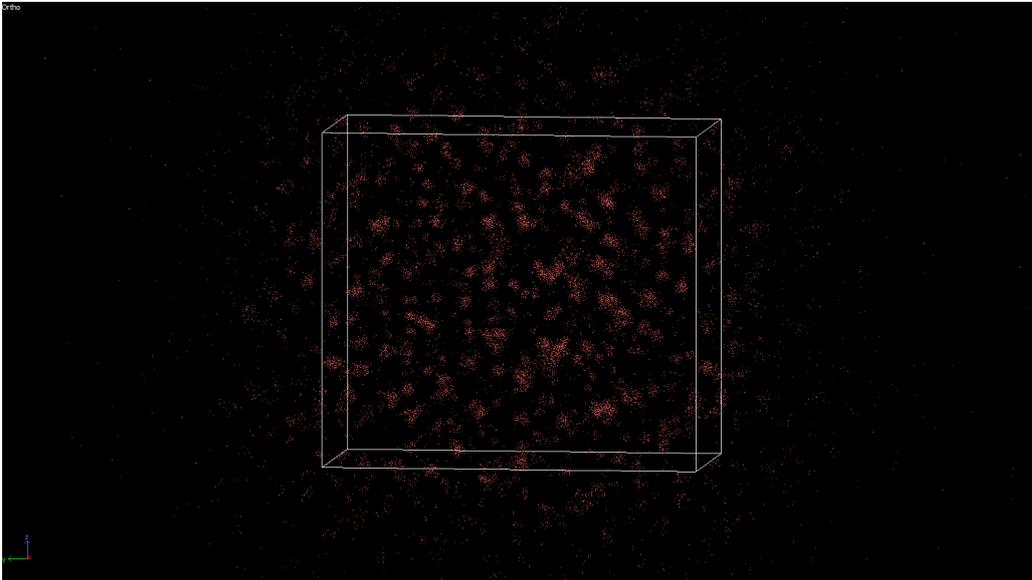


Abb. 3.25 Grafische Darstellung des Bereiches 5

3.4.4 Zusammenfassung und Ausblick

Wegen der fehlenden Verfügbarkeit einer spezifischen Potential-Datei zur Untersuchung des Wasserstoff-Zirkonium-Systems durch Molekulardynamik wurde im Rahmen dieses Vorhabens eine eigene EAM-Potential-Datei erstellt. Dies wurde durch das Mischen von Korrelationen aus zwei Literaturstellen mit der Anwendung einer Python-Library, *atsim.potentials* verwirklicht

Erste MD-Simulationen wurden für reines Zirkonium durchgeführt. Es wurden die Gitterparameter und die kohäsive Energie untersucht. Zuerst wurde dafür ein Potential für reines Zirkonium aus dem NIST *Interatomic Potentials Repository* benutzt, um sich mit LAMMPS vertraut zu machen. Dadurch konnte überprüft werden, dass die Simulationsergebnisse gut die experimentellen Werte wiedergeben können. Danach wurden die gleichen Simulationen mit der neu erstellten Potential-Datei durchgeführt: diese Datei wurde für das Wasserstoff-Zirkonium-System aufgebaut, darunter fällt auch der Sonderfall vom reinen Zirkonium. Diese Simulationen haben Ergebnisse geliefert, die etwas weiter von den experimentellen Werten entfernt lagen, aber trotzdem akzeptabel waren:

Gitterparameter waren bis 7 % überschätzt. Dazu hat sich die Zirkonium-Kristallstruktur bei allen Simulationen als stabil erwiesen.

Nach den Simulationen mit reinem Zirkonium wurden Tests mit Zirkonium und Wasserstoff gestartet. Dafür wurde im Zirkoniumgitter eine gewisse Anzahl an Wasserstoffatomen zufällig verteilt, die einer Konzentration von 50 wppm entspricht. Diese Simulationen haben fast ausschließlich zu einem Verlust der Zirkonium-Kristallstruktur geführt. Ein einziger Fall hatte am Ende der Simulation noch eine Kristallstruktur mit interessanten Trennflächen. Insgesamt scheinen die Interaktionen zwischen Zirkonium und Wasserstoff durch die Potential-Datei nicht richtig festgelegt oder geeignet zu sein. Zwei Rechenparameter wurden untersucht, und es wurde nachgewiesen, dass sie einen bedeutenden Einfluss auf den Verlauf der Simulationen haben, jedoch ohne stabilere Simulationen zu ermöglichen.

Um nutzbare Ergebnisse aus MD-Simulationen zu bekommen, sollte die Potential-Datei grundsätzlich erneut überdacht werden. Das würde einen gewissen Aufwand entsprechen. Selbst mit einem effizienten Potential würden die MD-Rechenzeiten die Simulationen auf einige Nanosekunden oder Mikrosekunden begrenzen. Das bedeutet, dass nur Gleichgewichtszustände simuliert werden könnten, während Diffusion, Auflösen- oder Ausfällungsphänomene ausgeschlossen bleiben würden. Im Rahmen des vorliegenden Vorhabens war dies nicht mehr möglich.

3.5 Spröbruchübergangstemperatur

Die Spröbruchübergangstemperatur (DBTT) ist prinzipiell abhängig von vielen Faktoren, so u. a. von der Gefügestruktur, der Geometrie, der Art der Belastung, dem Gesamtwasserstoffgehalt sowie der Hydridorientierung des Hüllrohrs. Vor allem aber ist die Definition der DBTT sowie die angewandte Messmethode ausschlaggebend für das Verständnis.

Die hier ausgewerteten Untersuchungen beziehen sich auf die Versuche an Ringdrucktests bestrahlter Brennstäbe. Das Argonne National Laboratory (ANL) untersuchte mehrere Hüllrohrproben, um den Übergang vom duktilen zum spröden Verhalten zu bestimmen /DOE 13/. Dieses Verfahren enthält zwei Schritte: 1. Eine Behandlung zur Hydridreorientierung (*Radial hydride treatment*, RHT), bei der versiegelte Hüllrohrproben

auf 400 °C erhitzt und langsam abgekühlt werden; sowie 2. ein Ringdrucktest (*Ring compression test*, RCT), bei dem die Probe auf eine vorgegebene Temperatur zwischen Raumtemperatur und 200 °C erhitzt und anschließend getestet wird. Die verbleibende plastische Dehnung nach dem RCT wird als Kriterium für die Versprödung genommen, wobei eine Dehnung von unterhalb 2 % als spröde angenommen wird.

3.5.1 Testschema für Ringdrucktests zur Bestimmung der DBTT

In Abb. 3.26 und Abb. 3.27 ist das Testschema dargestellt. Abb. 3.26 zeigt den Temperaturverlauf während des RHT. In Abb. 3.27 sind die Temperaturen des späteren RCT dargestellt, sowie die Löslichkeitskurven von TSSd und TSSp¹. Eine 80 mm lange Zirlo-Probe, die mit Argon-Gas gefüllt ist, wird bis auf 400 °C aufgeheizt (blauer Pfeil). Der Füllgasdruck ist so eingestellt, dass bei Erreichen der 400 °C der Gasdruck eine Zugspannung auf die Hüllrohrprobe ausübt. Die Höhe des Drucks ist im jeweiligen Test gegeben. Bei den bei RHT erreichten Temperaturen besitzt das Hüllrohrmaterial eine Löslichkeit von etwa über 200 wt.ppm Wasserstoff (TSSd-Linie). In diesem Zustand lösen sich bestehende Hydride auf, die beim anschließenden Abkühlen wieder ausscheiden. Je nach Höhe der Spannung bilden sich radiale oder umfangsgerichtete Hydride.

¹ TSSd/TSSp-Kurven aus TESP-ROD-Modell ohne Unsicherheiten

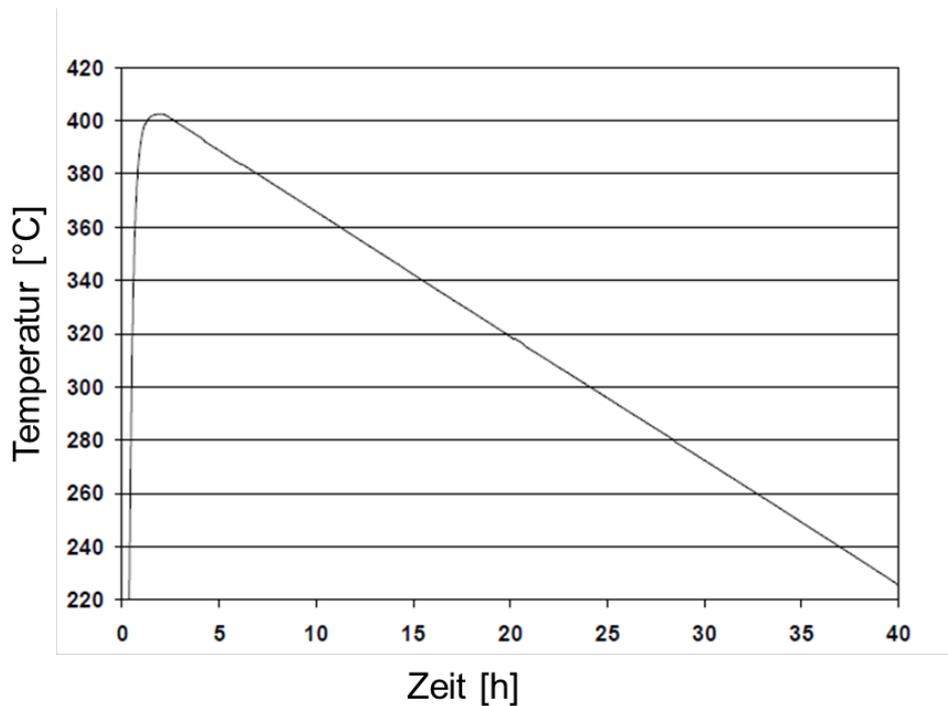


Abb. 3.26 Temperaturverlauf eines RHT-Zyklus /DOE 13/

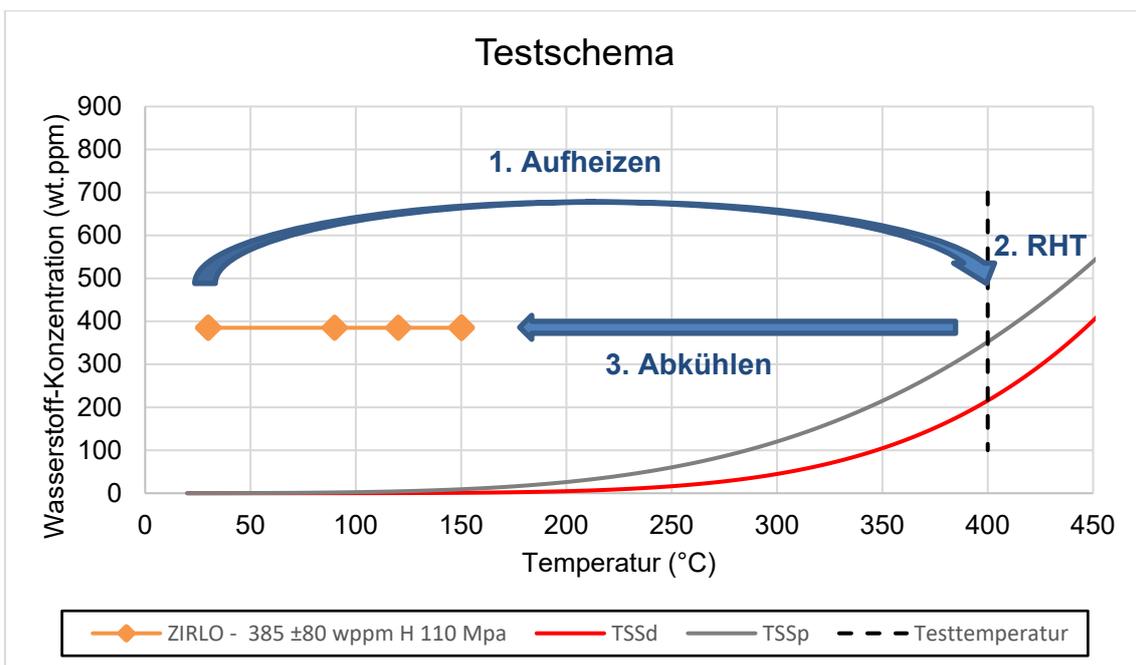


Abb. 3.27 Testschema für das RHT und RCT

Nach dem RHT (blaue Pfeile) werden vier RCT zu vier unterschiedlichen Temperaturen (orange Punkte) durchgeführt. TSSd markiert die Löslichkeit vom Wasserstoff in der Hüllrohrprobe

Die Abkühlung erfolgt bis auf 200 °C bei Zircaloy-4 und Zirlo bzw. 135 °C bei M5 mit einer konstanten Abkühlrate von 5 °C/h. Anschließend kühlen die Proben schneller bis

zur Raumtemperatur ab. Für die weitere Verwendung wird die Probe in Ringe geschnitten, wobei einige der Ringe für Untersuchung der Hydridverteilungen, -orientierungen und -längen dienen. Hierzu wird eine durchschnittliche relative Hydridlänge (*Radial Hydride Continuity Factor*, RHCF) bestimmt, die dem Verhältnis der Länge der radialen Hydride zu der Hüllrohrwandstärke entspricht (RHCF = 100 % entspricht Hydridlänge über gesamte Wandstärke).

Für die RCT werden die Ringe auf eine Testtemperatur zwischen Raumtemperatur und 200 °C gebracht. Die Gesamtzahl der Proben ist in Abb. 3.28 dargestellt. Alle hier verwendeten Proben wurden in Leistungsreaktoren bestrahlt. Da M5 eine geringere Wasserstoffaufnahme aufweist, enthalten die Proben auch hier nur geringe Konzentrationen von unter 80 wt.ppm Wasserstoff. Zirlo und Zircaloy-4 weisen deutlich höhere Wasserstoffaufnahmen auf, weshalb die getesteten Proben höhere Konzentrationen haben.

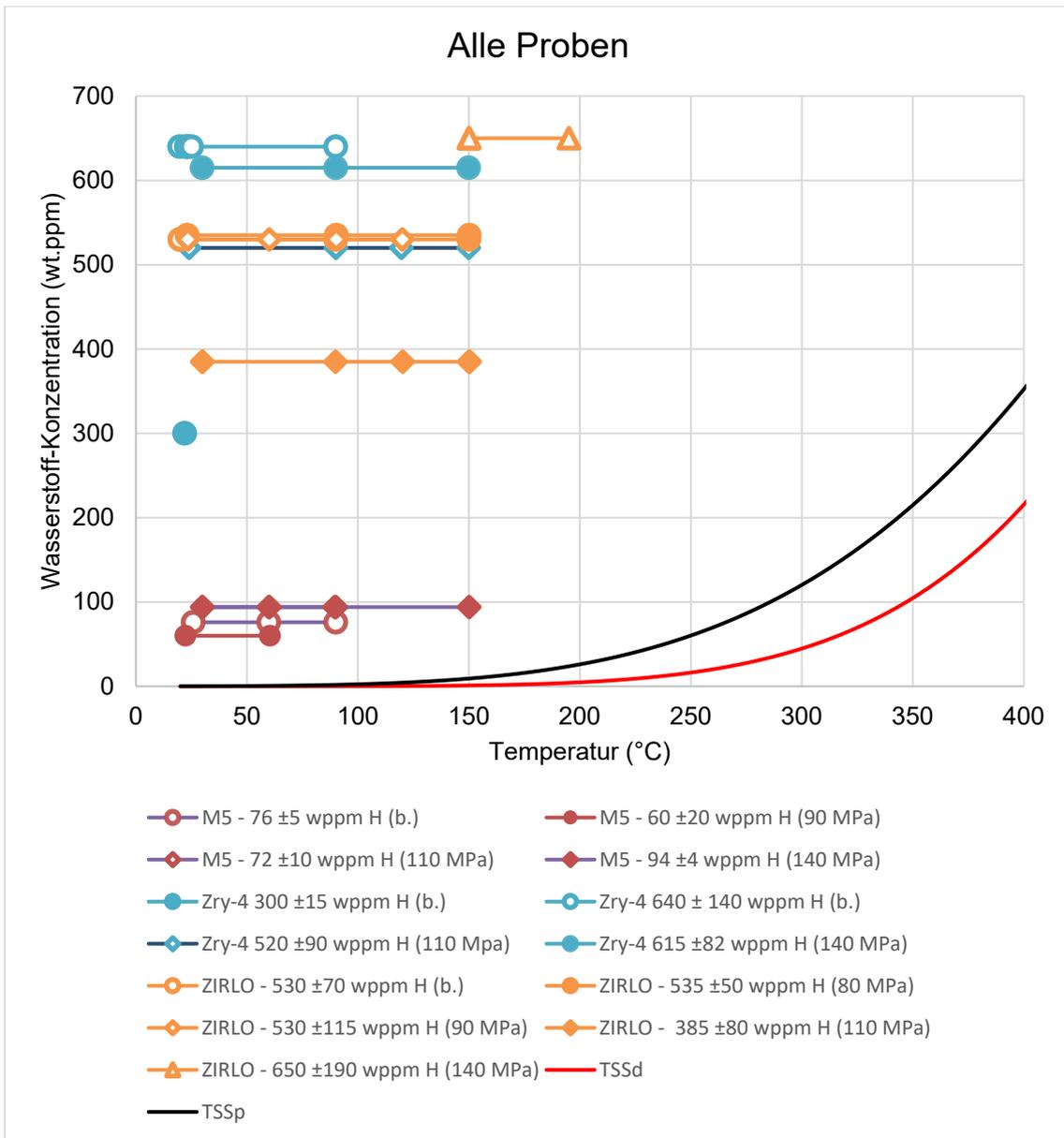


Abb. 3.28 Temperaturen für RCT für verschiedene Hüllrohrmaterialien und unterschiedlicher Wasserstoff-Gehalte

Im Folgenden werden die einzelnen RCT getrennt nach Hüllrohrmaterial untersucht. Hierbei wird die verbleibende Dehnung über die Temperatur der jeweiligen RCT dargestellt. Fällt zwischen zwei Messungen die verbleibende Dehnung auf geringe Werte unter 2 %, so liegt zwischen diesen beiden Temperaturen der Übergang von duktilem zu sprödem Verhalten vor (DBTT).

3.5.2 Ringdrucktests an M5

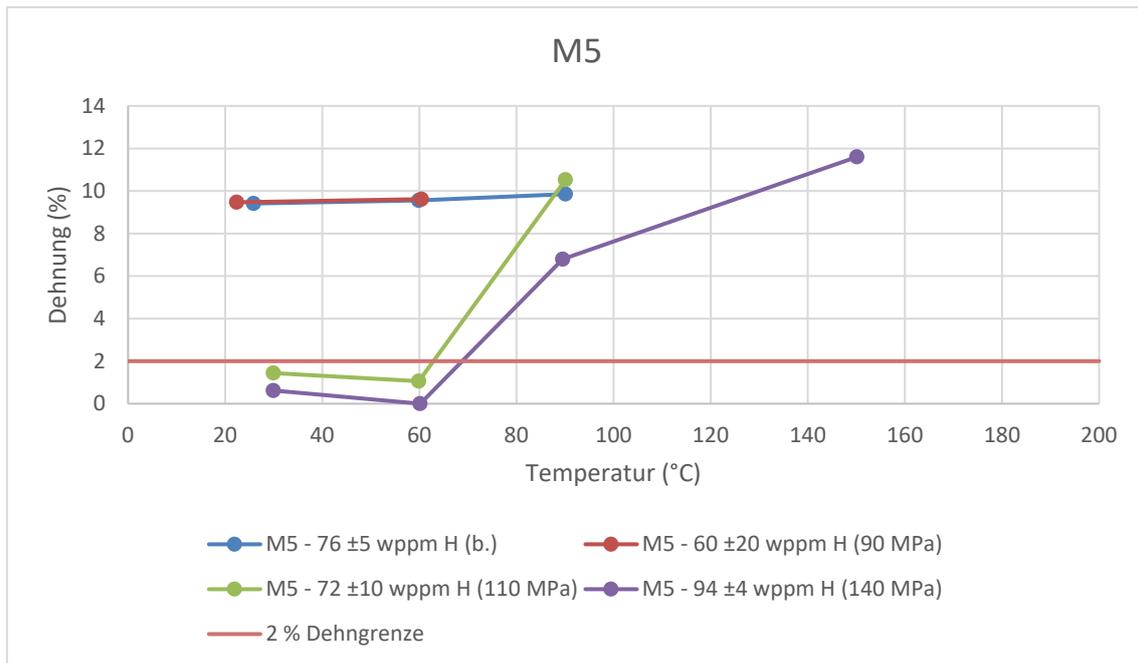


Abb. 3.29 Verfügbare bleibende Dehnung nach einem Ringdrucktest für M5-Proben

Es wurden vier Proben mit M5 Material untersucht (Abb. 3.29), wobei eine nur bestrahlt (b. im Diagramm) und keiner RHT ausgesetzt worden ist. Die Proben mit niedrigen RHT-Spannungen weisen durchgehend duktilen Verhalten für alle getesteten Temperaturen auf. Zwei Proben wurden während der RHT unter hohe Spannungen gesetzt (110 MPa und 140 MPa). Diese beiden Proben weisen bei Testtemperaturen unterhalb von 90 °C ein sprödes Verhalten auf.

Die M5-Proben weisen einen geringen H-Gehalt von unter 100 wt.ppm auf, d. h. bei dem RHT mit 400 °C lösen sich alle Hydride auf und bei der Abkühlung besteht die Chance, dass 100 % radiale Hydride entstehen. Diese radialen Hydride haben während des Wachstums keinerlei Hindernisse, wie z. B. rechtwinklig angeordnete Hydride, weshalb besonders lange Hydride entstehen können. Die gemessenen RHCF steigen mit der Spannung während der RHT und sind in Tab. 3.9 dargestellt. Hierbei zeigt sich, dass das rekristallisierte M5 besonders anfällig für lange Hydride ist. Unterhalb von 90 MPa liegt die DBTT unterhalb von 20 °C.

Tab. 3.9 Ergebnisse der Hydriduntersuchungen nach dem RHT für M5

Spannung bei RHT	90 MPa	110 MPa	140 MPa (3 Zyklen)
RHCF (%)	31 ± 15	61 ± 10	72 ± 12
C _H (wt.ppm)	60 ± 20	72 ± 10	94 ± 4
DBTT (°C)	< 20	70	75

3.5.3 Ringdrucktests an Zircaloy-4

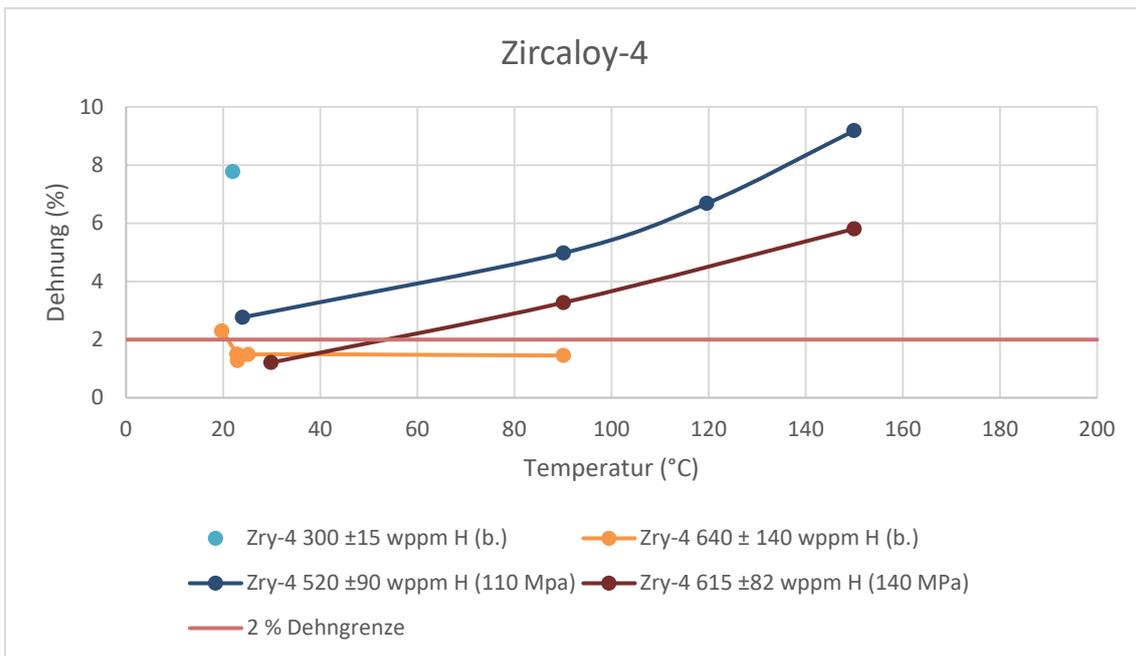


Abb. 3.30 Verfügbare bleibende Dehnung nach einem Ringdrucktest für Zircaloy-4-Proben

Es wurden vier Proben mit Zircaloy-4 untersucht (Abb. 3.30). Zwei Proben wurden im Reaktor bestrahlt (b.) und keiner RHT unterzogen. Die Probe mit dem geringen H-Gehalt von 300 wt.ppm verhält sich duktil, während die andere Probe mit 640 wt.ppm ein durchgehend sprödes Verhalten aufweist. Auffällig ist auch das Fehlen einer Art Stufe, dem sprunghaften Anstieg der Duktilität mit steigender Temperatur, wie es bei M5 (Abb. 3.29) und Zirlo (Abb. 3.31) der Fall ist. Nur da lässt sich nach dieser Methode die DBTT eingrenzen.

Drei verschiedene Proben zeigen, dass nicht nur die Spannung während des RHT einen Einfluss auf die Versprödung hat. Die Probe mit dem zweithöchsten H-Gehalt

(615 wt.ppm) wurde während des RHT einer sehr hohen Spannung von 140 MPa ausgesetzt und zeigt bei 90 °C duktiles Verhalten.

Es zeigt sich bei Zircaloy-4 eine Tendenz, dass die absolute Wasserstoffkonzentration einen größeren Einfluss auf die DBTT als das RHT hat. Hier ist zu bemerken, dass die Unsicherheiten bei der Bestimmung des H-Gehalts in den Proben sehr hoch sind, so dass sich die einzelnen Proben in der Größe ihrer Unsicherheit im H-Gehalt überschneiden. Eine eindeutige Aussage zu der DBTT lässt sich hier nicht treffen, da zu wenige Tests unter hohen Temperaturen vorliegen.

3.5.4 Ringdrucktests an Zirlo

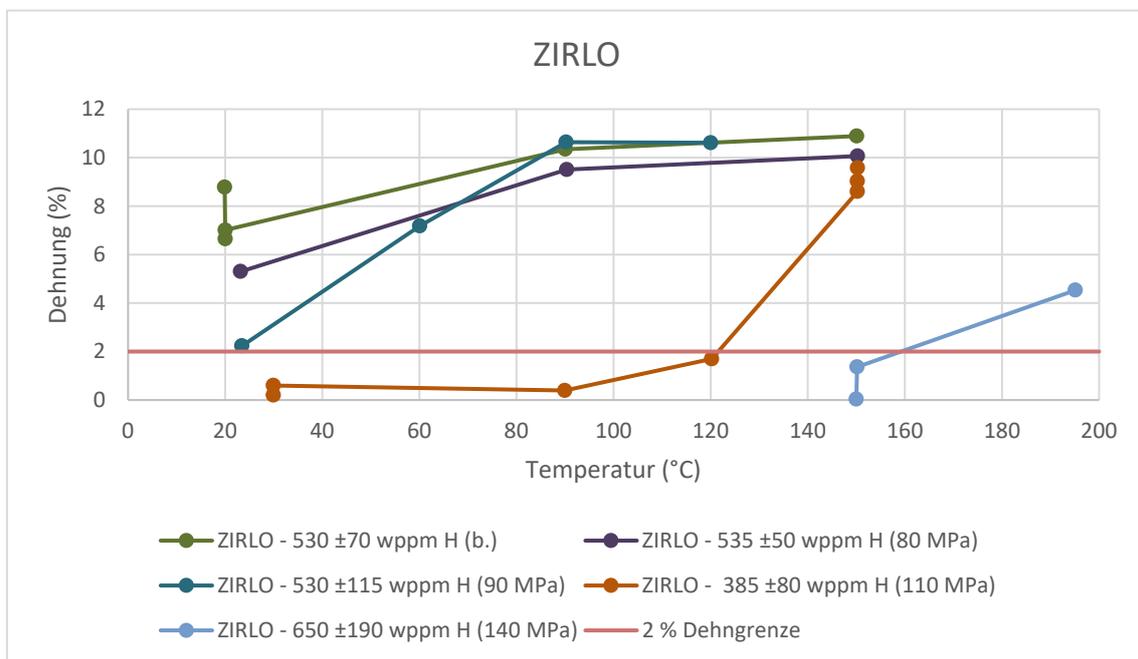


Abb. 3.31 Verfügbare bleibende Dehnung nach einem Ringdrucktest für Zirlo-Proben

Es wurden fünf Proben mit Zirlo-Hüllrohren untersucht. Insgesamt ergibt sich hier ein uneinheitliches Ergebnis, da es Proben gibt, die bei hohen Temperaturen von über 150 °C sprödes Verhalten aufweisen (mit einem vergleichsweise hohen H-Gehalt von 650 wt.ppm). Andere Proben weisen ein durchgehend duktiles Verhalten auf, so z. B. eine Probe mit 535 wt.ppm H nach einer RHT mit 80 MPa.

Die Proben weisen einen direkten Anstieg des RHCF mit dem Anstieg der Umfangsspannung während des RHT auf, wie in Tab. 3.10 dargestellt. D. h., dass Zirlo sensitiv für die Spannung während des RHT ist. Des Weiteren zeigt sich bei der Probe, dass wiederholtes Aufheizen und Abkühlen im Bereich von $\Delta T = 100$ °C für drei Zyklen keinen

Einfluss auf die durchschnittliche Länge der Hydride hat. Die DBTT macht einen großen Sprung zwischen RHT 90 MPa und 110 MPa mit Werten von $T = 20\text{ °C}$ bis 125 °C (Tab. 3.10).

Tab. 3.10 Ergebnisse der Hydriduntersuchungen nach dem RHT für Zirlo

Spannung bei RHT	80 MPa	90 MPa	90 MPa (3 Zyklen)	110 MPa	140 MPa
RHCF (%)	9 ± 3	19 ± 9	20 ± 9	30 ± 12	65
C_H (wt.ppm)	535 ± 50	530 ± 115	480 ± 131	385 ± 80	650 ± 190
DBTT (°C)	< 20	20	20	125	> 150

Die hier aufgeführten Untersuchungen zeigen, dass weder der H-Gehalt, noch die ange-setzte Spannung beim RHT die DBTT allein bestimmen und dieses Phänomen von meh-reren Parametern abhängt.

3.5.5 Zusammenfassung der Ergebnisse der Ringdrucktests

Die am ANL durchgeführten Experimente lassen keine allgemeingültige Aussage über die DBTT für alle Hüllrohrtypen zu. Es wurden an einzelnen Proben realistische Bestrah-lungen durchgeführt, weshalb die untersuchten Hüllrohrproben unterschiedliche H-Ge-halte aufweisen. Die erreichten Temperaturen der RHT liegen mit 400 °C gegenüber realistischen Trocknungsprozessen im Behälter vergleichsweise hoch. Die Abkühlraten nach dem RHT sind mit 5 °C/h zu schnell, als dass sie den realen Abkühlvorgang in der Trockenlagerung direkt abbilden könnten.

Das M5-Material verhält sich durch die vollständige Auflösung der Hydride, wie in den theoretischen Modellen für das Hydridwachstum beschrieben /KAU 18/. Höhere Span-nungen fördern hier das Wachstum langer und dünner, radial ausgerichteter Hydride. Durch den geringen Gesamtwasserstoffgehalt werden die Hydride nicht an ihrem Wachstum durch bestehende Hydride gehindert. Nach heutigen Erkenntnissen kann die-ser Effekt durch langsamere Abkühlraten noch verstärkt werden. M5 ist der einzige voll-ständig rekristallisierte Werkstoff (*recrystallized annealed*) in dieser Untersuchung, wes-halb über den Einfluss der Textur keine weiteren Aussagen getroffen werden können. Die DBTT spielt hier ab Spannungen von über 90 MPa eine Rolle und kann Temperatu-ren von bis zu 70 °C einnehmen.

Bei Zry-4 und Zirlo verhalten sich die Proben anders, da sie deutlich höhere Wasserstoffgehalte aufnehmen und außerdem nicht vollständig rekristallisierte Werkstoffe sind, sondern spannungsarm gegläht (*Stress relief annealed*, SRA) wurden. Es entsteht eine hohe Hydridkonzentration an der Hüllrohraußenseite (*hydride rim*), wie in Abb. 3.32 dargestellt. Die RHT löst nur einen Teil der Hydride, weshalb die Reorientierung insgesamt geringer ausfällt, wie z. B. in Abb. 3.33, bei der die Hydride von der Innenseite nach außen wachsen. Einige der Hüllrohrproben zeigen schon ohne RHT eine Versprödung aufgrund des hohen H-Gehalts (640 wt.ppm). Hier liegt die DBTT oberhalb der Testtemperaturen von 90 °C (Abb. 3.30). Ferner gab es Proben, die unter hohen Spannungen von 140 MPa einer RHT getestet worden sind, insgesamt hohe H-Gehalte aufweisen (615 wt.ppm) und dennoch bei 90 °C duktil bleiben. Hier stehen zu wenig Ergebnisse zur Verfügung um den Sachverhalt abschließend zu klären. Unbekannt ist hier, wie die bestrahlte Probe (ohne RHT) abgekühlt ist und welchen Einfluss die hohe Hydridkonzentration am Rand auf das mechanische Verhalten haben.

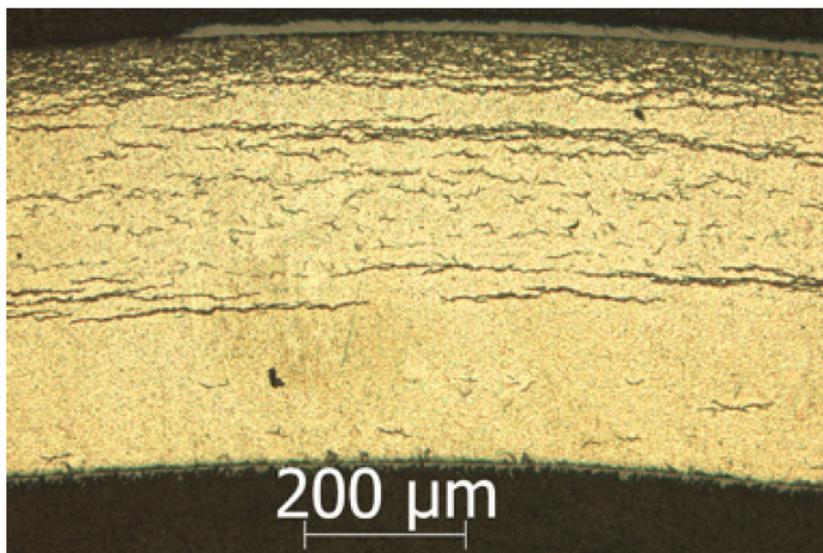


Abb. 3.32 Zirlo-Hüllrohrprobe nach der Bestrahlung mit sichtbarer Hydridkonzentration (*hydride rim*) an der Hüllrohraußenseite

Mittlerer H-Gehalt $C_H = 530$ wt.ppm, nach /DOE 13/

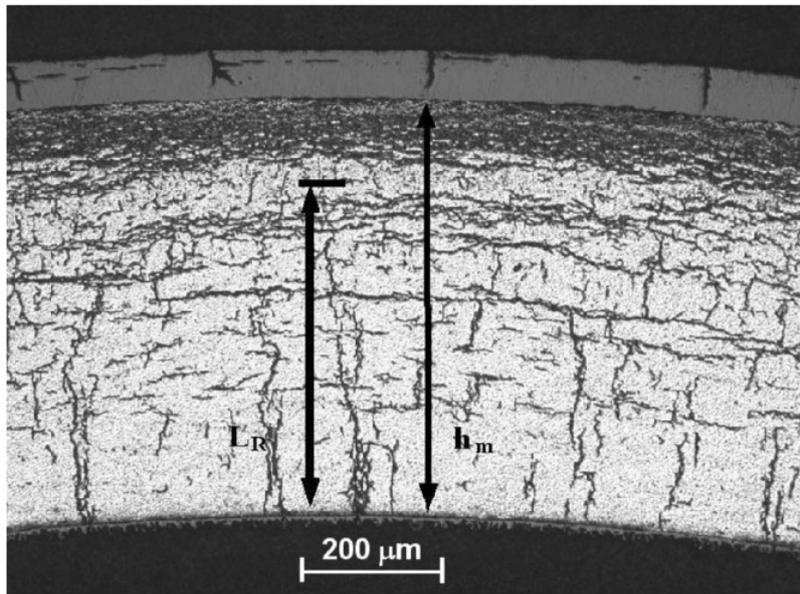


Abb. 3.33 Zirlo-Hüllrohrprobe nach einer RHT mit 140 MPa. Mittlerer H-Gehalt
CH = 650 wt.ppm

Eingezeichnet: Vermessung der RHCF nach /DOE 13/

Im Beispiel der DBTT zeigt sich dasselbe Phänomen wie bei der Bestimmung der TSSd und TSSp, da die Unsicherheiten bei diesen Messungen teilweise so groß sind, dass sich die Messergebnisse überschneiden. Für das Verständnis der beteiligten Phänomene müssen weitere Hüllrohrproben vermessen und untersucht werden. In Zukunft muss außerdem die Hydridkonzentration über den Hüllrohrwand mit in die Betrachtungen einfließen, da bei hohen H-Gehalten diese Struktur deutlich ausgeprägt ist. Aus den vorliegenden Daten kann für die Materialien Zirlo und M5 geschlossen werden, dass bei Spannungen unterhalb von 90 MPa und bei Abkühlraten von 5 °C/h die DBTT unterhalb von 20 °C liegt und die Hydridlängen 50 % der Hüllrohrwandstärke nicht überschreiten. Da die tatsächlichen Abkühlraten niedriger sind, können die Hydride länger wachsen und die DBTT möglicherweise steigen.

Der Brennstabcode TESP-ROD wurde mit einem Modell ausgestattet, das die Ausscheidung von radialen Hydriden ab Spannungen von 90 MPa beginnen lässt, wobei zwischen 90 MPa und 110 MPa anteilig radiale und umfangsgerichtete Hydride ausgeschieden werden und ab 110 MPa nur radiale Hydride ausgeschieden werden. Ein Modell für das Hydridlängenwachstum ist noch nicht implementiert, da bisher der eindeutige Zusammenhang von DBTT und Hydridlänge nicht geklärt werden konnte.

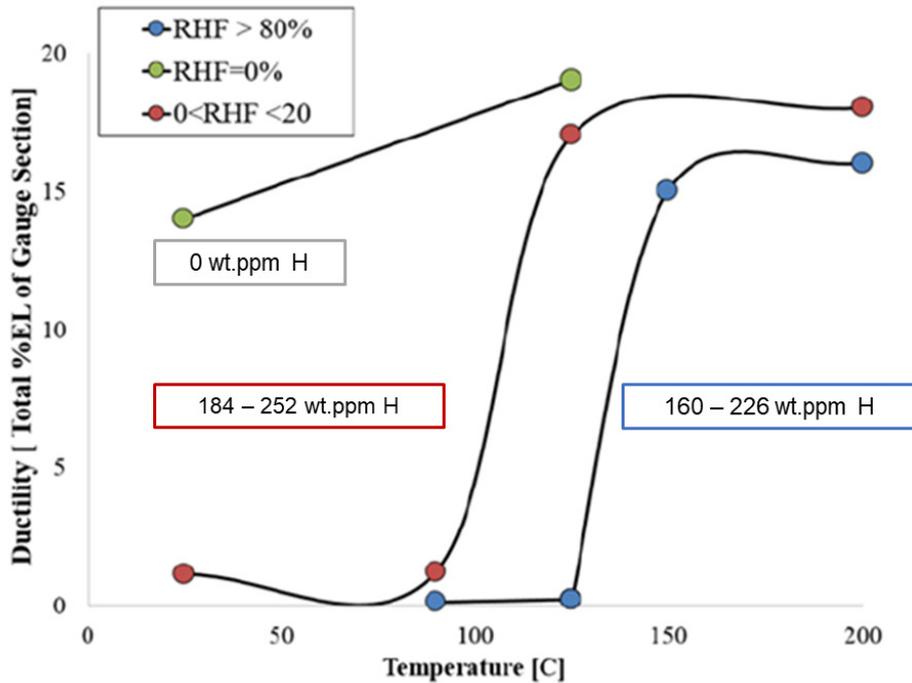


Abb. 3.34 Übergang von duktilem zu sprödem Verhalten für Zircaloy-4 in Abhängigkeit der Hydridorientierung

RHF als Anteil radialer Hydride, nach /CIN 15/

3.6 Weiterentwicklung von TESPА-ROD

3.6.1 Axiale Diffusion von Wasserstoff im Hüllrohr

Im Projekt RS1557 *Brennstabverhalten im Betrieb und bei Störfällen* (BSVBUS) ist eine Implementierung von Diffusionsgleichungen für den axialen Transport von Wasserstoff im Brennstabhüllrohr in den Code TESPА-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. Erste Analysen haben ergeben, dass der Effekt der Diffusion aufgrund des Konzentrations- und des 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 existieren 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. 3.35 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.

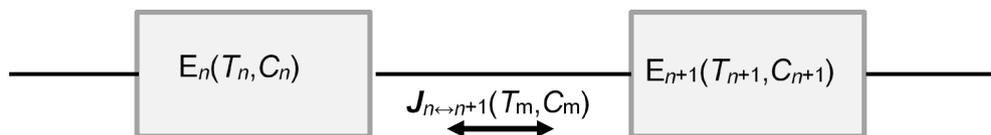


Abb. 3.35 Schematische Darstellung des Flusses zwischen zwei Ebenen n und $n+1$

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, 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. 3.11 Anfangsbedingungen für Beispielrechnung eines 60 cm langen Hüllrohrs

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

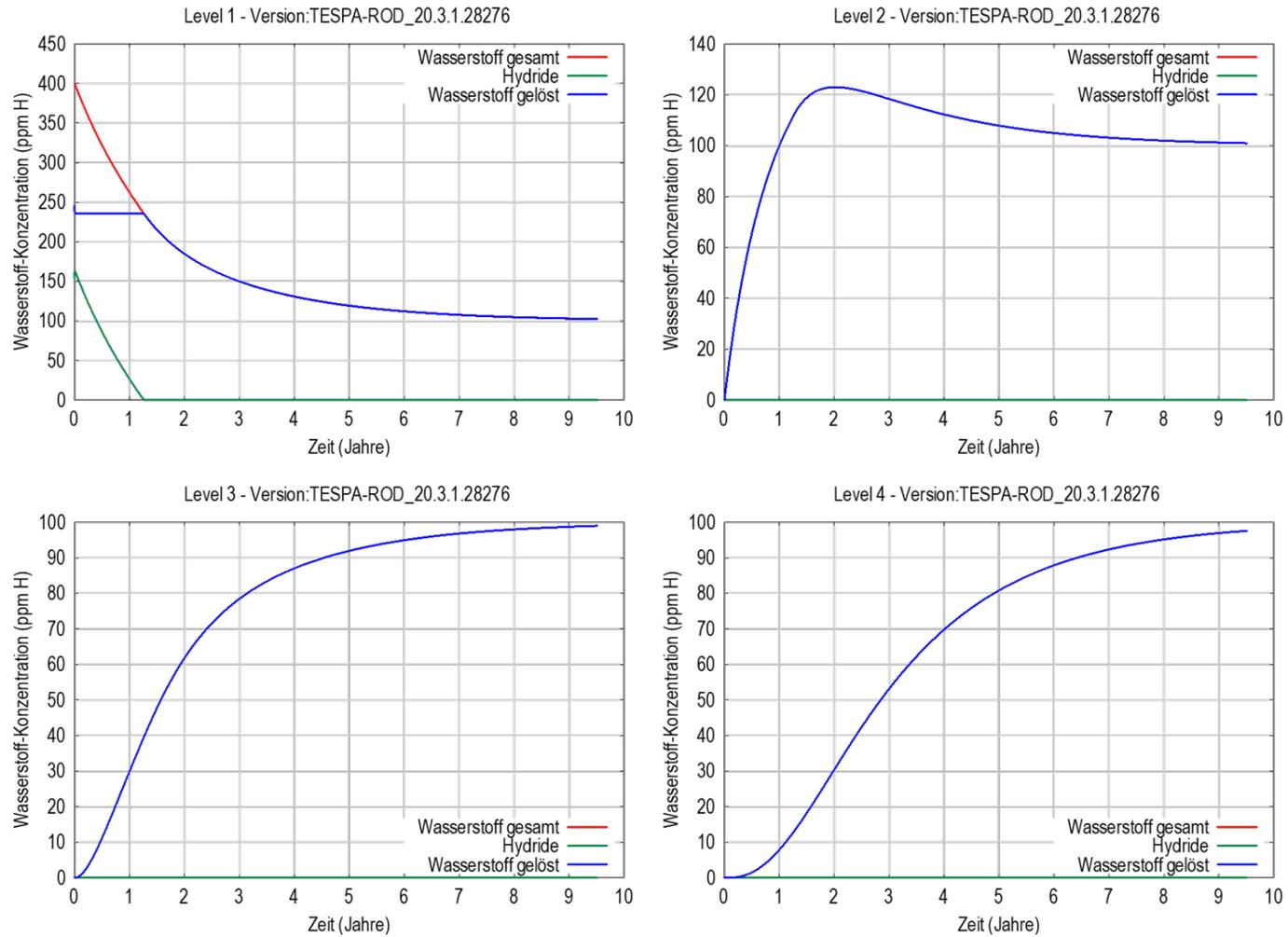


Abb. 3.36 Ergebnisse der Beispielrechnung 1, berechnet mit TESPA-ROD

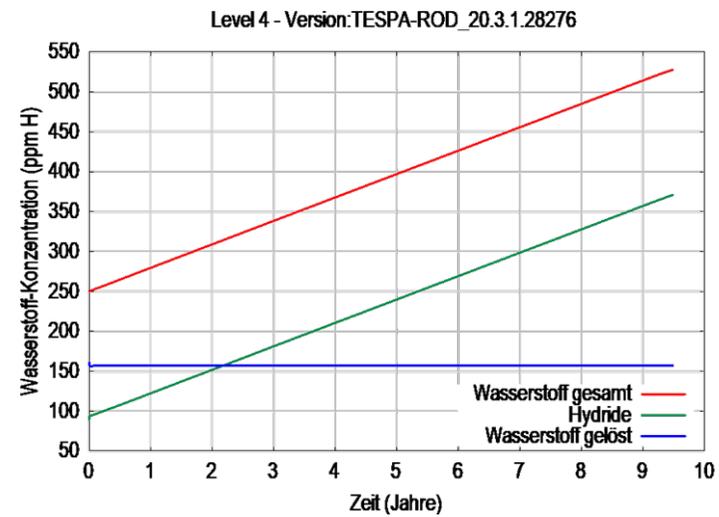
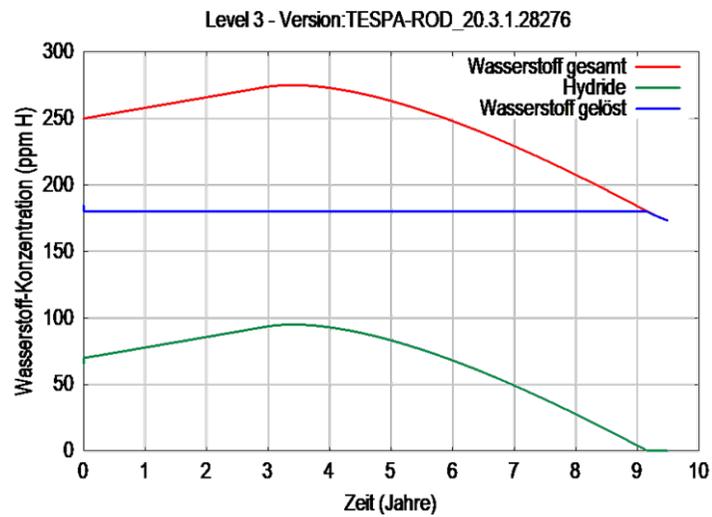
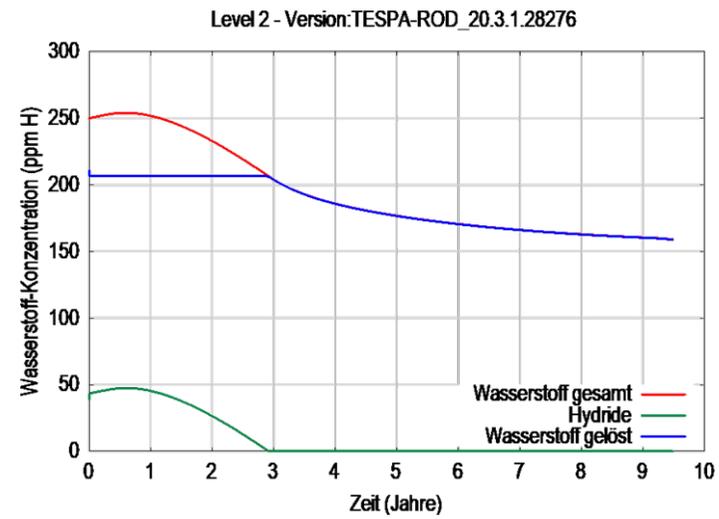
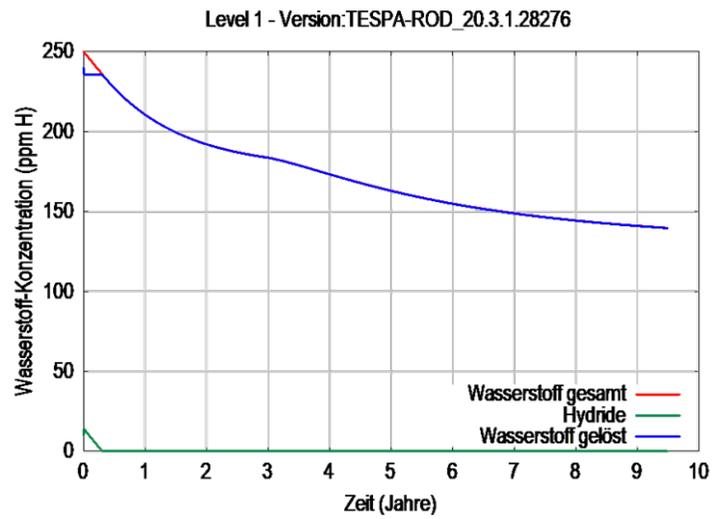


Abb. 3.37 Ergebnisse der Beispielrechnung 2, berechnet mit TESPA-ROD

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 H-Gehalt 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. Strömt, 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 in dem gegebenen Beispielmmodell 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. 3.12 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 eigene konstante Temperatur, die sich jeweils um 10 °C

von der nächsten Ebene unterscheidet. Die treibende Kraft ist hier der Temperaturgradient. Bei einem konstanten Temperaturgradienten diffundiert Wasserstoff so lange, bis die Konzentration des gelösten Wasserstoffs in der wärmeren Zone gleich der Wasserstoffkonzentration in der kälteren Zone ist.

In diesem zweiten 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 sich 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 1.000 ppm einstellen. Ein endliches Diffusionsgleichgewicht zwischen der Soret-Diffusion (temperaturgetrieben) und der Fick'schen Diffusion (konzentrationsgetrieben) ist mit den gewählten Zonenlängen 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 bei sehr hohen Temperaturen berechnet, wie sie in der Realität nie oder nur kurzzeitig auftauchen würden. Zu beachten ist hier weiterhin, dass in diesem Beispiel der Brennstab nur 60 cm misst und daher die Diffusion schneller einen Gleichgewichtszustand liefert als z. B. bei einem LWR-Brennstab voller Länge.

3.6.2 Zusammenfassung der weiteren Arbeiten

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 Volllast 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) Volllast 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.

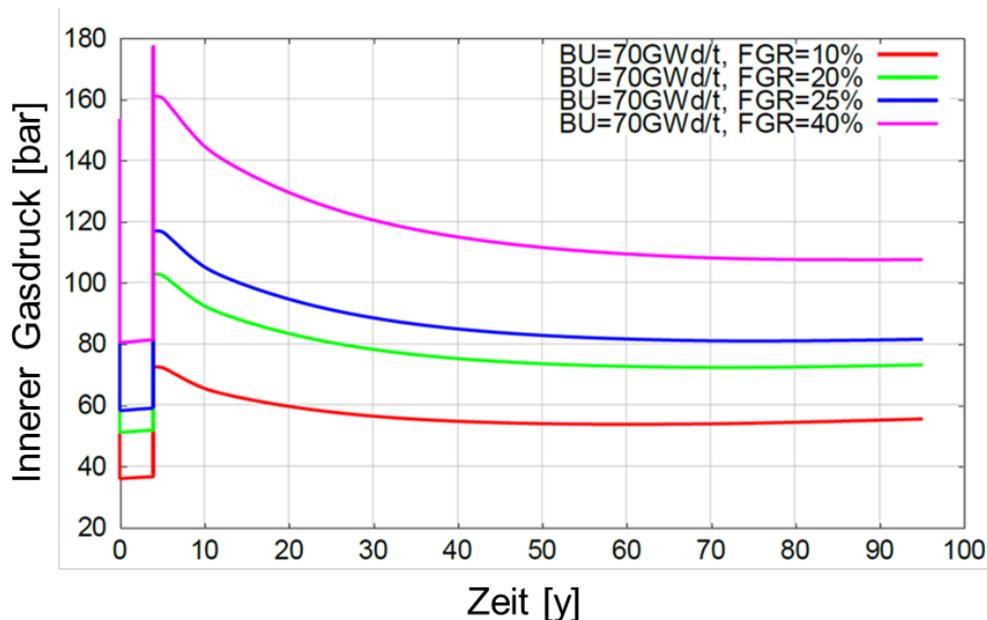


Abb. 3.38 Beispielhafte Entwicklung des Gasinnendruckes, abgebildet für verschiedene Abbrände (BU) und betriebliche Spaltgasfreisetzungen FGR

4 Datenbanken und Schnittstellen

Im Vorhaben RS1552 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

Für die übersichtliche und kompakte Speicherung und Weiterverwendung der berechneten axial und stabweise 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, so dass 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 Brennelement-Geometrien, 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: UO_2 , ...
- 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, ggf. weitere
 - 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 entwickelten HDF5-Schnittstelle zum Erstellen eines Datensatzes in die Nachzerfallsleistung-Datenbank

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 Petascale-Größe sowie um auf Laptops kleinere Datensätze 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.

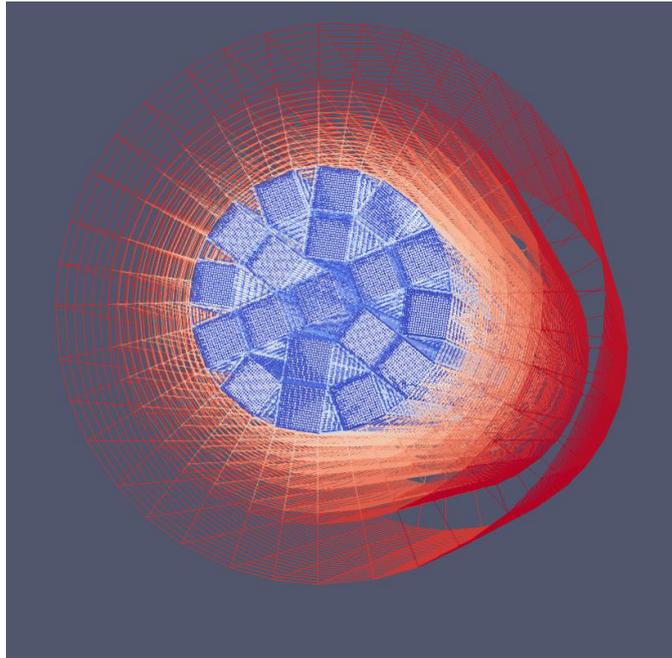


Abb. 4.2 Gitternetzlinien der definierten Nodes im ParaView-Modell eines generischen CASTOR® V/19-Behältermodells

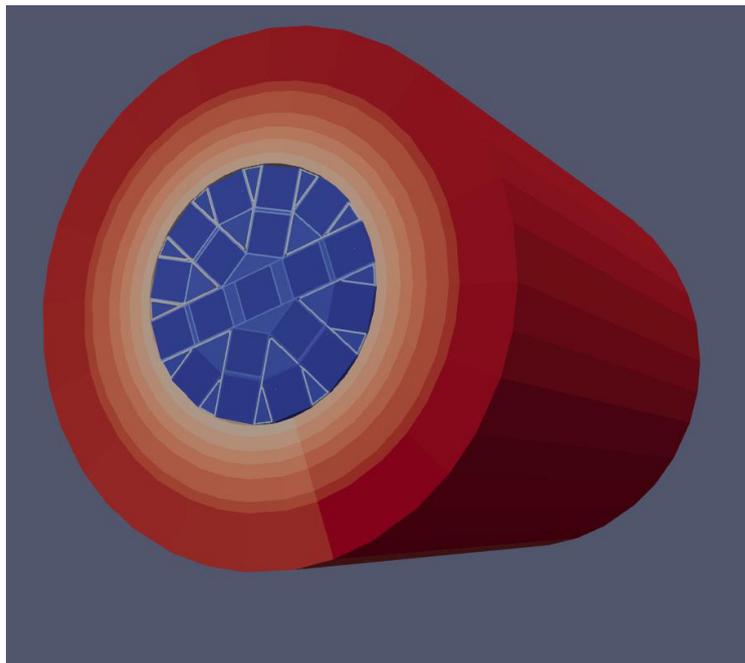


Abb. 4.3 Flächendarstellung des ParaView-Modells eines generischen CASTOR® V/19-Behältermodells

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 den Autoren bekannten, frei zugänglichen Daten zur TSSd/p gesichtet und in eine Excel-Datenbank aufgenommen. Zusätzlich zu den Daten die in Tab. 4.1 aufgeführt 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. 4.4 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 fiten, 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 der TSSd/p Datenbank

Autor	Jahr	Material	Methode	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

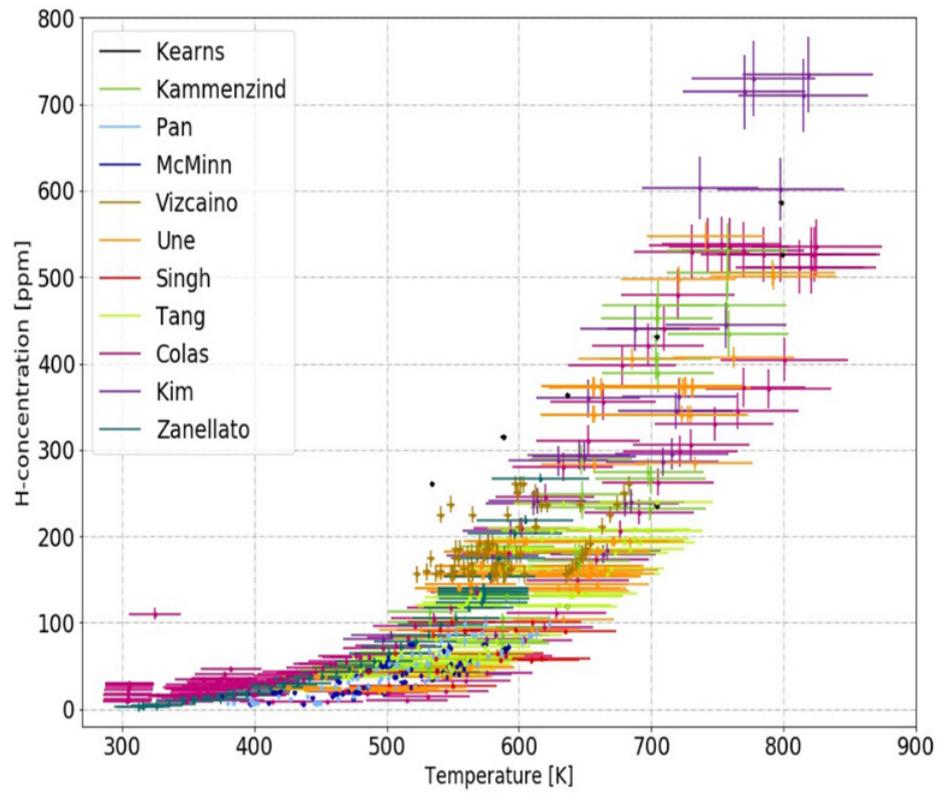


Abb. 4.4 Darstellung aller in der TSSp/d-Datenbank enthaltenen Messpunkte

5 Internationaler Rechenbenchmark zum Brennstabverhalten

In diesem Vorhaben wurde ein internationaler Rechenbenchmark zum Langzeitverhalten der Brennstäbe unter Bedingungen der trockenen Zwischenlagerung definiert und vorgestellt.

Nach der Bestrahlung im Reaktor werden die Brennelemente mehrere Jahre im Abklingbecken nassgelagert. Die anschließende Trockenlagerung erfolgt über mehrere Jahrzehnte in Transport- und Lagerbehältern. Während der gesamten Lagerzeit unterliegen bestrahlte Brennelemente zahlreichen Veränderungen, z. B. durch fortdauernde Wärmeerzeugung oder Heliumproduktion. Obwohl viele dieser Prozesse während des Reaktorbetriebs bekannt sind oder zumindest mit einer breiten Datenbank analysiert werden können, werden die spezifischen Phänomene, die während des Trocknungsprozesses und der folgenden trockenen Zwischenlagerung auftreten, noch nicht detailliert beschrieben.

Die für die Vorhersage des Brennstabverhaltens zu benutzenden Brennstabcodes sind zumeist entwickelt worden, um das Verhalten im Reaktorbetrieb und unter Störfallbedingungen zu beschreiben. Für die vergleichsweise langen Zeiträume der Lagerung und die dabei auftretenden Effekte sind nicht alle verfügbaren Codes ausgelegt. Da die verschiedenen Brennstabcodes unterschiedliche Effekte simulieren wie z. B. Kriechen des Hüllrohrs oder dem Schließen des Spalts zwischen Pellet und Hüllrohr, ist es erforderlich, die grundlegenden Vorhersageeigenschaften der Brennstabcodes genauer zu untersuchen. Ferner bleibt das Verhalten des Wasserstoffs innerhalb des Hüllrohrs eine offene Frage. Es wird diskutiert, wie sich radiale Umfangshydride bilden und möglicherweise die Duktilität des Brennstabs beeinflussen.

In Zusammenarbeit mit dem TÜV NORD wurde ein internationaler Benchmark zur Untersuchung der Vorhersagen des Hüllrohrverhaltens unter Bedingungen der längerfristigen Zwischenlagerung erarbeitet und auf dem SEDS2019 Workshop der GRS präsentiert /BOL 19a/.

Ziel des Rechenbenchmarks ist es, das von verschiedenen Brennstabcodes vorhergesagte Brennstabverhalten zu vergleichen und die Ergebnisse zu analysieren und in einem breiten internationalen Fachpublikum zu diskutieren. Dazu ist es wichtig, dass der Benchmark ausschließlich auf öffentlich verfügbaren Daten und generischen Modellen basiert.

Dieser Benchmark ist ein erster Schritt im Vergleich von Simulationswerkzeugen zur Vorhersage des Verhaltens bestrahlter Brennelemente während der Trockenlagerung. Der Benchmark enthält vorberechnete typische Werte für die Vorhersage der Abklingwärme und die Thermohydraulik des Behälters. Das mechanische Brennstabverhalten während der Langzeitlagerung wird von den Teilnehmern berechnet. Die Spezifikationen und Vorgehensweise sind im Anhang aufgeführt.

Nach der Erarbeitung der Spezifikationen und der anschließenden Diskussionen im potentiellen Teilnehmerkreis erfolgte die Verteilung der finalen Spezifikation (siehe Anhang C) im Dezember 2019. Bis zum Mai 2020 wurden sieben Ergebnisse eingereicht. Diese wurden mit sechs verschiedenen Codes berechnet (CARO-E, CSAS, FALCON, FRAPCON-xt, TESP-ROD, TRANSURANUS). Die Auswertung der Ergebnisse läuft zur Zeit der Erstellung dieses Berichtes noch. Nach einer Diskussion der Ergebnisse mit den Teilnehmern sollen die Ergebnisse des Benchmarks zum Ende des Jahres 2020 veröffentlicht werden.

Phase II des Benchmarks befasst sich mit der Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse der Berechnungen und soll noch in diesem Jahr gestartet werden. Einzelheiten zu diesem Benchmark werden in Zusammenarbeit mit der spanischen CIEMAT noch erarbeitet, bevor eine weitere Benchmark-Spezifikation erstellt und vorgeschlagen wird.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Die verlängerte Zwischenlagerung erfordert eine Weiterentwicklung der wissenschaftlichen Grundlagen zur Bewertung des Langzeitverhaltens sowie die Bereitstellung entsprechend angepasster Analyse- und Bewertungsmethoden, da für Hüllrohre bestrahlter Brennelemente eine erhöhte Sprödbruchempfindlichkeit bei mechanischen Belastungen bis zu nachfolgendem Hüllrohrversagen bei Handhabungsvorgängen bzw. Transporten nicht ausgeschlossen werden kann. Die beschriebenen Forschungsergebnisse sind im Einklang mit dem Förderkonzept des BMWi (2015 - 2018, Forschung zur Entsorgung radioaktiver Abfälle, FuE-Bereich 1, Feld 1.1) und verbessern die wissenschaftlichen Grundlagen zur Bewertung des Langzeitverhaltens unter den oben genannten Aspekten.

Das vorliegende Forschungsvorhaben verfolgte das Ziel, für einen gegebenen Behälter mit bekannter Beladung eine Möglichkeit der Vorhersage bezüglich der Hüllrohr- bzw. Brennelementintegrität nach aktuellem Stand von Wissenschaft und Technik zu erstellen. Dies wurde mittels Kopplung und Erweiterung bereits bestehender, zum Teil weiterentwickelter Rechenprogramme für die Bestimmung der Nachzerfallswärmeleistung, der Temperaturfelder und Hüllrohrmechanik zu einer konsistenten Rechenkette umgesetzt. Dazu wurde die Nachzerfallsleistung eines generischen 18 x 18-24 DWR-Brennelement mit einem typischen Abbrandspektrum für UO_2 und MOX Brennstoffe mittels Summationscodes wie KENOREST oder VENTINA, oder abdeckend nach DIN-Normen bestimmt. Die berechneten Nachzerfallsleistungen werden in ein dreidimensionales Behältermodell transferiert und die entsprechenden Temperaturfeldentwicklungen während der längerfristigen Zwischenlagerung mittels des Programms COBRA-SFS bestimmt. Die erhaltenen Ergebnisse wurden partiell mit Ergebnissen anderer Codes und Rechenmethoden verglichen (CFX, COCSYS und semi-analytische Vergleichsrechnungen). Mit den Werten der errechneten Temperaturfelder können mittels des hierzu weiterentwickelten Brennstabcodes TESP-ROD die relevanten Brennstabparameter wie z. B. Innendruck, Wasserstoffkonzentration oder Anteil der umläufigen Hydride in axialer Auflösung für jeden Brennstab berechnet werden.

Die in diesem Vorhaben entwickelte Möglichkeit zur Bestimmung von Temperaturfeldern beladener generischer Behältermodelle sowie deren zeitliche Entwicklung entspricht dem aktuellen Stand von Wissenschaft und Technik. Bei der Berechnung der Nachzerfallsleistung für Lagerzeiträume über 40 Jahre hinaus wurde der internationale Austausch und der Vergleich der Ergebnisse durch die aktive Teilnahme an einem internationalen Blind-Benchmark durchgeführt. Die Methoden und zugrundeliegenden

Wirkungsquerschnittsdaten der verwendeten Abbrandcodes können innerhalb dieses Benchmarks mit den Ergebnissen der übrigen Teilnehmer verglichen werden. Die Aktivitäten zur Auswertung des Benchmarks sind zum Zeitpunkt des Verfassens dieses Berichtes noch nicht abgeschlossen.

Zur weiteren Berechnung der Temperaturfelder wurde ein generisches Behältermodell erstellt und die resultierenden stationären wie auch transienten Temperaturfelder untersucht. Das zu Grunde liegende Rechenmodell für COBRA-SFS ist jedoch hinreichend komplex und berücksichtigt eine Vielzahl unterschiedlicher Faktoren. Zur Erlangung verlässlicherer Ergebnisse muss der Einfluss von Unsicherheiten dieser Faktoren bzw. Modellierungsansätzen explizit in Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse untersucht werden. Internationale Anstrengungen in dieser Richtung, wie zum Beispiel im Rahmen des EPRI-ESCP-Programms können hier für die Zukunft sehr hilfreich sein. Dies betrifft auch die verlässliche Modellierung des Trocknungsprozesses. Wie die Untersuchungen in diesem Projekt gezeigt haben, ist der Trocknungsprozess einer der wichtigsten Zeitpunkte für die Beschreibung des Wasserstoffverhaltens während der längerfristigen Zwischenlagerung.

In Kapitel 3 wurde das Brennstabverhalten mit dem Ziel der Integritätseinschätzung der Brennelemente und -stäbe untersucht. Dazu müssen mögliche Degenerierungseffekte der Hüllrohrmaterialien während des Reaktoreinsatzes, der Nasslagerung, des Trocknungsprozesses sowie der anschließenden trockenen Zwischenlagerung bekannt sein und verlässlich beschrieben werden können. Diese Effekte unterliegen multiplen Abhängigkeiten von thermodynamischen Faktoren wie Temperatur oder unterschiedlichen Drücken und Materialzusammensetzung. Neben diesen Faktoren müssen ebenfalls multiple Skalen untersucht werden, sowohl örtlich als auch zeitlich. Insbesondere zur Bestimmung der DBTT müssen diese Faktoren in für die Zwischenlagerung relevanten Dimensionen untersucht werden. Die in Kapitel 3 beschriebenen Ergebnisse haben gezeigt, dass die detaillierte Kenntnis der Temperaturverläufe einen großen Einfluss auf die Beschreibung des Hüllrohrmaterialverhaltens hat. Bis dato fehlt es vor allem an experimentellen Daten von bestrahlten Hüllrohrmaterialien mit langsamen Abkühlraten. Das Programm TESPA-ROD wurde erweitert, um entsprechend dem aktuellen Stand von Wissenschaft und Technik das Hüllrohrverhalten während der verlängerten Zwischenlagerung beschreiben zu können. Es wurden die verfügbaren experimentell bestimmten TSSd- und TSSp-Werte für verschiedene hauptsächlich unbestrahlte Zirkoniumlegierungen in einer Datenbank gesammelt und die jeweiligen experimentellen Unsicherheiten

ebenfalls ermittelt. In ersten Analysen konnten verschiedene Löslichkeitskurven ermittelt werden. Weiter gehende detailliertere Analyse der Daten könnten weitere nützliche Erkenntnisse liefern und sollten in zukünftigen Arbeiten berücksichtigt werden. Wie sich der gelöste Wasserstoff im Hüllrohr bei der Abkühlung nach dem Trocknungsprozess verhält, wurde ausgiebig untersucht, und diverse Modelle nach aktuellem Stand von Wissenschaft und Technik in dem Programm TESPА-ROD implementiert. Offene Fragestellungen bleiben jedoch bestehen. So bleibt die verlässliche Vorhersage der Hydridgestalt und -länge nicht endgültig geklärt. Es muss zum Beispiel die Wasserstoffdiffusion in verschiedenen Zirkoniumlegierungen unter Bedingungen der längerfristigen Zwischenlagerung sowohl experimentell als auch theoretisch weiter untersucht werden, um verlässlichere Aussagen treffen zu können.

Eine Fortführung der in diesem Vorhaben durchgeführten molekulardynamischen Simulationen mit dem Programm LAMMPS scheint zur Klärung der Fragen zur Hüllrohrstabilität nur mit großem Aufwand möglich. Neben den dargestellten Problemen mit der Definition eines korrekten Potentials bleibt insbesondere unklar, wie die zeitliche und die räumlichen Dimensionen der molekulardynamischen Simulationen bei vertretbarem Rechenaufwand auf die Fragestellung der Hüllrohrintegrität skaliert werden können. Dieses Problem wird auch international diskutiert, so dass es in der nahen Zukunft neue Anknüpfungspunkte zu einer Fortführung der in diesem Vorhaben durchgeführten Arbeiten geben kann.

Durch die hier diskutierten Arbeiten wurden neue Fragen aufgeworfen. Wie groß ist zum Beispiel der Einfluss einer langsamen Temperaturabnahme im Hüllrohr auf die Beschreibung der Wasserstoffdynamik im Hüllrohr? Ein Großteil der zur Verfügung stehenden experimentellen Hüllrohrdaten zum Wasserstoffverhalten bei Temperaturänderungen beziehen sich auf eine Temperaturabnahme im Hüllrohr zwischen 0,5 und 60 K/min. In der Zwischenlagerung sind die Temperaturgradienten wesentlich langsamer, so dass (Quasi-) Gleichgewichtsprozesse eine größere Rolle spielen können und das Wasserstoffverhalten signifikant verschieden sein kann /KAU 18/.

Weitere Fragen stellen sich zum Hydridwachstum. Entscheidend für die Bruchfestigkeit eines Zirkonium-basierten Hüllrohrs ist die Gestalt und Länge der ausgebildeten Zirkonium-Hydride. Bilden sich vorwiegend kurze, umläufig ausgerichtete Hydride im Hüllrohrmaterial aus, kann das zu einer unterschiedlichen Bruchfestigkeit führen, verglichen zu

der Bildung von sehr langen, radial ausgerichteten Hydriden. Eine weitere, genaue Untersuchung dieser Effekte ist für die Belastbarkeit einer Aussage über die Hüllrohrintegrität von hoher Priorität.

Allgemein ist die Belastbarkeit der Ergebnisse einer Rechenkette zur Vorhersage des bestrahlten Materialverhaltens für lange Zeiträume (über 40 Jahre) weiter zu verbessern. Das liegt zum einen daran, dass es keine direkte Validierungsmöglichkeit in Form von geöffneten und untersuchten Behältern für diese Zeiträume gibt; und zum anderen, dass es sich um multiphysikalische Simulationen handelt, mit Modellen auf einer atomistischen Skala bis hin zum gesamten Behälter. Eine detaillierte Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse der Ergebnisse der in BREZL erstellten Rechenkette ist für eine bessere Einschätzung und Belastbarkeit der Ergebnisse erforderlich.

Literaturverzeichnis

- /ADI 19/ ADINA User Interface, Version 9.51, 2019 with ADINA (A Finite Element Program for Automatic Dynamic Incremental Nonlinear Analysis), ADINA-T (for the heat transfer of solids), ADINA-IN/-Plot (for pre- and postprocessing), <http://www.adina.com/> (aufgerufen am 16.06.2020)
- /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.
- /ATS 01/ Atsim potentials library website: <https://atsimpotentials.readthedocs.io/en/latest/> Accessed: 05.12.2019.
- /BAS 83/ M. I. Baskes, M. S. Daw, Semiempirical, quantum mechanical calculation of hydrogen embrittlement in metals, Phys. Rev. Lett., 50:1285-1288, April 1983.
- /BEC 13/ C.A. Becker, F. Tavazza, Z.T. Trautt, and R.A. Buarque de Macedoc (2013), "Considerations for choosing and using force fields and interatomic potentials in materials science and engineering," Current Opinion in Solid State and Materials Science, 17, 277-283. DOI: 10.1016/j.cossms.2013.10.001, 2013.
- /BOL 19/ Boldt, F.: Implementation of Hydrogen Solid Solubility Data and Precipitation Threshold Stresses in the Fuel Rod Code TESP-ROD. Nuclear Engineering and Radiation Science, DOI 10.1115/1.4042118, 2019.
- /BOL 19a/ F. Boldt, M Stuke; Proposal of a Benchmark Describing the Thermo-Mechanical Behaviour During Dry Storage"; Proceedings of 3rd Workshop on Safety of Extended Dry Storage of Spent Nuclear Fuel, SEDS 2019, June 6-8, 2019, Garching, Germany, June 2019)
- /CFX 20/ <https://www.ansys.com/de-DE/products/fluids/ansys-cfx>, aufgerufen am 22.04.2020.
- /CIN 15/ Cinbiz M.N., The Effect of Stress State on Zirconium Hydride Reorientation, Pennsylvania State University, Dissertation, 2015

- /COC 18/ <http://www.grs.de/content/cocosys>, aufgerufen am 19.10.2018.
- /DOE 13/ Billone, M.C. et al., Used Fuel Disposition Campaign, Embrittlement and DBTT of High-Burnup PWR Fuel Cladding Alloys, Department of Energy (DOE), Fuel Cycle Research & Development, FCRD-UFD-2013-000401, ANL-13/16, Vereinigte Staaten, 2013.
- /ESK 13/ Empfehlung der Entsorgungskommission ESK-Leitlinien für die Zwischenlagerung von radioaktiven Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung, Revidierte Fassung vom 10. Juni 2013, Bundesanzeiger AT 22.01.2014 B3, S. 2-47
- /FOI 86/ S.M. Foiles, M. I. Baskes, and M.S. Daw, Embedded-atom-method functions for the fcc metals Cu, Ag, Au, Ni, Pd, Pt, and their alloys, Physical Review B, vol. 33, no. 12, pp. 7983-7991, 1986.
- /HAL 18/ L.M. Hale, Z.T. Trautt, and C.A. Becker, "Evaluating variability with atomistic simulations: the effect of potential and calculation methodology on the modeling of lattice and elastic constants," Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 26, 055003. DOI: 10.1088/1361-651X/aabc05, 2018.
- /HAN 17/ Hannstein, V., Behler, M., Sommer, F.: MOTIVE - A New Modular Burn-up 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.
- /HDF 05/ <https://www.hdfgroup.org/HDF5/>, aufgerufen am 19.10.2018.
- /HES 05/ Hesse, U., Kilger, R., Langenbuch, S., Moser, E.: The Status Of The GRS Reactivity And Burn-Up Code System Kenorest. In: American Nuclear Society (ANS) (Hrsg.): Mathematics and Computation, Supercomputing, Reactor Physics and Nuclear and Biological Applications. M&C 2005, 2005.

- /HES 03/ U. Hesse, S. Langenbuch, and W. Zwermann, "Nuclear Codes and Data Libraries at GRS for Reactivity and Nuclide Inventory Calculations," in "Eurosafe 2003," Paris, France (November 2003).
- /HUN 07/ J.D. Hunter; Matplotlib: A 2D Graphics Environment, Computing in Science & Engineering Vol.9, Issue: 3, May-June 2007.
- /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.
- /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
- /LAM 19/ LAMMPS User Documentation: <https://lammps.sandia.gov/doc/Manual.html> Accessed: 10.12.2019.
- /MAL 12/ V. Mallipudi, S. Valance, J. Bertsch: Meso-scale analysis of the creep behavior of hydrogenated Zircaloy-4, Laboratory for Nuclear Materials, Paul Scherrer Institute, Mechanics of Materials 51 (2012) 15–28, 2012
- /MCM 00/ McMinn, Darby, Schofield: "Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth Int. Symp." ASTM STP1354, p. 173, 2000.
- /MEN 07/ M.I. Mendeleev, G.J. Ackland, Development of an interatomic potential for the simulation of phase transformations in zirconium, Philosophical Magazine Letters, 87(5), 349-359, 2007. DOI: 10.1080/09500830701191393.
- /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).
- /PAN 95/ Pan, Z.L., Richie, I.G., Puls, M.: The terminal solid solubility of hydrogen and deuterium in Zr-2.5 alloys, Journal of Nuclear Materials, 228, Elsevier, Niederlande, Amsterdam, 1995.

- /PER 18/ Péridis, M: Fuel Cladding Temperature Distribution in Dry Storage Casks, Abschlussarbeit Génie Atomique, ENSTA ParisTech Université Paris-Saclay, INSTN, GRS, August 2018.
- /REA 17/ Rearden, B. T., Jessee, M. A. (Hrsg.): SCALE Code System. Oak Ridge National Laboratory (ORNL), ORNL/TM-2005/39, Version 6.2.2, 2747 S.: Oak Ridge, Tennessee, Februar 2017. Available from Radiation Safety Information Computational Center as CCC-834.
- /ROM 15/ Romano, P. K., Horelik, N. E., Herman, B. R., Nelson, A. G., Forget, B., Smith, K.: OpenMC, A state-of-the-art Monte Carlo code for research and development. *Annals of Nuclear Energy*, Bd. 82, S. 90–97, DOI 10.1016/j.anucene.2014.07.048, 2015.
- /RUD 96/ M. Ruda, D. Farkas, and J. Abriata, Embedded-atom interatomic potentials for hydrogen in metals and intermetallic alloys, *Phys. Rev. B*, 54:9765-9774, October 1996.
- /SAG 17/ Gesetz zur Fortentwicklung des Gesetzes zur Suche und Auswahl eines Standortes für ein Endlager für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle und anderer Gesetze, *Bundesgesetzblatt Teil I*, 2017, Nr.26 vom 15.05.2017.
- /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.
- /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.

- /STE 14/ J. Stewering, S. Schwarz, M. Sonnenkalb, *Berechnung der Brennstabhüllrohrtemperaturen in einem generischen Transport- und Lagerbehälter*. Technischer Bericht, GRS-A-3739, April 2014.
- /STU 10/ A. Stukowski, Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO – the Open Visualization Tool, *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.* 18 (2010), 015012, 2010.
- /SVE 06/ Svensk Kärnbränslehantering AB: Measurements of decay heat in spent nu-clear fuel at the Swedish interim storage facility, Clab. SKB, 253 S., Dezember 2006.
- /SZP 99/ B.Szpunar, L.J. Lewis, I. Swainson, and U. Erb, Thermal expansion and hydrogen diffusion in nanocrystalline nickel, *Physical Review B, Condensed Mater and Materials Physics*, vol. 60, no. 14, pp. 10107-10113, 1999./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, K., Ishimoto, S.: 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.

- /VER 91/ Temperature Dependence of Lattice Parameters of Alpha-Zirconium, R.A. Versaci, M. Ipohorski, Comisión Nacional de Energía Atómica, ISSN 0325-1403, Buenos Aires, 1991.
- /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/ Zaneletto, 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.
- /ZHO 08/ X.W. Zhou, J.A. Zimmerman, B.M. Wong, and J.J. Hoyt, An embedded-atom method interatomic potential for pd-h alloys, Journal of Materials Research, 23(3):704-718, 2008.

Abbildungsverzeichnis

Abb. 1.1	Schematische Darstellung der Temperaturentwicklung während eines exemplarischen Trocknungsprozesses in drei Zyklen	7
Abb. 1.2	Beispielhafte Hydridanordnungen im Hüllrohr /AOM 08/.....	9
Abb. 1.3	Abhängigkeit der Hydridlänge in Zr-Nb-Hüllrohren von der Abkühl-rate nach /CHA 15/ und extrapolierte Hydridlänge für kleine Abkühlraten in logarithmischer Darstellung.....	9
Abb. 1.4	Vereinfachte Darstellung der einfachen Rechenkette zur Ermittlung der thermomechanischen Randbedingungen	13
Abb. 2.1	Linkes unteres Viertel des für die Berechnung der Nachzerfallsleistung betrachteten 18 x 18-24 Brennelements	18
Abb. 2.2	Modellierung des 18 x 18-24 DWR-Brennelements in KENOREST	20
Abb. 2.3	Berechnete axiale thermische Leistung eines mittleren Brennstabs in kW/tSM für 0 bis 150 Jahre Abklingzeit	21
Abb. 2.4	Zerfallszeit in Jahren aufgetragen gegen die thermische Leistung in kW/tSM für jede der 32 axialen Zonen eines mittleren Brennstabs	22
Abb. 2.5	Vergleich der Ergebnisse zwischen OREST und ANSI/ANS-5.1-2005.....	25
Abb. 2.6	Ergebnisse der Benchmarkrechnungen für OREST und MOTIVE mit verschiedenen Bibliotheken der nuklearen Daten.....	28
Abb. 2.7	Horizontales und vertikales Schnittbild des TN-24P-Behälters mit Beladungsschema, nach PNNL-1183	30
Abb. 2.8	Horizontale Symmetrieachsen des TN-24P-Behälters sowie die axiale Temperaturverteilung ausgewählter Stäbe bei homogener Beladung	31
Abb. 2.9	Graphische Darstellung der horizontalen Nodes und deren Nummerierung des COBRA-SFS-Modells für den generischen CASTOR® V/19-Behälter.....	33
Abb. 2.10	Grafische Zusammenfassung des Ablaufs der Temperaturanalyse für das beladene, generische CASTOR® V/19-Modell	34
Abb. 2.11	Bildschirmausschnitt der mit BR3ZL erstellten dreidimensionalen Visualisierung der Temperaturverteilung der Brennelemente eines homogen beladenen Behälters	35
Abb. 2.12	Visualisierung der Temperaturverteilung für die homogene Beladung durch einen schrägen horizontalen Schnitt	36

Abb. 2.13	Temperaturverteilung der heißesten axialen Zone in dem betrachteten generischen CASTOR® V/19-Modell, berechnet mit COBRA-SFS	37
Abb. 2.14	Hüllrohrtemperaturdomänen für die Brennelemente 8, 9 und 10 der COBRA-SFS-Modellierung	37
Abb. 2.15	Vergleich der Hüllrohrtemperaturen für die heißeste Axialzone zwischen den Codes COBRA-SFS, ANSYS-CFX und COCOSYS.....	39
Abb. 2.16	Grafische Darstellung des semi-analytischen Modells zur Temperaturfeldberechnung	41
Abb. 2.17	Ergebnisvergleich der Hüllrohrtemperaturen zwischen dem semi-analytischen Modell in Python (rot) und den detaillierten numerischen Berechnungen mit COBRA-SFS (blau).....	42
Abb. 2.18	Temperaturverlauf des zentralen (rot) und Eckstabes (blau) während eines fiktiven Trocknungsprozesses in dem generischen CASTOR® V/19-Modell	43
Abb. 2.19	Vergleich der Temperaturverläufe während des fiktiven Trocknungsprozesses zwischen den 5 Zonen des semianalytischen Modells (durchgezogene Linien) und dem zentralen und Eckstab des zentralen Brennelementes aus COBRA-SFS (gepunktete Linien).....	44
Abb. 3.1	TSSd (Terminal Solid Solubility for dissolution) und TSSp (Terminal Solid Solubility for precipitation) Kurven mit eingezeichneter Hysterese	46
Abb. 3.2	Unterschiedliche Fitfunktionen angewendet auf Datenpunkte zu Zircaloy-2	48
Abb. 3.3	Fitfunktionen unterschiedlicher Messverfahren der TSSd und TSSp im Vergleich	49
Abb. 3.4	Ansicht von drei möglichen Szenarien der Hydridbildung in Abhängigkeit der Kühlrate und Hydridkonzentration	49
Abb. 3.5	Vergleich der bekannten Kriechraten zu den kombinierten Kriechraten von Zircaloy inklusive Hydriden	51
Abb. 3.6	ADINA-Modell eines Hydrids (mittig) in einer Zirkonium-Matrix mit aufgebrachtener Zugspannung auf der rechten Seite.....	52
Abb. 3.7	Akkumulierte Kriechdehnung (0° Orientierung, 250 h, Gesamtmodell) für ein mit einem Hydrid belegten Zirkonium-basierten Hüllrohrmodell.....	53

Abb. 3.8	Akkumulierte Kriechdehnung (0° Orientierung, 250 h, Ausschnitt Hydrid) für ein mit einem Hydrid belegten Zirkonium-basierten Hüllrohrmodell	54
Abb. 3.9	Akkumulierte Kriechdehnung (5° Orientierung, 250 h, Gesamtmodell) für ein mit einem Hydrid belegten Zirkonium-basierten Hüllrohrmodell.....	55
Abb. 3.10	Akkumulierte Kriechdehnung (5° Orientierung, 250 h, Ausschnitt Hydrid) für ein mit einem Hydrid belegten Zirkonium-basierten Hüllrohrmodell	55
Abb. 3.11	Akkumulierte Kriechdehnung (90° Orientierung, 250 h, Gesamtmodell) für ein mit einem Hydrid belegten Zirkonium-basierten Hüllrohrmodell	56
Abb. 3.12	Akkumulierte Kriechdehnung (90° Orientierung, 250 h, Ausschnitt Hydrid) für ein mit einem Hydrid belegten Zirkonium-basierten Hüllrohrmodell	56
Abb. 3.13	Zeitliche Entwicklung der Vergleichsspannung für Hydridorientierungen in 0°, 5° und 90°	57
Abb. 3.14	Simulationsbox am Anfang der Simulation.....	65
Abb. 3.15	Simulationsbox am Ende der Simulation, bei einer Temperatur von 700 K.....	65
Abb. 3.16	Simulationsbox am Ende der Simulation mit dem neu entwickelten Potential, bei einer Temperatur von 700 K.....	67
Abb. 3.17	Startkonfiguration der Simulation mit 50 wppm Wasserstoff (75 Atome, mit blauen Kügelchen dargestellt) zufällig verteilt.....	67
Abb. 3.18	Endzustand der Simulationen für Zirkonium mit Wasserstoff, mit instabilem Rechnungsergebnis	68
Abb. 3.19	Endzustand der Simulation mit 16 x 16 x 16 Zr-Atome, 75 H-Atome, und bei 700 K	69
Abb. 3.20	Grafische Darstellung des Bereiches 1	70
Abb. 3.21	Grafische Darstellung des Bereiches 2	71
Abb. 3.22	Grafische Darstellung des Bereiches 3	71
Abb. 3.23	Grafische Darstellung des Bereiches 4 während der Simulation	72
Abb. 3.24	Grafische Darstellung des Bereiches 4 zum Ende der Simulation.....	72
Abb. 3.25	Grafische Darstellung des Bereiches 5	73

Abb. 3.26	Temperaturverlauf eines RHT-Zyklus /DOE 13/.....	76
Abb. 3.27	Testschema für das RHT und RCT	76
Abb. 3.28	Temperaturen für RCT für verschiedene Hüllrohrmaterialien und unterschiedlicher Wasserstoff-Gehalte	78
Abb. 3.29	Verfügbare bleibende Dehnung nach einem Ringdrucktest für M5-Proben.....	79
Abb. 3.30	Verfügbare bleibende Dehnung nach einem Ringdrucktest für Zircaloy-4-Proben.....	80
Abb. 3.31	Verfügbare bleibende Dehnung nach einem Ringdrucktest für Zirlo-Proben.....	81
Abb. 3.32	Zirlo-Hüllrohrprobe nach der Bestrahlung mit sichtbarer Hydridkonzentration (<i>hydride rim</i>) an der Hüllrohraußenseite.....	83
Abb. 3.33	Zirlo-Hüllrohrprobe nach einer RHT mit 140 MPa. Mittlerer H-Gehalt CH = 650 wt.ppm	84
Abb. 3.34	Übergang von duktilem zu sprödem Verhalten für Zircaloy-4 in Abhängigkeit der Hydridorientierung	85
Abb. 3.35	Schematische Darstellung des Flusses zwischen zwei Ebenen n und n+1	86
Abb. 3.36	Ergebnisse der Beispielrechnung 1, berechnet mit TESP-ROD.....	87
Abb. 3.37	Ergebnisse der Beispielrechnung 2, berechnet mit TESP-ROD.....	88
Abb. 3.38	Beispielhafte Entwicklung des Gasinnendruckes, abgebildet für verschiedene Abbrände (BU) und betriebliche Spaltgasfreisetzungen FGR.....	91
Abb. 4.1	Beispiel der entwickelten HDF5-Schnittstelle zum Erstellen eines Datensatzes in die Nachzerfallsleistung-Datenbank	94
Abb. 4.2	Gitternetzlinien der definierten Nodes im ParaView-Modell eines generischen CASTOR® V/19-Behältermodells.....	95
Abb. 4.3	Flächendarstellung des ParaView-Modells eines generischen CASTOR® V/19-Behältermodells	95
Abb. 4.4	Darstellung aller in der TSSp/d-Datenbank enthaltenen Messpunkte.....	98

Anhang C

Fig. C.1	Code coupling scheme and code specific output data	130
----------	--	-----

Fig. C.2	Rod design	131
Fig. C.3	Rod average power (linear heat generation rate) over 5 irradiation cycles	134
Fig. C.4	Axial power profiles according to Tab. C.3.....	135
Fig. C.5	Decay heat evolution after reactor shutdown.....	136
Fig. C.6	Simplified temperature and pressure profile over time. (time not to scale).....	138
Fig. C.7	Anticipated cladding temperature increase during drying procedure in dedicated fuel axial nodes.....	140
Fig. C.8	Cladding surface temperature of node 22 of central and corner rod during dry storage stage	141
Fig. C.9	Axial cladding surface temperature profile of central and corner rod at t = 5 years and t = 100 years	141

Tabellenverzeichnis

Tab. 2.1	In der Modellierung verwendete Größen des Brennelements.....	19
Tab. 2.2	Brennstoffspezifische Details des betrachteten UO ₂	19
Tab. 2.3	Einstellungen für die Berechnung der Zerfallsleistung mit KENOREST	21
Tab. 2.4	Einstellungen für die Berechnung der Zerfallsleistung mit TRITON.....	23
Tab. 3.1	Materialdaten für Zircaloy-4 und Zirkoniumhydrid im FE-Modell.....	52
Tab. 3.2	Zusammenfassung der Ergebnisse (0°, 5°- und 90°-Hydridorientierung).....	57
Tab. 3.3	Koeffizienten der linearen Kriechdehnungsfunktion (0°, 5° und 90°)	58
Tab. 3.4	Ausgangsdaten der Simulationen für das reine Zirkonium mit dem Potential von Mendeleev et al /MEN 07/	65
Tab. 3.5	Gitterparameter für die Molekulardynamik Simulation aus Experimenten (Wertenbereiche) aus /VER 91/, /FOI 86/, /SZP 99/	66
Tab. 3.6	Ausgangsdaten der Simulationen für reines Zirkonium mit dem neu entwickelten Potential	66
Tab. 3.7	Ausgangsparameter der Simulation mit 16 x 16 x 16 Zr-Atome, 75 H-Atome, und bei 700 K.....	69
Tab. 3.8	Unterscheidung von verschiedenen Verhaltensbereichen für die Simulationen, abhängig von den Parametern Drag und nve/limit	70
Tab. 3.9	Ergebnisse der Hydriduntersuchungen nach dem RHT für M5.....	80
Tab. 3.10	Ergebnisse der Hydriduntersuchungen nach dem RHT für Zirlo.....	82
Tab. 3.11	Anfangsbedingungen für Beispielrechnung eines 60 cm langen Hüllrohrs	86
Tab. 3.12	Anfangsbedingungen für Beispielrechnung 2	89
Tab. 4.1	Daten der TSSd/p Datenbank	97
Anhang C		
Tab. C.1	Fuel rod design characteristics	131
Tab. C.2	Cycle overview	133
Tab. C.3	Axial power distribution	134

Tab. C.4	Cladding material corrosion state.....	136
Tab. C.5	Dry storage cask model	137
Tab. C.6	Time schedule for coolant temperature.....	138
Tab. C.7	List of results	142

A Publikationsliste

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

A.1 Journal-Artikel und Konferenzbeiträge

- (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: TESPА-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, KERntechnik, 83,6, pp.476-483, 2018.
- (5) F. Rowold, K. Hummelsheim and M. Stuke: Open questions on the road to reliable predictions of cladding integrity; Proceedings of SEDS, KERntechnik, 83, 6, pp.484-487, 2018.
- (6) F. Boldt: Implementation of Hydrogen Solid Solubility Data and Precipitation Threshold Stresses in the Fuel Rod Code TESPА-ROD. Nuclear Engineering and Radiation Science, DOI 10.1115/1.4042118, 2019.
- (7) M. Péridis, M. Küntzel, M. Stuke: Temperature fields of loaded spent fuel cask; Pro-ceedings of 3rd Workshop on Safety of Extended Dry Storage of Spent Nuclear Fuel, SEDS 2019, June 6-8, 2019, Garching, Germany, 2019.
- (8) M. Péridis, N.-F. Sentuc, M. Sonnenkalb, J. Stewering, M. Stuke: Analysis of 3-dimensional Temperature Fields of Loaded Dry Storage Casks"; Proceedings of the 19th International Symposium on the Packaging and Transportation of Radioactive Materials, PATRAM 2019, August 4-9, 2019, New Orleans, LA, USA 2019.

A.2 Konferenz- und Seminarbeiträge

Poster

- (1) M. Peridis, R. Kilger, M. Sonnenkalb, J. Stewering, M. Stuke; "Detailed temperature fields 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, EUROS SAFE2017, 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.
- (8) M. Stuke: Overview of GRS Activities, EPRI-ESCP Meeting, Charlotte, NC, USA, November 2018.
- (9) M. Stuke: BREZL - Langzeitverhalten zwischengelagerter Brennelemente bei deutlich längerer Zwischenlagerung, Universität Hannover, Februar 2019.
- (10) M. Peridis: Temperature Fields in Loaded Used Fuel Casks, 3rd Symposium on Extended Dry Storage of Spent Nuclear Fuel, SEDS, Garching, Juni 2019.
- (11) F. Boldt: Proposal of a Benchmark to Describe Thermo-Mechanical Behaviour, 3rd Symposium on Extended Dry Storage of Spent Nuclear Fuel, SEDS, Garching, Juni 2019.

A.3 Weitere

Benchmarkdefinition

- (1) F. Boldt, M. Stuke: Benchmark for thermo-mechanical fuel rod behaviour during dry storage, Specifications, Version 3, Proceedings of 3rd Workshop on Safety of Extended Dry Storage of Spent Nuclear Fuel, SEDS 2020, 4. – 5. Juni 2020, Garching.

Abschlussarbeiten

- (1) M. Péridis: Fuel Cladding Temperature Distribution in Dry Storage Casks, Génie Atomique, ENSTA ParisTech Université Paris-Saclay, INSTN, GRS, August 2018.
- (2) M. Asnar: A molecular dynamics approach to the simulation of Hydrogen behaviour in Zr-based cladding materials, Major in Mechanical Engineering, ENSTA ParisTech, GRS, August 2019.

B Verwendete Python Skripte zur Erstellung der Potentiale für LAMMPS

B.1 Anhang 1: Python script zum Erstellen des tabellierten Potentials

```
from atsim.potentials import writeSetFL
from atsim.potentials import Potential
from atsim.potentials import EAMPotential

import numpy as np
import math

def makeHeavisideSum(ak, rak):
    # Creates a base function for Zr-H and Zr-Zr potentials
    def func(r):
        return(sum([np.heaviside(rak[i] - r, 1)*ak[i]*(rak[i] - r)**3 for i in
range(len(ak))]))
    return func

def makeEmbedZr(aZr, bZr, cZr, rho_cut):
    # Creates the Zr embedding function
    def func(rho):
        if rho < rho_cut:
            return(aZr + bZr*np.sqrt(rho) + cZr*rho)
        return 0
    return func

def makeEmbedH(ah, bh, ch, dh, eh, rho0_H):
    # Creates the H embedding function
    def func(rho):
        return(
            -ch*(
                ((rho + eh)**(2 + dh))/(2 + dh)
                - ((ah + bh)*(rho + eh)**(1 + dh))/(1 + dh)
                + ((ah * bh)*(rho + eh)**dh)/dh
                - rho*((rho0_H + eh)**(1 + dh)
                - (ah + bh)*(rho0_H + eh)**dh
                + ah*bh*(rho0_H + eh)**(dh - 1))
            )
        )
    return func

def makePairPotZrZr(ak, rak):
    # Function factory that returns Zr-Zr pair interactions
    return makeHeavisideSum(ak, rak)

def makePairPotHH(D, alpha, beta, r0, rc, rs):
    # Function factory that returns H-H pair interactions
    def fcut(r):
        return(0.5*(1 + np.cos(np.pi*(r - rc + rs)/rs)))

    def fbase(r):
        return(D*(beta*np.exp(-alpha*(r - r0)) - alpha*np.exp(-beta*(r - r0))))

    def func(r):
        if r < rc - rs :
            return(fbase(r))
        elif rc - rs < r < rc :
            return(fbase(r)*fcut(r))
        return 0
    return func

def makePairPotZrH(ak, rak):
    # Function factory that returns Zr-H pair interactions
    return makeHeavisideSum(ak, rak)
```

```

def makeDensityFuncH(C, delta):
    def func(r):
        return C*np.exp(-delta*r)
    return func

def makeDensityFuncZr(bk, rbk):
    return makeHeavisideSum(bk, rbk)

def makePotentialObjects():
    # Zr parameters
    ak_Zr = [-0.0324, 9.8611, 9.755, -2.6295, 1]#0.2896]
    rak_Zr = [5.5, 3.35, 2.9, 2.5, 1.5]

    bk_Zr = [0.005659, -0.03008, 0.09795, 0.3912]
    rbk_Zr = [8, 6.4, 4.6, 2]

    # H parameters
    C = 11.0025
    D = 0.0661496
    alpha = 3.67263
    beta = 1.47797
    delta = 1.30927
    r0 = 2.5198
    rc = 5.35
    rs = 0.3

    # Zr embedding parameters
    aZr = 0
    bZr = -15.41
    cZr = 13.21
    rho_cut = 1.2639

    # H embedding parameters
    ah = 9.99780
    bh = 60.0155
    ch = 0.000197047
    dh = 1.18860
    eh = 0.0540638
    rho0_H = 7.98909

    # Zr-H parameters
    ak_ZrH = [-0.0018339, 0.5541, 0.4610, 0.2093, 4.486]
    rak_ZrH = [5.5, 3.35, 2.9, 2.5, 1.5]

    # Define the density functions
    dens_Zr = makeDensityFuncZr(bk_Zr, rbk_Zr)
    dens_H = makeDensityFuncH(C, delta)

    # Finally, define embedding functions for each species
    embedZr = makeEmbedZr(aZr, bZr, cZr, rho_cut)
    embedH = makeEmbedH(ah, bh, ch, dh, eh, rho0_H)

    # Wrap them in EAMPotential objects
    eamPotentials = [
        EAMPotential("Zr", 40, 91.224, embedZr, dens_Zr, latticeType = 'hcp',
                    latticeConstant = 3.232),
        EAMPotential("H", 1, 1.008, embedH, dens_H)]

    # Define pair functions
    pair_ZrZr = makePairPotZrZr(ak_Zr, rak_Zr)

    pair_HH = makePairPotHH(D, alpha, beta, r0, rc, rs)

    pair_ZrH = makePairPotZrH(ak_ZrH, rak_ZrH)

```

```

# Wrap them in Potential objects
pairPotentials = [
    Potential('Zr', 'Zr', pair_ZrZr),
    Potential('H', 'H', pair_HH),
    Potential('Zr', 'H', pair_ZrH)]

return eamPotentials, pairPotentials

def main():
    eamPotentials, pairPotentials = makePotentialObjects()

    # Perform tabulation
    # Make tabulation
    nrho = 2000
    drho = 0.05

    nr = 2000
    dr = 0.004

    with open("./Potentials/ZrHnorm.eam.setfl", 'wb') as outfile:
        writeSetFL(
            nrho, drho,
            nr, dr,
            eamPotentials,
            pairPotentials,
            out= outfile,
            comments = ['Ruda, Farkas, Zhou Zr H', """"This potential was obtained by
mixing the Zr-Zr and Zr-H interactions from Ruda, Farkas et al. 1996, and the
H-H from Zhou et al. 2007""",
                "Made by M. Asnar, June 6 2019"]) # <-- Note: title lines
given as list of three strings

if __name__ == '__main__':
    main()

```

B.2 Anhang 2: Eingabe Datei zur Simulation von reinem Zirkonium

```
### This file is used to calculate cohesive energy and lattice
### parameters of alpha-zirconium depending on temperature. It assumes a hex-
agonal close-packed structure.
### Test of the Potential files generated by Manuel Asnar
### Zirconium pure (without Hydrogen)

clear

### Setting up parameters

variable numberOfBoxes index 16 24
variable coef equal 1.0
variable t index 300 500 700

### Initialization and atoms definition -----

log .\EAM_Manu_Pot\Results\b.${numberOfBoxes}.${t}.log.out
units metal
boundary p p p
atom_style atomic
lattice hcp 3.232
region box block 0 ${numberOfBoxes} 0 $(v_coef*v_numberOfBoxes) 0
$(v_coef*v_numberOfBoxes)
create_box 1 box
create_atoms 1 box
mass 1 91.224
pair_style eam/alloy
pair_coeff * * ..\Potentials\ZrHnorm.eam.setfl Zr

### Regions of sample -----

neighbor 2.0 bin
neigh_modify delay 0 every 2

### Define settings -----

compute eng all pe/atom
compute eatoms all reduce sum c_eng

#fix 1 all nve/limit 0.1
#thermo_style custom step pe lx ly lz press pxx pyy pzz c_eatoms vol etotal
#minimize 1e-28 1e-28 50000 100000
#unfix 1

### Set temperature to desired value-----

reset_timestep 0
velocity all create $t 12345 mom yes rot no
fix 1 all npt temp $t $t 1 aniso 0 0 1 drag 0.1
compute2 all temp
dump 1 all custom 10000
.\EAM_Manu_Pot\${numberOfBoxes}\${t}\b.${t}.atom.*.dump id type xu yu zu ix iy
iz
thermo10000
thermo_style custom step temp pe lx ly lz press pxx pyy pzz c_eatoms vol eto-
tal

run 100000

unfix 1

variable numberOfAtoms equal "count(all)"
variable totalEnergy equal "c_eatoms"
variable lengtha equal "lx/v_numberOfBoxes"
variable lengthc equal "lz/(v_coef*v_numberOfBoxes)"
```

```

variable cohesiveEnergy equal "v_totalEnergy/v_numberOfAtoms"
variable ratio equal "v_lengthc/v_lengtha"

print "Total energy (eV) = ${totalEnergy};"
print "Number of atoms = ${numberOfAtoms};"
print "Lattice constant a (Angstroms) = ${lengtha};"
print "Lattice constant c (Angstroms) = ${lengthc};"
print "c/a ratio = ${ratio};"
print "Cohesive energy (eV) = ${cohesiveEnergy};"
print "Temperature = ${t};"

clear
next t
jump Manu_Pot_aZr_latparam.in.txt
clear
next numberOfBoxes
jump Manu_Pot_aZr_latparam.in.txt

print "It has all been done."

```

B.3 Anhang 3: Eingabe Datei zur Simulation von Zirkonium mit 50 wppm Wasserstoff

```

### This file is used to calculate cohesive energy and lattice.
### parameters of alpha-zirconium depending on temperature.
### It assumes a hexagonal close-packed structure.
### Test of the Potential files generated by Manuel Asnar.
### Zirconium with Hydrogen: 75 H for 16384 Zr (16-box),
### corresponding to 50 wppm / 253 H for 55296 Zr (24-box).

clear

### Setting up parameters

variable numberOfBoxes index 24
#variable numberOfHydrogen index 75 253
variable coef equal 1.0
variable t index 300 500 700

### Initialization and atoms definition -----

log .\EAM_Manu_Pot_ZrH\Results\b.${numberOfBoxes}.${t}.log.out
units metal
boundary p p p
atom_style atomic
lattice hcp 3.232
region box block 0 ${numberOfBoxes} 0 ${v_coef*v_numberOfBoxes} 0
${v_coef*v_numberOfBoxes}
create_box 2 box
create_atoms 1 box
create_atoms 2 random 253 878567 box
mass 1 91.224
mass 2 1.0079
pair_style eam/alloy
pair_coeff * * ..\Potentials\ZrHnorm.eam.setfl Zr H

### Regions of sample -----

neighbor 2.0 bin
neigh_modify delay 0 every 2

```

```

### Define settings -----
compute eng all pe/atom
compute eatoms all reduce sum c_eng

### Set temperature to desired value -----

reset_timestep 0
velocity all create $t 12345 mom yes rot no
fix 1 all npt temp $t $t 1 aniso 0 0 1 drag 0.5
fix 2 all nve/limit 0.5
compute2 all temp
dump 1 all custom 10000
.\EAM_Manu_Pot_ZrH\${numberOfBoxes}\${t}\b.${t}.atom.*.dump id type xu yu zu
ix iy iz
thermo10000
thermo_style custom step temp pe lx ly lz press pxx pyy pzz c_eatoms vol eto-
tal

run 50000

unfix 1
unfix 2

variable numberOfAtoms equal "count(all)"
variable totalEnergy equal "c_eatoms"
variable lengtha equal "lx/v_numberOfBoxes"
variable lengthc equal "lz/(v_coef*v_numberOfBoxes)"
variable cohesiveEnergy equal "v_totalEnergy/v_numberOfAtoms"
variable ratio equal "v_lengthc/v_lengtha"

print "Total energy (eV) = ${totalEnergy};"
print "Number of atoms = ${numberOfAtoms};"
print "Lattice constant a (Angstroms) = ${lengtha};"
print "Lattice constant c (Angstroms) = ${lengthc};"
print "c/a ratio = ${ratio};"
print "Cohesive energy (eV) = ${cohesiveEnergy};"
print "Temperature = ${t};"

clear
next t
jump Manu_Pot_aZrH_latparam.in.txt
clear
next numberOfBoxes
#next numberOfHydrogen
jump Manu_Pot_aZrH_latparam.in.txt

print "It has all been done."

```

C Benchmark for thermo-mechanical fuel rod behaviour during dry storage Specifications

C.1 Introduction

After service in operation, spent nuclear fuel is placed in wet storage for several years and, dependent on the fuel storage concept, dry storage in dual-purpose casks follows for several decades. During the entire storage period spent nuclear fuel is still subject to many changes (e. g. heat generation or Helium production). While many processes during reactor operation are well known or at least analysed with a broad data base the specific phenomena occurring during the drying process and the following storage are not described to such details.

Since the various fuel-rod codes simulate different effects (e. g. cladding creep, pellet-cladding-gap closure) it is necessary to study the basic fuel rod characteristic during the long-term dry storage. Further, the evolution of the hydrogen inside the fuel rod cladding remains an open question. It is still under discussion how circumferential radial hydrides form and possibly influence the fuel rod's ductility.

C.2 General aim

The aim is to compare the fuel rod behaviour predicted by different fuel rod codes and analyse and discuss the results. This open benchmark relies on publicly available data and generic models.

This benchmark will be a first step in comparison of simulation tools intended for the prediction of spent fuel behaviour during dry storage. Only a few simulation codes are dedicated to spent fuel in dry storage (e. g. COBRA-SFS). This benchmark includes pre-calculated typical values for the decay heat prediction and spent fuel cask thermo-hydraulics. The mechanical fuel rod behaviour during long term storage are calculated by the participants.

C.3 Codes

To enable a starting point for all participants the fuel rod state is given by the boundary conditions. A straightforward coupling of simulation tools will describe the fuel rod behaviour during dry storage.

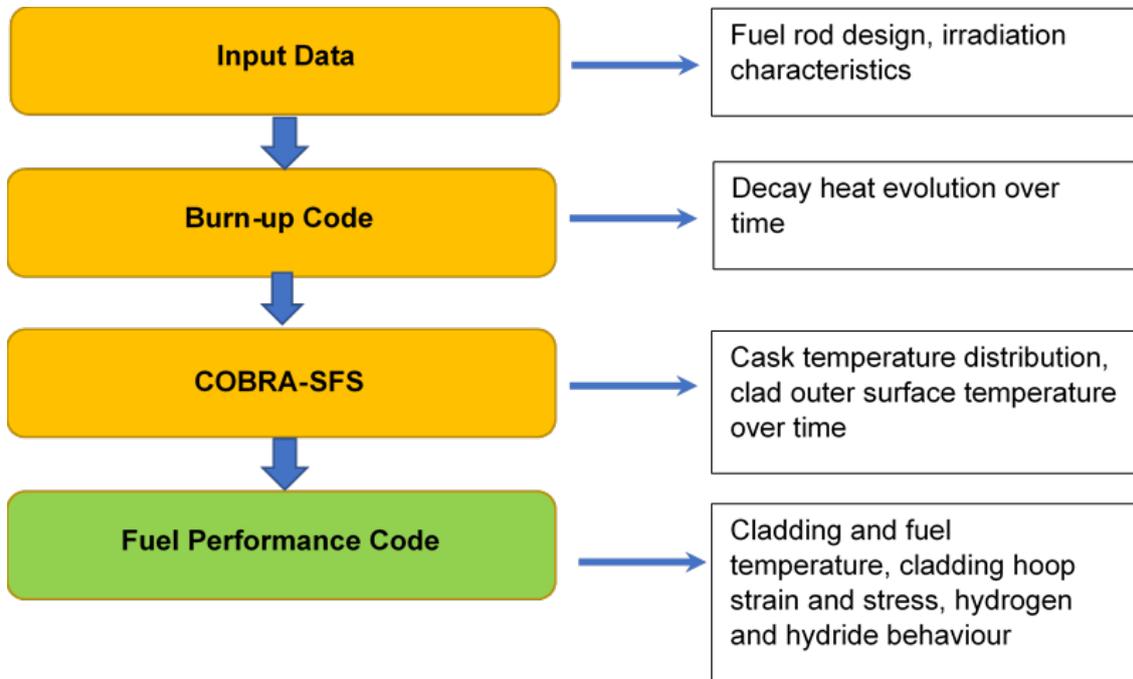


Fig. C.1 Code coupling scheme and code specific output data

According to Fig. C.1 the results from the yellow boxes are provided as boundary and starting conditions by the benchmark specifications. The green box is covered by the benchmark exercise.

C.3.1 General design of fuel rod

The fuel rod will be modelled as standard PWR fuel rod in 18 x 18 design. Depending on the code input options, more or less detailed input will be considered.

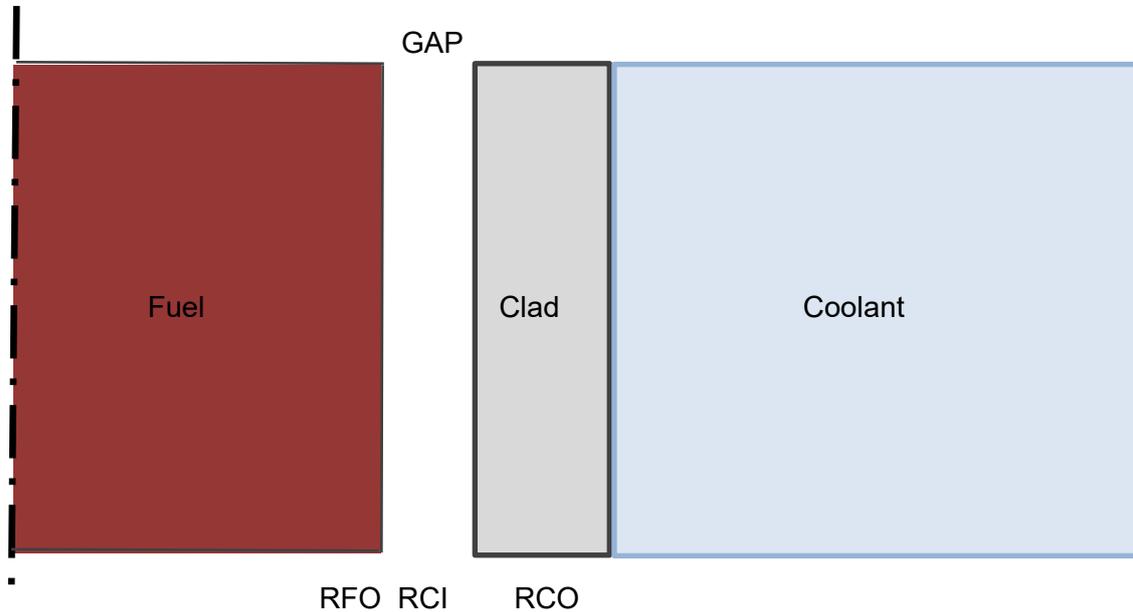


Fig. C.2 Rod design

Tab. C.1 Fuel rod design characteristics

Parameter	Value	unit	Comment
Fuel rod			
Design	18 x 18 PWR		KWU Design
Pitch	12.7	mm	dependent on 18x18 design
Total fuel rod length	4.405	mm	
Active fuel column	3.900	mm	
Cold upper plenum volume	6.430	mm ³	
Cold lower plenum volume	14.120	mm ³	
Cold free volume	see comment	mm ³	To be calculated by the code
Filling gas pressure	1.7	MPa	at 25 °C for M5, as fabricated
Filling gas pressure	2.25	MPa	at 25 °C for Zircaloy-4, as fabricated

Parameter	Value	unit	Comment
Filling gas composition	Helium	-	
...			
Fuel pellet:			
Fuel pellet	UO ₂	-	
Enrichment	4.4 %	-	
Fuel pellet density	10.360	kg/m ³	Theoretical density 10.960 kg/m ³
Fuel pellet grain size	0.011	mm	
U to O ratio	2.0	-	
Pellet diameter	8.05	mm	
Pellet length	10	mm	
Chamfer depth	0.05	mm	Volume 1.4 mm ³ per pellet
Chamfer width	1.25	mm	
Dishing depth	0.12	mm	Volume 5 mm ³ per pellet
Dishing radius	2.25	mm	
Outer roughness	2	μm	
...			
Cladding			
Outer diameter	9.5	mm	
Inner diameter	8.22	mm	
Cladding thickness	0.64	mm	
Oxygen content	0.125 %	-	Design value, as fabricated
Inner roughness	0.8	μm	
Outer roughness	0.8	μm	
Hydrogen pick up fraction	0.075 (M5) 0.15 (other)		Covering values from published oxide data

C.4 Fuel rod state

The power history in Tab. C.2 is artificially produced from various others and simplified cycles. The different cycles consist of 305 days of full power operation, 30 days of stretch-out operation and 30 days of revision. During stretch-out operation the power decreases on the listed value in Tab. C.2.

BOC denotes the begin of cycle, MOC is the mid of cycle at 152 full power days. EOCnat is the natural end of cycles, which is followed by the stretch-out operation leading to the end of cycle (EOC). The fuel rod's active zone is partitioned in 32 axial nodes with the equal length, beginning with node 1 at the bottom and ending with 32 at the top of the fuel rod.

The fast flux cut-off energy is set to 1 MeV.

Tab. C.2 Cycle overview

Cy- cle	Dura- tion Days	LHG R W/cm	Fast Flux $10^{13}/\text{cm}^2/\text{s}$	Stretch-out Days	LHGR end cycle W/cm	Fast Flux $10^{13}/\text{cm}^2/\text{s}$
1	305	250	13.0	30	200	10.0
2	305	200	10.0	30	180	9.0
3	305	210	11.0	30	180	9.0
4	305	160	9.5	30	140	8.0
5	305	100	6,0	30	80	5.0

The axial power profiles are simplified and taken for every cycle the same, as shown in Tab. C.3 and Fig. C.3. The basic thermo-hydraulic conditions are given in the following lines.

- Core inlet Temperature: 292 °C
- Mass Flow per rod: 0.3 kg/s
- Coolant pressure: 15.8 MPa (at stretch-out: 15.8 MPa)

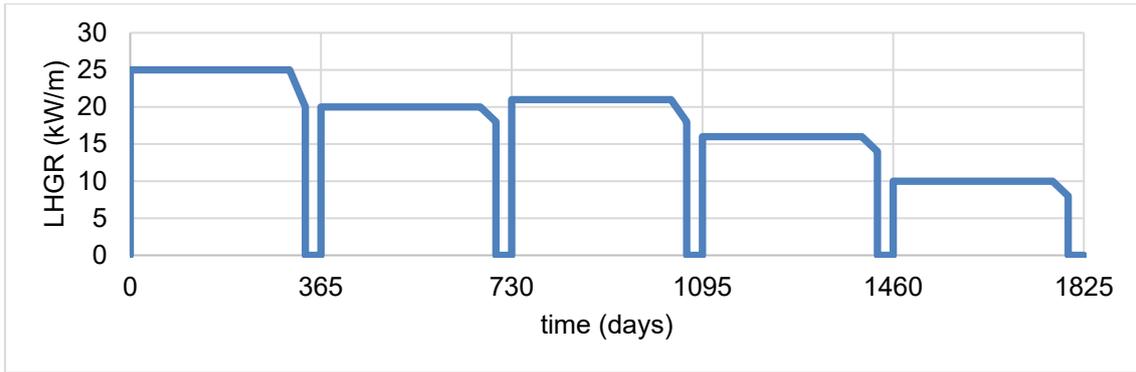


Fig. C.3 Rod average power (linear heat generation rate) over 5 irradiation cycles

Tab. C.3 Axial power distribution

Section	BOC	MOC	EOCnat	EOC
Bottom 1	0.2896	0.5216	0.6077	0.5079
2	0.4923	0.7920	0.8532	0.7125
3	0.6590	0.9834	1.0203	0.8441
4	0.7743	1.0783	1.0890	0.8967
5	0.8568	1.1203	1.1094	0.9139
6	0.9231	1.1391	1.1181	0.9198
7	0.9787	1.1453	1.1045	0.9213
8	1.0241	1.1406	1.0930	0.9228
9	1.0674	1.1367	1.0840	0.9284
10	1.1063	1.1305	1.0747	0.9351
11	1.1380	1.1221	1.0650	0.9429
12	1.1697	1.1163	1.0592	0.9549
13	1.1982	1.1104	1.0539	0.9678
14	1.2183	1.1023	1.0472	0.9796
15	1.2388	1.0974	1.0440	0.9952
16	1.2560	1.0927	1.0414	1.0114
17	1.2646	1.0861	1.0371	1.0259
18	1.2724	1.0823	1.0361	1.0442
19	1.2786	1.0788	1.0360	1.0634
20	1.2728	1.0736	1.0347	1.0814
21	1.2650	1.0702	1.0364	1.1032
22	1.2532	1.0668	1.0394	1.1268
23	1.2325	1.0612	1.0416	1.1501
24	1.2041	1.0556	1.0470	1.1787

Section	BOC	MOC	EOCnat	EOC
25	1.1697	1.0485	1.0538	1.2102
26	1.1247	1.0363	1.0588	1.2410
27	1.0583	1.0107	1.0565	1.2658
28	0.9693	0.9690	1.0433	1.2805
29	0.8161	0.8666	1.0075	1.2631
30	0.6696	0.7373	0.8748	1.1224
31	0.4922	0.5757	0.6815	0.8941
Top 32	0.2662	0.3525	0.4510	0.5948

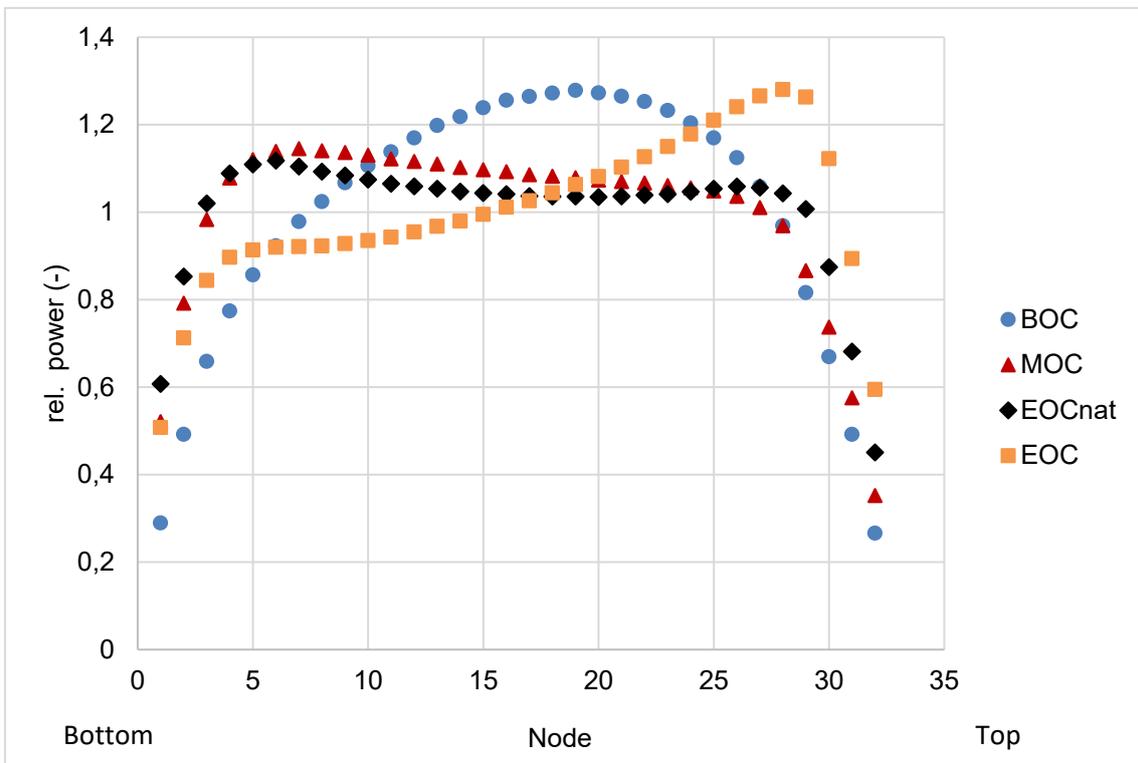


Fig. C.4 Axial power profiles according to Tab. C.3

C.4.1 Fuel rod corrosion state

The fuel rod corrosion state depends on the cladding material. In this Benchmark, the oxide thickness and hydrogen uptake ratio are given in the Tab. C.4 for the end of live burnup. The rod average burnup is given with 67 GWd/t HM.

The oxide layer thickness documented in Tab. C.4 resembles the maximum value. Depending on used code, own modelling may be used with the given Oxide layer as command variable.

Tab. C.4 Cladding material corrosion state

Parameter	Oxide layer thickness (µm)	Corresponding H pickup ratio
M5	30	0.075
Zry-4	90	0.15

C.4.2 Decay heat

The decay heat is modelled with the burnup code OREST. The decay heat shown in Fig. C.5 refers to the reactor shutdown ($t = 0$) and covers wet and dry storage period. Detailed data is given in the appendix. The decay heat is given as input in Power per ton heavy metal initial (W/t HM), power per node of active fuel zone (W/node) and as power per length (W/cm).

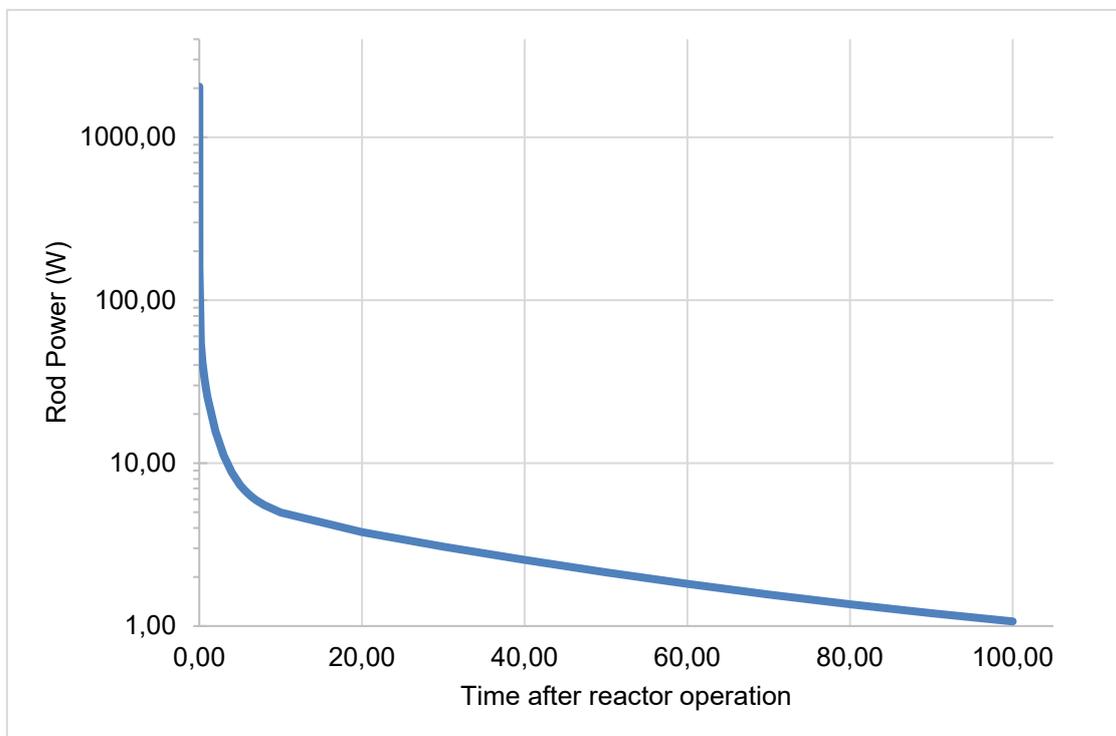


Fig. C.5 Decay heat evolution after reactor shutdown

C.4.3 Dry storage cask model

The transport and storage cask will be modelled as a generic model similar to a CASTOR® V/19 cask, which is loaded in wet conditions inside the spent fuel pool. After loading the cask will be closed and dewatered. This data is all covered by the COBRA-SFS model of the generic cask. The COBRA-SFS data provides temperature evolution of the cask's central fuel assembly to investigate the centre position (hottest four rods²) and fuel assembly corner position (coolest position). The surrounding fuel assemblies inside the cask are modelled assuming homogeneous power distribution and to match the maximum total thermal power (39 kW per cask).

Tab. C.5 Dry storage cask model

Parameter	Value	unit	comments
Cask type	Dry cask	-	Model for 19 PWR fuel assemblies
Maximum total thermal power	39	kW	
Thermal Power of central fuel assembly:	2.21	KW	Dependent on OREST calculation
Maximum thermal power per fuel assembly	2.04	kW	Homogeneous cask loading for other 18 fuel assemblies

C.5 Shutdown, wet storage and drying procedure

A simplified temperature transient during reactor shutdown and wet storage is anticipated. The reactor shutdown leads to a decrease in coolant temperature over the time until it reaches spent fuel pool temperature. The coolant pressure will decrease with a delay down to environmental pressure. The different stages of the cooldown are shown in Fig. C.6 and Tab. C.6.

² Central rod in the further text refers to these 4 rods

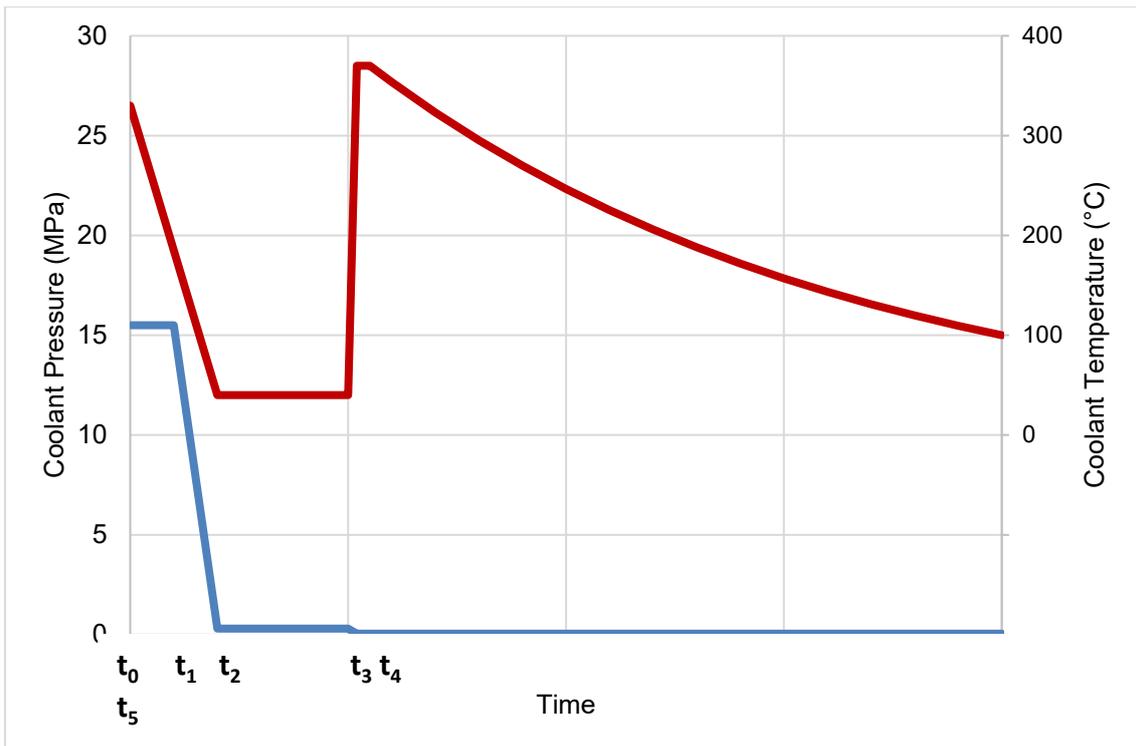


Fig. C.6 Simplified temperature and pressure profile over time. (time not to scale)

Tab. C.6 Time schedule for coolant temperature

Time step	Time	Pressure (MPa)	Temperature (°C)	Coolant	Event	Comment
t0	0	15.8	330	Water	Temperature decrease	
t1	2d	15.8		Water	Pressure decrease	
t2	5d	0.2	40	Water	Begin wet storage	
t3	5y	0.2	40	Helium	Begin drying process, temperature increase, dewatering	
t4	5y + 100h	0.05	*	Helium	Begin dry storage	*COBRA-SFS calculation
t5	100 y	0.05	*	Helium		*COBRA-SFS calculation

C.5.1 Drying procedure

The drying process follows the wet storage period and happens in several steps: First the cask is loaded in the spent fuel pool with fuel elements. After closing the cask with the lid it is dewatered and filled with a helium atmosphere. With interchanging vacuum drying and helium rinsing the water content in the cask is reduced to a limited amount.

The drying procedure³ is modelled simplified with an increasing temperature from wet storage conditions to levels below a maximum temperature dependent on the equilibrium state calculated by COBRA-SFS (see chapter C.5.1).

The temperature increase is calculated with a linear heat-up rate over 100 h, between the equilibrium state of wet storage and the equilibrium state of dry storage given in the following chapter.

The key points of the drying procedure are:

- Heat up from 40 °C (wet storage)
- Linear increase of temperature of every node
- Maximum temperature dependent on equilibrium temperature of following storage period

³ Detailed description of drying procedures usually dependent of utility and/or cask manufacturer and not publically available.

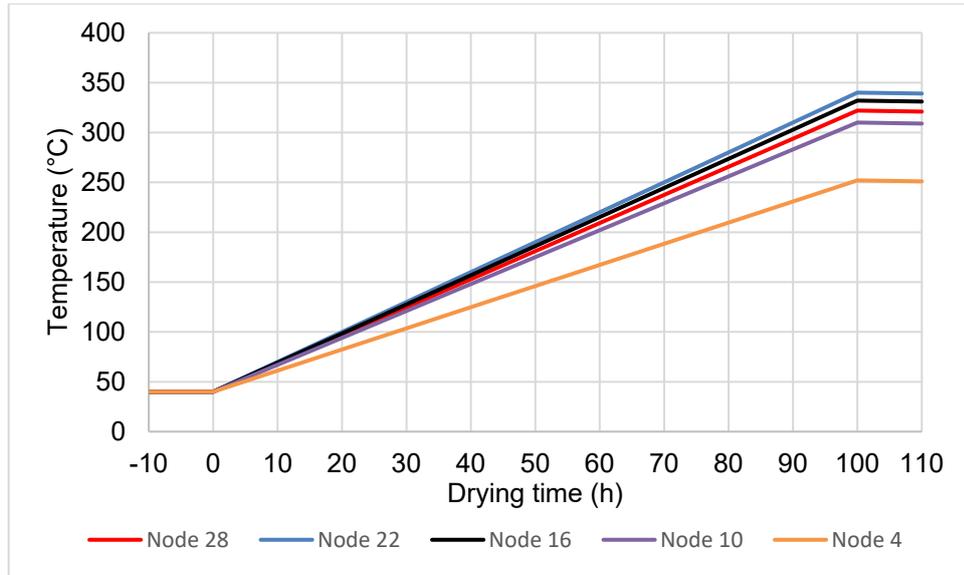


Fig. C.7 Anticipated cladding temperature increase during drying procedure in dedicated fuel axial nodes

C.6 Dry storage period

The dry store stage directly follows the drying procedure at $t = 5$ years. It is modelled as an equilibrium process modelled by COBRA-SFS code.

On Fig. C.8 the temperature evolution during dry storage for node 22 is shown. This node faces the highest temperatures during dry storage for both corner rod and central rod. The axial temperature distribution for the central rod and corner rod for $t = 5$ years and $t = 100$ years is given in Fig. C.9. Detailed temperature data for all nodes is given in the appendix.

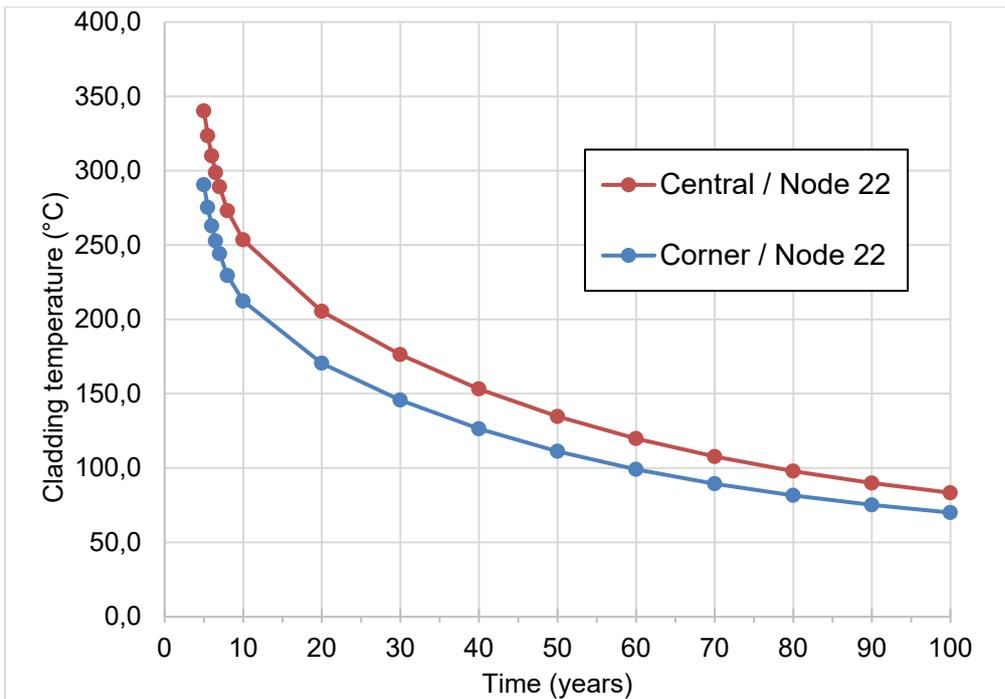


Fig. C.8 Cladding surface temperature of node 22 of central and corner rod during dry storage stage

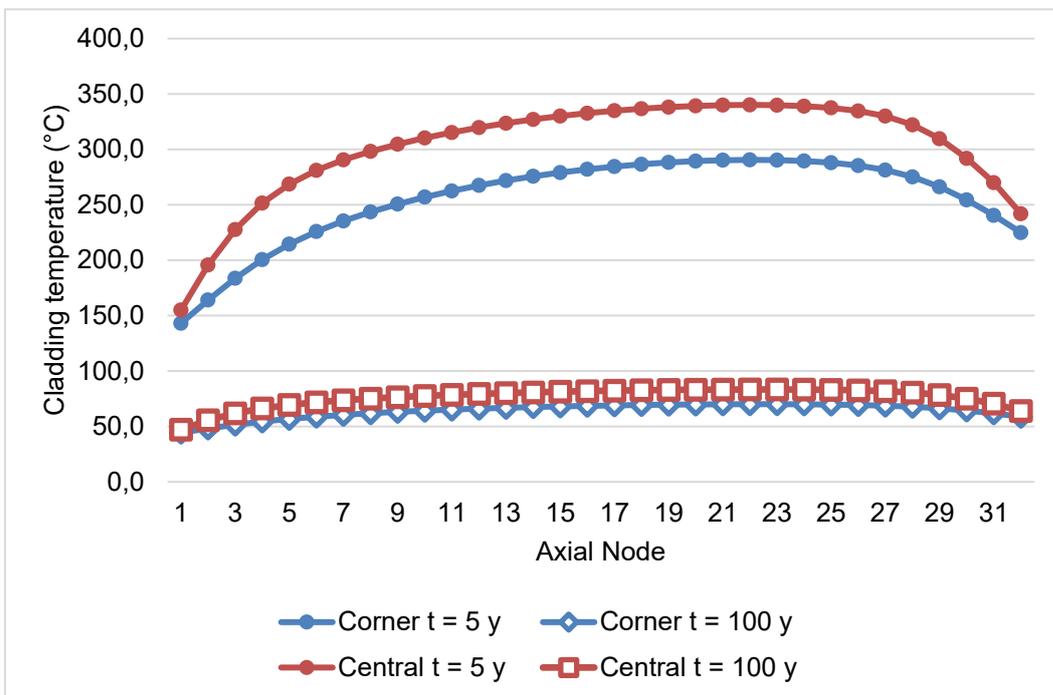


Fig. C.9 Axial cladding surface temperature profile of central and corner rod at t = 5 years and t = 100 years

C.7 Parameters to be calculated

Each participant will send his/her results in the specified output file. All units will be evaluated as given in the table below. The most important output parameters are ECTH, GAP, PRG and SCH (explained below). All values will be circumferentially averaged where possible. The axial nodalization of the results is free of choice, depending on the code capabilities and user judgement. The OREST and COBRA-SFS calculation will be performed in 32 axial zones as given in Fig. C.3. We propose to analyse a central (one of the four hottest fuel rods) and a corner fuel rod of the central fuel assembly.

As output, several time points are of interest:

- Cask drying transient + very beginning of dry storage
- Situation after 20 years of dry storage (creep effects will come to an end)
- Situation after 100 years of dry storage (possible transition of ductile to brittle behaviour)
- Detailed evolution of a single node/value (e. g. peak temperature axial node) for analysis of fission gas release, fuel rod pressure, gap closure/opening and hydrogen behaviour

If code prediction of any parameters is not possible, they may be skipped.

Tab. C.7 List of results

Parameter	Unit	Description
TFC	°C	Fuel Centreline temperature
TFO	°C	Fuel outer temperature
TCO	°C	Clad outer temperature (metal oxide interface)
RFO	mm	Fuel outer radius
RCI	Mm	Clad inner radius
GAP	mm	Gap size
ECTH	% of design value	Total hoop strain of the cladding
ECP	% of design value	Total plastic strain of the cladding
SCH	MPa	Clad hoop stress (average)

Parameter	Unit	Description
PRG	MPa	Fuel rod gas pressure (He, Xe, Kr)
FGP	mol	Fission gas production during irradiation
FGR	%	Fission gas release from operation
GRL	mol	Gas release during dry storage
HTOT	wt.ppm	Total amount of hydrogen in axial node (dissolved hydrogen and hydrides)
HDIS	%	Amount of dissolved hydrogen in axial node
HRAD	%	Share of radial hydrides in axial node
HCIR	%	Share of circumferential hydrides in axial nodes

The clad inner radius RCI allows comparison of results independent of the fuel rod oxidation thickness. The engineering strain $\varepsilon = \frac{\Delta l}{l_0}$ is used as strain calculation.

C.8 File format of parameters

The benchmark organizer will provide a result file for all participants. Due to the variety of codes, all participants must use same output format.

The format result file will be ASCII format.

C.9 Schedule

- Step 1 (all participants): Discussion on benchmark specification draft
- Step 2 (GRS): Distribution of final benchmark specification – December 2019
- Step 3 (all participants): Performing of calculations and sending results to GRS – February/March 2019
- Step 4 (GRS) analysis of results
- Step 5 (GRS) hand out and discussion of first results. Presentation on 4th SEDS workshop – June 2020

**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