# In-pile-Experimente zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverluststörfall

Ergebnisse der zerstörenden Nachuntersuchungen der Versuchsserie F (22 000 MWd/t<sub>U</sub>)

> P. Hofmann, C. Petersen, G. Schanz, H. Zimmermann Institut für Material- und Festkörperforschung Projekt Nukleare Sicherheit

Kernforschungszentrum Karlsruhe



#### KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Material- und Festkörperforschung Projekt Nukleare Sicherheit

KfK 3288

## <u>In-pile-Experimente zum Brennstabverhalten</u> beim Kühlmittelverluststörfall

Ergebnisse der zerstörenden Nachuntersuchungen der Versuchsserie F (22 000 MWd/t $_{\rm II}$ )

P. Hofmann, C. Petersen, G. Schanz, H. Zimmermann

unter Mitarbeit von

B.Burbulla

W.Hellriegel

F.Weiser

(Hauptabteilung Kerntechnische Betriebe)

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH., Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH ISSN 0303-4003

#### Zusammenfassung

Die in-pile Versuche mit unbestrahlten und bestrahlten Brennstabprüflingen hatten zum Ziel, den Einfluß nuklearer Parameter auf die Mechanismen des Brennstabversagens unter LOCA-Bedingungen zu untersuchen. Als Versuchsstäbe wurden Prüflinge mit einer aktiven Brennstofflänge von 50 cm verwendet. Die Versuchsserie F bestand aus fünf Einzelstab-Versuchen, die mit vorbestrahlten Prüflingen durchgeführt wurden. Der mittlere Abbrand betrug 22 000 MWd/t<sub>II</sub>.

Dieser Bericht beschreibt die zerstörenden Nachuntersuchungsergebnisse im Hinblick auf das mechanische Verhalten des
Zircaloy-4-Hüllmaterials, das Oxidations- und Korrosionsverhalten des Hüllrohres, das mechanische Verhalten des Brennstoffes sowie die Spaltgasfreisetzung und Volumenänderung
des Brennstoffes. Gegenüber den Versuchen mit unbestrahlten
Prüflingen lassen die Nachuntersuchungen keine Besonderheiten
erkennen. Lediglich der Brennstoffzustand ist stark unterschiedlich. Es kommt bei den vorbestrahlten Brennstäben zu
einer starken Fragmentierung des Brennstoffes.

Die beobachtete Hüllrohr-Innenoxidation in der Umgebung der Berststelle erfolgt durch eindringenden Wasserdampf. Der Brennstoff trägt ebenfalls geringfügig zu einer Oxidation der Hüllrohrinnenseite bei. Ein Einfluß von Jod oder anderen flüchtigen Spaltprodukten auf das Verformungs- und Bruchverhalten infolge Spannungsrißkorrosion konnte nicht festgestellt werden. Die maximale Spaltgasfreisetzung während der Vorbestrahlung beträgt 5,5%, die während der in-pile LOCA-Transiente zusätzlich auftretende Freisetzung 6%.

Dieser Bericht ist im Zusammenhang mit dem von der Hauptabteilung Ingenieurtechnik erstellten Bericht (KfK 2956, 1980) zu sehen, in dem die Ergebnisse der zerstörungsfreien Nachuntersuchungen dokumentiert sind.

#### <u>In-pile Experiments on the Fuel Rod Behavior in a Loss-of-</u> Coolant Accident

Results of Destructive Postirradiation Examination of Test Series F (22 000 MWd/ $t_{\rm H}$ )

#### Abstract

In-pile tests were performed with both unirradiated and irradiated fuel rod specimens to investigate the influence of the nuclear environment on the mechanisms of fuel rod failure under LOCA conditions. The test rods had an active fuel length of 50 cm. The Test Series F comprised five single-rod tests performed with preirradiated specimens. The mean burnup was 22 000 MWd/ $^{t}_{U}$ .

This report describes the results of the destructive postirradiation examination of Test Series F with respect to the
mechanical behavior of Zircaloy-4 cladding material, the
oxidation and corrosion behavior of the cladding, the mechanical behavior of the fuel, and the fission gas release
and volume change of the fuel. No difference between the
behavior of unirradiated and preirradiated rods has been
found, with the exception of the fuel condition. In the preirradiated fuel rods the fuel underwent considerable fragmentation during the experiments.

Oxidation of the inside surface of the cladding was observed at and near the rupture and was caused primarily by penetrating steam. The fuel contributes slightly to oxidation of the cladding inside surface. No influence of iodine or other volatile fission products on the deformation and fracture behavior due to stress corrosion cracking has been found. The maximum fission gas release during preirradiation was 5.5% with an additional 6% release during the in-pile LOCA transient.

#### Inhaltsverzeichnis

			Seite
1.	Einlei	Ltung	
	1.1 Ve	ersuchsziele	1
	1.2 Be	erichtsziel	1
	1.3 Li	iteratur	3
	Ak	bbildungen: Schnittpläne F1bis F6	4
2.	Mechar	nisches Verhalten des Hüllrohres	10
		ngaben zur Umfangsdehnung und Wand- Lärkenabnahme	10
		uantifizierung der Umfangsdehnung in adialer und axialer Richtung des Stabes	11
		erechnung der normalen und wahren ehnung ε	12
	2.4 Sc	chlußfolgerungen und Zusammenfassung	13
	2.5 Li	lteratur	14
	Тā	abellen	15
	Al	bbildungen	28
3.	Allger	neines Oxidationsverhalten des Hüll- s	45
	3.1 н	illrohrzustand nach Vorbestrahlung	45
	3.2 Au	ıßenansicht der geborstenen Brennstäbe	45
	3.3 02	kidationszustand der Hüllrohre	46
	3.3.	1 Außenseite	46
	3.3.	.2 Innenseite	48
		efüge und dessen Auswertung auf die lo- al erreichte Maximaltemperatur	49
	3.4.	.1 Zum Verfahren der Temperaturabschätzung	50
	3.4	.2 Ergebnisse der Gefügebeurteilung und Temperaturabschätzung	51
	3.5 M	lkrohärtemessungen	54
	3.6 Zi	usammenfassung und Schlußfolgerungen	56
	3.7 L	iteratur	58
	Та	abellen	59
	Al	bildungen	65

		Seite
4.	Beurteilung der Hüllrohrinnenkorrosion	111
	4.1 Allgemeines	111
	4.2 Chemisches Verhalten des Brennstoffes	112
	4.3 Chemisches Verhalten der Spaltprodukt	e 113
	4.4 Zusammenfassung und Schlußfolgerung	116
	4.5 Literatur	117
	Abbildung	118
5.	Mechanisches Verhalten des Brennstoffes	119
	5.1 Nicht vorbestrahlter Brennstoff	119
	5.2 Vorbestrahlter Brennstoff	120
	5.3 Zusammenfassung und Schlußfolgerung	121
	5.4 Literatur	121
	Abbildungen	122
6.	Spaltgasverhalten und Brennstoffvolumen- änderungen	125
	6.1 Untersuchungsmethoden	125
	6.2 Spaltgasverhalten und Dichteänderunge während der Vorbestrahlung	n 126
	6.3 Spaltgasverhalten während der LOCA- Tests	127
	6.4 Out-of-pile Glühversuche	127
	6.5 Zusammenfassung und Schlußfolgerung	128
	Abbildungen	129

#### 1. Einleitung

#### 1.1 Versuchsziele

Zur Untersuchung des Brennstabverhaltens bei Kühlmittelverluststörfällen in Leichtwasserreaktoren werden im Rahmen
des Projekten Nukleare Sicherheit theoretische und experimentelle Arbeiten durchgeführt. Mit den hier behandelten
In-pile-Versuchen im DK-Loop des FR 2-Reaktors soll festgestellt werden, ob und wie die in Out-of-pile-Versuchen nicht
simulierbaren nuklearen Parameter die Mechanismen des Brennstabversagens beeinflussen.

Zu diesem Zweck werden einerseits nuklear beheizte Brennstabprüflinge, andererseits elektrisch beheizte Referenzstäbe durch Kühlungsunterbrechung gezielten Temperaturtransienten unterzogen, in denen die 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverluststörfalls simuliert wird.

Mit der hier behandelten Versuchsserie F sollte erstmals das Verhalten von vorbestrahlten Prüflingen untersucht werden. Von den sechs bis zu einem Abbrand von 22 000 MWd/t bestrahlten Stäben F 1 - F 6 waren fünf einer Transiente auszusetzen, der Stab F 6 für die radiochemische Abbrandbestimmung sowie zur Untersuchung des Brennstoffzustandes nach der Bestrahlung zu verwenden. Der Zielabbrand der Brennstäbe sollte 20 000 MWd/t $_{\rm U}$  betragen. Die Abbrandbestimmungen ergaben aber einen tatsächlichen mittleren Abbrand von etwa 22 000 MWd/t $_{\rm U}$ . Aus diesem Grund erscheinen teilweise beide Werte in diesem Bericht.

#### 1.2 Berichtsziel

Die generelle Beschreibung des Versuchsprogramms, der Prüflinge und der Versuchsführung sowie die Dokumentation der während der Transientenversuche gemessenen Daten und die Ergebnisse der zerstörungsfreien Nachuntersuchung in den Heißen Zellen sind in /1-1/ dargestellt. Tabelle 1-1 zeigt die wesentlichen Versuchsdaten wie Bersttemperatur, Berst-

druck und Zeit bis zum Versagen der Brennelementhüllrohre.

Tabelle 1-1: Versuchsdaten der in-pile LOCA-Experimente mit den Prüflingen F 1 bis F 5 (Abbrand: 22 000 MWd/t<sub>II</sub>U

Test	Aufheizge- schwindig- keit bei 650°C	Zeit bis zum Ver- sagen	Bersttem- peratur	max.Hüll- tempera- tur	Berst- druck	Berst- deh- nung
	[K/s]	[s]	[K]	[K]	[bar]	[%]
F 1	10,6	43	1163	1289	56	59
F 2	8,7	57	1166	1280	53	38
F 3	10,1	57	1205	1290	42	27
F 4	11,1	37	1108	1322	72	34
F 5	10,1	49	1153	1279	60	41

In diesem Bericht werden die Ergebnisse der zerstörenden Nachuntersuchungen (Metallographie) der Brennstäbe F 1 bis F 6 beschrieben. Dieser Bericht ist in Zusammenhang mit dem Bericht /1-1/ zu sehen.

Von den Prüflingen F 1 bis F 5 wurden nach dem in-pile Versuch verschiedene Brennstababschnitte herausgetrennt und metallographisch präpariert. Von den Querschliffen liegen mindestens zwei Schliffebenen im Bereich der Hüllrohrbeule, einer etwa in der Mitte des Risses, der andere am Beulenende. Darüber hinaus wurden Proben von Schliffebenen unterhalb und oberhalb der Berststelle hergestellt. Die genauen Positionen der Schliffebenen sind den Schnittplänen zu entnehmen (Abb. 1-1 bis 1-5). Von dem Prüfling F 6, der nicht LOCA-getestet wurde, wurde nur ein Quer- und Längsschliff angefertigt (Abb. 1-6).

Von den Schliffebenen wurden neben Makroaufnahmen auch zahlreiche Mikroaufnahmen an verschiedenen Stellen am Rohrumfang hergestellt. Nur ein kleiner Teil dieser metallographischen Aufnahmen wird jedoch in diesem Bericht dokumentiert.

Von den Proben wurden zunächst im ungeätzten Zustand Schliffbildaufnahmen hergestellt, da auf diesen die Oxidschichten am besten sichtbar sind. Um jedoch das Gefüge des Zircaloy (Zry) besser erkennen zu können, wurden die Proben anschließend geätzt. Darüber hinaus wurden zum Teil Interferenzkontrastaufnahmen sowie Aufnahmen mit polarisiertem Licht hergestellt.

Die Nachuntersuchungen des vorliegenden Berichtes gliedern sich in vier Teile:

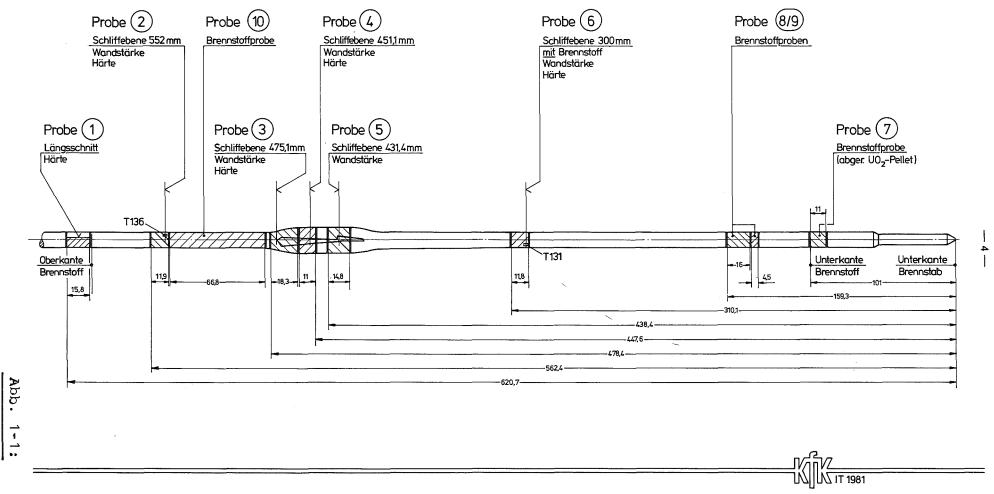
- Mechanisches Verhalten des Zry-4, Umfangsdehnung, Wandstärkenabnahme;
- Allgemeines Oxidationsverhalten des Hüllrohres, speziell im Hinblick auf die Innen- und Außenoxidation durch den Wasserdampf, Gefügezustand und Mikrohärte des Hüllmaterials;
- Beurteilung der Innenkorrosion durch den Brennstoff und die Spaltprodukte, mechanisches Verhalten des Brennstoffes;
- Spaltgasverhalten und Volumenänderungen des Brennstoffs während der Vorbestrahlung und bei der LOCA-Transiente.

Eine Zusammenfassung der wesentlichen Nachuntersuchungsergebnisse erfolgt in Tabellen, und zwar im Hinblick auf

- die Umfangsdehnung und Wandstärkenänderung des Hüllrohres sowie den Gefügezustand (Kornform und Korngröße) in den Tabellen 2-1 bis 2-13 und
- die anhand des Gefügezustandes abgeschätzte Hüllmaterialtemperatur sowie die Dicke der  $ZrO_2$ -Schicht und der sauerstoffstabilisierten  $\alpha$ -Zr(0)-Phase auf der Hüllrohraußen- und Innenoberfläche in den Tabellen 3-1 bis 3-6.

#### 1.3 Literatur

/1-1/ E.Karb, M.Prüßmann, L.Sepold, "In-pile Experimente zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverlust-störfall", KfK 2956 (1980)



Schnittplan F1 (Abbrand: 20000 MWd/t)

Abb. 1-2:

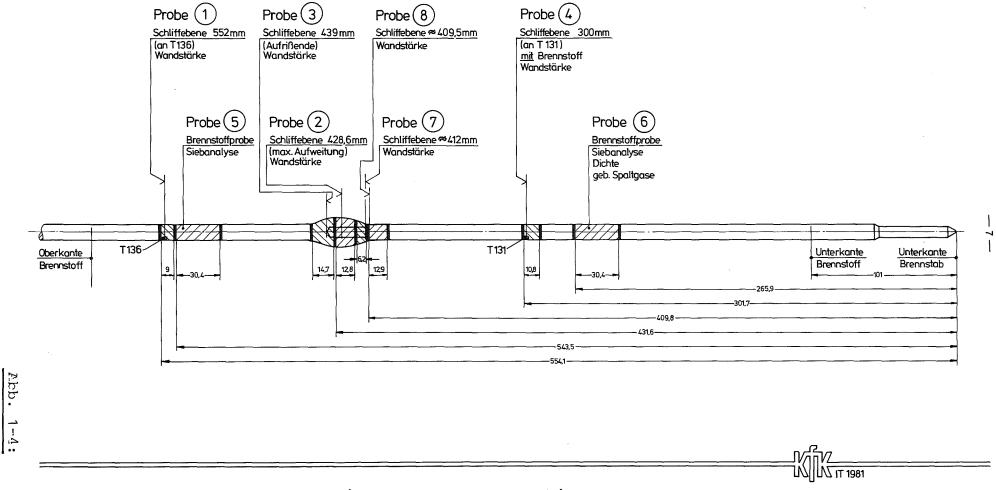
\[\frac{\frac{1}{\sqrt{1}}}{\sqrt{1}}\]\[\frac{1}{\sqrt{1}}\]\[\f

Schnittplan F2 (Ab

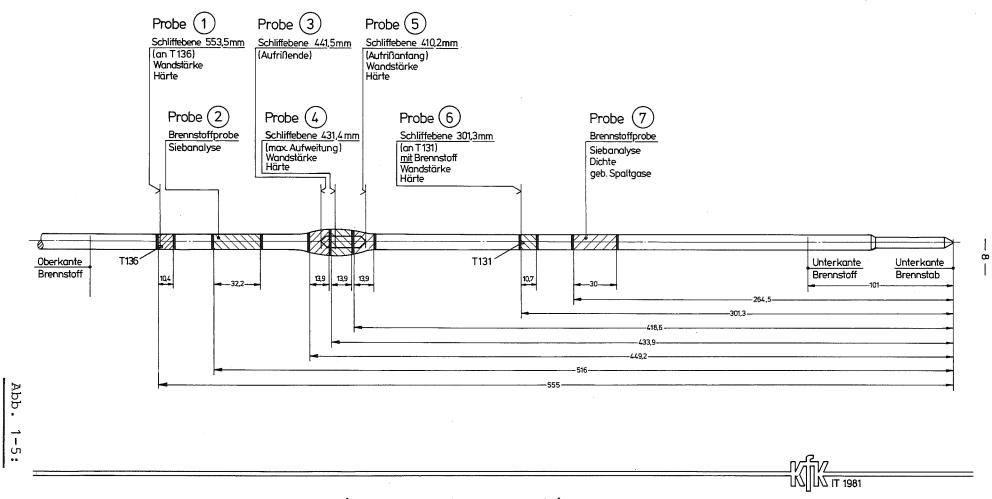
(Abbrand: 20000MWd/t)

Abb. 1-3:

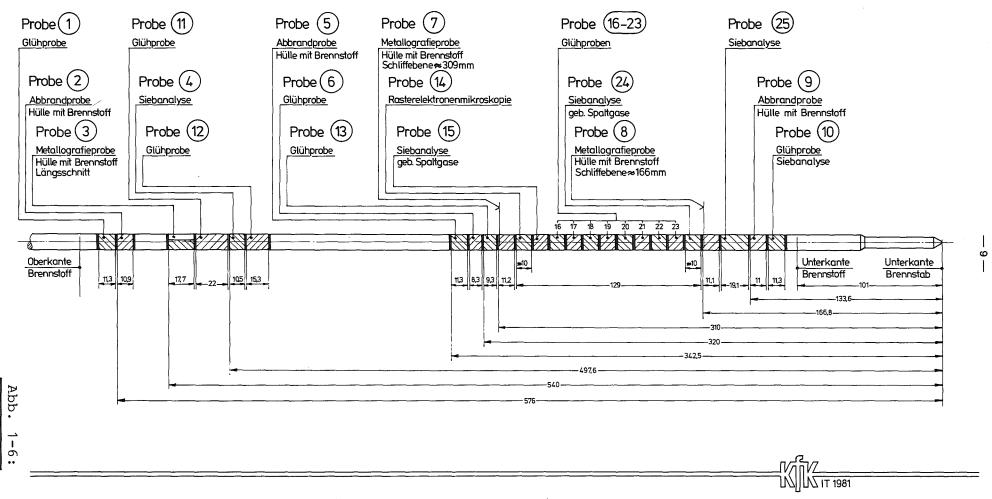
Schnittplan F3 (Abbrand: 20000MWd/t)



Schnittplan F4 (Abbrand: 20000 MWd/t)



Schnittplan F5 (Abbrand: 20000 MWd/t)



Schnittplan F6 (Abbrand: 20000MWd/t)

#### 2. Mechanisches Verhalten des Hüllrohres

#### 2.1 Angaben zur Umfangsdehnung und Wandstärkenabnahme

Aus den Übersichtsaufnahmen der untersuchten Ebenen wird mit Hilfe eines Digitalisierungsgerätes der Umfang U $_1$  aus drei Messungen ermittelt. Aus dem Umfang wird nach der Beziehung  $\epsilon_{O_U} = \left[ \left( U_1 - U_O \right) / U_O \right] \cdot$  100 die Umfangsdehnung in Prozent errechnet. ( $U_O$  = Ausgangsumfang, wird aus den Abmessungen des "Biblis-A"-Rohres berechnet). Die Umfangsdehnungen der Stäbe F1-F5 in den einzelnen Ebenen sind den Tabellen 2.1 ÷ 2.13 zu entnehmen. Die größten Umfangsdehnungen an den Rißstellen der 5 Stäbe sind in den Abb.: 2-1 ÷ 2.5 dargestellt.

Der Fehler bei der Auswertung liegt im Bereich von  $\pm$  2 %. Weiter können noch Fehler durch das Linsensystem bei der Aufnahme, durch ungenaue Vergrößerungsangaben sowie infolge Papierschrumpfung des Negativs und Positivabzuges entstehen.

Die Wandstärkenänderung  $\psi_O$  wird nach der Beziehung  $\psi_O = [(S_1 - S_O)/S_O] \cdot 100$  [%]berechnet. Wobei  $S_1$  die gemessene aktuelle Wandstärke und  $S_O$  die Ausgangswandstärke (Z.B.:0.725 mm) bedeuten. Zur Auswertung werden geätzte und ungeätzte Aufnahmen im Maßstab 100 : 1 herangezogen. Für die einzelnen Ebenen der 5 untersuchten Stäbe ergeben sich die in den Tabellen 2.1 ÷ 2.13 aufgelisteten Werte.

Wegen der geringen Zahl von Aufnahmen in den einzelnen Ebenen, können so nur größte und kleinste Wandstärken- änderungen ermittelt werden. Deshalb wird versucht, in den Ebenen der maximalen Umfangsdehnungen (Abb.: 2-1 ÷ 2-5) der einzelnen Stäbe ein Wandstärkenänderungsprofil aufzunehmen.

Zur Berechnung der Wandstärkenänderung der Rohrwandung in der Ebene der Rißstelle werden Markierungen in der Schliffebene vorgenommen. Das Verfahren ist für die Stäbe F1 - F5 in den Abb.:  $2-6 \div 2-10$  wiedergegeben.

Dabei wird von der Kerbe ausgehend im Uhrzeigersinn eine  $10^{O}$ -Teilung angebracht, wobei die Rißbreite und die Abweichung vom Kreis berücksichtigt sind. Außerdem werden die zum Kreismittelpunkt hin gebogenen Rißenden gegebenenfalls zeichnerisch wieder zurückgebogen (s.Abb.2-10).

In den Abb.: 2-11 ÷ 2-15 ist die Wandstärkenabnahme in Abhängigkeit vom Winkelabstand zur Kerbe aufgetragen. Wegen der kleinen Objektgröße ist eine Messung auf der Übersichtnahme relativ ungenau. Verglichen mit direkt am Mikroskop und aus Fernsehaufzeichnungen ausgemessenen Wandstärken beträgt die Abweichung + 3 %.

## 2.2 Quantifizierung der Umfangsdehnung in radialer und axialer Richtung des Stabes.

Zur Quantifizierung der Umfangsdehnung wurde ein Radialdehnungslokalisierungsparameter Wo eingeführt. (Definition ist in [2-1] angegeben). Dieser Parameter ermöglicht den Vergleich der Umfangsdehnungen aus unterschiedlichen Versuchsführungen. In Abb. 2-16 werden Wa-Werte gegen die wahre maximale Umfangsdehnung aufgetragen. Verglichen werden Daten aus temperaturtransienten indirekt beheizten in-pile Tests an vorbestrahlten Prüflingen (F-Serie, 20 000 MWd/t) und nicht vorbestrahlten Prüflingen (A- und B-Serien) mit direkt beheizten out-pile Tests mit Al203-Pelletfüllung. Alle in-pile Tests zeigen bei gleicher maximaler Umfangsdehnung höhere  $W_{\Theta}$ -Werte als die out-pile Tests. Dies ist aber kein Einfluß der Bestrahlung, sondern hängt mit der unterschiedlichen azitalen Temperaturverteilung zusammen. Die out-of-pile verformten Stäbe hatten trotz der direkten Beheizung, wegen der  ${\rm Al_2O_3}$ -Pelletfüllung mit bis zu 0,5 mm Einfüllspiel zwischen Pellet und Hülle stärkere azimutale Temperaturunterschiede, als die in-pile geborstenen Stäbe. Daraus ist zu schließen, daß bei gleicher Umfangsdehnung der Parameter W mit zunehmenden azimutalen Temperaturunterschieden abnimmt.

Der Axialdehnungslokalisierungsparameter  $W_Z$  ermöglicht in Analogie zu  $W_D$  eine Quantifizierung der Beulenform in axialer Richtung. Die Definition sagt aus, daß für  $W_Z \le 0.5$  lange gleichförmige Beulen und für  $W_Z > 0.5$  ausgeprägte kurze Beulen entlang der Rohrachse erwartet werden. Ein Vergleich der Versuche aus der F-Serie und den Serien A und B mit direkt beheizten out-of-pile Versuchen, in Relation zur Berstzeit (Abb.: 2-17), zeigt, daß unabhängig von der azimutalen Temperaturverteilung  $W_Z$ -Werte > 0.5 erhalten werden können. Lange gleichförmige Beulen werden eher von langsamen Aufheizgeschwindigkeiten bei geringen Innendrucken erzeugt, wie sie im Falle von kleinen Lecks auftreten. Ein Einfluß durch die Bestrahlung konnte auch hier nicht festgestellt werden.

#### 2.3 Berechnung der normalen und wahren Dehnung ε

Dieser Formalismus gilt auch analog für die Berechnung der Umfangsdehnung  $\epsilon_u$  und der Wandstärkenänderung  $\psi$ , wobei nenegatives Vorzeichen Abnahme der Größe bedeutet.

Berechnung von  $\epsilon_0$  normale Dehnung (Dehnung bezogen auf Ausgangslänge  $l_0$ ) und  $\epsilon_W$  wahre Dehnung

(Dehnung bezogen auf aktuelle Länge  $l_1$ ).

$$\varepsilon_{0} = \frac{1_{1} - 1_{0}}{1_{0}} \cdot 100[\%]$$
 [1]

$$\varepsilon_{O} = \frac{l_{1} - l_{O}}{l_{O}}$$
 in Bruchteilen [2]

$$[2] + \varepsilon_0 = \frac{1}{1_0} - 1 + \frac{1}{1_0} = \varepsilon_0 + 1$$

$$+ 1_1 = \varepsilon_0 \cdot 1_0 + 1_0$$
[2a]

$$\varepsilon_{\rm W} = \ln \frac{1}{1_{\rm O}} \cdot 100 \text{ in [%]}$$
 [3]

$$\varepsilon_{W} = \ln \frac{1_{1}}{1_{0}}$$
 in Bruchteilen [4]

[4] entsteht aus : 1 (t); 1 (t) + d1

$$\rightarrow d\varepsilon = \frac{dl}{l}$$

Integration: 
$$\varepsilon_{w} = \int_{0}^{1} \frac{dl}{l} = \ln l \int_{0}^{1} = \ln \frac{l}{l_{0}}$$

Verknüpfung zwischen  $\epsilon_{o}$  und  $\epsilon_{w}$ : [2a] in [4]

$$\varepsilon_{\rm W} = \ln (\varepsilon_{\rm O} + 1)$$
.

#### 2.4 Schlußfolgerungen und Zusammenfassung

- Die erreichten Bruchumfangsdehnungen der 5 vorbestrahlten Stäbe unterscheiden sich unter vergleichbaren Berstbedingungen nicht von denen der Prüflinge ohne Vorbestrahlung die in-pile verformt wurden.
- Die Werte der Radial- und Axialdehnungslokalisierungsparameter liegen für die vorbestrahlten und nicht vorbestrahlten Prüflinge im gleichen Streuband. Der Einfluß
  von zunehmenden azimutalen Temperaturunterschieden wirkt
  sich lediglich auf den Radialdehnungslokalisierungsparameter bei gleicher Umfangsdehnung in einer Abnahme der errechneten Werte aus.
- Durch die Vorbestrahlung von 20000 MWd/t wurde zumindest das Hüllrohr in seinem mechanischen Verhalten nicht beeinflußt.

### 2.5 <u>Literatur</u>

#### [2-1] E.H.Karb et al:

"KfK In-Pile Tests on LWR Fuel Rod Behavior During the Heatup Phase of a LOCA" KfK Bericht Nr. 3028, Part II, Okt. 1980, S. 52 ff

Tabelle: 2.1 Versuch: F1

Zusammenf.Angaben zu Umfangsdehnung, Wandstärkenänderung und Gefügezustand des Hüllrohres

Schliffebene	Umfangs- dehnung				Gefüge: Phasenzusammens.	Abbildungen		
	ε <sub>ου</sub> (%)	ε <sub>wμ</sub> )	-ψ <sub>0</sub> (%)	-ψ <sub>0</sub> (%)	Korngr. uform	HZ-Nr.	Lfd. Nr.	
2	11	11     		17   12   14   4	rundes α´-Gefüge mit α-Körnern KG: 10-15 μm	F1 - 2/1; 1,5 mm F1 - 2/3 F1 - 2/11 F1 - 2/12 F1 - 2/14 F1 - 2/13 F1 - 2/15-17		
3	40 39 34	34 33 29	B	158 49 129 9	(10μm) rundes Ver formungsgefüge, Zwillingsbildung.) rundes α-Gefüge mit wenigen α- Körnern KG = 10 μm.	F1 - 3/1 F1 - 3/2; 2,0 mm F1 - 3/4;15,0 mm F1 - 3/5 F1 - 3/7 F1 - 3/17 F1 - 3/18 F1 - 3/20-23		

= Umfangsdehnung =  $[(u_1 - u_0)/u_0] \cdot 100 (\%);$   $\varepsilon_{w_U}$  = wahre Umfangsdehnung =  $[\ln(u_1/u_0)] \cdot 100 (\%)$ 

 $\psi_{o}$  = Wandst.-Änderung = [(s<sub>1</sub>-s<sub>o</sub>)/s<sub>o</sub>] · 100 (%);  $\psi_{w}$  = wahre Wandst.-Änderung = [ln(s<sub>1</sub>/s<sub>o</sub>)] · 100 (%) negatives Vorzeichen bei Wandstärkenänderung bedeutet Abnahme

Zusammenf.Angaben zu Umfangsdehnung, Wandstärkenänderung und Gefügezustand des Hüllrohres

Schliffebene	Umfangs- dehnung				Gefüge: Phasenzusammens.	Abbildungen		
	ε <sub>ου</sub> (%)	<sup>ε</sup> wμ (%)	-ψ <sub>ο</sub> (%)	-ψ <sub>0</sub> (%)	Korngr. uform	HZ-Nr.	Lfd. Nr.	
4	49 47	40 39	83 82,8 13 13 10	180 176 14 14 11	rundes α-Korn mit α-Körner KG: 10-15 μm	F1 - 4/1 F1 - 4/2; 3,5 mm F1 - 4/5 F1 - 4/6 F1 - 4/15 F1 - 4/16 F1 - 4/14 F1 - 4/17-20		
5	51 55 50	41 44 41	81 79 15 12	165 158 16 16 13	ausgeprägtes α-Korn wenige α-Körner KG: 10-25 μm	F1 - 5/1 F1 - 5/2; 4,0 mm F1 - 5/3; 7,0 mm F1 - 5/4 F1 - 5/6 F1 - 5/8 F1 - 5/15 F1 - 5/14 F1 - 5/16-18	2-1	

 $\varepsilon_{o_{u}}$  = Umfangsdehnung =  $[(u_{1}^{-}u_{0}^{-})/u_{0}^{-}] \cdot 100 (%);$   $\varepsilon_{w_{u}}$  = wahre Umfangsdehnung =  $[\ln(u_{1}/u_{0}^{-})] \cdot 100 (%)$ 

 $\psi_{\rm O}$  = Wandst.-Änderung = [(s<sub>1</sub>-s<sub>0</sub>)/s<sub>0</sub>] · 100 (%);  $\psi_{\rm W}$  = wahre Wandst.-Änderung = [ln(s<sub>1</sub>/s<sub>0</sub>)] · 100 (%) negatives Vorzeichen bei Wandstärkenänderung bedeutet Abnahme

T: 1

Tabelle: 2.3

Zusammenf.Angaben zu Umfangsdehnung, Wandstärkenänderung und Gefügezustand des Hüllrohres

Schliffebene	Umfan dehnu		Wandst.Än- derung		Gefüge: Phasenzusammens.	Abbildungen		
	<sub>(%)</sub>	င် <sub>MU</sub> ( %)	-ψ <sub>O</sub> (%)	-ψ <sub>0</sub> (%)	Korngr. uform	HZ-Nr.	Lfd. Nr.	
6	19	18	20 23 8	22 26 8	rundes &-Korn mit &-Körnern KG: 10-15 µm  langes &-Korn KG: 60-80 µm  rundes &-Korn weniger &-Körner KG: 15-20 µm	F1 - 6/1; 1,7mm F1 - 6/2 F1 - 6/19 F1 - 6/21 F1 - 6/20 F1 - 6/22-24 F1 - 6/25		

 $\varepsilon_{o_u} = \text{Umfangsdehnung} = [(u_1 - u_0)/u_0] \cdot 100 (\%); \qquad \varepsilon_{w_u} = \text{Wahre Umfangsdehnung} = [\ln(u_1/u_0)] \cdot 100 (\%)$ 

 $\psi_{\rm O} = {\tt Wandst.-\ddot{A}nderung} = [(s_1 - s_0)/s_0] \cdot 100 \; (\%); \; \psi_{\rm W} = {\tt wahre Wandst.-\ddot{A}nderung} = [\ln(s_1/s_0)] \cdot 100 \; (\%) \\ {\tt negatives Vorzeichen bei Wandstärkenänderung bedeutet Abnahme}$ 

Index "1" bedeutet: Wert nach der Verformung; Index "0" bedeutet Ausgangswert

1

Zusammenf.Angaben zu Umfangsdehnung, Wandstärkenänderung und Gefügezustand des Hüllrohres

Schliffebene	Umfangs- dehnung				Geruge: Phasenzusammens.	Abbildungen	
	ε <sub>ou</sub> (%)	င် <sub>wည</sub> (%)		-ψ <sub>0</sub> (%)	Korngr. uform	HZ-Nr.	Lfd. Nr.
1	16	15	10 17	11 19	rundes α-Korn mit α-Körnern KG: 10-15 μm	F2 - 1/1; 3,7 mm F2 - 1/2 F2 - 1/8 F2 - 1/9 F2 - 1/11	
2	38 39 37	32 33 32	14 86 90 15	15 198 234 16	rundes α-Korn mit α-Körnern KG: 10 -15μm	F2 - 2/1 F2 - 2/2;1,5 mm F2 - 2/3;3,0 mm F2 - 2/4 F2 - 2/7 F2 - 2/9 F2 - 2/14 F2 - 2/15 F2 - 2/16	2-2

= Umfangsdehnung =  $[(u_1^-u_0^-)/u_0^-] \cdot 100 \ (\%); \qquad \varepsilon_{w_{11}} = wahre \ Umfangsdehnung = <math>[\ln(u_1/u_0^-)] \cdot 100 \ (\%)$ 

 $\psi_{\text{O}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \left( s_{1} - s_{\text{O}} \right) / s_{\text{O}} \right] \cdot 100 \; (\$) \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \cdot 100 \; (\$) \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \cdot 100 \; (\$) \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \cdot 100 \; (\$) \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \cdot 100 \; (\$) \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \cdot 100 \; (\$) \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \cdot 100 \; (\$) \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \cdot 100 \; (\$) \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \cdot 100 \; (\$) \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \cdot 100 \; (\$) \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \cdot 100 \; (\$) \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \cdot 100 \; (\$) \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \; ; \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-"Anderung} = \left[ \ln \left( s_{$ negatives Vorzeichen bei Wandstärkenänderung bedeutet Abnahme

Versuch: F2 Tabelle: 2.5

Zusammenf.Angaben zu Umfangsdehnung, Wandstärkenänderung und Gefügezustand des Hüllrohres

Schliffebene			Wandst.Än- derung		Gefüge: Phasenzusammens.	Abbildungen	
	ε <sub>ου</sub> (%)	င် <sub>လည</sub> ( ဗွ်)	-ψ <sub>Ο</sub>	-ψ <sub>0</sub> (%)	Korngr. uform	HZ-Nr.	Lfd. Nr.
3	37 36 36	31 31 30 30	42 63 13 21	55 99 14 24	rundes $\alpha$ -Korn mit $\alpha$ -Körnern KG: 10-15 $\mu$ m	F2 - 3/1 F2 - 3/2;3,0 mm F2 - 3/3;5,0 mm F2 - 3/5 F2 - 3/8 F2 - 3/10 F2 - 3/20 F2 - 3/15,16 F2 - 3/18,19	
4	13		21 5 2 5	24 5 2 5	rundes α-Korn mit α-Körnern KG: 15-20 μm	F2 - 4/1;1,1 mm F2 - 4/2 F2 - 4/5 F2 - 4/8 F2 - 4/13 F2 - 4/9,11,12	

wandst.-Anderung =  $[(s_1-s_0)/s_0]$  100 (%);  $\psi_W$  = wante wandst.-Anderung =  $[in(s_1/s_0)]$  100 negatives Vorzeichen bei Wandstärkenänderung bedeutet Abnahme

Versuch: F3 Tabelle: 2.6

Zusammenf. Angaben zu Umfangsdehnung, Wandstärkenänderung und Gefügezustand des Hüllrohres

Schliffebene	Umfangs- dehnung		Wandst.Än- derung		Gefüge: Phasenzusammens.	Abbildungen	
	ε <sub>ou</sub> (%)	<sup>(နွ</sup> )	-ψ <sub>ο</sub> (%)	-ψ <sub>0</sub> (%)	Korngr. uform	HZ-Nr.	Lfd. Nr.
1	10	9	1 4 15	1 4 16	rundes α-Korn mit α-Körnern KG: 8-10 μm	F3 - 1/1 F3 - 1/2 F3 - 1/6 F3 - 1/9 F3 - 1/7,8,10	
2	14	13	24 4 2	28 4 2	rundes α-Korn mit α-Körnern KG: 8-15 μm	F3 - 2/1 F3 - 2/2 F3 - 2/3 F3 - 2/6 F3 - 2/5 F3 - 2/7 - 10	

= Umfangsdehnung =  $[(u_1 - u_0)/u_0] \cdot 100 (\%)$ ;  $\varepsilon_{w_{11}}$  = wahre Umfangsdehnung =  $[\ln(u_1/u_0)] \cdot 100 (\%)$ 

 $\psi_{\text{O}}$  = Wandst.-Änderung = [(s<sub>1</sub>-s<sub>0</sub>)/s<sub>0</sub>] · 100 (%);  $\psi_{\text{W}}$  = wahre Wandst.-Änderung = [ln(s<sub>1</sub>/s<sub>0</sub>)] · 100 (%) negatives Vorzeichen bei Wandstärkenänderung bedeutet Abnahme

Versuch: F3 Tabelle: 2.7

Zusammenf.Angaben zu Umfangsdehnung, Wandstärkenänderung und Gefügezustand des Hüllrohres

Schliffebene		Umfangs- Wands dehnung derun			Gefüge: Phasenzusammens.	Abbild	lungen
	ε <sub>ou</sub> (%)	(နှ) <sub>E</sub> Mn	-ψ <sub>ο</sub> (%)	-ψ <sub>O</sub> (%)	Korngr. uform	HZ-Nr.	Lfd. Nr.
3	25 26	22 23	85 98 23 8	189 220 26 8	überwiegend rundes) α-Korn, wenige α-Körner KG: 8-10 μm	F3 - 3/1 F3 - 3/3; 5,0 mm F3 - 3/4 F3 - 3/5 F3 - 3/6 F3 - 3/9 F3 - 3/14-17	
4	28 26 27	25 23 24	79 8 81 10	158 8 165 11	überwiegend rundes) α-Korn, wenige α-Körner KG: 8-15 μm	F3 - 4/2;2,5 mm F3 - 4/3;5,0 mm F3 - 4/4;7,5 mm F3 - 4/5 F3 - 4/7 F3 - 4/14 F3 - 4/16 F3 - 4/17	2-3

$$\begin{split} \epsilon_{\text{O}_{\text{U}}} &= \text{Umfangsdehnung} = \left[ \left( \mathbf{u}_{1}^{-} \mathbf{u}_{0}^{-} \right) / \mathbf{u}_{0}^{-} \right] \cdot 100 \; (\$) \; ; \qquad \epsilon_{\text{W}_{\text{U}}} &= \text{wahre Umfangsdehnung} = \left[ \ln \left( \mathbf{u}_{1} / \mathbf{u}_{0}^{-} \right) \right] \cdot 100 \; (\$) \\ \psi_{\text{O}} &= \text{Wandst.-Änderung} = \left[ \left( \mathbf{s}_{1}^{-} \mathbf{s}_{0}^{-} \right) / \mathbf{s}_{0}^{-} \right] \cdot 100 \; (\$) \; ; \quad \psi_{\text{W}} &= \text{wahre Wandst.-Änderung} = \left[ \ln \left( \mathbf{s}_{1} / \mathbf{s}_{0}^{-} \right) \right] \cdot 100 \; (\$) \\ &= \text{negatives Vorzeichen bei Wandstärkenänderung bedeutet Abnahme} \end{split}$$

Versuch: F3 Tabelle: 2.8

Zusammenf.Angaben zu Umfangsdehnung, Wandstärkenänderung und Gefügezustand des Hüllrohres

Schliffebene	Umfangs- dehnung		Wand deru	lst.Än- ing	Gefüge: Phasenzusammens.	Abbildungen	
	ε <sub>ou</sub> (%)	င် <sub>W</sub> ည ( ဗို )	-ψ <sub>0</sub> (%)	-ψ <sub>0</sub> (%)	Korngr. uform	HZ-Nr.	Lfd. Nr.
5	10	10	4 12 5	4 13 5	rundes $\alpha$ -Korn mit $\alpha$ -Körnern KG: 10-15 $\mu$ m	F3 - 5/1;1,7 mm F3 - 5/2 F3 - 5/6 F3 - 5/13 F3 - 5/14,15	

 $\varepsilon_{o_{u}}$  = Umfangsdehnung =  $[(u_{1}-u_{0})/u_{0}] \cdot 100 (%);$   $\varepsilon_{w_{u}}$  = wahre Umfangsdehnung =  $[\ln(u_{1}/u_{0})] \cdot 100 (%)$ 

 $\psi_{o}$  = Wandst.-Änderung =  $[(s_{1}-s_{o})/s_{o}]$  · 100 (%);  $\psi_{w}$  = wahre Wandst.-Änderung =  $[\ln(s_{1}/s_{o})]$  · 100 (%) negatives Vorzeichen bei Wandstärkenänderung bedeutet Abnahme

#### NACHUNTERSUCHUNG DER IN-PILE EXPERIMENTE, PNS 4237

Versuch: F4

Tabelle: 2.9

Zusammenf. Angaben zu Umfangsdehnung, Wandstärkenänderung und Gefügezustand des Hüllrohres

Schliffebene	Umfangs- dehnung		Wandst.Än- derung		Geruge: Phasenzusammens.	Abbildungen		
	ε <sub>ου</sub> (%)	(န္) E <sup>w n</sup>	-ψ <sub>Ο</sub> (%)	-ψ <sub>0</sub> (%)	Korngr. uform	HZ-Nr.	Lfd. Nr.	
1	12	12	18 5 6 16	20 5 6 17	nadeliges α-Gefüge) KG: 30-60 μm }	F4 - 1/1;2,0 mm F4 - 1/2 F4 - 1/6 F4 - 1/11 F4 - 1/13 F4 - 1/9,10 F4 - 1/12,14		
2	35	30	81 3 60 6	168 3 92 6	großes α-Korn (dynamische Rekri-) stallisation) KG: 20-30 μm rundes α-Korn KG: 10-15 μm	F4 - 2/1;3,0 mm F4 - 2/2 F4 - 2/7 F4 - 2/12 F4 - 2/15 F4 - 2/11,13 F4 - 2/14,16	2-4	

 $\varepsilon_{o_{u}} = \text{Umfangsdehnung} = [(u_{1}^{-}u_{0}^{-})/u_{0}^{-}] \cdot 100 \text{ (%)}; \qquad \varepsilon_{w_{u}} = \text{wahre Umfangsdehnung} = [\ln(u_{1}/u_{0}^{-})] \cdot 100 \text{ (%)}$ 

 $\psi_{o} = \text{Wandst.-Anderung} = [(s_{1}-s_{o})/s_{o}] \cdot 100 \ (%); \ \psi_{w} = \text{wahre Wandst.-Anderung} = [\ln(s_{1}/s_{o})] \cdot 100 \ (%)$ negatives Vorzeichen bei Wandstarkenanderung bedeutet Abnahme

Versuch: F4

Tabelle: 2.10

Zusammenf.Angaben zu Umfangsdehnung, Wandstärkenänderung und Gefügezustand des Hüllrohres

Schliffebene	Umfangs- dehnung				Gefüge: Phasenzusammens.	Abbildungen	
	ε <sub>ου</sub> (%)	€ <sub>wu</sub> (%)	(%) -小 <sup>0</sup>	-ψ <sub>0</sub> (%)	Korngr. uform	HZ-Nr.	Lfd. Nr.
3	35	30	45 3 38	60 3 48	rundes α-Korn mit α-Körnern KG: 10-20 μm	F4 - 3/1; 6,0mm F4 - 3/2 F4 - 3/7 F4 - 3/13	
					rundes α-Korn mit wenigen α-Körnern KG: 10-15 μm	F4 - 3/15,17	
4	15	14	19 8 3 27 10	21 8 3 31 11	nadeliges α-Gefüge) KG: 20-60 μm	F4 - 4/1;1,5 mm F4 - 4/2 F4 - 4/8 F4 - 4/12 F4 - 4/14 F4 - 4/16 F4 - 4/9,10,13,15	
·				   	rundes α-Korn mit wenigen α-Körnern KG: 10-20 μm	F4 - 4/11,17	

= Umfangsdehnung = [(u<sub>1</sub>-u<sub>o</sub>)/u<sub>o</sub>] · 100 (%);  $\epsilon_{w_u}$  = wahre Umfangsdehnung = [ln(u<sub>1</sub>/u<sub>o</sub>)] · 100 (%)

 $\psi_{\text{O}} = \text{Wandst.-Anderung} = \left[ \left( s_{1} - s_{\text{O}} \right) / s_{\text{O}} \right] \cdot 100 \ (\%); \quad \psi_{\text{W}} = \text{Wandst.-Anderung} = \left[ \ln \left( s_{1} / s_{\text{O}} \right) \right] \cdot 100 \ (\%)$ negatives Vorzeichen bei Wandstärkenänderung bedeutet Abnahme

#### NACHUNTERSUCHUNG DER IN-PILE EXPERIMENTE, PNS 4237

Versuch: F4 Tabelle: 2.11

Zusammenf.Angaben zu Umfangsdehnung, Wandstärkenänderung und Gefügezustand des Hüllrohres

Schliffebene	Umfangs- dehnung				Phasenzusammens.	Abbildungen	
	ε <sub>ou</sub> (%)	(နွ) <sup>(နွ</sup> )	-ψ <sub>O</sub> (%)	-ψ <sub>0</sub> (%)	Korngr. uform	HZ-Nr.	Lfd. Nr.
7	27	24	45 3	60 3		F4 - 7/1 F4 - 7/2 F4 - 7/7	·
8	29	25	60 3	92 3		F4 - 8/1 F4 - 8/2 F4 - 8/3	

 $\varepsilon_{o_{u}}$  = Umfangsdehnung =  $[(u_{1}^{-}u_{0}^{-})/u_{0}^{-}] \cdot 100 (%);$   $\varepsilon_{w_{u}}$  = wahre Umfangsdehnung =  $[1n(u_{1}/u_{0})] \cdot 100 (%)$ 

 $\psi_{0} = \text{Wandst.-Anderung} = \left[ (s_{1} - s_{0})/s_{0} \right] \cdot 100 \; (\%); \; \psi_{W} = \text{Wandst.-Anderung} = \left[ \ln(s_{1}/s_{0}) \right] \cdot 100 \; (\%)$  negatives Vorzeichen bei Wandstarkenanderung bedeutet Abnahme

Versuch: F5 Tabelle: 2.12

Zusammenf.Angaben zu Umfangsdehnung, Wandstärkenänderung und Gefügezustand des Hüllrohres

Schliffebene	Umfangs- dehnung				# Getiide:	Abbildungen	
	ε <sub>ou</sub> (%)	ε <sub>wμ</sub> ( <sup>§</sup> )	(%) -ψο	-ψ <sub>0</sub> (%)	Korngr. uform	HZ-Nr.	Lfd. Nr.
1	10	10   		13 11 16	rundes α-Korn mit wenigen α-Körnern KG: 8-10 μm	F5 - 1/1; 1,5 mm F5 - 1/2 F5 - 1/7 F5 - 1/8 F5 - 1/9,10	-
3	40	33	67	111		F5 - 3/1; 6,1 mm F5 - 3/2	
4	42 43	35 36	81,4 10 54	1165 1168 10 177 1 13	rundes α-Korn } KG: 10-15 μm }	F5 - 4/1 F5 - 4/2; 2,5 mm F5 - 4/3 F5 - 4/4 F5 - 4/5 F5 - 4/10 F5 - 4/13 F5 - 4/14,15	2 <b>-</b> 5

 $\varepsilon_{o_{\mathrm{u}}}$  = Umfangsdehnung =  $[(u_1^-u_0^-)/u_0^-] \cdot 100 (%);$   $\varepsilon_{w_{\mathrm{u}}}$  = wahre Umfangsdehnung =  $[\ln(u_1/u_0^-)] \cdot 100 (%)$ 

 $\psi_{o} = \text{Wandst.-Anderung} = \left[ (s_{1} - s_{o})/s_{o} \right] \cdot 100 \; (\%); \; \psi_{w} = \text{wahre Wandst.-Anderung} = \left[ \ln(s_{1}/s_{o}) \right] \cdot 100 \; (\%)$  negatives Vorzeichen bei Wandstärkenänderung bedeutet Abnahme

Tabelle 2-13:

Tabelle: 2.13

Zusammenf.Angaben zu Umfangsdehnung, Wandstärkenänderung und Gefügezustand des Hüllrohres

Schliffebene Umfangs- dehnung		Wandst.Än- derung		Gefüge: Phasenzusammens.	Abbildungen		
	ε <sub>ου</sub> (%)	င် <sub>Wu</sub> (နို)	-ψ <sub>O</sub> (%)	-ψ <sub>O</sub> (%)	Korngr. uform	HZ-Nr.	Lfd. Nr.
5	41 37	34 31	71 9 68 13	124 9 115 14	rundes α-Korn KG: 10-15 μm	F5 - 5/1 F5 - 5/2;8,4 mm F5 - 5/4 F5 - 5/6 F5 - 5/10 F5 - 5/12 F5 - 5/13,14	
6	20	19           	26 26 9	30 30 9 1	rundes ά-Korn mit) α-Kōrnern KG: 10-15 μm	F5 - 6/1 F5 - 6/2 F5 - 6/9 F5 - 6/12 F5 - 6/10,11	·

= Umfangsdehnung =  $[(u_1 - u_0)/u_0]$  · 100 (%);  $\epsilon_{w_{u_1}}$  = wahre Umfangsdehnung =  $[\ln(u_1/u_0)]$  · 100 (%)

= Wandst.-Änderung =  $[(s_1-s_0)/s_0] \cdot 100 (%); \psi_w$  = wahre Wandst.-Änderung =  $[\ln(s_1/s_0)] \cdot 100 (%)$ negatives Vorzeichen bei Wandstärkenänderung bedeutet Abnahme

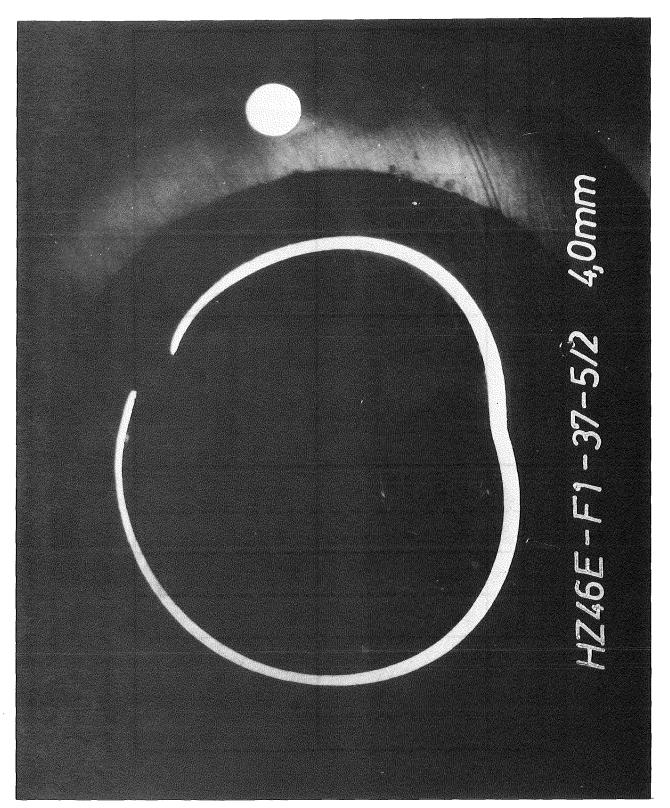


Abb. 2-1: Übersichtsaufnahme der Berststelle des Stabes Fl

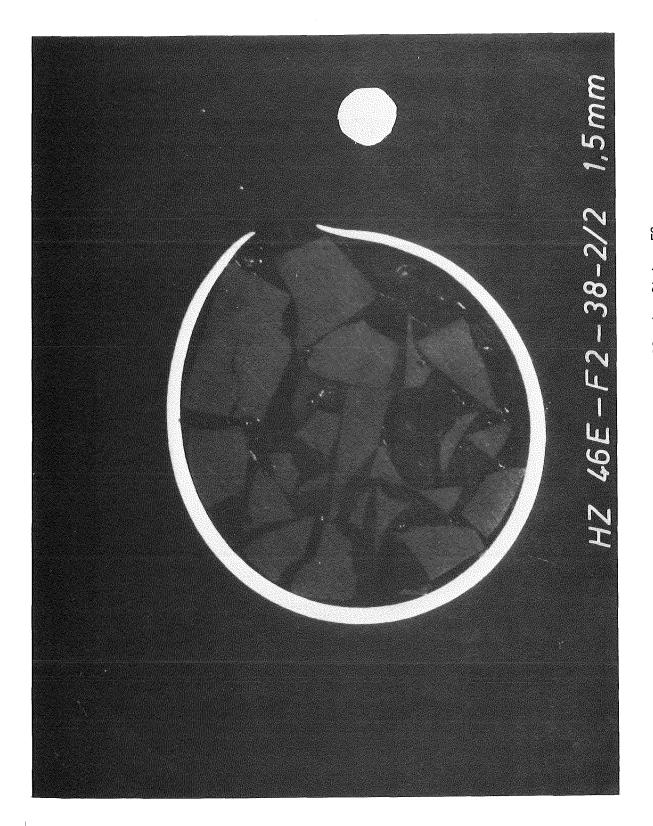


Abb. 2-2: Übersichtsaufnahme der Berststelle des Stabes F2



Abb. 2-3: Übersichtsaufnahme der Berststelle des Stabes F3

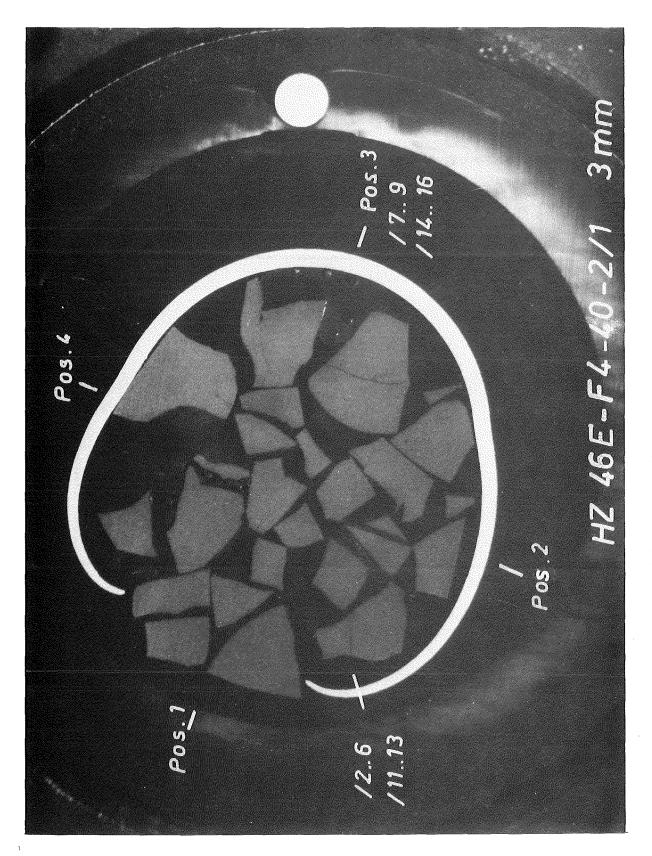


Abb. 2-4: Übersichtsaufnahme der Berststelle des Stabes F4

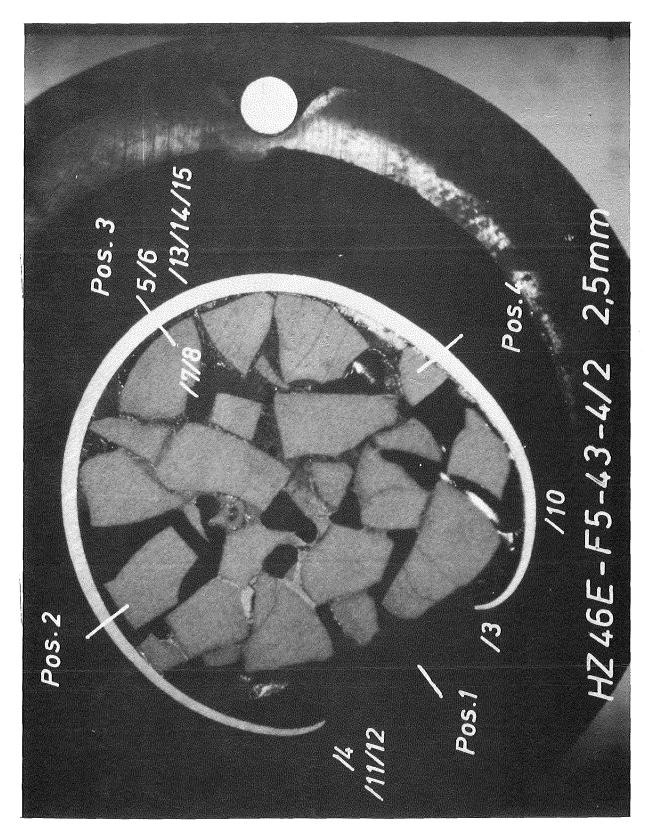
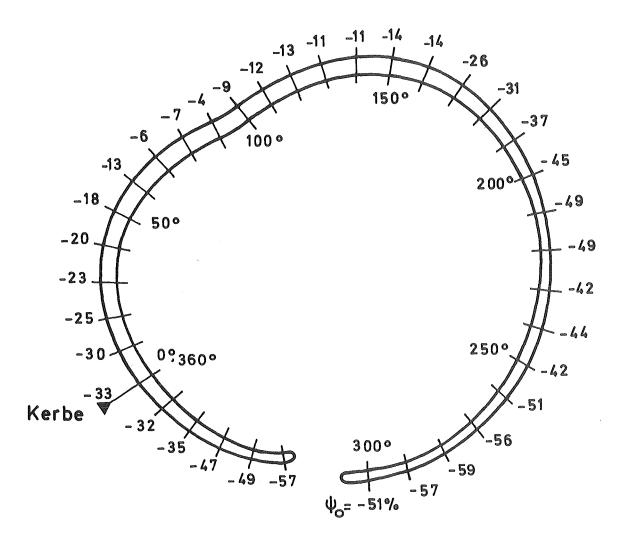


Abb. 2-5: Übersichtsaufnahme der Berststelle des Stabes F5



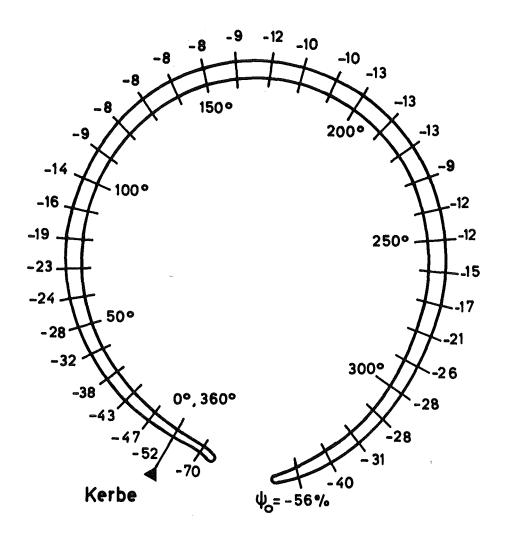
F 1-37-5/2; 4,0mm

$$Ψ_o = \frac{S_1 - S_o}{S_o} \cdot 100$$
 [%]
$$S_1 \triangleq AKTUELLE WANDSTÄRKE$$

$$S_o \triangleq AUSGANGSWANDSTÄRKE$$

$$\triangleq 0.725 \text{ mm}$$

### NEG. VORZEICHEN WANDSTÄRKENABNAHME



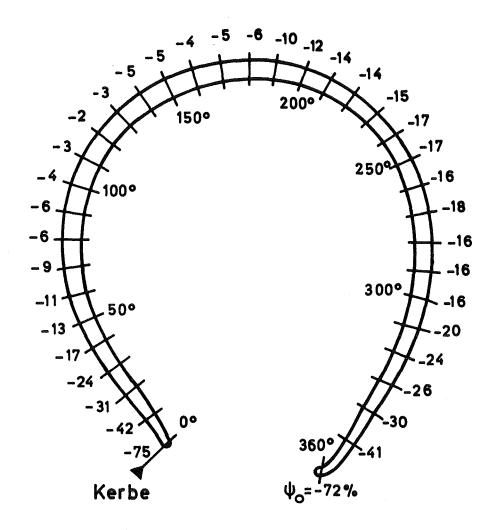
F 2 - 38 - 2/2; 1,5 mm

$$\Psi_{o} = \frac{S_{1} - S_{o}}{S_{o}} \cdot 100 \, [\%]$$

S<sub>1</sub> ≜ AKTUELLE WANDSTÄRKE S<sub>0</sub> ≜ AUSGANGSWANDSTÄRKE ≜ 0,725 mm

NEG. VORZEICHEN 

WANDSTÄRKENABNAHME

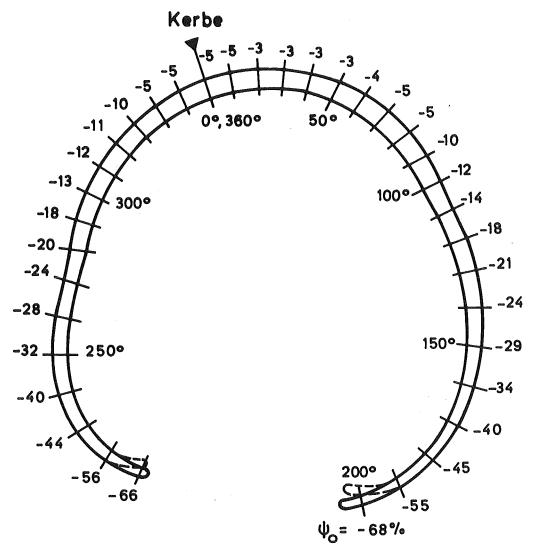


F 3-39-4/2; 2.5mm

$$\psi_{o} = \frac{S_{1} - S_{o}}{S_{o}} \cdot 100 \, [\%]$$

S1 = AKTUELLE WANDSTÄRKE  $\Psi_{o} = \frac{S_{1} - S_{o}}{S_{o}} \cdot 100 \, \text{[\%]}$   $S_{o} = \text{AUSGANGSWANDSTÄRKE}$ € 0,725 mm

## NEG. VORZEICHEN WANDSTÄRKENABNAHME



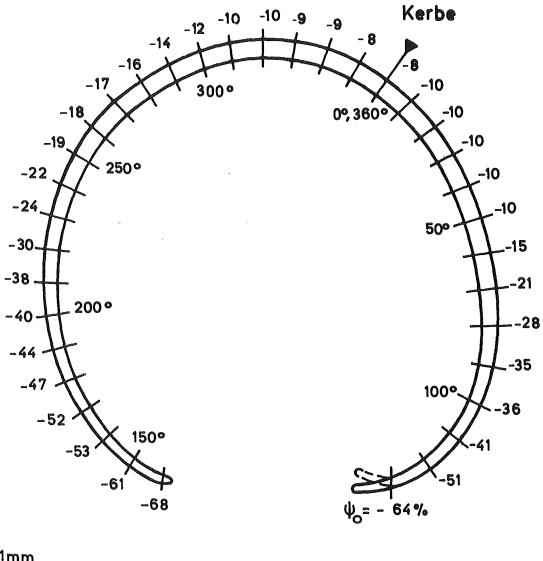
F 4-46-2/1; 3mm

$$\psi_{o} = \frac{S_1 - S_0}{S_0} \cdot 100 \, [\%]$$

S<sub>1</sub> ≜ AKTUELLE WANDSTÄRKE S<sub>0</sub> ≜ AUSGANGSWANDSTÄRKE ≜ 0,725 mm

### NEG. VORZEICHEN WANDSTÄRKENABNAHME

Abb. 2-9: Wandstärkenänderung an der Berststelle des Stabes F4



1mm ——

F 5-43-4/2; 2,5 mm

$$\psi_{o} = \frac{S_{1} - S_{o}}{S_{o}} \cdot 100 \, [\%]$$

S<sub>1</sub> ≜ AKTUELLE WANDSTÄRKE S<sub>0</sub> ≜ AUSGANGSWANDSTÄRKE ≜ 0,725 mm

NEG. VORZEICHEN & WANDSTÄRKENABNAHME

Stab: F 1 Probe 5

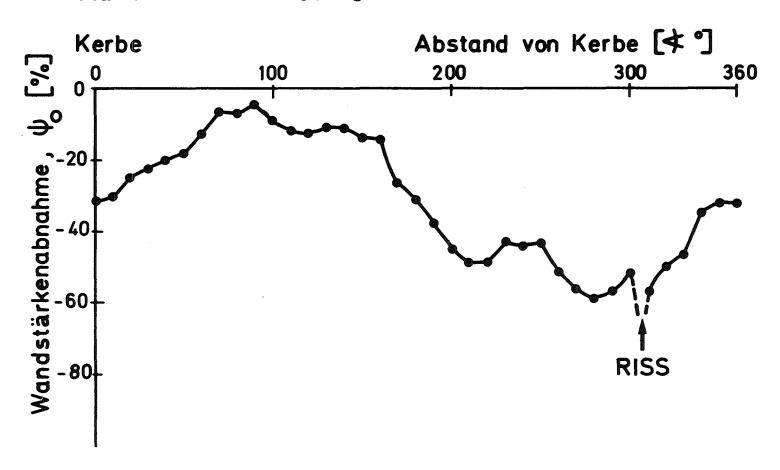
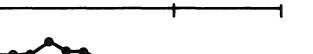
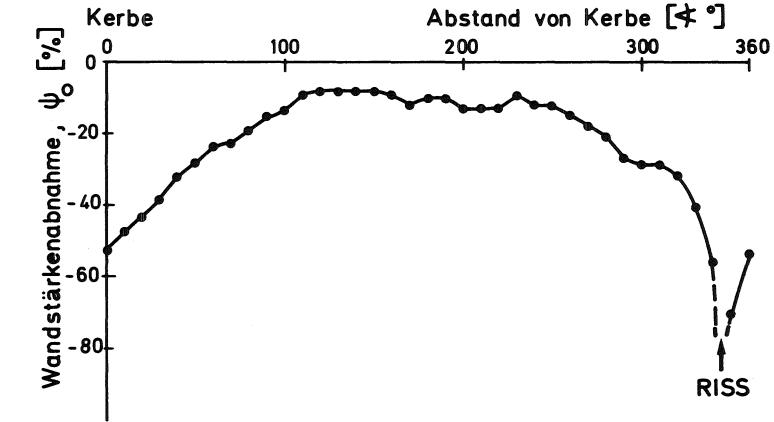


Abb. 2-11: Wandstärkenabnahme in Abhängigkeit vom Abstand zur Kerbe Fl





Probe 2

Stab: F 2

Abb. 2-12: Wandstärkenabnahme in Abhängigkeit vom Abstand zur Kerbe F2

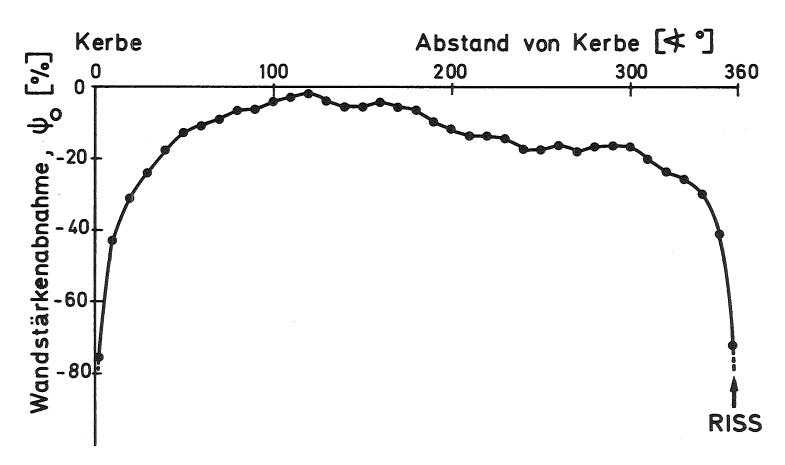


Abb. 2-13: Wandstärkenabnahme in Abhängigkeit vom Abstand zur Kerbe F3

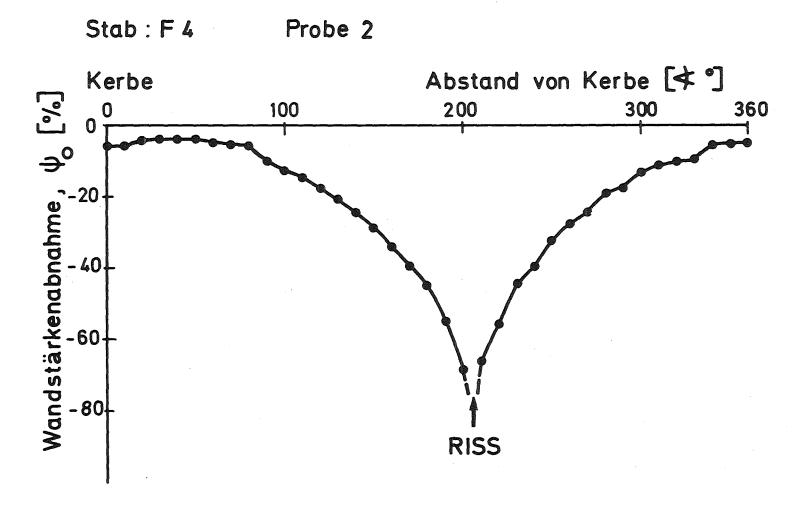


Abb. 2-14: Wandstärkenabnahme in Abhängigkeit vom Abstand zur Kerbe F4



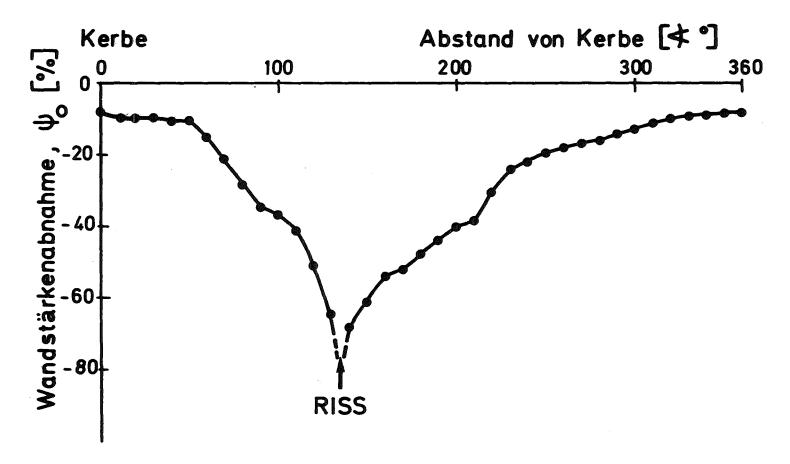


Abb. 2-15: Wandstärkenabnahme in Abhängigkeit vom Abstand zur Kerbe F5

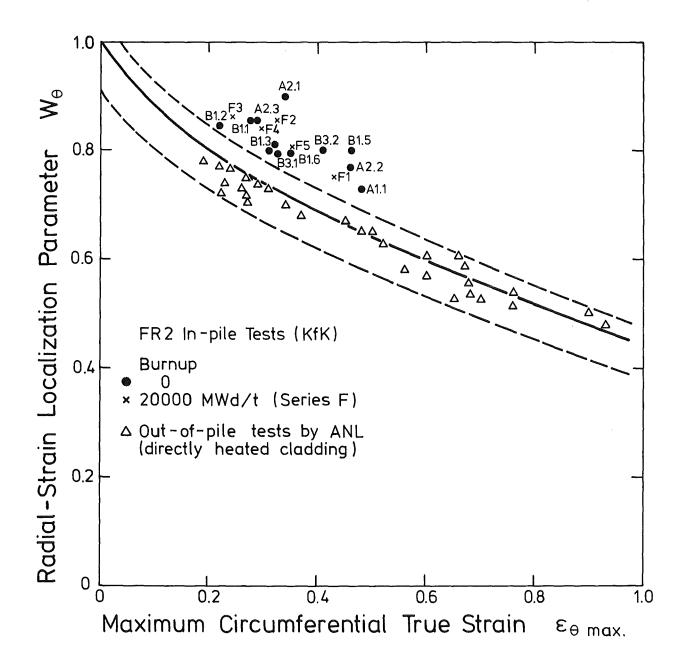


Abb. 2-16: Vergleich von FR2 in-pile mit ANL [2-1] out-of-pile-Umfangsdehnungen in Abhängigkeit vom Radialdehnungslokalisierungsparameter

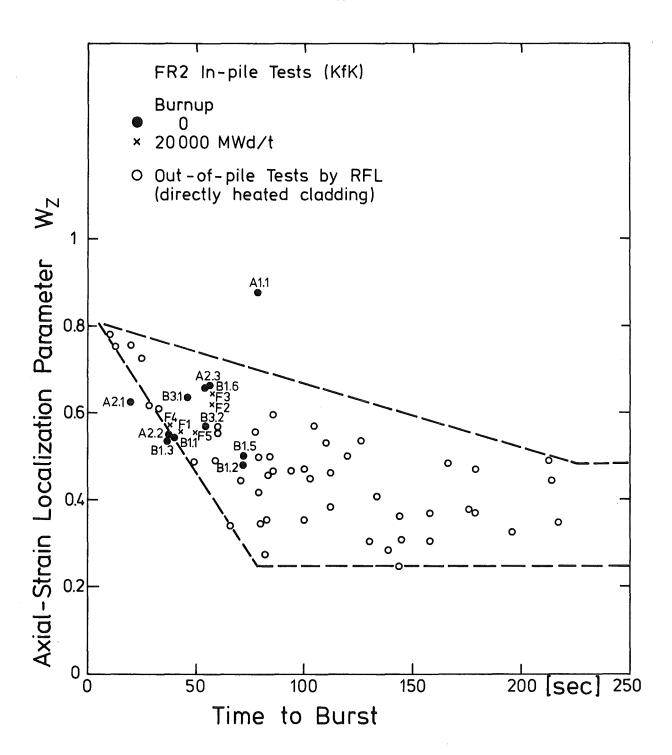


Abb. 2-17: Vergleich von FR2 in-pile- mit RFL [2-1] out-of-pile-Berstzeiten in Abhängigkeit vom Axialdehnungslokalisierungsparameter

#### 3. Allgemeines Oxidationsverhalten des Hüllrohres

#### 3.1 Hüllrohrzustand nach Vorbestrahlung

Der Brennstab F6 wurde nach der Vorbestrahlung keiner Temperaturtransiente unterworfen, sondern direkt zur zerstörenden Nachuntersuchung zerlegt. Er dürfte daher typisch für den Vorbestrahlungszustand und damit für den Ausgangszustand der übrigen Stäbe der F-Serie sein.

Die Staboberfläche erwies sich im Bereich des Brennstoffs als hellgrau mit blaugrau bis braunrot verfärbten Zonen in Höhe des oberen und unteren Endes der Brennstoffsäule. Diese Färbung des ursprünglich hell metallisch glänzenden Hüllrohrs kann auf geringfügige Oxidation während der Bestrahlung des Brennstabs zurückgeführt werden.

Das in Abb. 3-1 und 3-2 dargestellte Zircaloy-Gefüge ist typisch für alle untersuchten Positionen. Abb. 3-1 zeigt im Längs- und im Querschliff das bei der Rohrherstellung durch Pilgern entstandene Verformungsgefüge mit in Rohr-Längsrichtung gestreckten Körnern der  $\alpha$ -Zr-Phase. Im Gefüge ist auch in unmittelbarer Nähe der inneren Rohroberfläche kein Anzeichen einer denkbaren chemischen Wechselwirkung mit dem Brennstoff nachzuweisen. Eine äussere Oxidation ist ebenfalls nicht im Gefüge, das über die ganze Hüllrohrwand einheitlich ist, nachweisbar (Abb. 3-2).

#### 3.2 Außenansicht der geborstenen Brennstäbe

Vor der Zerlegung wurde der Zustand der Brennstäbe beurteilt und in Übersichts- und Detailaufnahmen der Außenansicht dokumentiert (Abb. 3-3 bis 3-8). Die Brennstabhülle zeigt danach die folgenden Färbungsmerkmale: Im Bereich oberhalb des Brennstoffs bis zum oberen Endstopfen ist die Oberfläche der Hüllrohre vorwiegend metallisch glänzend bis stellenweise matt hellgrau. Im gesamten Brennstoffbereich überwiegt eine matte, dunkelgraue Färbung. Hellgraue bis weiße (im Fall des Stabs F5, z.T. körnige) Beläge treten bei einigen Stäben fleckenweise oder über den gesamten Rohrumfang im Bereich der Berststelle bzw. im oberen Brennstoffbereich auf. Am unteren Endstopfen sind teils schwach, teils deutlicher blaugraue und braunrote Verfärbungen erkennbar. Die Endstopfenschweißen

markieren sich z.T. durch zwei schmale, hellgrau bis weiß gefärbte Ringe.

Das Auftreten der genannten Färbungen kann nicht mit den Versuchsparametern der einzelnen Stäbe korreliert werden. Hellgraue Färbung außerhalb und die matt dunkelgraue Tönung innerhalb des Brennstoffbereichs sind die Folge geringfügiger bis stärkerer Oxidation des Zircaloy. Das dabei entstehende Oxid ist bekanntlich dunkelgrau bis anthrazit-schwarz im Normalfall, während bei Störungen des Schichtwachstums, mechanischer Schädigung der Schicht bzw. längerer Oxidationsdauer der Übergang in helles bis weißes und abblätterndes Oxid stattfindet. Die hellen Zonen der Brennstäbe können auf die Bildung entsprechenden Oxids zurückgeführt werden. Eine Erklärung für ihr Auftreten an den beobachteten speziellen Stellen kann jedoch nicht gegeben werden, zumal die Existenz weißen Oxids nach der relativ geringen Oxidation während der Transienten noch nicht zu erwarten war. Da solche hellen Oxidfärbungen bei den Brennstäben der Serien A und B nicht aufgetreten sind, liegt die Vermutung nahe, daß die Bildung im ursächlichen Zusammenhang mit der Vorbestrahlung steht. Wahrscheinlich beeinflußt der Zustand des während der Bestrahlung gebildeten Oxids die Mechanismen der während der Transiente fortgesetzten Oxidation und begünstigt dabei den Übergang in weißes Oxid. Die Bildung weißen Oxids bei der Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy 4-Hüllrohrmaterial, das bei tieferer Temperatur in Dampf vorkorrodiert wurde, ist in out-of-pile-Versuchen häufig beobachtet worden / 3.1, 3.2/. Auch aus Nachuntersuchungen von Hüllrohren nach Reaktoreinsatz ist sie bekannt und nach Literaturangaben in diesen Fällen im Brennstoffbereich und an Schweißstellen aufgetreten.

#### 3.3 Oxidationszustand der Hüllrohre

#### 3.3.1 Außenseite

Im Verlauf der Transiente hat sich im Kontakt mit dem Dampf eine haftfeste und - von den dehnungsbedingten Anrissen abgesehen - dichte Oxidschicht ausgebildet. Die aufgrund der Hüllrohrdehnung entstandenen axial verlaufenden Risse im Oxid sind in unregelmäßigen Abständen über den Umfang verteilt. Sie erscheinen im

Querschliff als Kerben, breitere Mulden oder flache Gräben je nach Ausmaß der lokalen Dehnung sowie ihrer frühzeitigen Stabilisierung oder ihrer ständigen Ausweitung. Die durch Anreißen des Oxids neu exponierten Oberflächenanteile unterlagen der fortschreitenden Oxidation, während sich weitere Risse auch innerhalb älterer Risse bildeten. Nach dem Bersten hat sich die Oxidschicht noch deutlich verstärkt. In den Rißbereichen ist die Oxidation durch begünstigten Sauerstofftransport im geschädigten Oxid weiter in den metallischen Werkstoff vorgedrungen. An den stark gedehnten Stellen des Hüllrohrs neigt das zerrissene Oxid - spätestens bei der metallographischen Präparation - zum Ausbrechen, so daß dort meist nur noch das nach dem Bersten gebildete Oxid registriert werden kann. Beispiele für die beschriebene Ausbildung des äußeren Oxids, die im übrigen mit den Ergebnissen der Versuchsserien A und B übereinstimmt, sind in Abb. 3-9 bis 3-17 gezeigt.

Durch Sauerstoffdiffusion aus dem Oxid in die Zircaloy-Matrix hat sich die sauerstoffstabilisierte  $^{\alpha}$ -Zr(O)-Phase als weitere Deckschicht unter dem ZrO $_2$  gebildet. Diese Schicht konnte bereits im polierten Zustand der metallographischen Schliffproben aufgrund ihrer höheren Härte sichtbar gemacht und ausgemessen werden. Beim anschließenden chemischen Polieren und Ätzen erwies sich allerdings eine gewisse Kantenabrundung der Proben als unvermeidlich, so daß die Schicht in diesem Präparationszustand meist nicht mehr verläßlich meßbar und photographisch unverfälscht darzustellen war. Die gebildete  $^{\alpha}$ -Zr(O)-Schicht ist im Verlauf der Transiente gleichmäßig gewachsen und hat etwa die Dicke der angrenzenden Oxidschicht erreicht. Im direkten Bereich aufgerissenen und daher rascher gewachsenen Oxids, besonders im Rißgrund, ist sie durch Aufzehrung von außen her etwas dünner und wellig zur Matrix abgegrenzt.

Die Dicke der  ${\rm ZrO}_2$ - und der  ${\rm \alpha\text{-}Zr}(0)$ -Schicht wurde in der Regel für jede untersuchte Schliffebene in 4 azimutalen Richtungen des Hüllrohrs direkt am Mikroskop gemessen. Die Ergebnisse wurden mit der Dicke fotografisch abgebildeter Schichten verglichen. Die registrierten Schichtdicken sind in Tab. 3-1 bis 3-5 zusammengestellt. Zur Orientierung werden Azimutwinkel zwischen einer Kerbmarkierung

(am unteren Brennstab-Stopfen) und der betreffenden Stelle des Stabes angegeben; bei Blick von oben auf den Stab gilt der Uhrzeigersinn. Die Meßwerte sind für Stellen typisch, die möglichst wenig durch Rißbildung im Oxid beeinflußt sind. Offenbar sind die Schichtdicken hauptsächlich von der lokalen Temperatur abhängig, wie der Vergleich mit den ebenfalls in den Tabellen angegebenen Temperaturwerten zeigt. Diese Abhängigkeit ist, wie in Abb. 3-18 nachgewiesen trotz relativ großer Streuungen gegeben. In diesem Diagramm ist zum Vergleich das für die Versuche der Serien A und B früher ermittelte Streuband eingetragen. Offensichtlich ist auch das Ausmaß der Hüllrohr-Außenoxidation der vorbestrahlten mit dem der nicht vorbestrahlten Brennstäbe vergleichbar.

#### 3.3.2 Innenseite

In Höhe des Risses ist die Oxidation der Hüllrohr-Innenseite deutlich ausgeprägt. Das Oxid bildet trotz stellenweise recht rauher Oberfläche eine kontinuierliche Schicht; die darunterliegende  $\alpha$ -Zr(0)-Schicht ist gleichmäßiger und etwa ebenso stark. Die für die Außenoxidation typischen Anrißkerben im Oxid werden innen nicht entsprechend deutlich beobachtet. Jedoch kann nach der Morphologie eine gewisse Oxidation schon vor dem Bersten des Hüllrohrs nicht ausgeschlossen werden. Eine solche ist während der Vorbestrahlung und der Transiente im Kontakt mit dem Brennstoff zu erwarten. Offenbar überwiegt jedoch die Oxidation nach dem Bersten des Hüllrohrs, die durch den eingedrungenen Dampf verursacht wird. Überraschenderweise ist in Höhe des Berstbereiches die gesamte Innenoxidation stärker als die Oxidation an der jeweiligen Stelle der Außenseite. Die Abb. 3-9 bis 3-14 zeigen im direkten Vergleich von Außen- und Innenseite Beispiele für dieses Ergebnis, das für alle untersuchten Brennstäbe der F-Serie die Regel ist. Die Ursache der im Vergleich zur Außenseite verstärkten Innenoxidation, die für die Stäbe der A- und B-Serien nicht beobachtet wurde, ist ungeklärt. Ein Zusammenhang mit der Vorbestrahlung liegt somit jedoch nahe. Es ist denkbar, daß (entsprechend der Argumentation in Kap. 3.2 hinsichtlich des Auftretens von weißem Oxid) eine während Vorbestrahlung und Beginn der Transiente gebildete defekte, und daher weniger schützende, Oxidschicht die weitere Dampfoxidation nach dem Hüllrohrbersten beschleunigt hat. Damit wäre auch die vielfach gemachte Beobachtung erklärbar, daß die innere  $\alpha$ -Zr(O)-Schicht dünner als die äußere zu sein scheint (Siehe Tab. 3.1 bis 3.5), wenngleich sich das wegen der oben erwähnten Präparationsschwierigkeiten nicht in Abbildungen belegen läßt.

In den anderen, von der Berststelle weiter entfernten Schliffebenen ist auf der Innenseite stets eine geringere Oxidation im Vergleich zur Außenseite nachgewiesen worden (Abb. 3-15 bis 3-17). Die Dicke der Schichten ist umso geringer, je größer der Abstand von der Berststelle ist. In weiter entfernten Schliffebenen kann meist kein Oxid, allenfalls ein dünner Saum von  $\alpha$ -Zr(O)-Phase bzw. nur ein durch eindiffundierenden Sauerstoff verändertes Matrixgefüge nachgewiesen werden. Letzteres ist in Abb. 3-19 deutlich sichtbar, da die Matrix aus grobkörnigem  $\beta$ -Zircaloy besteht, (das sich bei der Abkühlung martensitähnlich in ein entsprechend grobspießiges a'-Widmannstättengefüge umgewandelt hat) während die feinkörnigeren äußeren und inneren Oberflächenbereiche auf Anteile der α-Phase während der Transiente und damit auf erhöhten Sauerstoffgehalt in diesen Diffusionsbereichen schließen lassen. In Fällen niedrigerer Maximaltemperatur, bei denen zweiphasige  $(\alpha + \beta)$ -Matrixgefüge vorlagen, ist der Nachweis einer Sauerstoffdiffusion auch auf der Innenseite kaum möglich.

Die für die Hüllrohrinnenseite gemessenen  $ZrO_2^-$  und  $\alpha$  -Zr(O) - Schichtdicken sind ebenfalls in Tab. 3.1 bis 3.5 zusammengestellt.

# 3.4. Gefüge und dessen Auswertung auf die lokal erreichte Maximaltemperatur

Der Gefügezustand der Zircaloy-Hüllrohre wurde vorwiegend untersucht, um daraus Rückschlüsse auf die während der Transiente erreichte Höchsttemperatur zu ermöglichen. Die im Temperaturbereich von etwa 800 - 1050°C praktikable Methode erlaubt eine Gegenprüf-

ung der Thermoelement-Meßergebnisse und darüberhinaus eine Abschätzung der lokal erreichten Temperatur und ihrer axialen und azimutalen Variation.

#### 3.4.1 Zum Verfahren der Temperaturabschätzung

Nach dem Zircaloy-Sauerstoff-Zustandsdiagramm ist 820 - 970 C der  $(\alpha+\beta)$ -Zweiphasenbereich für den nicht-oxidierten Werkstoff. Näherungsweise gilt dieser Bereich auch noch für die Wandmitte wenig oxidierter Rohre. Als Temperatur/Gefüge-Näherungsbeziehung wird die Gleichung  $T_{max}$   $|^{O}C|$  = 820 + 150 .  $f_{\beta}$  zwischen der Maximaltemperatur  $T_{max}$  und dem Volumenanteil  $f_{\beta}$  der  $\beta$ -Phase im Gefüge benützt.

Die hauptsächliche Schwierigkeit des Verfahrens besteht darin, den korrekten Volumenanteil der  $\beta$ -Phase zu erkennen, der bei der Maximaltemperatur vorhanden war, da sich bekanntlich die  $\beta$ -Hochtemperaturphase bei der anschließenden Abkühlung umwandelt. Daher werden die auszuwertenden Gefüge-Mikroaufnahmen zur Kontrolle des Verfahrens mit entsprechenden Standard-Aufnahmen von Proben verglichen, die im out-of-pile Laborversuch bei konstanter und bekannter Temperatur oxidiert worden sind bzw. während der Oxidation einer Temperaturtransiente bekannten Verlaufs unterworfen waren/3.1, 3.2/.

Solche Vergleichsproben haben gezeigt, daß sich der Gleichgewichtsanteil der  $\beta$ -Phase beim Erhitzen rasch einstellt. Bei der Abkühlung der  $\beta$ -Phase entsteht das nadelige  $\alpha'$ -Gefüge. Konkurrierend dazu tritt auch die  $\beta+\alpha$ -Umwandlung durch Wachstum und Sauerstoffaufnahme bereits vorhandener  $\alpha$ -Bereiche auf, wenn Abkühlung aus dem  $(\alpha+\beta)$ -Gebiet geringe Kühlgeschwindigkeit bzw. starke Verformung des Ausgangsgefüges diesen Umwandlungstyp begünstigen. Bei erneuter, stärkerer Erhitzung verschwinden die Merkmale des ursprünglichen zugunsten des für die absolut höchste Temperatur typischen Gefüges. Außerhalb des  $(\alpha+\beta)$ -Zweiphasenbereichs läßt das Gefüge andere Hinweise auf seine Bildungstemperatur erkennen. Im oberen Stabilitätsbereich der  $\alpha$ -Zircaloy-Phase (< 820°C) tritt Rekristallisation und starkes Kornwachstum auf. Im unteren  $\beta$ -Gebiet (ca. 970 - 1050°C) findet rasches Kornwachstum statt; im Gegensatz dazu wird ein solches Wachstum im

zweiphasigen Gefüge durch die fein verteilte  $\alpha$ -Phase stark verzögert.

Insgesamt ist das Zircaloy-Gefüge in einem Bereich zwischen etwa 950 und  $1000^{\circ}$ C besonders temperaturempfindlich und die Abschätzung entsprechend verläßlich. Dagegen sind Gefüge mit geringem  $\beta$ -Anteil bzw. starker Verformung weniger zuverlässig auszuwerten, wenn der Volumenanteil der  $\beta$ -Phase schwer erkennbar ist. Der Fehler der Temperaturbestimmung wird bei korrekter Gefügebeurteilung auf weniger als  $\pm$  30°C geschätzt.

#### 3.4.2 Ergebnisse der Gefügebeurteilung und Temperaturabschätzung

Das durch chemisches Polieren und Ätzen entwickelte Gefüge der Hüllrohr-Querschliffe wurde in Mikroaufnahmen dargestellt (Hellfeld bzw. polarisiertes Licht). Eine Serie ausgewählter Gefügebilder, Abb. 3-19 bis 3-25 wird als typisch für die jeweils angegebenen Temperaturen beurteilt. Die zur Interpretation herangezogenen Merkmale sind im vorangegangenen Kap. 3.4.1 beschrieben. Die Grenzen der genannten, nicht einheitlich breiten Temperaturbereiche sollen andeuten, welche absolute Verläßlichkeit den Angaben beigemessen wird. Im relativen Vergleich verschiedener Gefüge untereinander sind über diese Genauigkeit hinaus noch wesentlich geringere Temperaturunterschiede nachweisbar.

Starke Dehnung kann das Gefüge offenbar wesentlich modifizieren. Abb. 3-26 zeigt im Übersichtsbild einer Hüllrohrstelle in Rißnähe den eng begrenzten Übergang von feinkörnigem zu grobkörnigem Gefüge mit der in Richtung auf die Berststelle zunehmenden lokalen Dehnung. Die stärker vergrößerten Aufnahmen aus dem grobkörnigen Bereich erlauben die angegebene Temperaturinterpretation. Daraus ist zu schließen, daß im Grenzgebiet zwischen dem  $\alpha$ - und dem  $(\alpha+\beta)$ -Zweiphasenbereich ein starkes Kornwachstum möglich ist, wenn Rekristallisation nach hoher vorangegangener Dehnung nicht durch wesentliche Anteile der  $\beta$ -Phase im Gefüge behindert wird. Unwahrscheinlich im Vergleich zu der gegebenen Interpretation wäre ein derart wirksamer Temperaturunterschied über kurze Distanz.

Abb. 3-27 und 3-28 zeigen in Übersichts- und Detailaufnahmen

stark eingeschnürte Stellen der Rohrwand dicht unterhalb des Risses. Trotz der starken Dehnung bleibt auch hier die nicht gestreckte Kornform erhalten, entweder durch hauptsächliche Verformung und ständige Erholung der als Korngrenzenphase ausgebildeten β-Anteile im Gefüge oder durch anschließende Rekristallisation. Kornwachstum wird in diesen Fällen nicht beobachtet, obwohl es für den in Abb. 3-28 dargestellten Fall tieferer Temperatur nach obiger Argumentation zu erwarten wäre.

Abb. 3-29 zeigt zwei zusammengehörige Rißflanken im Bereich der maximalen Aufweitung des geborstenen Hüllrohrs. Die morphologischen Unterschiede im Gefüge der beiden Stellen sind deutlich. Die Flanke im oberen Bild wurde nach dem Bersten und der Rekristallisation der Körner offenbar erneut verformt, und zwar entweder bei niedriger Temperatur oder mit hoher Geschwindigkeit. Dabei müssen die Verformungszwillinge entstanden sein, während Zwillingsbildung im Normalfall für die Hüllrohre nicht auftritt.

Abb. 3-30 und 3-31 schließlich sind Beispiele für die Variation des Gefüges innerhalb der jeweiligen Schnittebene in Höhe der Berststelle. Während Abb. 3-30 bei einer als einheitlich interpretierten Temperatur die Abhängigkeit des Gefüges von der lokalen Dehnung (entsprechend Abb. 3-26) verdeutlicht, zeigt Abb. 3-31 die gemeinsamen Einflüsse von Dehnung und azimutalen Temperaturunterschieden. Im letzteren Fall ist die Temperaturinterpretation des Gefüges besonders erschwert.

Die Ergebnisse der Temperatur-Abschätzung sind Tab. 3.1 bis 3.5 zusammengestellt. In Abb. 3-32 bis 3-36 werden die abgeschätzten Werte für jeden Stab in Form eines Temperaturfeldes dargestellt und mit den Ergebnissen der Thermoelement-Messungen verglichen. Dazu ist der Stab an der Mantellinie aufgeschnitten, an der sich die zur Orientierung angebrachte Kerbmarkierung befindet (Azimut  $O^{\circ}$ ) und in die Zeichenebene ausgebreitet (Blick auf Rohrinnenseite).

Im Vergleich aller Stäbe der F-Serie wird nach den Ergebnissen der Gefügeinterpretation die Verteilung der Hüllrohrtemperatur wie folgt beurteilt: Zunächst ist davon auszugehen, daß zum Zeitpunkt des Beulens - möglicherweise noch bis zum Bersten - am Ort

der späteren Berststelle die relativ höchste Temperatur herrschte. Die zunehmende Entkopplung der sich abhebenden Hülle vom Brennstoff und ihr thermischer Kontakt zum relativ kalten inneren Dampfführungsrohr verhindern offenbar trotz anhaltender nuklarer Erhitzung im Verlauf der Transiente ein weiteres Steigen der Temperatur an der Berststelle. Für die Berstflanken werden in Höhe der maximalen Dehnung die relativ niedrigsten Höchsttemperaturen registriert. Noch im Bereich der Berststelle sowie unmittelbar darüber und darunter sind bereits bis etwa 100°C höhere Temperaturen nachgewiesen. Weitab von der Berststelle kann die Temperatur bis zu etwa 200°C überschwingen. Die höchsten Temperaturen treten vorwiegend im Azimutbereich der Berststelle auf. In den untersuchten Schliffebenen werden im Extremfall keine nachweisbaren Temperaturunterschiede bzw. azimutalen Differenzen bis maximal etwa 85°C (F1, Ebene 6) registriert. Im Mittel betragen diese Differenzen, auch für die Berststelle, etwa 30°C.

Für einige Positionen ist ein direkter Vergleich mit Thermoelement-Meßergebnissen möglich. Die Beurteilung des Gefüges ergibt in den Extremfällen Übereinstimmung mit den durch Addition von 75°C korrigierten Thermoelement-Meßwerten, bzw. einen um maximal etwa 55°C niedrigeren Wert. Im Mittel liegen die abgeschätzten Temperaturen um etwa 30°C niedriger als die gemessenen und korrigierten. Dieser Unterschied wird als signifikant beurteilt, da er im gleichen Sinn auch für die Stäbe der A- und B-Serien nachgewiesen worden war und nicht völlig durch die Unsicherheit der Temperaturabschätzung erklärbar wäre, die meist wesentlich geringer als ± 30°C ist. Es kann daher gefolgert werden, daß die gewählten Temperaturkorrekturen zu groß sind. Daher wären auch die Bersttemperaturen entsprechend zu reduzieren.

Die im Versuch nicht direkt meßbare Bersttemperatur ist nach der Anzeige benachbarter Thermoelemente interpoliert worden. Die Exaktheit dieser Methode ist durch azimutale Temperaturdifferenzen zum Berstzeitpunkt begrenzt. Die Methode der Temperaturabschätzung erlaubt darüber und über die Bersttemperatur keine Aussagen, wenn nach dem Bersten ein weiterer Temperaturanstieg zu verzeichnen war. Im vorliegenden Fall war die Temperatur offenbar nach dem Bersten nicht mehr angestiegen, wie die folgende Zusammenstellung

#### zeigt:

Versuch	F1	F2	F3	F4	F5
T <sub>B</sub>   °C	890	893	932	835	880
T <sub>M</sub>   OC	875 ±25	875 ±25	855 ±25	835 ±25	830 ±30

 $(T_B = aus Meßwerden interpolierte und mit + 75°C korrigierte Bersttemperatur, <math>T_M = geschätzte Maximaltemperatur an der Berststelle)$ . Daraus ergibt sich, daß für Stab F3 bzw. F5 die angegebene Bersttemperatur zumindest um etwa 50 bzw. 20°C zu hoch liegen dürfte.

#### 3.5 Mikrohärtemessungen

Ziel der Härtemessungen war es, das Gefüge und den Oxidations- zustand der Hüllrohre zu charakterisieren. Bekanntlich ist die Härte eines Werkstoffes von seiner Verformung bzw. den Gefügezuständen der Erholung und Rekristallisation abhängig und daher geeignet, den Werkstoffzustand nach lokaler Verformung zu untersuchen. Für Zircaloy ist darüberhinaus bekannt, daß  $(\alpha+\alpha')$ - bzw.  $\alpha'$ -Gefüge (durch Rückumwandlung der  $\beta$ -Phase in  $\alpha+\beta$  bzw.  $\beta$ -Gefügen entstanden) höhere Härte aufweisen als  $\alpha$ -Gefüge. Daher war zu vermuten, daß die in der Transiente erreichte Temperatur die Härte mitbeeinflußt. Während die bei der Oxidation gebildeten, im vorliegenden Fall dünnen, sauerstoffreichen Schichten ZrO $_2$  und  $\alpha$ -Zr(O) meßtechnisch nicht zugänglich sind, war zu erwarten, daß der in die Matrix eindiffundierende Sauerstoff durch erhöhte Härte in der Diffusionszone indirekt nachgewiesen werden kann.

Angesichts der genannten Ziele wurde das Profil der Mikrohärte über die Hüllrohrwand gemessen. Für jede untersuchte Probenstelle wurden 3 Profilreihen aufgenommen, die aus Meßpunkten in regelmäßigen Abständen von ca. 25-30 µm bestanden, so daß die Wandstärke die Gesamtzahl der Eindrücke bestimmte. Die Messungen wurden an mechanisch polierten Schliffproben nach dem Vickers-Verfahren mit 25 g Last (MHV 25) durchgeführt.

Für den vorbestrahlten und einer Transiente unterworfenen Brennstab F1 wurden Messungen an zwei Querschliffebenen (Ebene 2 und 6) und einem Längsschliff (Schliff 1) außerhalb des Berstbereichs durchgeführt, sowie in der Berstzone in zwei Ebenen (Ebene 3 und 4), jeweils in Rißnähe und gegenüber. Der nur vorbestrahlte Brennstab F6 wurde in zwei Querschliffebenen (7 und 8) und einem Längsschliff (3) auf seine Härte untersucht. In Abb. 3-37 bis 3-45 sind die Einzelmeßwerte über ihre Position in der Hüllrohrwand aufgetragen. Auffällig ist die relativ große Streuung der Einzelwerte. Die eingezeichneten, geglätteten Härteprofilkurven sind daher trotz der relativ großen Zahl von Einzelmessungen nicht als statistisch ausreichend gesichert zu betrachten.

Im Vergleich der Profilkurven untereinander sind einheitliche Tendenzen kaum erkennbar (Abb. 3-46). Höhere Härte im äußeren und inneren Randbereich, die durch oxidationsbedingt höheren Sauerstoffgehalt erklärbar wäre, deutet sich nur in einigen Profilen an, während sich für andere relative Härtemaxima in Wandmitte ergeben haben. Das vergleichsweise höchste Härteniveau weisen die Längsschliffproben (vermutlich als Folge des gestreckten Verformungsgefüges) und die Querschliffproben des nur vorbestrahltten Brennstabs F6 auf. Trotz zusätzlicher Oxidation,  $\alpha/\beta$ -Umwandlung und Verformung liegt die Härte des Brennstabs F1 vergleichsweise niedriger. Für die Härteprofilkurven der Querschliffe dieses Brennstabs ist als Tendenz ein Härteabfall von der inneren zur äußeren Rohrwand erkennbar, angesichts der Streuungen aber nicht als gesichert zu beurteilen. Höhere Härte in Rißnähe als Folge starker Dehnung deutet sich im Vergleich der jeweils zwei Profile in Schliffebene 3 und 4 des Stabs F1 an.

Betrachtet man die statistische Gesamtheit der Messungen zu einem Härteprofil, erhält man den Mittelwert der Härte über die Hüllrohrwand. Diese Mittelwerte sowie Angaben der Meßposition und des untersuchten Brennstabs sind in Tab. 3.6 zusammengestellt. Zum Vergleich sind die Ergebnisse früherer Messungen am Hüllrohr-Ausgangsmaterial und an Hüllrohren der A- und B-Stäbe, die am selben Gerät in entsprechender Weise durchgeführt worden sind, in die Tabelle aufgenommen. (Die Absolutwerte aller Messungen sind, wie Vergleichsmessungen mit anderen Geräten ergeben haben, einheitlich zu hoch, wahrscheinlich um ca. 15%.) Es zeigt sich, daß die Härte im vorbestrahlten Zustand wesentlich über der des

Ausgangszustands liegt. Als Ursache hierfür können nur Bestrahlungsdefekte vermutet werden, da eine wesentliche Sauerstoffaufnahme bei ca. 150°C maximaler Hüllrohrtemperatur während der Vorbestrahlung auszuschließen ist, und da keine Verformung stattgefunden hat. Im Verlauf der Transiente hat sich die Härte des vorbestrahlten Brennstabs F1 offenbar wieder dem Niveau des Ausgangszustands angeglichen. Der breite Streubereich der Härtemittelwerte für die einzelnen Positionen entspricht dem der Aund B-Stäbe. Die höhere Härte für den Längsschliff 1 des Stabs F1 könnte bedeuten, daß die Härte des vorbestrahlten Zustands dort noch weitgehend erhalten geblieben ist. An dieser Stelle, der Oberkante der Brennstoffsäule, wurde während der Transiente keine hohe Temperatur erreicht.

#### 3.6 Zusammenfassung und Schlußfolgerungen

- Während der Vorbestrahlung sind die Zircaloy-Hüllrohre allenfalls geringfügig oxidiert, wodurch das für die Rohrherstellung typische Verformungsgefüge nicht beeinflußt ist.
- Die variable Färbung der Hüllrohr-Außenoberfläche nach der Transiente ist oxidationsbedingt. Das nur bei vorbestrahlten Brennstäben registrierte, bereichsweise Auftreten weißen Oxids wird als Folgeerscheinung der "Vorkorrosion" während der Bestrahlung diskutiert. Die dehnungsbeeinflußte Dampf-Oxidation der Hüllrohr-Außenseite ist ansonsten im Erscheinungsbild und im Ausmaß vergleichbar mit den Ergebnissen der nicht vorbestrahlten Brennstäbe und von out-of-pile-Untersuchungen.
- Zur Oxidation der Hüllrohr-Innenseite tragen der Brennstoff und - auf den unmittelbaren Berstbereich begrenzt und dort überwiegend - der nach dem Bersten von außen eingedrungene Dampf bei. Im Bereich des Risses wird - im Gegensatz zu den nicht vorbestrahlten Stäben - stärkere Innenoxidation im Vergleich zur Außenseite registriert und versuchsweise mit der Bildung weniger schützender, gestörter Oxidschichten gedeutet. Außerhalb dieses Bereichs sind die gebildeten Schichten (ZrO<sub>2</sub> und α-Zr(O)) zwar relativ dünn, die Beeinflussung des Gefüges

durch eindiffundierenden Sauerstoff jedoch ist vergleichbar mit den Verhältnissen an der Rohr-Außenseite.

- Das Hüllrohrgefüge wird von der Oxidation abgesehen hauptsächlich durch die lokal erreichte Höchsttemperatur und die lokale Dehnung beeinflußt. Spezielle Merkmale des Gefüges können erklärt werden. Die Temperaturabschätzung nach dem Zustand des Gefüges wird in Möglichkeiten und Grenzen diskutiert. Sie bestätigt weitgehend die Thermoelement-Messungen und die axialen Temperaturprofile. Azimutale Temperaturdifferenzen bis ca. 85°C sind nachgewiesen. Absolut gesehen liegen die über das Gefüge abgeschätzten Temperaturen im Mittel um etwa 30°C niedriger als die gemessenen und durch Addition von 75°C korrigierten Werte. Einflüsse der Vorbestrahlung auf die Verteilung der Hüllrohrtemperatur sind nicht nachgewiesen.
- Die Mikrohärteprofile über die Hüllrohrwand des vorbestrahlten und einer Transiente unterworfenen Brennstabs F1 lassen sich nicht generell mit den lokalen Werten der Dehnung, der erreichten Temperatur und dem Ausmaß der Oxidation korrelieren und deuten. Die Mittelwerte über die Rohrwand liegen im Streuband entsprechender Messungen für die A- und B-Stäbe und streuen um das Niveau des Rohrmaterials im Ausgangszustand. Die Mikrohärte im vorbestrahlten Zustand (Stab F6) liegt wesentlich höher, möglicherweise bedingt durch Strahlungsdefekte.

### 3.7 Literatur

- |3-1| S. Leistikow, G. Schanz, H.v. Berg,
  Kinetik und Morphologie der isothermen Dampf-Oxidation
  von Zircaloy 4 bei 700 1300°C,
  KfK 2587 (1978)
- |3-2| S. Leistikow, G. Schanz, H.v. Berg,
  Untersuchungen zur temperatur-transienten Dampfoxidation
  von Zircaloy 4-Hüllrohrmaterial unter hypothetischen
  DWR-Kühlmittelverlust-Störfallbedingungen,
  KfK 2810 (1979)

Tab. 3-1: NACHUNTERSUCHUNG DER IN-PILE EXPERIMENTE, PNS 4237, VERSUCH F1

Zusammenf. Angaben zur abgeschätzten Hüllmaterialtemperatur anhand des Gefügezustandes und zur Schichtdicke der sauerstoffstabilisierten  $\alpha$ -Zr(O)- und der ZrO2-Phase

Schliffebene Azimut	gesch. Temp.	Dicke de	r α-Zr(O) u	. ZrO <sub>2</sub> -Schi	cht(µm)	Bild-Nr.	AbbNr.
	nach Gefüge	Aussen		Inn	en	d. Heißen Zellen	im Bericht
	(°c)	α-Zr(O)	zro <sub>2</sub>	α-Zr(O)	ZrO <sub>2</sub>	zerren	
Ebene 2:							
o°	920 - 950	3 - 5	2 - 5	< 2	-	2/4-6,12,13	
90°		4	4	< 2	-		
180 <sup>0</sup>	920 - 950	3 - 4	3,5 - 4,5	< 2	-	2/8-10,14-17	
270 <sup>0</sup>		3	4	< 2	_		
Ebene 3:							
o°		4 - 6	5 - 8	4 - 5	5 - 10	3/8-11	3-13
30°	930 - 960					3/23	
90 <sup>0</sup>	940 - 970	3	6	4	10	3/20-22	
180°		3 - 5	3,5 - 6	3 - 5	3 - 10	3/12-15	3-13
270 <sup>0</sup>		3	6 .	4	10		
295 <sup>0</sup> (Riß)	890 - 940					3/18	
Ebene 4:							·
o°		3	4	3	8		
90 <sup>0</sup>	910 - 940	3 - 4	3,5 - 5	2,5 - 3,5	5 - 10	4/9-12,17-19	3- 9
150 <sup>0</sup>	850 - 900						
180 <sup>0</sup>		2	5	2	6		
270°			4 - 6		2 - 4	4/7	3- 9
290 <sup>0</sup>	850 - 900					4/14	
Ebene 5:						·	
40 <sup>O</sup>		5	6	3	10		
130 <sup>0</sup>	960 - 990	3 - 4	4 - 6	3 - 4	4 - 10	5/9-12,16-18	
220 <sup>0</sup>		3	4	4	6		
300°	960 - 990		4 - 8		5 - 12		
Ebene 6:			···				
o°	960 - 990	4 - 6	6 - 8	_	_	6/3,25	3-17
90 <sup>0</sup>	1020 - 1060	5	8	_	-	6/21-24	3-19
180 <sup>0</sup>		4 - 6	4 - 7	_	-	6/16,17	3-17
270 <sup>0</sup>	940 - 970	3	6	_	_	6/20	

Tab. 3-2: NACHUNTERSUCHUNG DER IN-PILE EXPERIMENTE, PNS 4237, VERSUCH F2

Zusammenf. Angaben zur abgeschätzten Hüllmaterialtemperatur anhand des Gefügezustandes und zur Schichtdicke der sauerstoffstabilisierten  $\alpha$ -Zr(O)- und der ZrO<sub>2</sub>-Phase

Schliffebene	gesch. Temp.	Dicke der $\alpha$ -Zr(O) u. ZrO $_2$ -Schicht( $\mu$ m)				Bild-Nr.	AbbNr.
Azimut		Aussen		Innen		der Heißen	im
	( <sup>O</sup> C)	α-Zr(O)	zro <sub>2</sub>	α-Zr(O)	zro <sub>2</sub>	Zellen	Bericht
Ebene 1:							
80°		4	6	-	2		
170 <sup>0</sup>	930 - 960	4 - 5	5 - 9	-	2 - 4	1/5,6,9,11	3-15 3-22
240 <sup>0</sup>		3 - 5	0 - 5			1/7	5 22
260°		4	6	_	2		
350 <sup>0</sup>	920 - 950	3 - 5	4 - 6	2 - 4	2 - 5	1/3,4,12	3-15
Ebene 2:				ř			
20 <sup>0</sup>	850 - 900	4	4 - 6	3	1 - 3	2/8,11-13	3-29
110 <sup>0</sup>		4	5	1	10		
200 <sup>0</sup>	910 - 940	3 - 5	4 - 6	3 - 5	6 - 9	2/5,6,14-16	
290 <sup>0</sup>		4	6	3	10		
Ebene 3:							
30°	900 - 930	5 - 8	5 - 8	4 - 5	5 - 12	3/9,15,16	
100 <sup>0</sup>		4	6		10		
180 <sup>0</sup>	910 - 940	3 - 5	4 - 6	2 - 4	5 - 8	3/11,12,18,	19
260 <sup>0</sup>		4	5		8		
350 <sup>0</sup>		3 - 5	4 - 6	3 - 5	5 - 8	3/6,7,7a	
Ebene 4:							·· <del>··</del>
80°		5	8	-	-		
170 <sup>0</sup>	950 - 980	4 - 5	5 - 7	-	-	4/6,7,9,11	3-21
260 <sup>0</sup>		4	6	-	-		
350 <sup>0</sup>	940 - 970	4 - 6	5 - 8	· con	_	4/3,4,12	

Tab. 3-3: NACHUNTERSUCHUNG DER IN-PILE EXPERIMENTE, PNS 4237, VERSUCH F3

Zusammenf. Angaben zur abgeschätzten Hüllmaterialtemperatur anhand des Gefügezustandes und zur Schichtdicke der sauerstoffstabilisierten  $\alpha$ -Zr(O)- und der ZrO2-Phase

Schliffebene Azimut	gesch. Temp.	Dicke der $\alpha$ -Zr(O) u. ZrO $_2$ -Schicht( $\mu$ r			chicht(µm)	Bild-Nr.	AbbNr.
	nach Gefüge ( <sup>O</sup> C)	Aussen		Innen		der Heißen	im
	( C)	α-Zr(O)	ZrO2	α-Zr(O)	ZrO <sub>2</sub>	Zellen	Bericht
Ebene 1:							
70 <sup>0</sup>	910 - 950	5	6	-	-	1/10	
160 <sup>0</sup>		6	6	-	- '		
250 <sup>0</sup>	910 - 950	3 - 5	3 - 5	-	- '	1/3-5,7,8	
340 <sup>0</sup>		6	5	_	-		
Ebene 2:							
130 <sup>0</sup>	880 - 920					2/4,5,9	
270 <sup>0</sup>	910 - 940					2/7,8,10	
Ebene 3:							
15 <sup>0</sup>	830 - 880					3/18,19	3-31
50°		2	5	2	5 - 6		
140 <sup>0</sup>		3	4	2	6 - 8	-	
200 <sup>0</sup>	900 - 930	2 - 4	3 - 5	1 - 3	6 - 10	3/11,12,16,17	3-31
260 <sup>0</sup>		5	4	2	8 - 10		
350 <sup>0</sup>	860 - 900	3 - 5	3 - 5	1 - 3	3 - 9	3/7,8,14,15	3-31
Ebene 4:	v						0.10
20 <sup>0</sup>	860 - 900	3	3 - 6	2	5 - 10	4/6,12,15	3-10 3-27
110 <sup>0</sup>		3	5	1	< 9		0.16
200°	900 - 930	3 - 4	3 - 4	2 - 3	5 - 10	4/8,10,11,13,	3-10 17 3-23
290 <sup>0</sup>		3	< 6	1	8		
Ebene 5:							
o°		3	7	-	-		
90°		3	7	-	-		
180 <sup>0</sup>		3	5	_	_		,
270 <sup>0</sup>	930 - 960	3 - 4	5 - 6	_	-	5/3-5,14,15	

Tab. 3-4: NACHUNTERSUCHUNG DER IN-PILE EXPERIMENTE, PNS 4237, VERSUCH F4

Zusammenf. Angaben zur abgeschätzten Hüllmaterialtemperatur anhand des Gefügezustandes und zur Schichtdicke der sauerstoffstabilisierten  $\alpha$ -Zr(0) und der ZrO2-Phase

Schliffebene gesch. Temp. Azimut nach Gefüge (OC)		Dicke de	er α-Zr(O)	Bild-Nr.	AbbNr.		
		Aussen		Inr		der Heißen	im
	α-Zr(O)	ZrO <sub>2</sub>	α-Zr(O)	zro <sub>2</sub>	Zellen	Bericht	
Ebene 1:							
30°	990 - 1020	6	6 - 7	2	2	1/7,8,12	
120 <sup>0</sup>		5	6	2	3		
210 <sup>0</sup>	1010 - 1040	4 - 5	7 - 8	3	1	1/3-5,9,10,14	
300 <sup>0</sup>		6	7	4	2		
Ebene 2:							0.11
30°	840 - 880	4	3 - 5	4	5 - 8	2/8,9,14,16	3-11 3-24
120 <sup>0</sup>		5	5	6	10		
210 <sup>0</sup>	810 - 860	2 - 3	4 - 6	3 - 4	3 - 5	2/3-6,11,13	3-11 3-26
300°		3	. 5	7	8 - 12		
Ebene 3:							
30°	860 - 900	3	3 - 4	4	4 - 7	3/8,9,15,17	3-12
120 <sup>0</sup>		3	5	4	8		
215 <sup>0</sup>	920 - 960	3 - 5	3 - 6	4 - 6	5 - 12	3/3-6,12,14	3-12
300 <sup>0</sup>		4	5	5	8		
Ebene 4:							
30°	980 - 1020	6	7 - 8	< 1	1 - 4	4/6,7,10,13	3-16
120 <sup>0</sup>		4	6	< 1	< 1		
210 <sup>0</sup>	980 - 1020	5 - 7	4 - 7	-	1 - 3	4/3-5,9,15	3-16 3-20
300°	930 - 960	6	7	< 1	< 1		
bene 7:							
30°		4	3 - 5	2	6 - 9	7/8,9	
120 <sup>0</sup>		4	6	3	8		
210 <sup>0</sup>		5 - 7	8 - 12	5 - 6	5 - 10	7/3-6	
300°		4	6	6	8 - 12		
Bbene 8:							
30°		4	3 - 5	5	5 - 7	8/8,9	3-14
120 <sup>0</sup>		5	6	6	7		
210 <sup>0</sup>		5 - 6	6 - 8	7	5 - 9	8/4-7	3-14
300°		4	5	5	8		

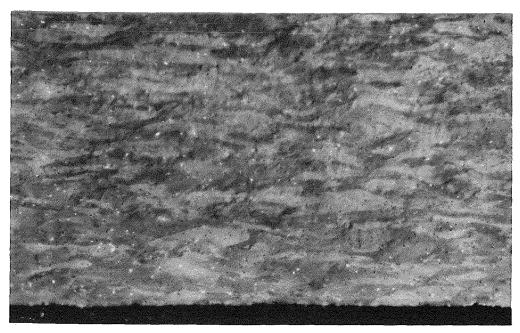
Tab. 3-5: NACHUNTERSUCHUNG DER IN-PILE EXPERIMENTE, PNS 4237, VERSUCH F5

Zusammenf. Angaben zur abgeschätzten Hüllmaterialtemperatur anhand des Gefügezustandes und zur Schichtdicke der sauerstoffstabilisierten  $\alpha$ -Zr(O)- und der ZrO<sub>2</sub>-Phase

Schliffebene gesch. Temp. Azimut nach Gefüge ( <sup>O</sup> C)	gesch. Temp.	Dicke d	er α-Zr(O)	Bild-Nr.	AbbNr.		
		Aus	sen	Innen		der Heißen	im
	α-Zr(O)	zro <sub>2</sub>	α-Zr(O)	zro <sub>2</sub>	Zellen	Bericht	
Ebene 1:							
40°		3 - 4	4 - 5	3 - 4	-	1/5,6	
130 <sup>0</sup>		4	5	4	-		
220 <sup>0</sup>	920 - 950	3 - 5	4 - 5	3 - 4	-	1/3,3a,4,9,10	
310 <sup>0</sup>		4	6	3	_		
Ebene 3:							
130 <sup>0</sup>	830 - 880					3/2,3	
Ebene 4:							
40 <sup>0</sup>		4	6	2	8		
100°	800 - 860					4/10	3-30
130°	800 - 860					4/11,12	3-30
220 <sup>0</sup>		2	4	< 2	5		
310 <sup>0</sup>	800 - 860	2	2 - 4	1 - 2	2 - 6	4/6-8,13-15	3-30
Ebene 5:							
40°		2	4	2	8		
130 <sup>0</sup>	800 - 860	4	4	5	5	5/5,11	3-28
220 <sup>0</sup>		2	4	2	6		
310 <sup>0</sup>	800 - 860	1 - 2	2 - 3	1 - 2	3 - 6	5/7-9,13,14	3-25
Ebene 6:							
40 <sup>0</sup>		4	6	-	-		
130 <sup>0</sup>	920 - 950	3 - 4	5 - 6	-	-	6/3-5,10,11	
220 <sup>0</sup>		4	4	-	_		
310 <sup>0</sup>		3 - 4	3 - 4	1	-	6/6-8	

Tab. 3-6: Mikrohärte von Zircaloy 4-Hüllrohren; Mittelwerte der über die Rohrwand aufgenommenen Härteprofile

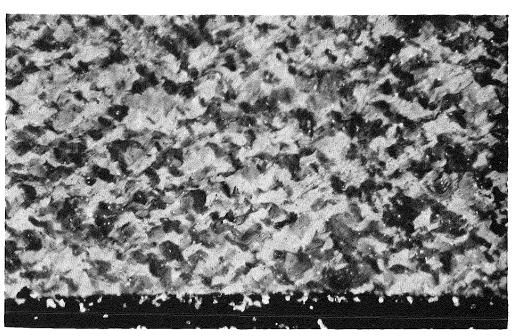
Brennstab	Quer- bzw. Längsschliff	Schliff- Nr.	Azimut- winkel	Anzahl d. Messungen	Mittelwerte MHV 25
F1	Q	2	o°	60	242
H .	11	3	115 <sup>0</sup>	66	233
II .	11	"	295 <sup>0</sup>	19	245
u	"	4	90 <sup>0</sup>	63	232
n .	11	u	270 <sup>0</sup>	27	249
п	11	6	20 <sup>0</sup>	60	269
11	L	1		72	333
F6	Q	7	o°	72	325
(vorbestral	nlt)				
***	II .	8	o°	72	323
11	L	3		75	347
Ausgangs-	Q			75	262
zustand					
A- u. B-	Q (insg.			je 22 - 66	234 - 286
Stäbe	21 Meßserie	n) .			



INNENSEITE, LÄNGSSCHLIFF

1000

HZ-46E-F6-41-3/14 500x polar. Licht geätzt



INNENSEITE, QUERSCHLIFF

Abb.3-1

Zircaloy 4 -Gefüge nach Vorbestrahlung; fertigungsbedingter Verformungszustand des Hüllrohres F6

## **AUSSENSEITE**

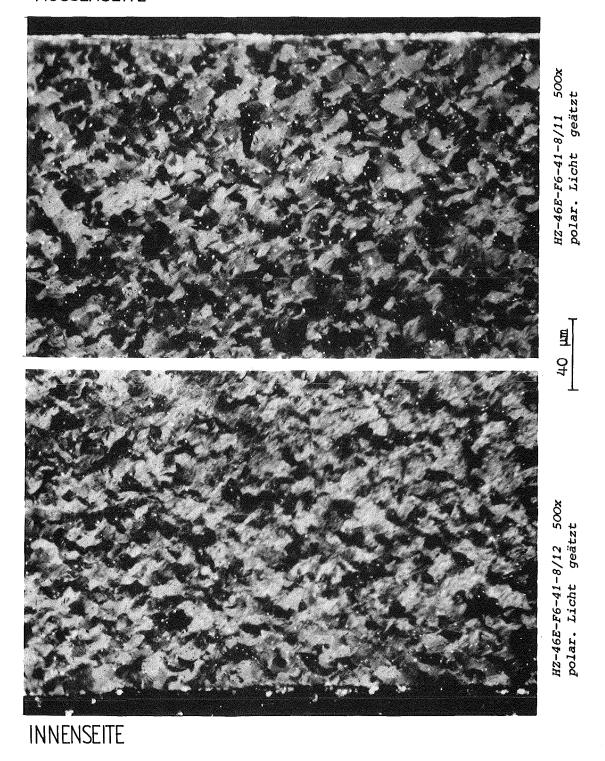


Abb. 3-2

Gefüge über die Hüllrohrwand im vorbestrahlten

Zustand; Brennstab F6, Querschliff

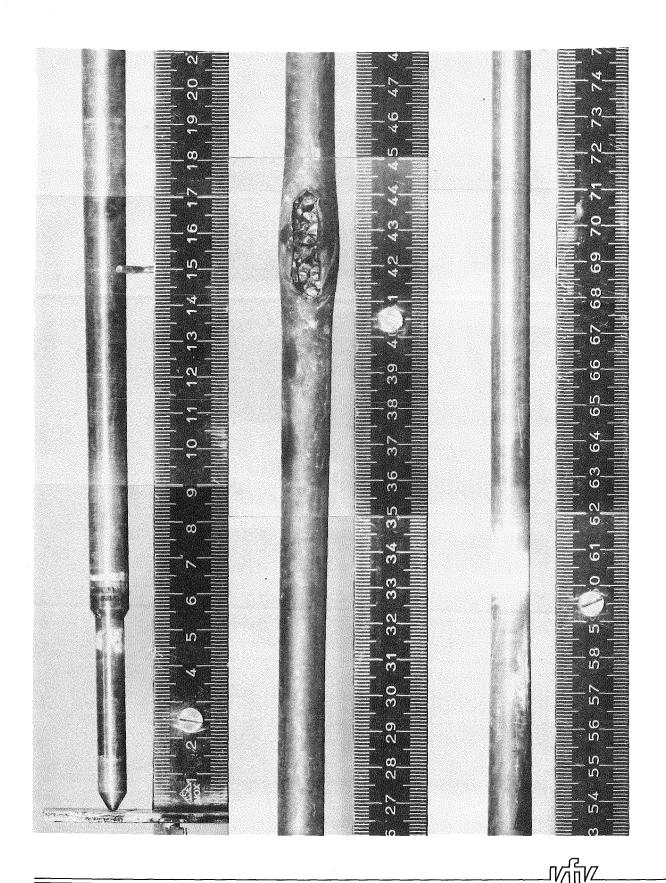


Abb.3-3
Ansicht des Brennstabs F5 mit hell gefärbten Zonen

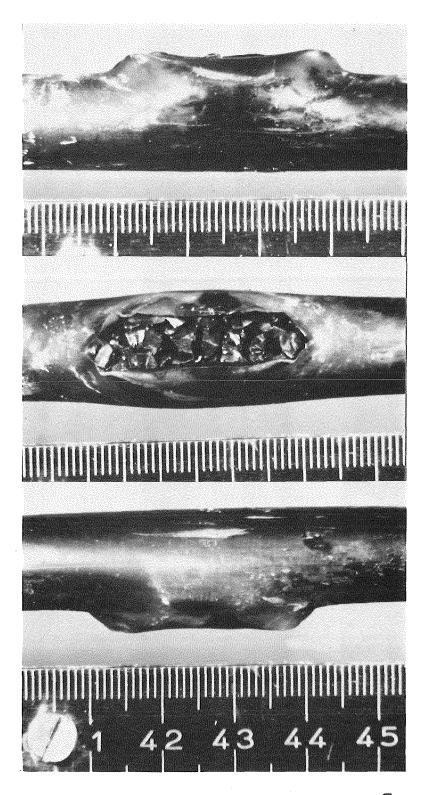


Abb. 3-4
Helle Verfärbungen ("weißes Oxid") im Berstbereich des Brennstabs F5

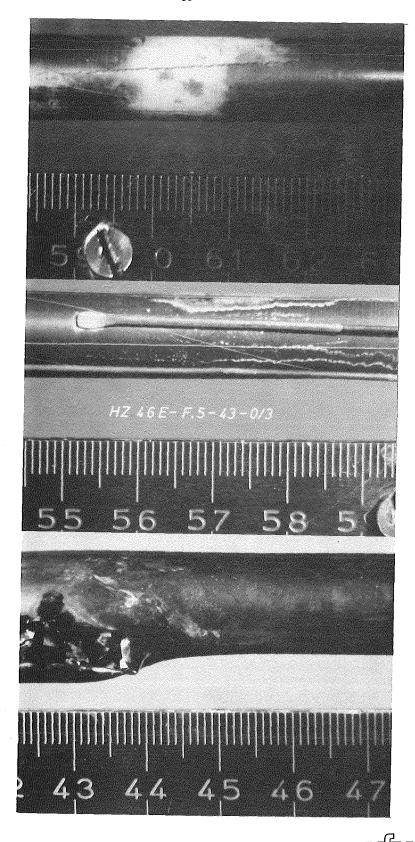


Abb. 3-5
Helle Verfärbungen ("weißes Oxid") oberhalb der Berststelle des Brennstabs F5

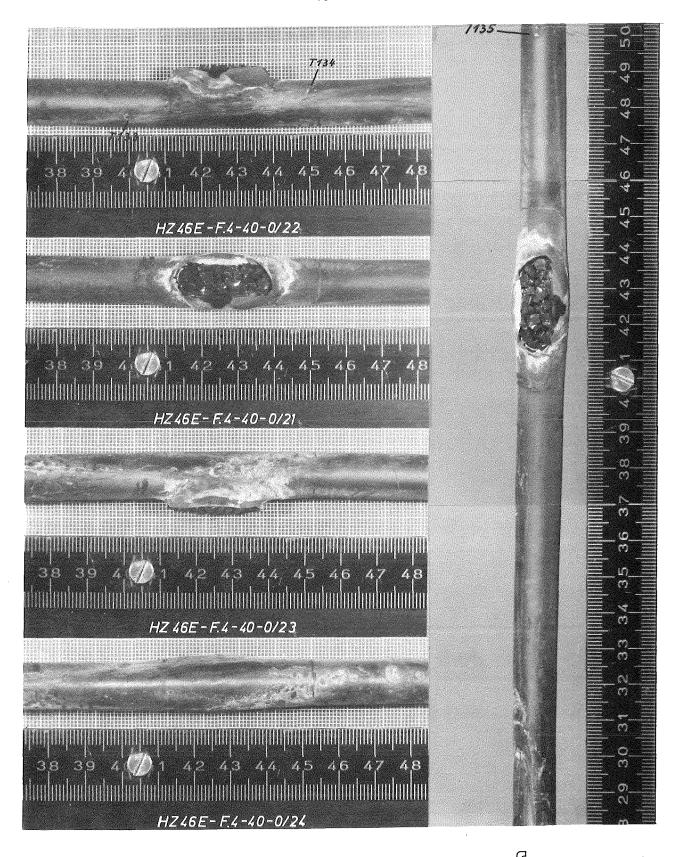


Abb. 3-6
Brennstab F4; hell gefärbte Zonen im Bereich der Berststelle

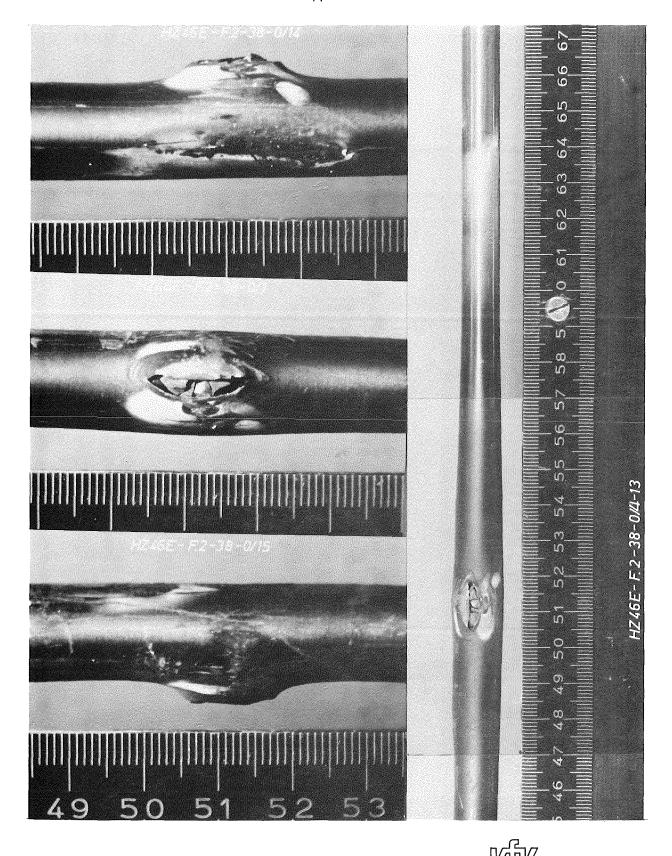
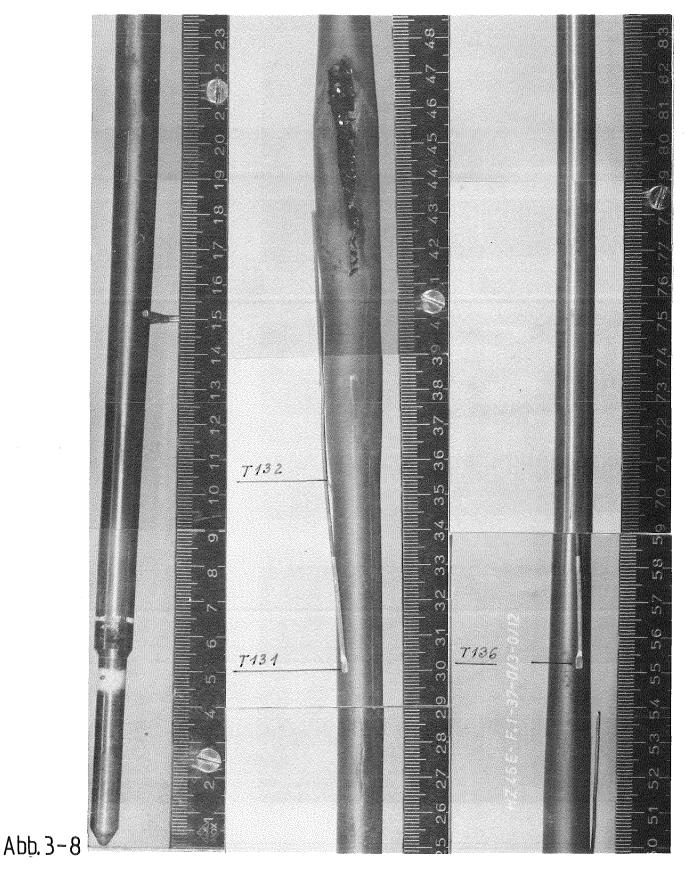
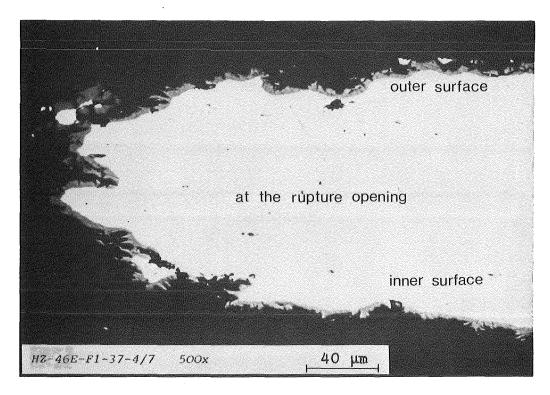


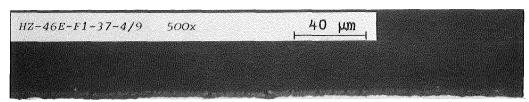
Abb. 3 -7

Brennstab F2; hell gefärbte Zonen im Bereich der Berststelle und darüber



Brennstab F1; helle Verfärbung an Schweißstellen am unteren Stabende





outer surface

opposite to the rupture opening

inner surface

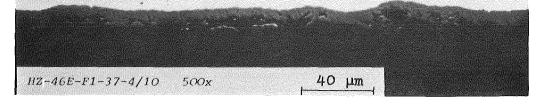


Abb. 3-9

External and internal oxide scale at the burst location of the preirradiated fuel rod F1

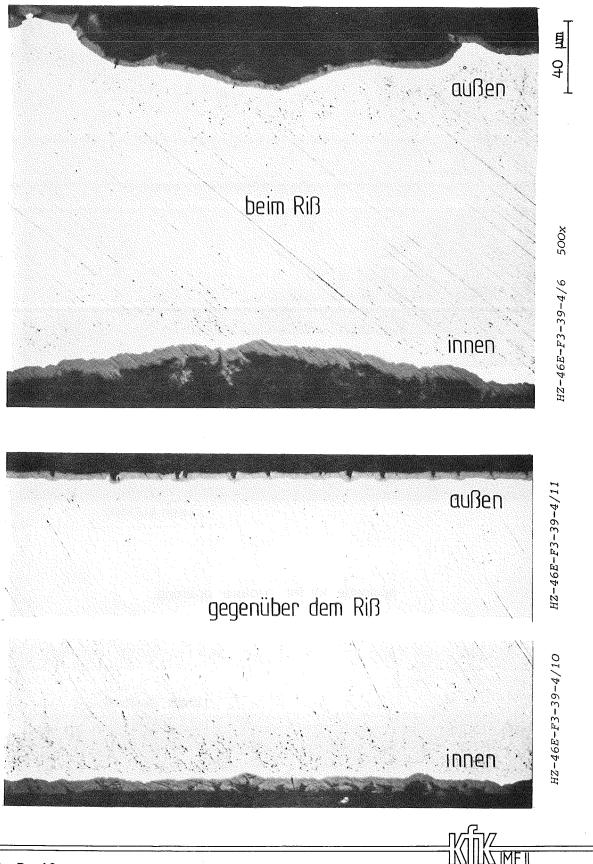


Abb. 3-10

Starke Oxidation der inneren im Vergleich zur äußeren Hüllrohroberfläche; Brennstab F3, über dem Riß

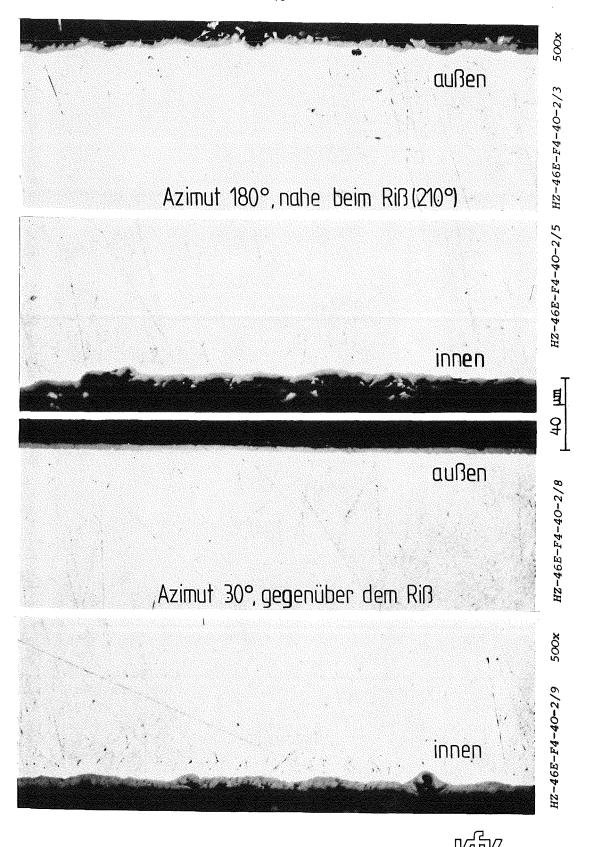


Abb. 3-11

Starke Oxidation der inneren im Vergleich zur äußeren Hüllrohroberfläche in Höhe des Risses; Brennstab F4

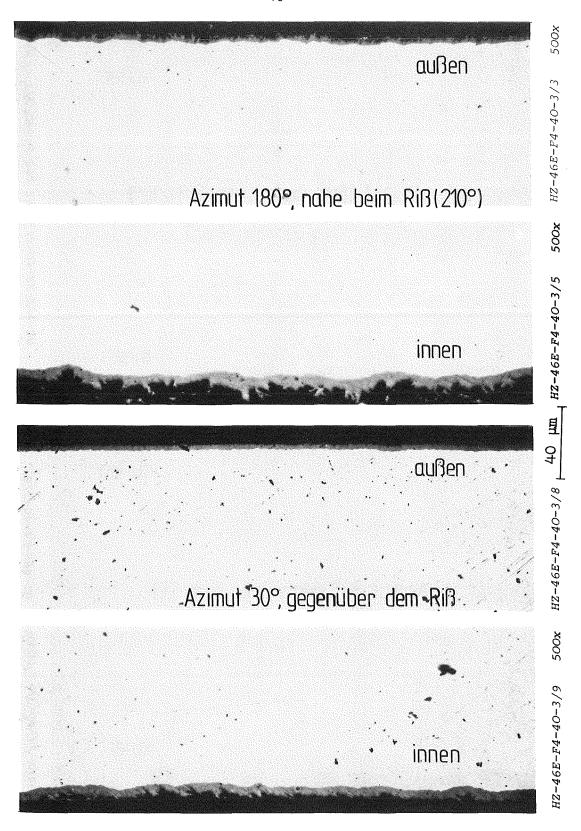


Abb. 3-12

Starke Oxidation der inneren im Vergleich zur äußeren Hüllrohroberfläche; Brennstab F4, oberes Rißende

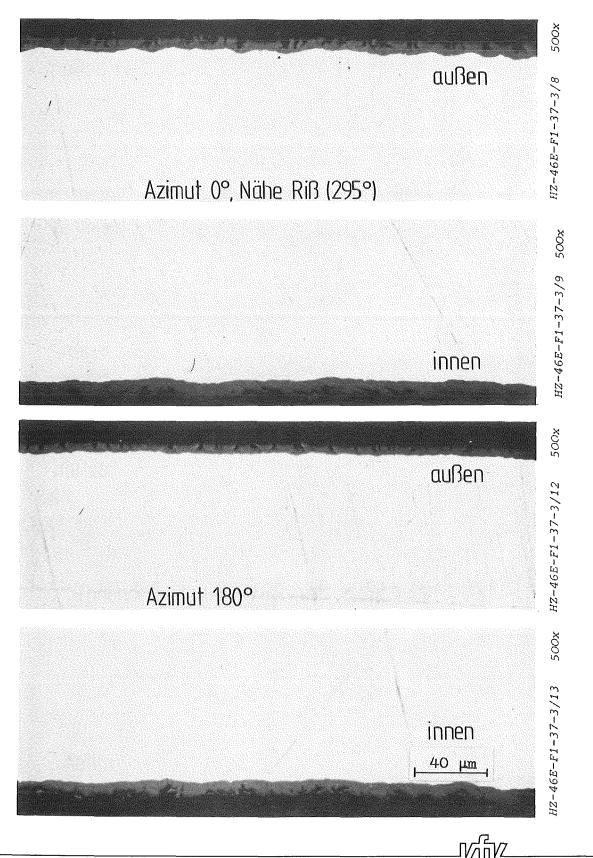


Abb. 3-13
Starke Oxidation der inneren im Vergleich zur äußeren Hüllrohroberfläche; Stab F1, dicht über oberem Rißende

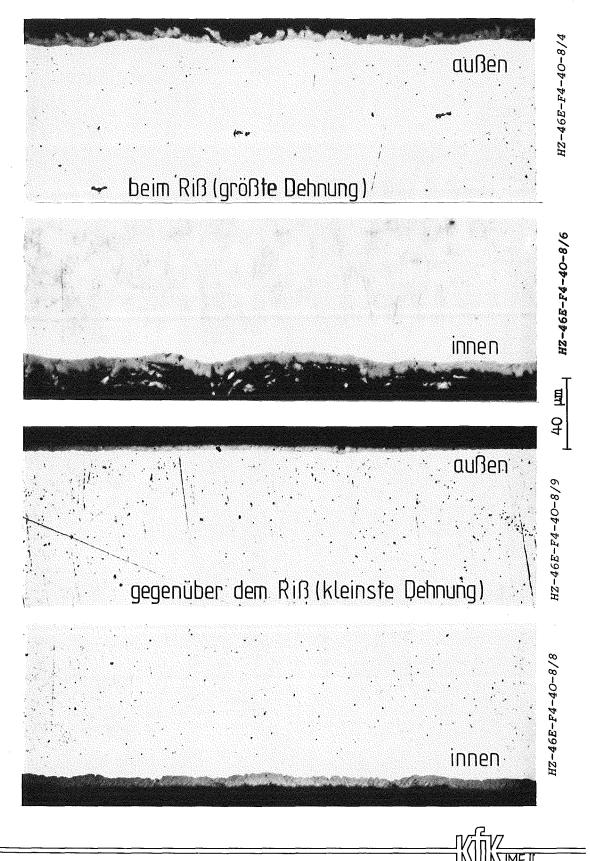


Abb. 3-14

Verstärkte Innenoxidation nahe der Berststelle (ca.2mm unter dem Rißende, Versuch F4

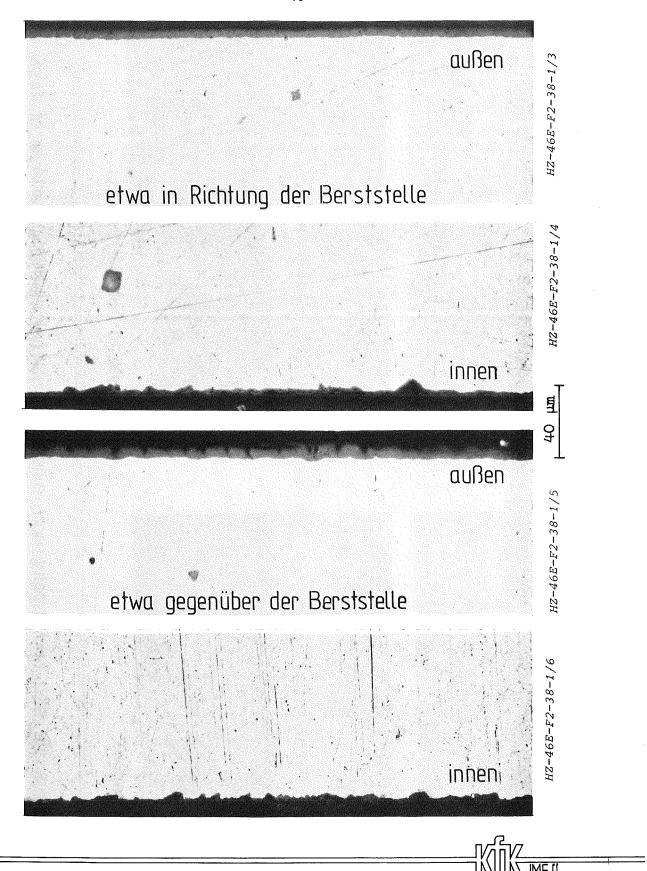
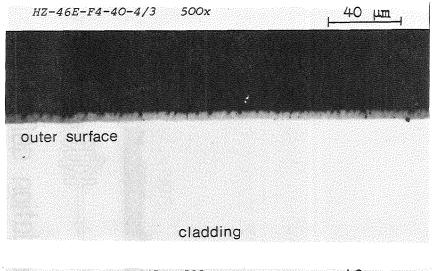
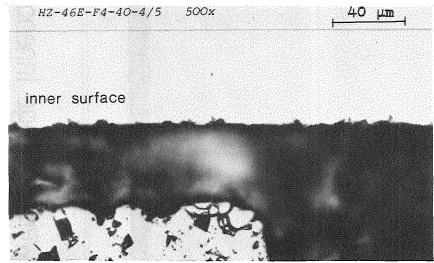


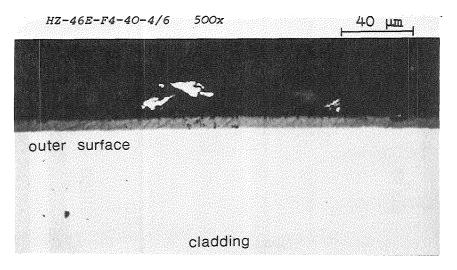
Abb. 3 -15

Vergleichsweise geringe Innenoxidation außerhalb des Berstbereichs; Versuch F2, 37mm über Rißende





in burst orientation





opposite to burst orientation

Abb.3-16

External oxide scale and (practically non-oxidized) internal cladding surface of fuel rod F4, about IIO mm below the burst elevation

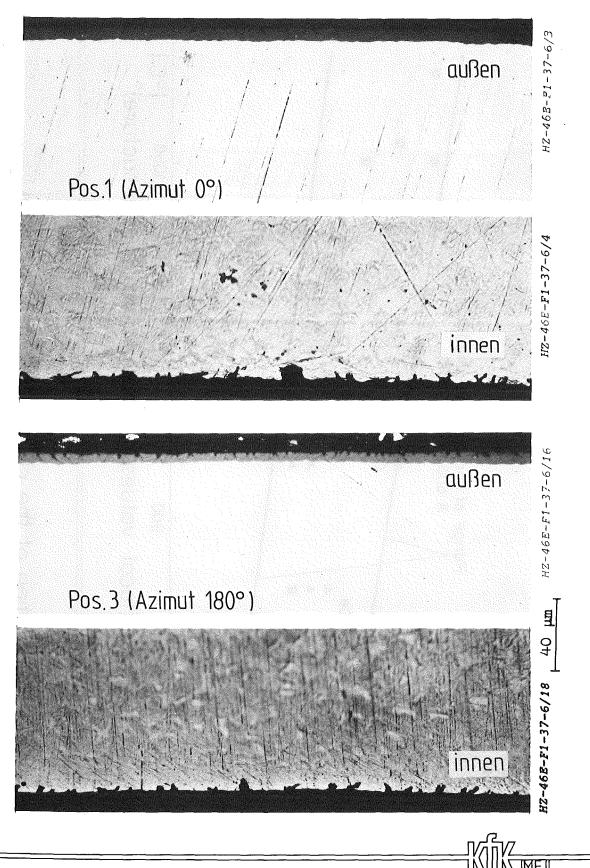
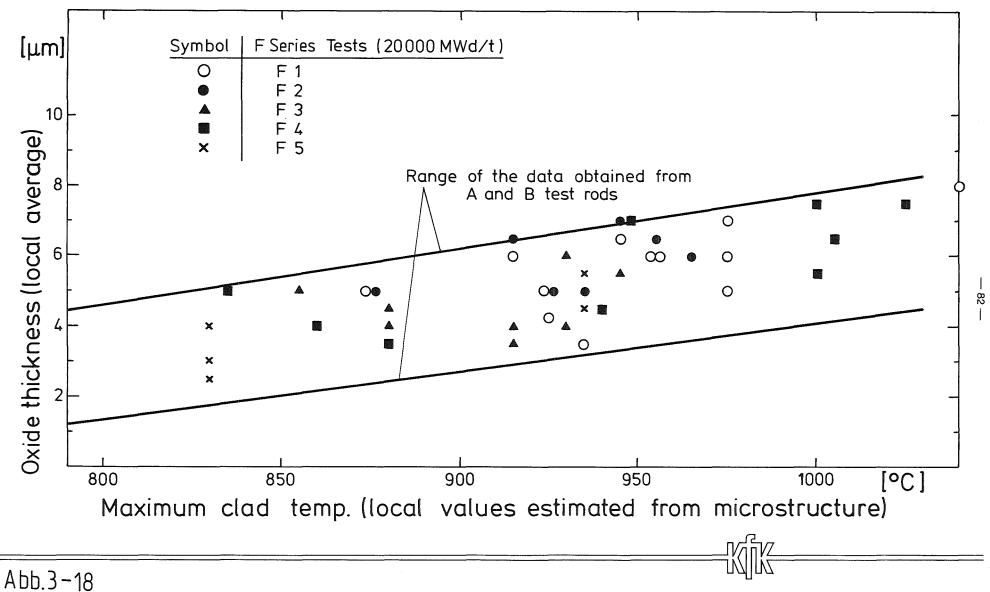
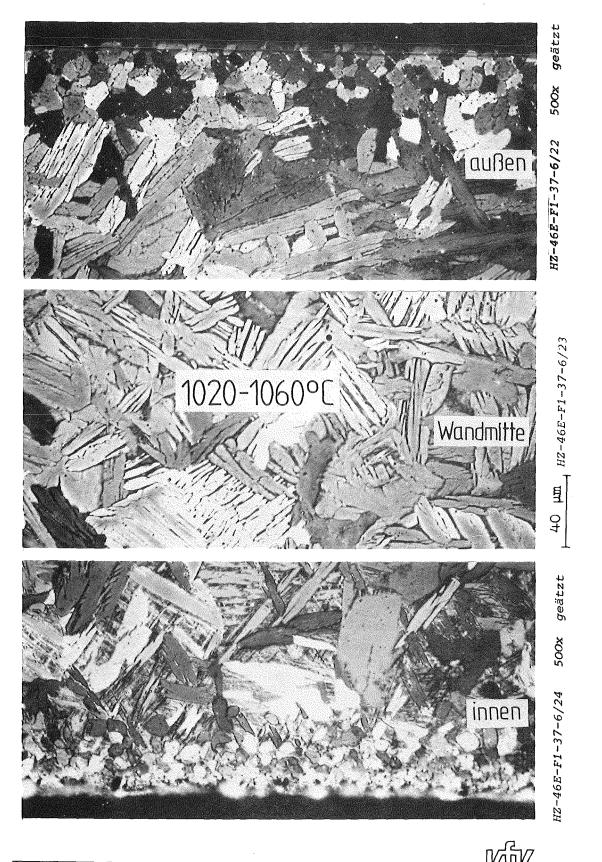


Abb. 3-17

Außenoxidation und nicht nachweisbare innere Oxidschicht ca.140mm unter der Berststelle; Versuch F1



FR2 In-pile Tests. Steam Oxidation of the cladding (outer surface)



Oxidationsbedingte Gefügeveränderung im äußeren und inneren Randbereich des Hüllrohres F1 (vgl.3-17)

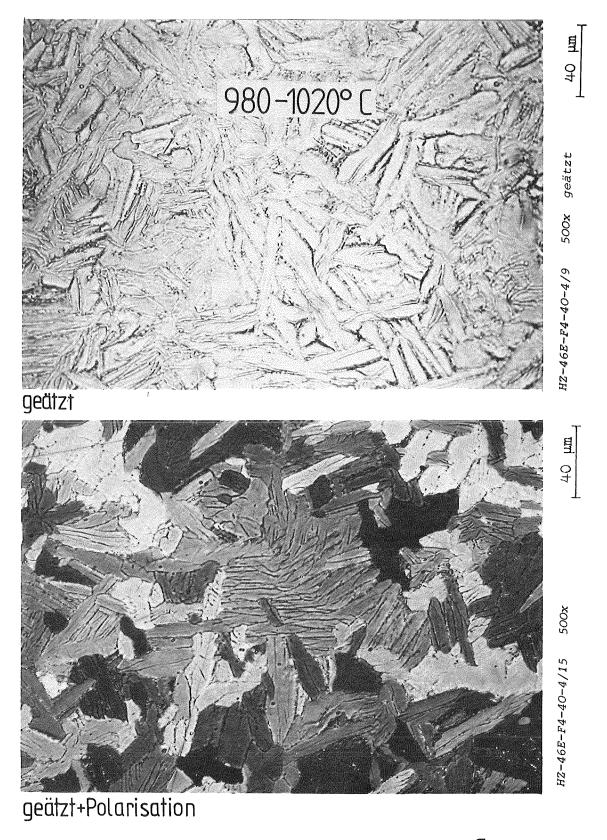


Abb. 3-20

Abschätzung der Maximaltemperatur nach dem Gefüge des Zircaloy 4; Versuch F4, Schnittebene 4

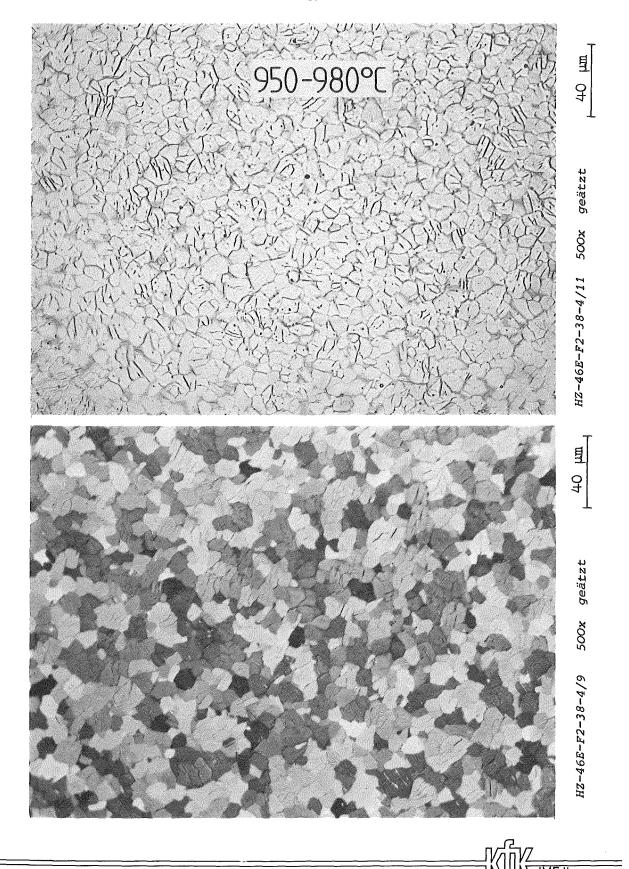


Abb.3-21

Abschätzung der Maximaltemperatur nach dem Gefüge des Zircaloy 4; Versuch F2, Schnittebene 4

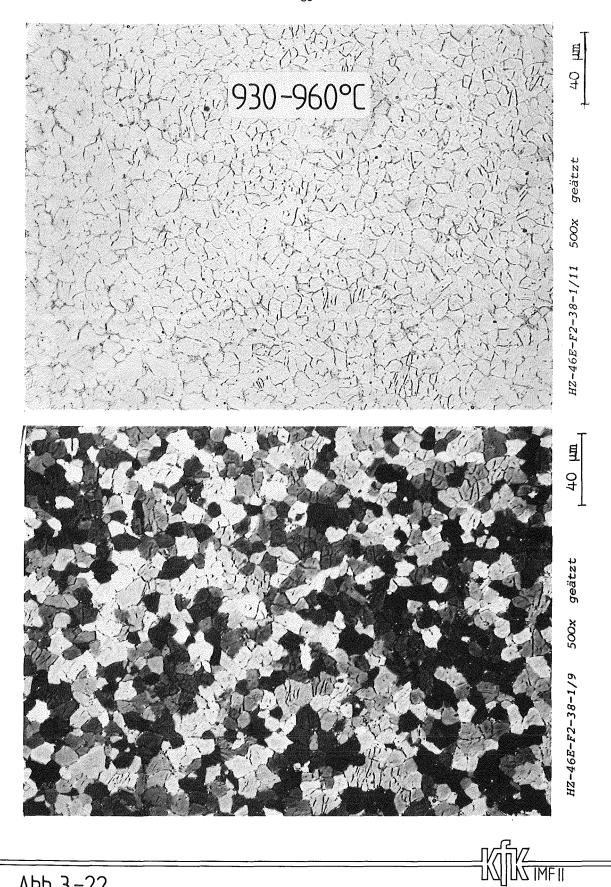


Abb. 3-22

Abschätzung der Maximaltemperatur nach dem Gefüge des Zircaloy 4; Versuch F2, Schnittebene 1

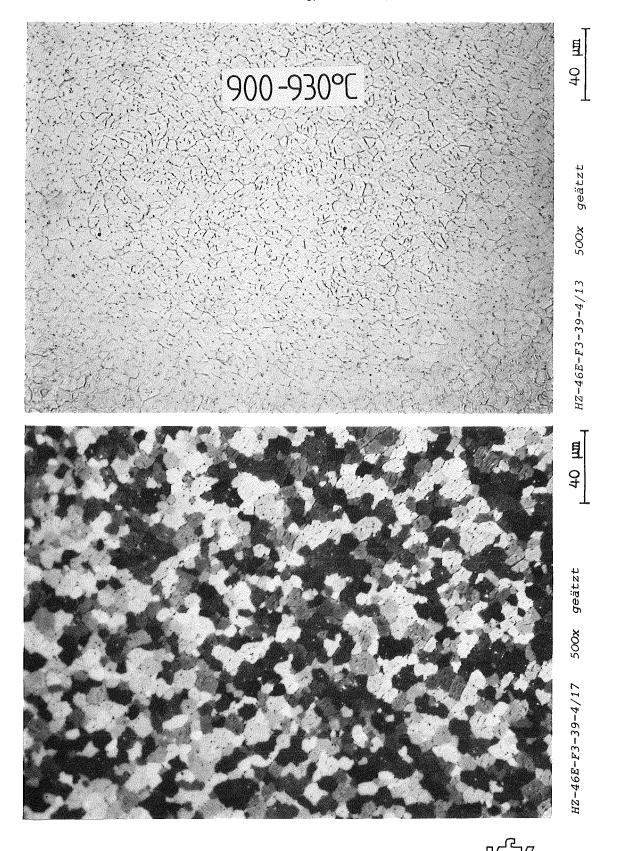


Abb.3-23
Abschätzung der Maximaltemperatur nach dem Gefüge des Zircaloy 4; Versuch F3, Schnittebene 4

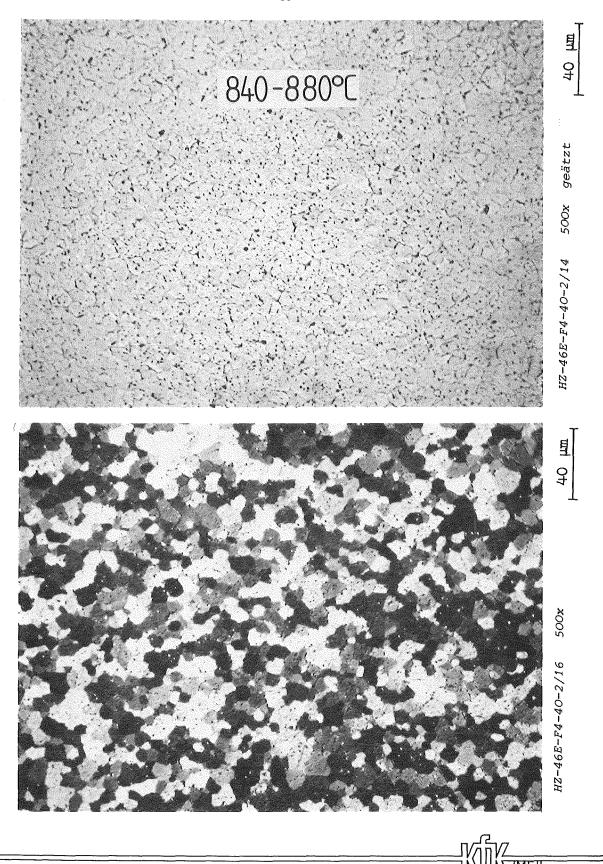


Abb. 3-24

Abschätzung der Maximaltemperatur nach dem Gefüge des Zircaloy 4; Versuch F4, Schnittebene 2

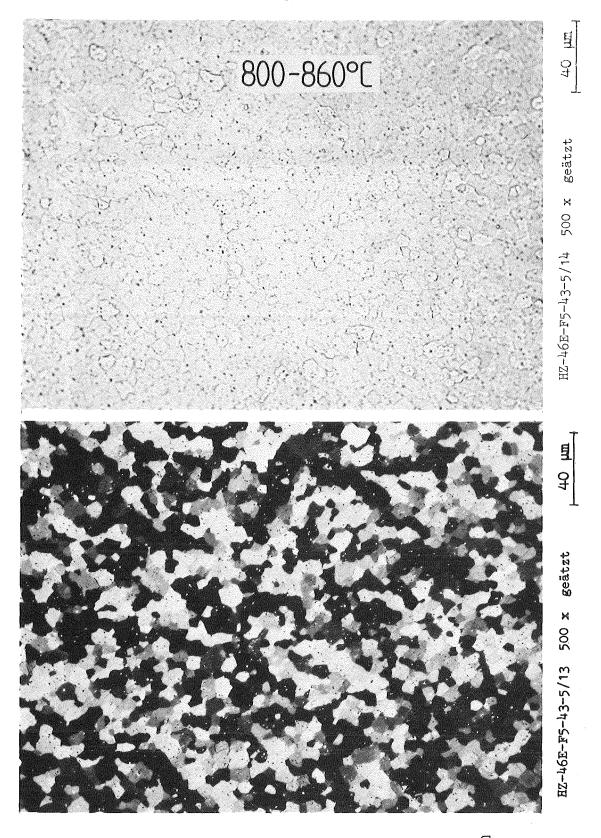


Abb.3-25

Abschätzung der Maximaltemperatur nach dem Gefüge des Zircaloy 4; Versuch F5, Schnittebene 5

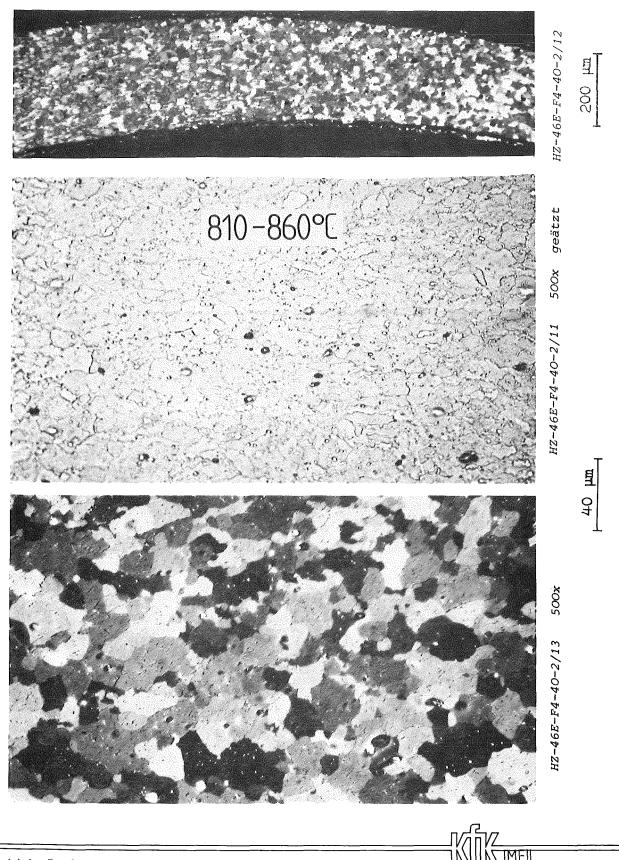


Abb.3-26

Kornwachstum durch Rekristallisation einer stark gedehnten Stelle des Hüllrohrs aus F4; Schnittebene 2

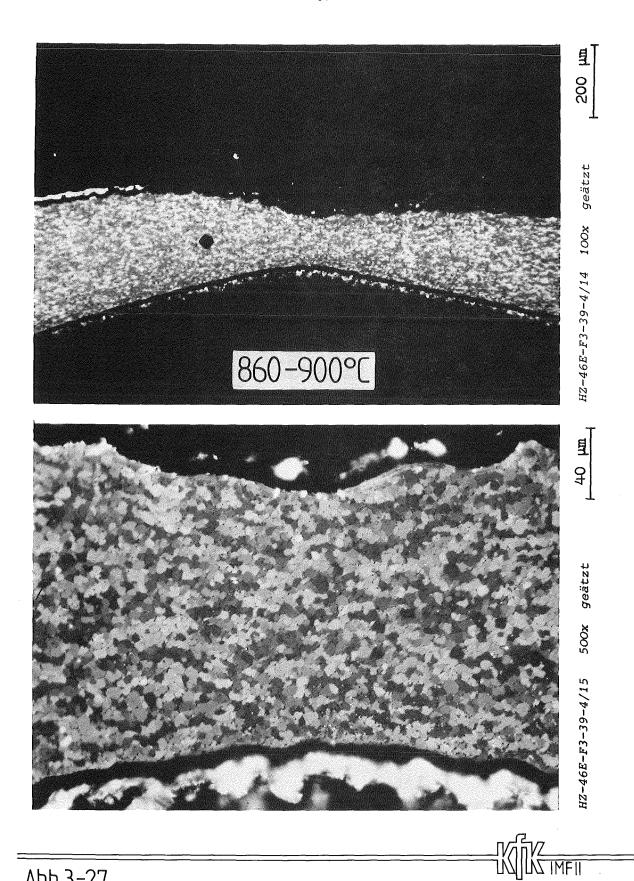


Abb.3-27

Zircaloy 4 - Gefüge ohne Kornwachstum nach starker Verformung; Versuch F3, Schnittebene 4

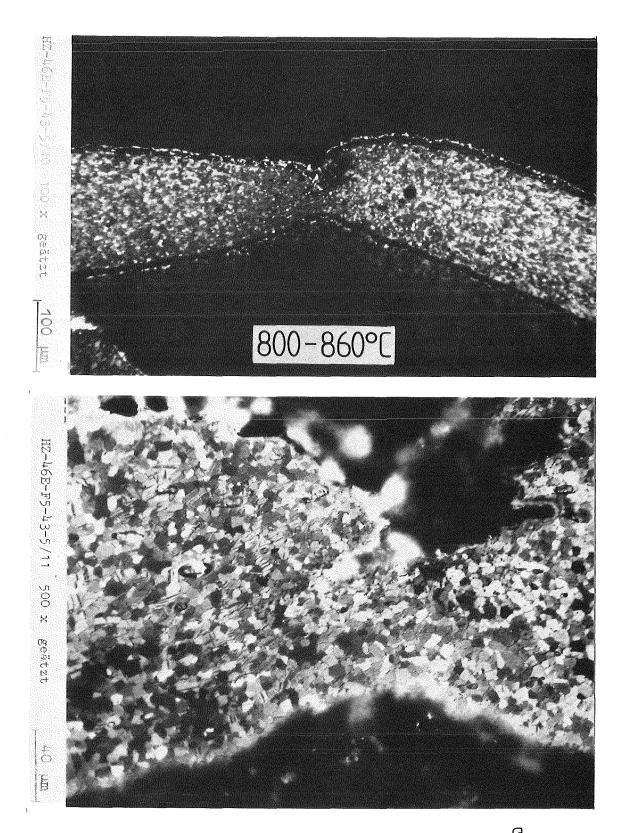


Abb.3-28

Zircaloy 4 - Gefüge ohne Kornwachstum nach star-ker Verformung; Versuch F5, Schnittebene 5

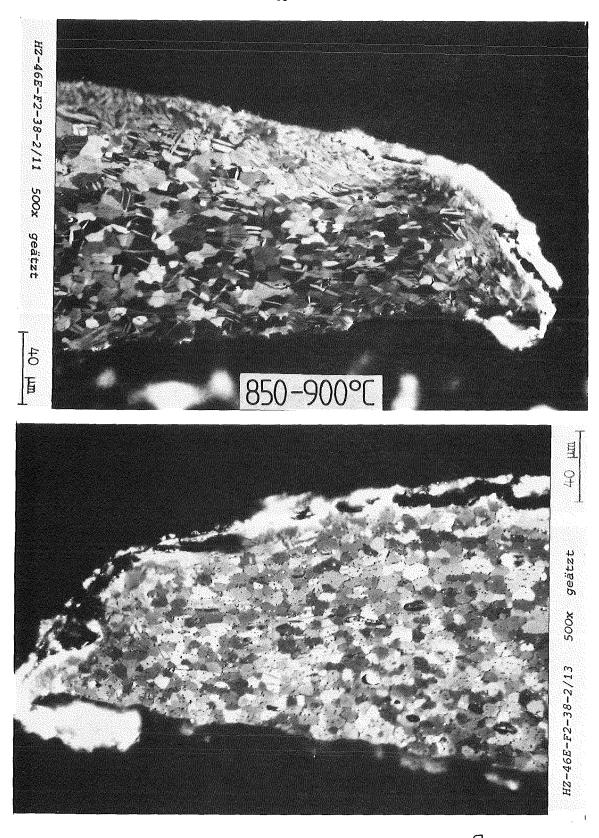


Abb.3-29 Zwillingshildung durch nachträglich

Zwillingsbildung durch nachträgliche Verformung einer Rißflanke des Zircaloy 4-Hüllrohrs; F2,Ebene 2

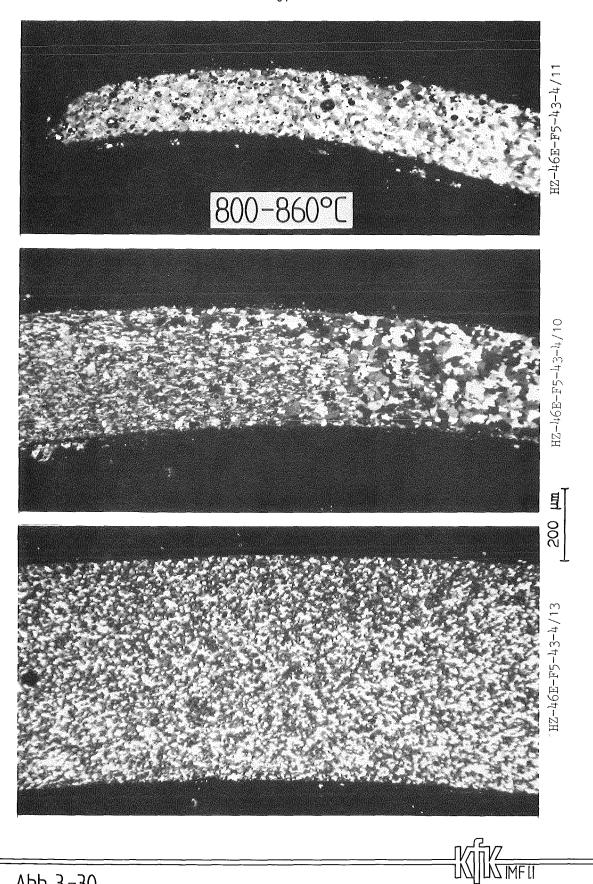
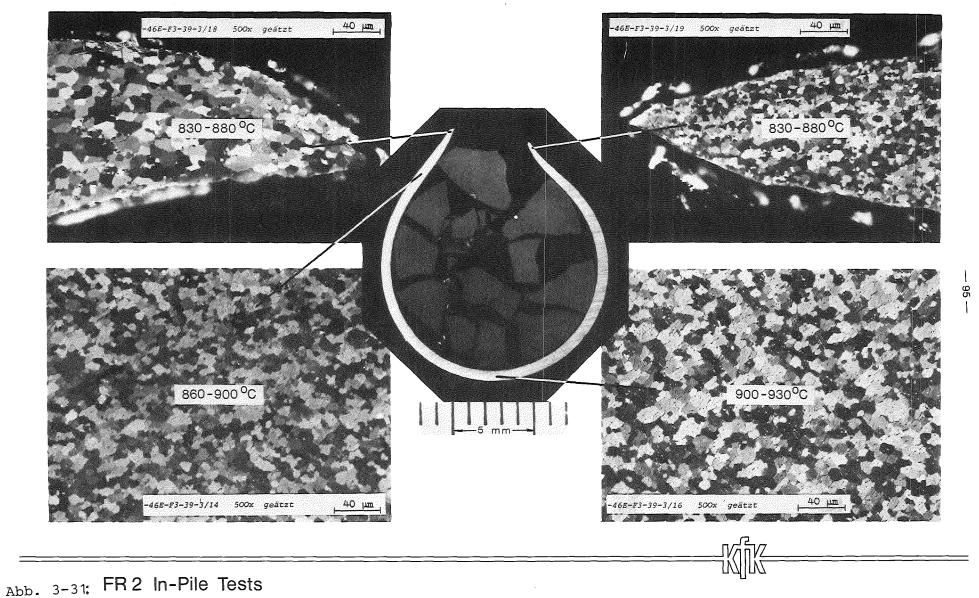


Abb. 3-30

Variation des Gefüges mit der Deformation bei einheitlicher Temperatur über den Umfang;F5,Riß



Cladding temperatures based on microstructural evaluation at the burst elevation of fuel rod F3

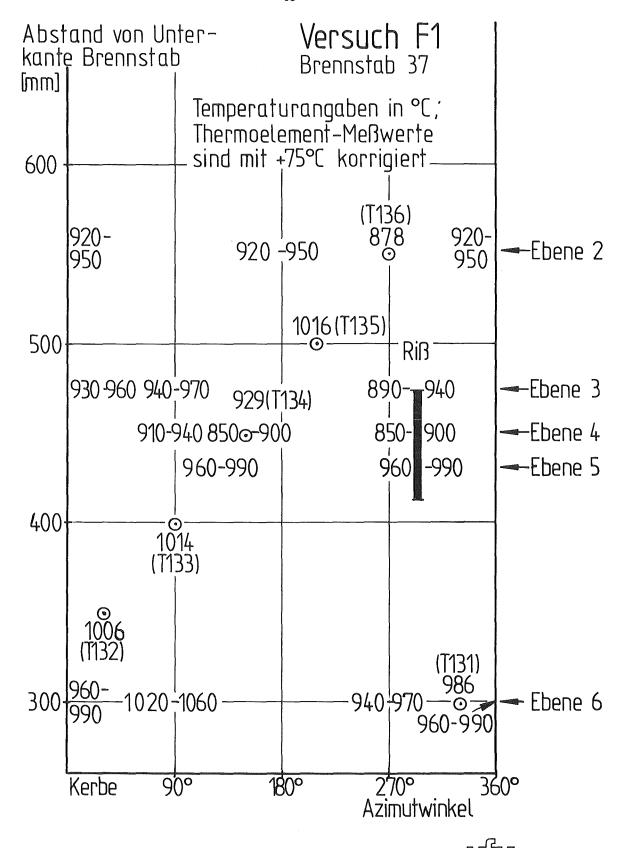


Abb.3-32

Feld der Hüllrohr-Maximaltemperaturen nach der Gefügebeurteilung bzw. der Messung

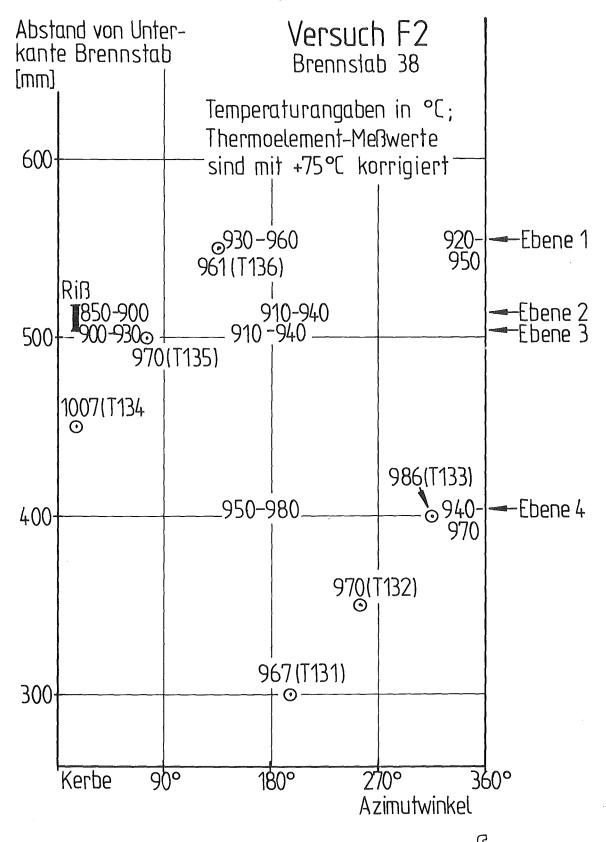
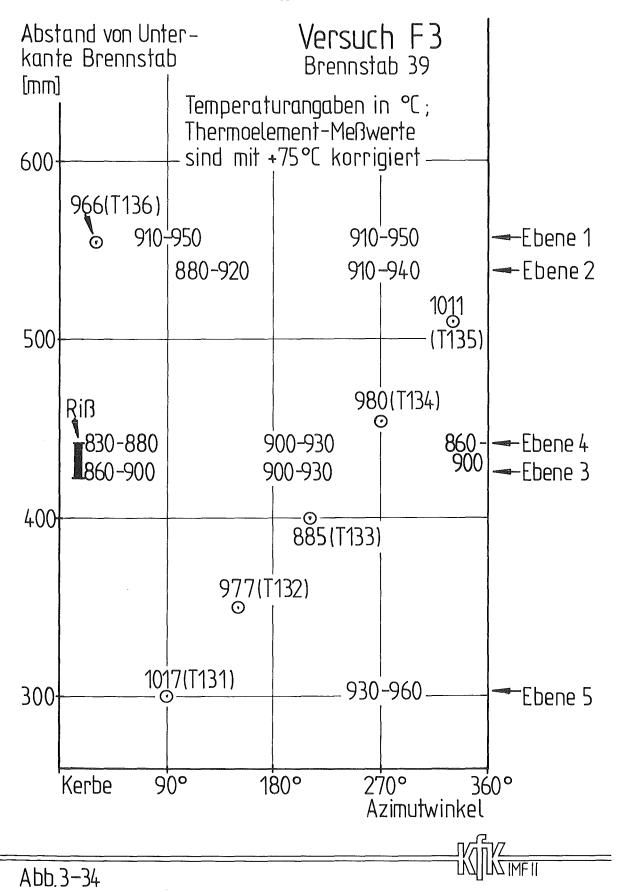


Abb. 3-33
Feld der Hüllrohr-Maximaltemperaturen nach der Gefügebeurteilung bzw. der Messung



Feld der Hüllrohr-Maximaltemperaturen nach der Gefügebeurteilung bzw. der Messung

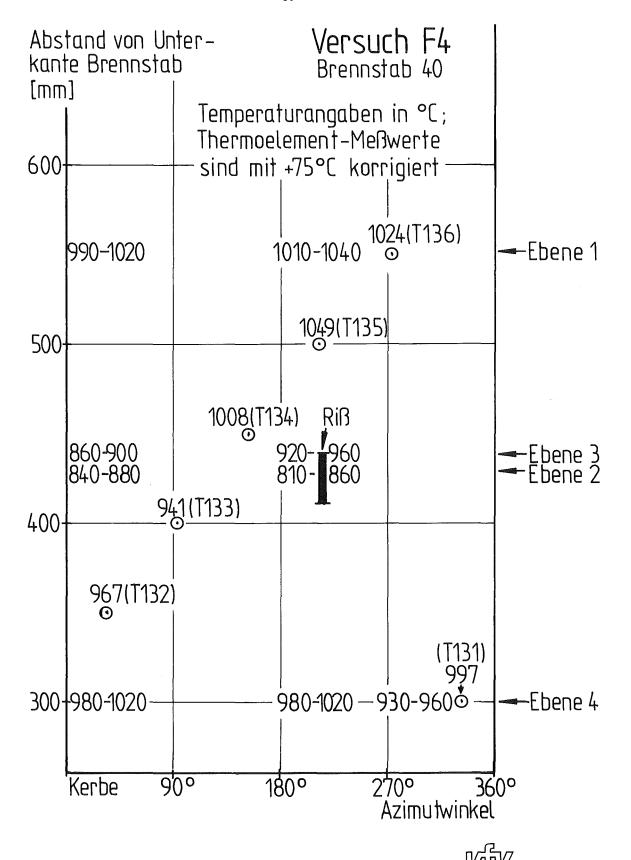


Abb. 3-35
Feld der Hüllrohr-Maximaltemperaturen nach der Gefügebeurteilung bzw. der Messung

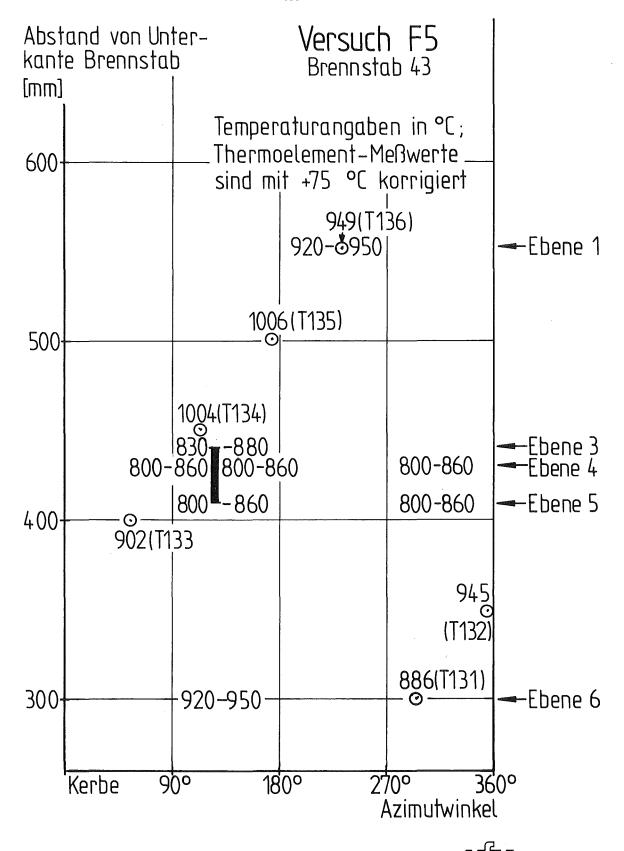


Abb. 3-36

Feld der Hüllrohr-Maximaltemperaturen nach der Gefügebeurteilung bzw. der Messung



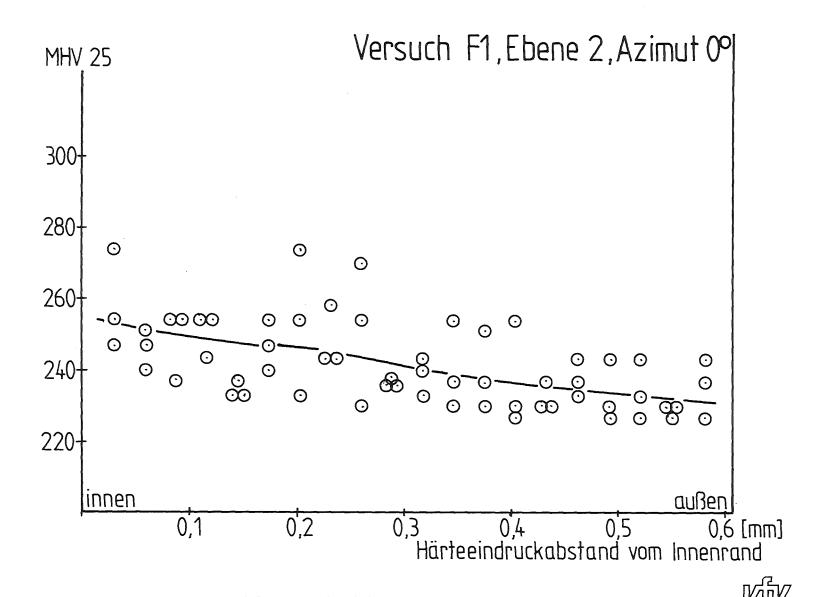


Abb.3-37 **Mikrohärteprofil über die Hüllrohrwand** 

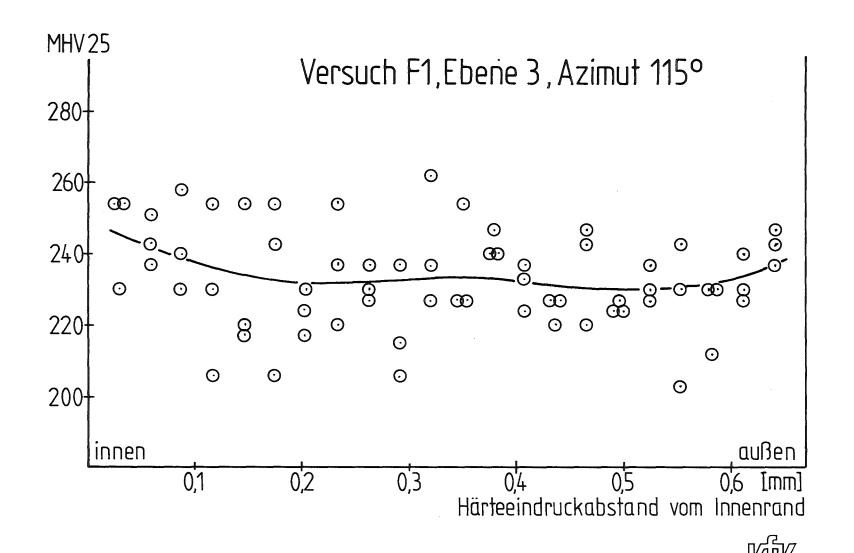


Abb.3-38 **Mikrohärteprofil über die Hüllrohrwand** 



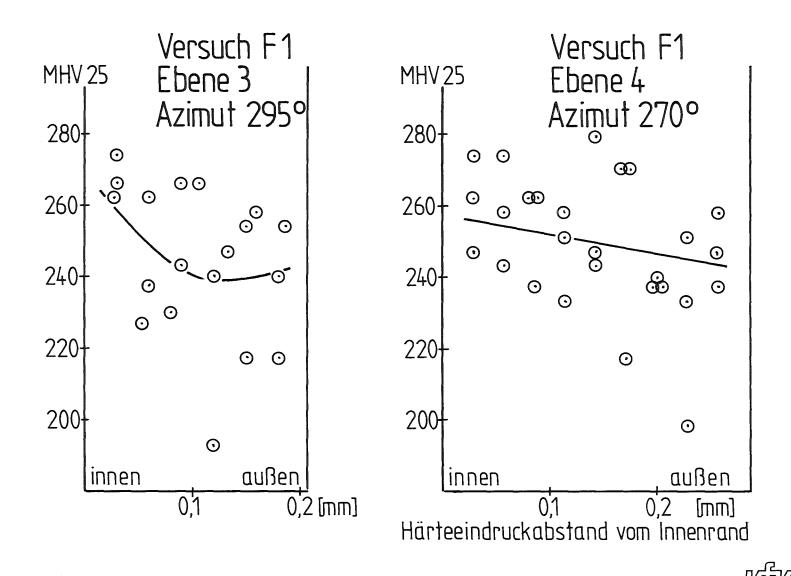


Abb.3-39 **Mikrohärteprofil über die Hüllrohrwand** 

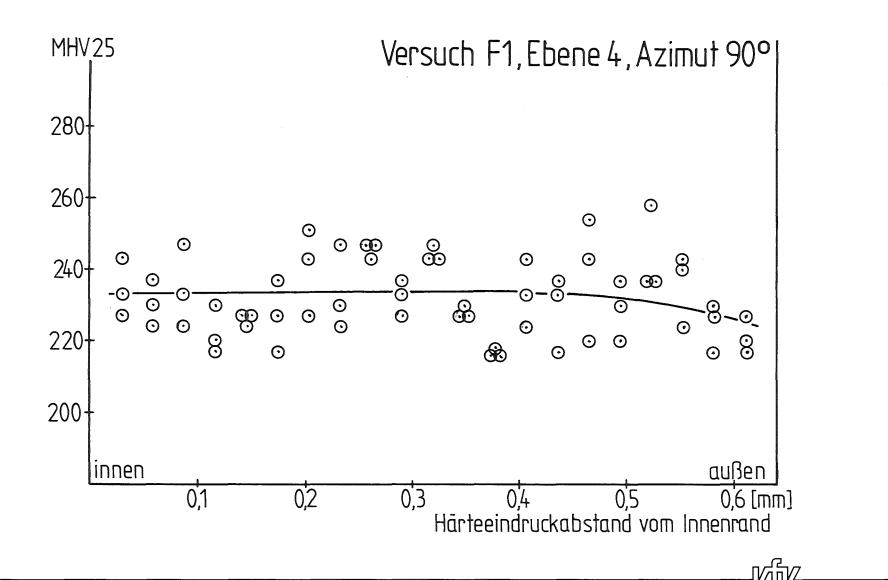


Abb.3-40 **Mikrohärteprofil über die Hüllrohrwand** 

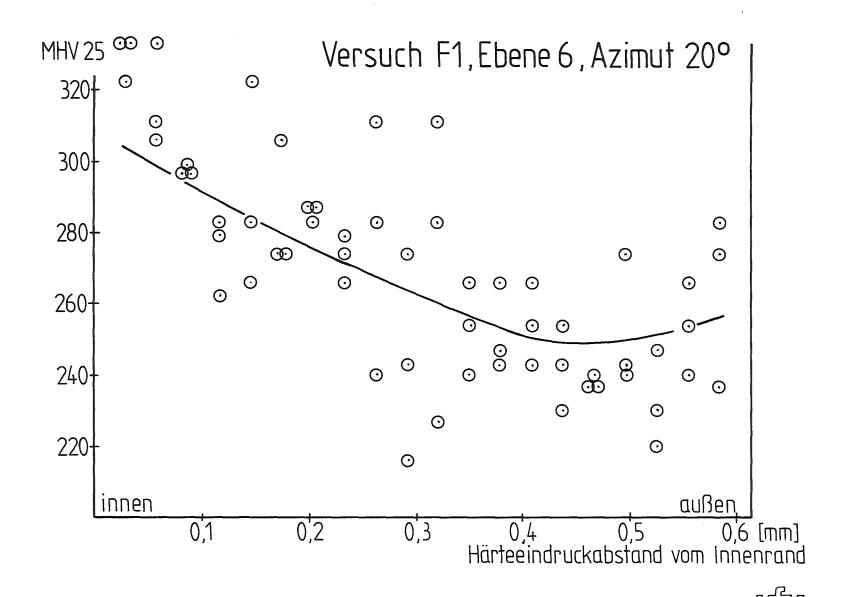


Abb. 3-41 Mikrohärteprofil über die Hüllrohrwand



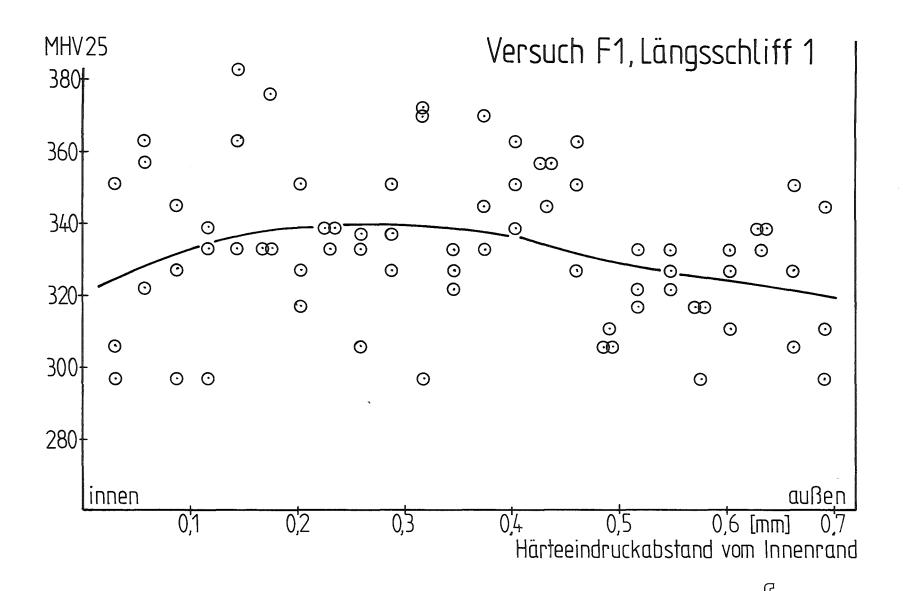


Abb.3-42 Mikrohärteprofil über die Hüllrohrwand

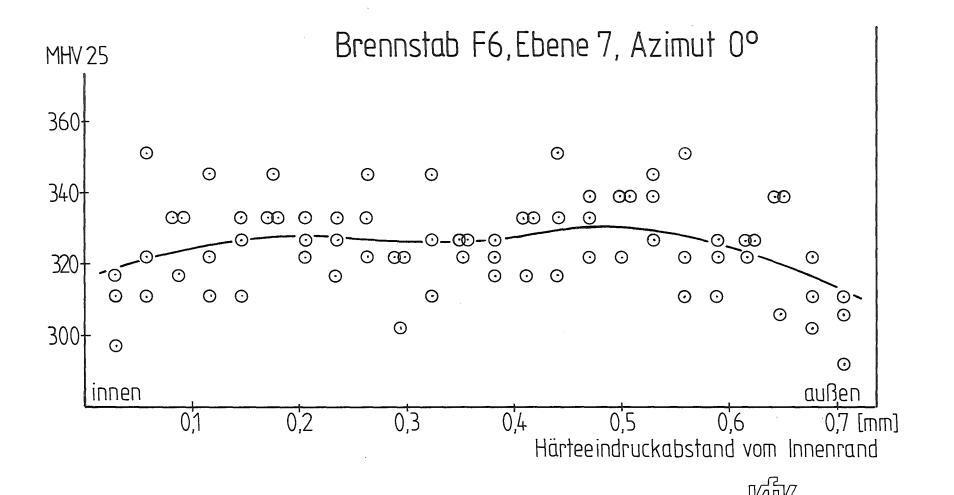


Abb.3-43 Mikrohärteprofil über die Hüllrohrwand



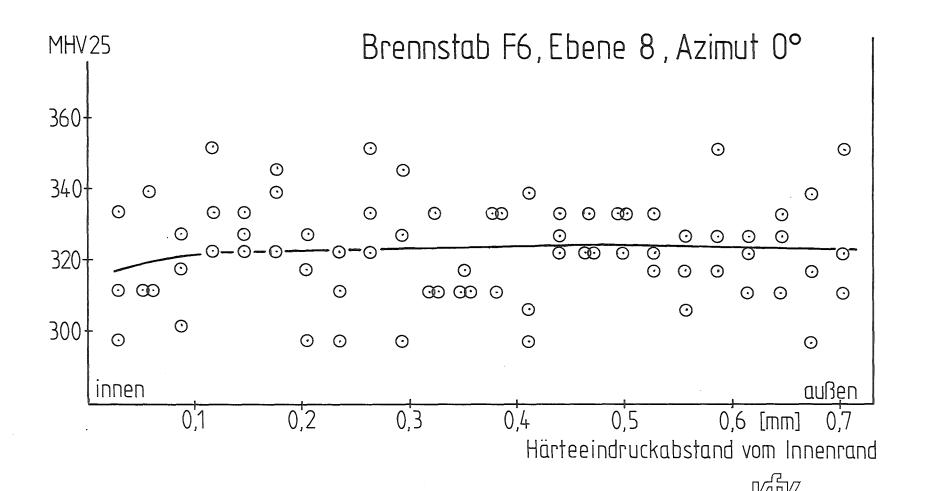
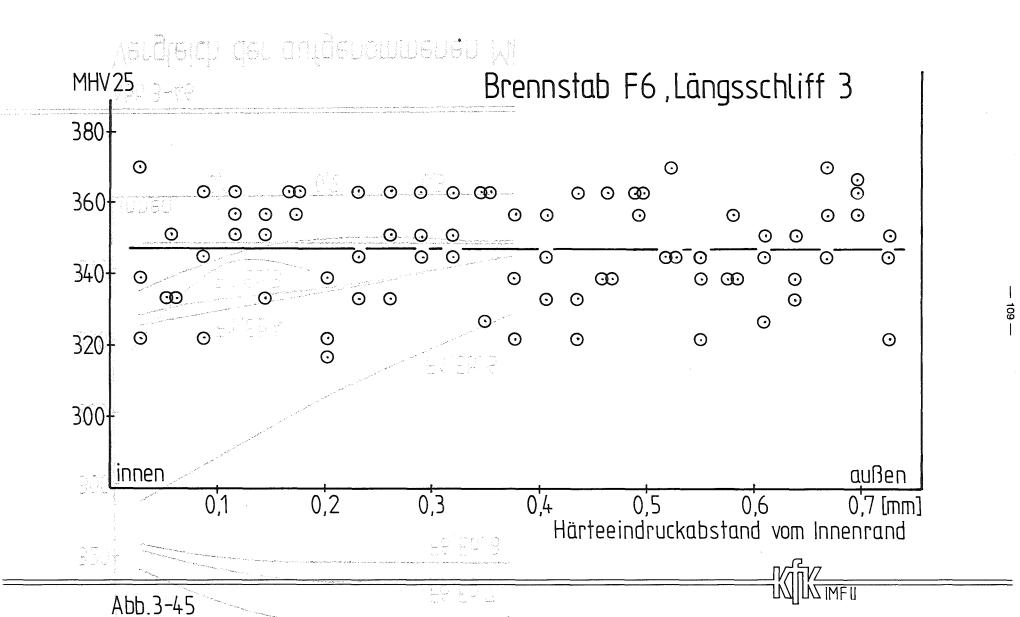
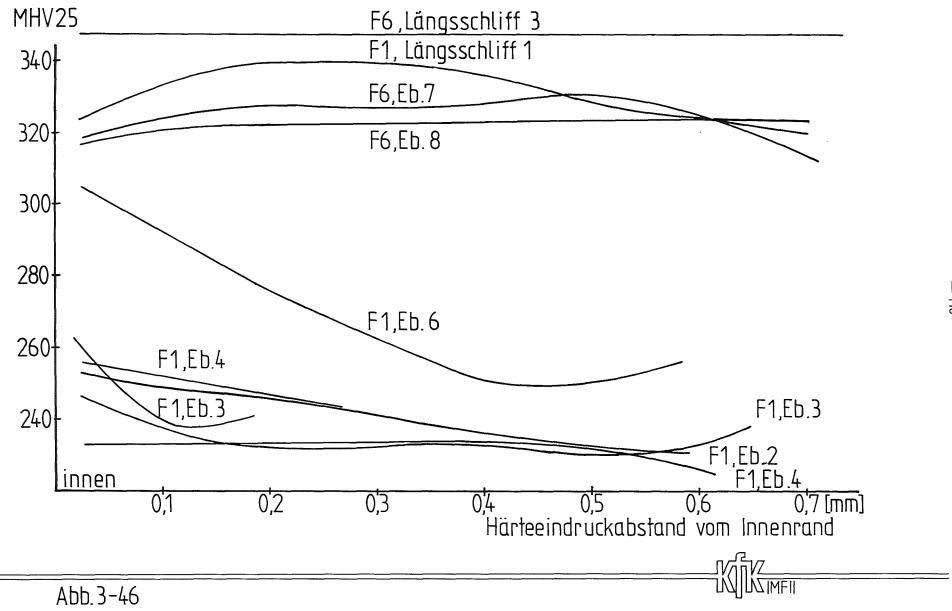


Abb.3-44 Mikrohärteprofil über die Hüllrohrwand



Mikrohärteprofil über die Hüllrohrwand



Vergleich der aufgenommenen Mikrohärteprofile

# 4. Beurteilung der Hüllrohrinnenkorrosion

# 4.1 Allgemeines

Zircaloy (Zry) besitzt eine sehr große Affinität zum Sauerstoff und ist daher in der Lage, den leicht überstöchiometrischen Oxidbrennstoff ( $UO_{2+x}$ ) unter Bildung von sauerstoffstabilisiertem  $\alpha$ -Zr(O) und metallischem Uran zu reduzieren. α-Zr(O) ist thermodynamisch stabiler als überstöchiometrisches bzw. stöchiometrisches UO2. Unter normalen Reaktorbetriebsbedingungen sind die Hüllmaterialtemperaturen jedoch so niedrig, daß aufgrund der langsamen Reaktionsgeschwindigkeit, die chemischen Wechselwirkungen zwischen dem UO2 und Zry vernachlässigbar sind. Das gilt jedoch nicht bei einem Kühlmittelverluststörfall (LOCA), bei dem die normale Hüllmaterialtemperatur deutlich überschritten werden kann. Bei einer LOCA-Transiente kann es daher - neben der Oxidation der Hüllrohr-Außenoberfläche durch den Wasserdampf - auch zu einer Oxidation der Hüllrohr-Innenoberfläche durch das UO2 kommen. Das Ausmaß der Zry-Oxidation hängt aber - neben der Temperatur und Zeit entscheidend vom Festkörperkontakt zwischen dem Brennstoff und Hüllmaterial ab. Bei direktem Festkörperkontakt sind die  ${\tt UO}_2/{\tt Zry-Reaktionen}$  erheblich stärker als bei Reaktionen, die über die Gasphase ablaufen. Da es bei einem LOCA im allgemeinen zum Abheben der Hülle vom Brennstoff kommt, kann der Sauerstoff nur über die Gasphase vom UO, zum Zry transportiert werden. Aus diesem Grunde, sowie wegen der relativ kurzen Zeitdauer einer LOCA-Transiente, sind die mechanischen Wechselwirkungen zwischen dem UO2 und Zry nicht besonders ausgeprägt, die entstehenden Oxidschichten auf der Hüllrohr-Innenoberfläche werden daher sehr dünn sein.

Während der Bestrahlung entstehen infolge Kernspaltung des Urans Spaltprodukte. Ein Teil der leicht flüchtigen und gasförmigen Spaltprodukte wird aus dem  ${\rm UO}_2$  freigesetzt und kann mit dem Zircaloy-Hüllmaterial chemisch reagieren. Es ist deshalb, besonders bei mittel- und hochabgebrannten Brennstäben, mit einem Einfluß der Spaltprodukte auf das Verformungs- und

Berstverhalten der Hüllrohre zu rechnen. Entsprechende Einflüsse von Spaltprodukten – insbesondere durch Jod – auf die mechanischen Eigenschaften von Zircaloy wurden bei in-pile Rampenexperimenten und out-of-pile-Experimenten festgestellt. Speziell durch die Wirkung von Jod kann es zu einem beschleunigten, verformungsarmen Versagen der Zircaloy-4-Rohre kommen /4-1, 4-2/. Voraussetzung dafür ist aber sowohl eine ausreichend hohe Jodkonzentration an der Hüllrohrinnenoberfläche als auch eine bestimmte kritische tangentiale Zugbeanspruchung des Hüllrohres /4-2/.

# 4.2 Chemisches Verhalten des Brennstoffes

Die Ergebnisse der Nachuntersuchungen der nicht vorbestrahlten und der vorbestrahlten Brennstäbe bestätigen die oben gemachte Vermutung. Es findet während der LOCA-Transiente nur eine sehr schwache oder überhaupt keine Oxidation des Zircaloy-Hüllrohres durch das  ${\rm UO}_2$  statt /4-3/. Ganz allgemein ist die durch das  ${\rm UO}_2$  verursachte Oxidation der Hülle nicht mehr eindeutig feststellbar, da nach dem Bersten Wasserdampf in den Brennstab eindringt und mit dem Zircaloy reagiert. Eine Oxidation des Zry-4-Hüllrohres von innen konnte nicht in allen untersuchten Schliffebenen festgestellt werden, insbesondere nicht an den von der Berststelle am weitesten entfernten Schliffebenen (>100 mm). Sehr wahrscheinlich wird der in den geborstenen Brennstab eindringende Wasserdampf bereits in der Umgebung der Berststelle durch das Zry und UO2 abgebundenen oder das Hüllmaterial hat zum Zeitpunkt, da der Wasserdampf diese Ebenen erreicht, infolge Abschreckung (Fluten) des Brennstabes, eine zu niedrige Temperatur. Die Dicke der Oxidschichten auf der Hüllrohrinnenseite ist im allgemeinen größer als die auf der Hüllrohraußenseite (2 - 7 µm) und ist azimutal und axial nicht gleichmäßig. Im Hinblick auf das Verformungs- und Berstverhalten der Zircaloy-4-Hüllrohre konnte bisher kein Einfluß des UO2-Brennstoffes festgestellt werden /4-3, 4-4/.

# 4.3 Chemisches Verhalten der Spaltprodukte

Bei den hier vorbestrahlten Brennstäben wurde aufgrund von Analogiebetrachtungen zu in-pile Rampenexperimenten und outof-pile-Untersuchungen angenommen, daß es bei den LOCA-Transienten möglicherweise auch zu einem verformungsarmen Versagen der Hüllrohre infolge Jod-Spannungsrißkorrosion kommt. Die
out-of-pile-Untersuchungen haben eindeutig gezeigt, daß es
oberhalb einer bestimmten Jodkonzentration bis zu etwa 800 °C
zu einem verformungsarmen Versagen des Zircaloy kommen kann.
Die Berstdehnungen der jodenthaltenden Hüllrohre sind dann erheblich kleiner als die der jodfreien Vergleichsproben /4-1,
4-2/.

Die LOCA-getesteten Brennstäbe der Serie F (ca. 22000 MWd/tu Abbrand) haben keinen Hinweis ergeben, daß Jod oder andere flüchtige Spaltprodukte einen Einfluß auf die Berstdehnung bewirken. Ein wesentlicher Grund dafür könnte sein, daß die gemessenen Bersttemperaturen alle oberhalb 800°C lagen (835 bis 932°C), wo generell kein Einfluß mehr von Jod zu erwarten ist. Da die über den Gefügezustand abgeschätzten Hüllmaterial-Temperaturen im allgemeinen ca. 30°C unterhalb der gemessenen und korrigierten Temperaturen liegen (s. Abschnitt 3), wäre zumindest beim Prüfling F 4 mit einer gemessenen Bersttemperatur von 835°C und einer abgeschätzten Temperatur von ca. 800°C noch ein Einfluß denkbar gewesen, nicht aber bei den anderen Prüflingen. Die Berstdehnung des Brennstabes F 4 mit ca. 34% Umfangsdehnung liegt aber noch innerhalb des Berstdehnungs-Streubandes der nicht vorbestrahlten Brennstäbe (Versuchsserie A und B).

Es gibt aber auch noch andere Gründe, weshalb bei diesem LOCA-Test kein Spaltprodukteinfluß auf die Verformung des Hüllrohres festgestellt werden konnte.

a) Der trivialste Grund könnte sein, daß Jod nicht in ausreichend großer Konzentration an der Hüllrohrinnenoberfläche vorhanden ist. Bei den mittel- und hochabgebrannten

Brennstäben ist die insgesamt erzeugte Jodmenge im Brennstoff größer als die notwendige kritische Jodkonzentration (4-2). Entscheidend für die Wirkung von Jod ist aber dessen Verfügbarkeit an der Hüllrohrinnenoberfläche. Diese hängt aber entscheidend von der Jodfreisetzung während der LOCA-Transiente sowie dem bereits während der Bestrahlung freigesetzten Anteil ab. Messungen der Spaltgasfreisetzung, die auch als ein Maß für die Jodfreisetzung betrachtet werden kann, ergaben nach der LOCA-Transiente Werte von max. 6% (siehe Abschnitt 6). Ein Vergleich dieser Freisetzungsraten mit der kritischen Jodkonzentration ergibt, unter der Annahme einer homogenen Jodverteilung, zu kleine Werte. Lokale Jodanreicherungen an der Hüllrohrinnenoberfläche sind bei LOCA-Transienten weniger wahrscheinlich als bei Rampenexperimenten (oder ATWS-Störfällen). Während der LOCA-Transiente hebt sich die Hülle vom Brennstoff ab und es entsteht ein Ringraum in dem sich die flüchtigen Spaltprodukte gleichmäßig verteilen können. Es kommt dadurch zu einer Abnahme der spezifischen Spaltproduktkonzentration an der Hüllrohrinnenoberfläche.

- b) Ein anderer Grund könnte sein, daß die Brennstoff/Spaltprodukt-Chemie in den Brennstäben durch die lange Zeit
  zwischen der Vorbestrahlung und den LOCA-Experimenten nicht
  mehr praxisrelevant ist. Die Brennstäbe werden vor der LOCATransiente nicht vorkonditioniert. Es kommt daher nicht zum
  Aufbau der kurzlebigen Spaltprodukte und der steady-state
  Spaltproduktchemie im Brennstab.
- c) Der Verlauf der LOCA-Transiente im FR 2 ist anders als bei einem "realen" LOCA-Störfall. Man geht nicht von der vollen Stableistung aus in die LOCA-Transiente, sondern von einer sehr niedrigen Stableistung (ca. 45 W/cm), die die Nachzerfallswärme simulieren soll /4-3/. Durch diesen Umstand hat die Temperaturverteilung im UO2 einen anderen Verlauf, wodurch die Spaltproduktfreisetzung beeinflußt werden kann.

Von den oben diskutierten Möglichkeiten kommt dem Punkt a) die größte Bedeutung zu. Neuere out-of-pile Versuchsergebnisse zur Bestimmung der kritischen Jodkonzentration, die zum Versagen der Zircaloy-Hüllrohre infolge Spannungsrißkorrosion führt, zeigen, daß diese stark temperaturabhängig ist. Nach diesen Versuchsergebnissen ist oberhalb 700°C das Jodangebot an der Hüllrohrinnenoberfläche kleiner als der Jodbedarf /4-5/. Die Wahrscheinlichkeit für einen Jodeinfluß auf das Deformationsverhalten der Hüllrohre ist bei den hohen Bersttemperaturen, die bei den in-pile LOCA-Transienten der Versuchsserie F erreicht wurden, daher sehr gering.

Die Nachuntersuchungen der LOCA-getesteten Brennstäbe der Versuchsserie F ergaben keinen Hinweis für einen Spaltprodukteinfluß auf das Verformungsverhalten der Hüllrohre. Der einzige erkennbare Unterschied der gegenüber den nicht vorbestrahlten Brennstäben auftrat, ist die Bildung von zahlreichen kleinen Anrissen in der Hüllrohrinnenoberfläche. Ähnliche Anrisse wurden bei den out-of-pile-Experimenten festgestellt, wenn die Jodkonzentration sehr klein war, so daß kein verformungsarmes Versagen des Hüllrohres infolge Spannungsrißkorrosion stattfand /4-2, 4-5/. Die Jodkonzentration reicht dabei aus, Anrisse in der Hüllrohrinnenoberfläche zu induzieren, die jedoch nicht zum Versagen führen, da sie infolge Jodmangel nicht wachsen können.

Die nicht vorbestrahlten Brennstäbe der Serie A und B lassen keine vergleichbaren Anrisse in der Hüllrohrinnenoberfläche erkennen /4-3/. Das gleiche gilt für die vorbestrahlten Brennstäbe, die nicht einer LOCA-Transiente unterworfen wurden, z.B. der Referenzstab F 6. Auch Brennstäbe die einer LOCA-Transiente unterworfen wurden, aber keine wesentliche plastische Verformung zeigen, lassen an diesen Stellen kleine Anrisse erkennen. Ein typisches Beispiel ist der Brennstab F 1. An der Schliffebene 1 fand praktisch keine Verformung statt, die Hüllrohrinnenoberfläche ist sehr eben (Abb. 4-1). An der Schliffebene 6 erfolgte dagegen eine Dehnung von ca. 20%, die im Zusammenwirken mit reaktiven Spaltprodukten (Jod) zu

ca. 10  $\mu m$  tiefen Anrissen führt (Abb. 4-1), die im Abstand von wenigen  $\mu m$  (5 - 50) auftreten. Diese Anrisse entstehen sehr wahrscheinlich während der Transiente vor dem Bersten des Hüllrohres. Bei den Brennstäben mit höheren Abbränden (35000 MWd/t $_U$ ) sind die Anrisse noch stärker ausgeprägt.

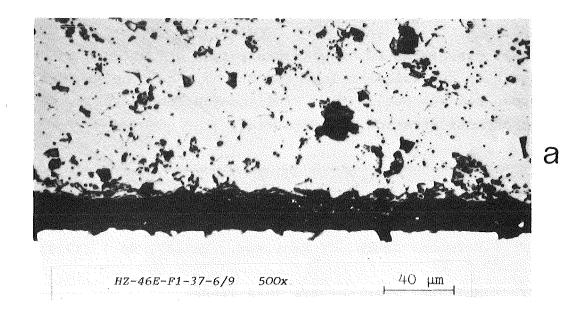
# 4.4 Zusammenfassung und Schlußfolgerung

- Die Innenkorrosion der Zircaloy-Hüllrohre durch den Brennstoff während der Vorbestrahlung und LOCA-Transiente ist
  entweder nicht feststellbar oder nur sehr gering. Die nach der
  LOCA-Transiente auf der Hüllrohr-Innenoberfläche festgestellten Oxidschichten entstehen durch den nach dem Bersten des
  Hüllrohres in den Brennstab eindringenden Wasserdampf.
- Eine Hüllrohr-Innenoxidation durch den eindringenden Wasserdampf konnte nicht an allen untersuchten Schliffebenen festgestellt werden. An Schliffebenen die mehr als 100 mm von der Berststelle entfernt sind, wurde keine Oxidschicht auf der Hüllrohr-Innenoberfläche beobachtet. Sehr wahrscheinlich wird der in den geborstenen Brennstab eindringende Wasserdampf bereits vor Erreichen der untersuchten Schnittebene chemisch abgebunden. Eventuell hat aber auch das Hüllmaterial am Zeitpunkt, da der Wasserdampf die entsprechende Schnittebene erreicht, bereits eine zu niedrige Temperatur, und es finden deshalb keine chemischen Wechselwirkungen mehr mit dem Zrygestatt.
- Ein Einfluß von flüchtigen Spaltprodukten, besonders Jod, auf das Verformungs- und Bruchverhalten der Hüllrohre während der LOCA-Transiente war nicht festzustellen. Ein verformungsarmes Versagen der Zircaloy-Rohre war auch nicht sehr wahrschein- lich, da die Bersttemperaturen deutlich oberhalb 800°C la- gen. Out-of-pile Versuche haben nämlich gezeigt, daß oberhalb 800°C Jod kein verformungsarmes Versagen mehr infolge Spannungsrißkorrosion bewirken kann.

Schliffebene 6 erfolgte Angegen wine Deimong von (v. 205) die im Kusammenwirken wit vonktiven bystigsodattes (And) vo - Metallographische Untersuchungen zeigen die Bildung von Mikrorissen in der Hüllrohr-Innenoberfläche. Ähnliche Mikrorisse wurden bei den out-of-pile Experimenten festgestellt, wenn die Jodkonzentration zu klein war.

# 4.5 Literatur

- /4-1/ P.Hofmann: Journ. of Nucl.Mat., Vol.87, No 1 (1979) 49 69
- /4-2/ P.Hofmann, J.Spino: KfK 3054 (1980)
- /4-3/ E.K.Karb et al: KfK 3028 (1980)
- /4-4/ E.H.Karb et al: "Results of the FR 2 in-pile tests on LWR fuel rod behavior", ANS Topical Meeting on "Reactor Safety Aspects of Fuel Behavior", August 2-6, 1981, Sun Valley, USA
- /4-5/ P.Hofmann, J.Spino: "Can one expect low ductility failure of Zry-4 tubing due to iodine-induced SCC in a LOCA transient ?", ibid



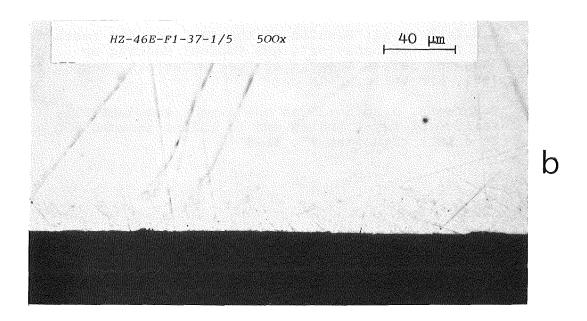


Abb. 4-1: UO2-Brennstoff/Zircaloy-Hüllmaterial. Grenzfläche des Brennstabprüflings F 1 (22000 MWd/t<sub>U</sub> Abbrand) nach der in-pile LOCA-Transiente. Im stark verformten Hüllrohrbereich bilden sich zahlreiche Anrisse an der Innenoberfläche(a), nicht dagegen an nicht verformten Stellen(b).

#### 5. Mechanisches Verhalten des Brennstoffes

Während der Bestrahlung kommt es zu physikalischen und chemischen Veränderungen des Brennstoffes. Je höher der Abbrand und je höher die Leistung eines Brennelementes sind, umso ausgeprägter sind diese Veränderungen. Die chemischen Veränderungen werden hauptsächlich durch die entstehenden Spaltprodukte, die physikalischen Veränderungen durch das Auftreten eines starken Temperaturgradienten im UO, bewirkt. Infolge der geringen thermischen Leitfähigkeit des UO2 und der sich dadurch ausbildenden Temperatur- und Spannungsgradienten kommt es zu einer ausgeprägten Rißbildung im Brennstoff, die - je nach Stableistung teilweise wieder ausheilen kann. Das Ausmaß der Rißbildung sowie das Rißmuster hängen entscheidend von der Stableistung ab. Leistungsänderungen (An- und Abfahren des Reaktors) und der Abbrandzustand besitzen einen deutlich geringeren Einfluß auf die Rißbildung und damit die Fragmentierung der UO2-Pellets. Das makroskopische Rißmuster in den UO2-Pellets wird im wesentlichen durch die maximale Stableistung bewirkt, die erstmals beim Hochfahren des Reaktors erreicht wird. Das Rißmuster ändert sich im Weiteren Verlauf der Bestrahlung nur unwesent-Infolge der radialen und tangentialen Risse im Brennstoff kommt es zu einem Auseinanderfallen der Pellets, wenn die äußere Stützwirkung des Hüllmaterials verloren geht (z.B. durch Hüllrohraufweitung während einer LOCA-Transiente).

#### 5.1 Nicht vorbestrahlter Brennstoff

Bei den LOCA-Experimenten mit nicht vorbestrahltem Brennstoff wurde keine Vorkonditionierung der Brennstäbe bei normaler Reaktorbetriebs-Stableistung vorgenommen. Die Pellets sind daher zu Beginn der LOCA-Transiente noch intakt. Um die Nachzerfalls-Wärmeleistung zu simulieren, wird eine Stableistung von ca. 45 W/cm eingestellt. Diese Stableistung ist zu gering, um eine typische Fragmentierung des Brennstoffes zu erhalten. Während der LOCA-Transiente zerbrechen die UO2-Pellets deshalb überhaupt nicht oder nur in wenige große

Bruchstücke (Abb. 5-1) /5-1, 5-2/. Zu welchem Zeitpunkt während der LOCA-Transiente der unbestrahlte Brennstoff in Stücke zerbricht, ist nicht eindeutig festzustellen. Da die UO2-Pelletbruchstücke hauptsächlich im Hüllbeulenbereich beobachtet werden, liegt die Vermutung nahe, daß die Pellets infolge mechanischer Einwirkung zu Bruch gehen. Der Brennstab wird sehr wahrscheinlich nach dem Bersten an das ihn umgebende Dampfführungsrohr geschlagen, wobei die Pellets zerbrechen. Mechanische Spannungen in den UO2-Pellets, die durch den Temperaturgradienten im Brennstoff entstehen, spielen bei dem Bruchverhalten der nicht vorbestrahlten und vorkonditionierten Pellets während der LOCA-Transiente (Versuchsserie A und B) offenbar eine untergeordnete Rolle.

#### 5.2 Vorbestrahlter Brennstoff

Während der Vorbestrahlung kommt es zu der oben beschriebenen typischen Rißbildung in den UO2-Pellets. Die Schliffbildaufnahmen vom Brennstoff des nicht LOCA-getesteten Referenzstabes F 6 mit einem Abbrand von ca. 22000 MWd/t lassen sehr deutlich das Rißmuster erkennen (Abb. 5-3). Darüber hinaus erkennt man teilweise in den Bruchstücken die Bildung von Mikrorissen. Diese Mikrorisse führen während der LOCA-Transiente z.T. zu einem weiteren Zerbrechen der Brennstoffpartikel. Daß die zusätzliche Fragmentierung aber sehr gering ist, ergeben die Siebkurven des Brennstoffes, die keine signifikanten Unterschiede in der Partikelgröße und -Verteilung zwischen den LOCA-getesteten und den nicht LOCA-getesteten Referenzstäben erkennen lassen /5-1/.

Während der LOCA-Transiente kommt es zu einem Abheben des Hüllmaterials vom Brennstoff, da keine chemische oder mechanische Bindung zwischen dem Brennstoff und Hüllmaterial existiert. Dadurch kommt es zu einem Zusammenbrechen der Brennstoffsäule und einer Ansammlung der Brennstoffpartikel in der Beulenzone (Abb. 5-4). Zu welchem Zeitpunkt das Ansammeln der Partikel im Beulenbereich erfolgt, hängt unter anderem von

von der mechanischen Beanspruchung des Brennstabes während der Transiente ab. Teilweise wird sie erst nach dem Bersten des Hüllrohres erfolgen. Die Brennstäbe der Versuchsserie F ergeben keinen Hinweis, daß die Brennstofffragmentierung und die Ansammlung der Partikel im Beulenbereich einen Einfluß auf die Größe und Gestalt der Beule hatte.

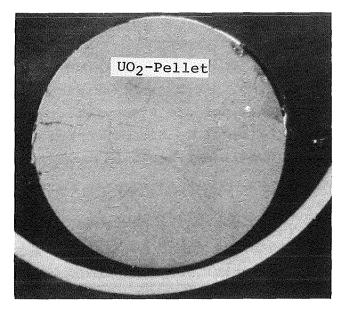
#### 5.3 Zusammenfassung und Schlußfolgerung

Während der Vorbestrahlung kommt es zu einer ausgeprägten Rißbildung in den UO2-Pellets. Der Brennstoff zerfällt dadurch in unterschiedlich große Bruchstücke, und es kann daher beim Verlust der äußeren Stützwirkung durch das Hüllrohr zu einem Zusammenbrechen der Brennstoffsäule kommen. Während der LOCA-Transiente sammeln sich daher die Pelletfragmente im Beulenbereich an. Die Beulenform und -größe wird durch die Brennstoffpartikel jedoch nicht beeinflußt.

#### 5.4 Literatur

/5-1/ E.H.Karb et al: KfK 3028 (1980)

/5-2/ L.Sepold et al: KfK 3098 (1981)



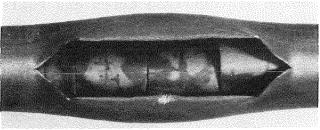


Abb.5-1: Bei nicht vorbestrahlten Brennstäben (Prüfling B 1.1) erfolgt i.a. keine Fragmentierung der UO<sub>2</sub>-Pellets während der LOCA-Transiente. Nur im Bereich der Berststelle sind einige Mikrorisse im UO<sub>2</sub> festzustellen.

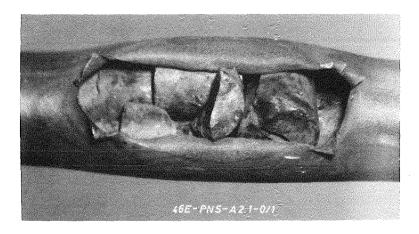
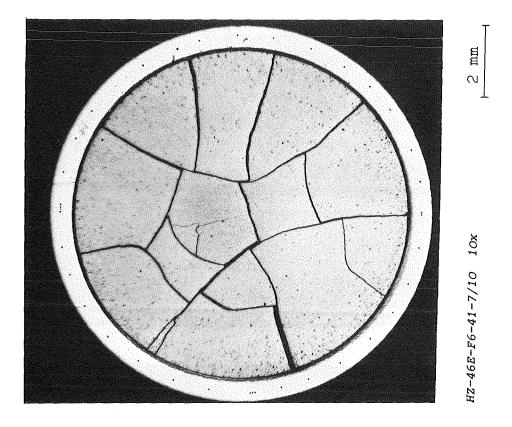


Abb.5-2: Fragmentierung von nicht vorbestrahlten UO2-Pellets in große Bruchstücke in der Umgebung der Berststelle des Prüflings A2.1 (sehr wahrscheinlich durch mechanische Wechselwirkung mit dem Dampfführungsrohr).



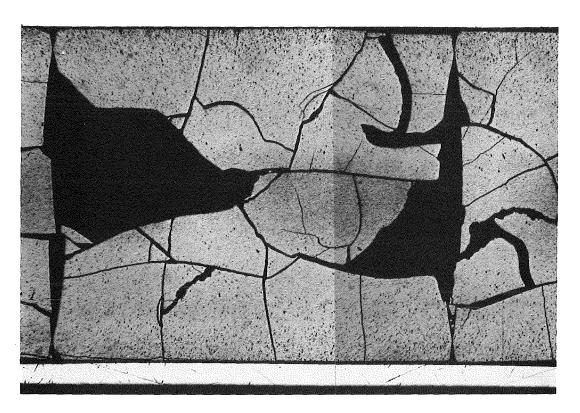
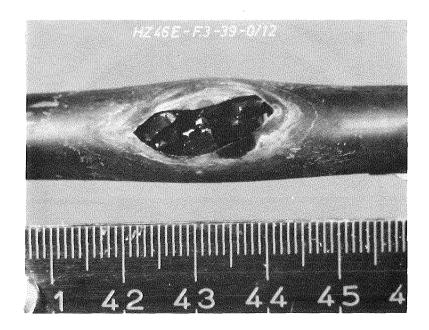


Abb.5-3: Quer- und Längsschliff des vorbestrahlten Brennstabes F 6 (22000 MWd/t $_{\rm U}$  Abbrand), der nicht LOCA-getestet wurde. Durch die Bildung von Rissen zerfällt der Brennstoff in unterschiedlich große Bruchstücke.



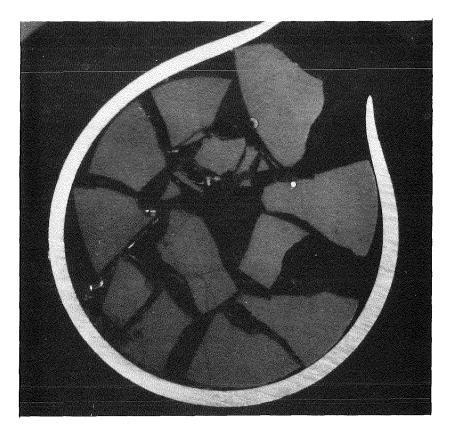


Abb.5-4: Querschliff (a) und Berstbereich des LOCA-getesteten Prüflings F 3 (22000 MWd/t $_{\rm U}$  Abbrand). Die Fragmentierung der UO $_2$ -Pellets erfolgt während der Vorbestrahlung.

#### 6. Spaltgasverhalten und Brennstoffvolumenänderungen

#### 6.1 Untersuchungsmethoden

Aus der Brennstoffdichte vor und nach Bestrahlung ergibt sich die prozentuale Volumenänderung zu

$$\frac{\Delta V}{V} = 100 \left( \frac{\rho_0}{\rho_1} - 1 \right).$$

V Porenvolumen der Bestrahlung

 $\rho_{\text{o}}$  Brennstoffdichte vor Bestrahlung

 $\rho_1$  Brennstoffdichte nach Bestrahlung.

Die Dichte des Brennstoffes wurde nach dem Auftriebsverfahren in Tetrachlorkohlenstoff bestimmt.

Die Spaltgasbestimmungen wurden von KTB/HZ in den Heißen Zellen ausgeführt. Die aus dem Brennstoff freigesetzte Menge wurde nach Anbohren des Stabes unter Vakuum und Absaugen des gesamten Gases gaschromatographisch bestimmt ("freies Spaltgas").

Zur Bestimmung des zurückgehaltenen Spaltgases wurden im unteren Drittel der Brennstoffsäule im Abstand von ca. 9 cm zwei Brennstoffproben entnommen. Die Bestimmung erfolgte in zwei Stufen. Zunächst wurde der Brennstoff in einer Kugelmühle gemahlen und das dabei freigesetzte Spaltgas bestimmt. Bei diesem Mahlprozeß wird der Brennstoff in Teilchengrößen mit Durchmessern unter 1 µm zerkleinert. Dabei entweicht sämtliches Spaltgas, das sich in Blasen und Poren mit Durchmessern 0,1 µm sowie an Korngrenzen befindet. Dieses Gas wird im folgenden als "Porenspaltgas" bezeichnet. Der gemahlene Brennstoff wurde anschließend in Salpetersäure aufgelöst, wobei das Spaltgas freigesetzt wurde, das sich in bestrahlungsbedingter Lösung oder in sehr kleinen intragranularen Blasen befand ("Gitterspaltgas").

# 6.2 Spaltgasverhalten und Dichteänderungen während der Vorbestrahlung

Die Abhängigkeit der Brennstoffdichte im Stab F 6 von der axialen Position ist in der Abb. 6-1 dargestellt. Die Dichte nimmt mit zunehmender Entfernung vom unteren Brennstabende, d.h. mit abnehmendem Abbrand, zu. Die Dichte nach Bestrahlung liegt mit Werten zwischen 10,40 und 10,54 g/cm<sup>3</sup> etwas höher als die Dichte vor Bestrahlung, d.h. die Nachverdichtungsvorgänge sind bis zu einem Abbrand von 2,4% (1 At.% = 9130 MWd/t,) noch stärker ausgeprägt als die Volumenzunahme durch Schwellung, wobei unter "Schwellung" nur die Volumenzunahme infolge Einlagerung fester und gasförmiger Spaltprodukte in den Brennstoff verstanden wird. Als bestimmender Nachverdichtungsvorgang kommt im vorliegenden Fall nur bestrahlungsbedingte Nachsinterung in Frage. Setzt man eine integrale, d.h. über den Brennstoffquerschnitt gemittelte Schwellrate von 1%/% Abbrand voraus, so ergibt sich, daß die ursprüngliche Porosität bis auf einen Restwert von ca. 2% verschwunden sein muß.

Bei der Bestimmung des freien Spaltgases wurden 7,513 cm<sup>3</sup> Spaltgas gefunden, wobei das Xe/Kr-Verhältnis 6,15 betrug. Bei einem über die Stablänge gemittelten Abbrand von 2,4 At.\*, einem Brennstoffgewicht von 344,5 g und einer Gaserzeugungsrate von 0,31 Gasatomen pro Spaltung entspricht das einer Spaltgasfreisetzung von 3,5%. Der mittlere Abbrand der zur Bestimmung des gebundenen Spaltgases entnommenen Proben betrug 2,52%. Es wurden folgende Spaltgasmengen im Brennstoff gefunden:

Porenspaltgas P: 
$$0.049 \text{ cm}^3/\text{g UO}_2$$
,  $\text{Xe/Kr} = 7.7$   
Gitterspaltgas G:  $0.564 \text{ cm}^3/\text{g UO}_2$ ,  $\text{Xe/Kr} = 7.9$   
P + G:  $0.613 \text{ cm}^3/\text{g UO}_2$ ,  $\text{Xe/Kr} = 7.8$ .

Aus der Konzentration des gebundenen Spaltgases läßt sich eine lokale Freisetzung von 5,5% errechnen. Die vermutete axiale Abhängigkeit der Spaltgasfreisetzung ist ebenfalls in der Abb. 6-1 dargestellt.

### 6.3 Spaltgasverhalten während der LOCA-Tests

Während der LOCA-Tests erfolgte keine meßbare Schwellung des Brennstoffes. Die an den LOCA-getesteten Stäben bestimmten Brennstoff-Dichtewerte entsprechen weitgehend denen der Vergleichsstäbe. Sie weichen von diesen maximal 0,3% nach oben und maximal 0,5% nach unten ab.

Eine direkte Bestimmung des freigesetzten Spaltgases war bei den LOCA-getesteten Brennstäben F 1 - F 5 nicht möglich. Aussagen zur Spaltgasfreisetzung können nur über den Umweg der Bestimmung des zurückgehaltenen Spaltgases gemacht werden. Die Messungen des zurückgehaltenen Spaltgases in Brennstoffproben der Stäbe F 1 bis F 6 läßt auf eine Spaltgasfreisetzung zwischen O und 6% während des LOCA-Tests schließen. Diese Aussage ist gültig, sofern die Stäbe F 1 bis F 6 genau den gleichen axialen Abbrand- und Spaltgasfreisetzungsverlauf wie der Vergleichsstab F 6 aufwiesen. Die u.U. aufgetretene geringfügige Freisetzung kann wegen der Kürze der Erwärmungsdauer und der relativ niedrigen Temperaturen beim LOCA-Test nicht durch Diffusionsvorgänge hervorgerufen worden sein, sondern wurde vermutlich durch die Bildung einzelner feiner Risse im Brennstoff bedingt.

#### 6.4 Out-of-pile Glühversuche

Zur Untersuchung des Spaltgasverhaltens in LWR-Brennstäben bei Kühlmittelverluststörfällen, die mit höheren Temperaturen als bei einem LOCA verbunden sind, wurden Brennstoffproben aus dem Stab F 6 bei verschiedenen Temperaturen zwischen 1200 und  $1600^{\circ}$ C geglüht und in bezug auf Spaltgasverhalten und Schwellung untersucht.

Die Spaltgasfreisetzungen (bezogen auf das erzeugte Spaltgas) während der Glühungen bei 1500 und  $1600^{\circ}$ C sind in der Abb. 6-2 als Funktion der Glühzeit dargestellt. Bei Glühtemperaturen  $\leq 1400^{\circ}$ C war die Spaltgasfreisetzung stets  $\leq 3\%$ . Die Zeitabhängigkeit der Freisetzung ist gekennzeichnet durch einen

raschen Anfangsanstieg und einen langsamen weiteren Anstieg. Die rasche Anfangsfreisetzung wird hervorgerufen durch Aufreißen von Korngrenzen und Entweichen des darin gespeicherten Spaltgases. Die weitere Freisetzung wird bestimmt durch Transport von Gitterspaltgas zu den Korngrenzen.

In Abb. 6-3 sind die verschiedenen Spaltgasanteile, freies Spaltgas, Poren- und Gitterspaltgas, in Proben der F-Stäbe in verschiedenen Behandlungszuständen dargestellt. Im vorbestrahlten Zustand befindet sich bei 2,4 At.% Abbrand der überwiegende Teil des erzeugten Spaltgases noch im Gitter. Er vermindert sich jedoch bei einer anschließenden Wärmebehandlung durch Diffusion zu Korngrenzen mit darauffolgender teilweiser Freisetzung, aber auch durch Ausscheidung in Blasen und Poren. Diese Ausscheidung bewirkt eine weitere Schwellung des Brennstoffes, die in Abb. 6-4 als Funktion der Glühzeit für 1500 und 1600°C dargestellt ist. Nach einer dreistündigen Glühung bei 1400°C betrug die Schwellung 0,5%.

# 6.5 Zusammenfassung und Schlußfolgerung

- Bis zu dem Zielabbrand von 2,4 At.% oder ca. 22000 MWd/tu der Brennstäbe der F-Serie kommt es während der Vorbestrahlung zu einer strahlungsbedingten Nachsinterung des Brennstoffes. Die Nachverdichtungsvorgänge sind stärker ausgeprägt als die Volumenzunahme durch Brennstoffschwellung. Während der LOCA-Transiente erfolgte keine meßbare Schwellung des UO2.
- Die maximale Spaltgasfreisetzung während der Vorbestrahlung beträgt 5,5%, die während der in-pile LOCA-Transiente zusätzlich auftretende Spaltgasfreisetzung maximal 6%.
- Die maximale Spaltgasfreisetzung bei Nachbestrahlungsglühungen des Brennstoffs der F-Serie betrug bei 1500°C ca. 15% und bei 1600°C ca. 25%. Bei Glühtemperaturen ≤1400°C war die Spaltgasfreisetzung stets ≤3%.

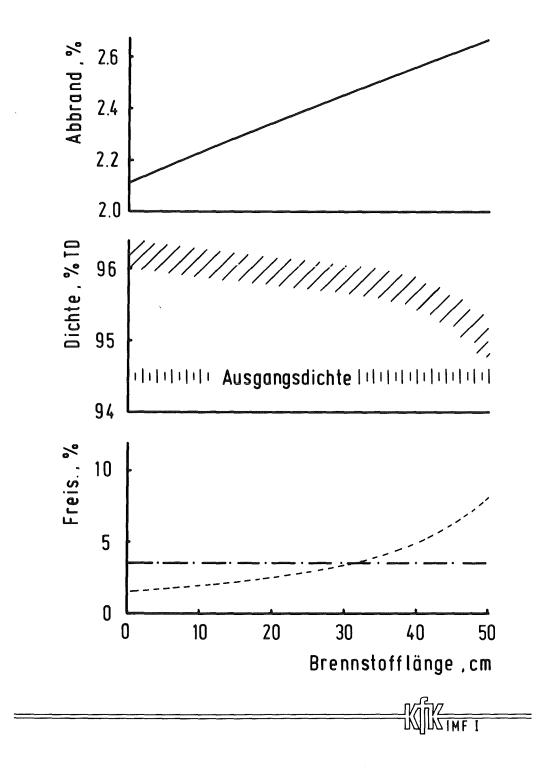


Abb.6-1: Ergebnisse der Nachbestrahlungsuntersuchungen am nicht LOCA-getesteten Brennstab F 6: Abbrand, Brennstoffdichte und Spaltgasfreisetzung.

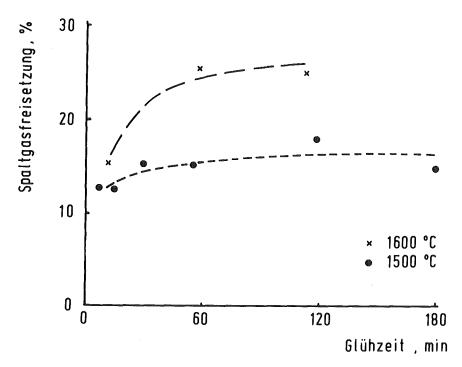


Abb.6-2: Spaltgasfreisetzung als Funktion der Glühzeit bei 1500 und 1600°C, Abbrand des Brennstoffes (aus Prüfling F 6) 2,4 At.% oder ca.22000 MWd/t<sub>U</sub>.

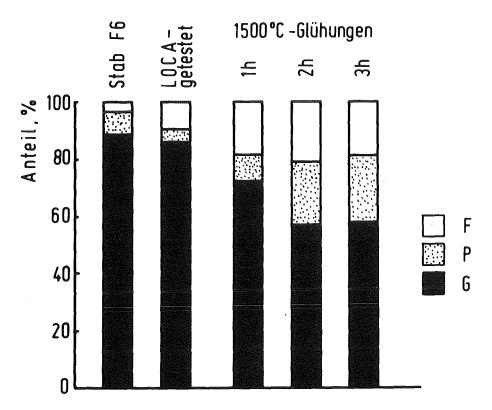


Abb.6-3: Spaltgasanteile in Proben der PNS-Brennstäbe der Versuchsserie F (22000 MWd/ $t_U$  Abbrand). F = freigesetztes Spaltgas, P = Spaltgas in Poren, G = Spaltgas im  $UO_2$ -Gitter.

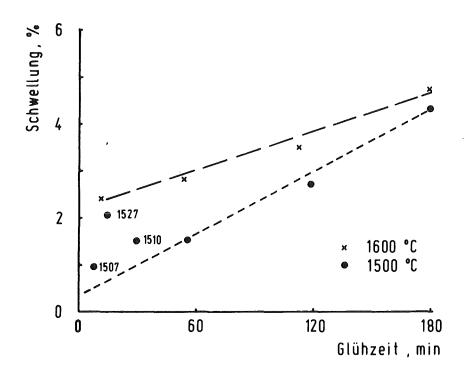


Abb.6-4: Schwellung des  $\rm UO_2$  als Funktion der Glühzeit bei 1500 und 1600°C (Brennstoff aus Prüfling F 6, 22000 MWd/t\_U).