KfK 4471 Februar 1989

Experimentelle und theoretische Untersuchung der Vorgänge beim Abkühlen von technischen HAW-Glasprodukten

B. Kienzler, K. Müller Institut für Nukleare Entsorgungstechnik

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Nukleare Entsorgungstechnik

KfK 4471

Experimentelle und theoretische Untersuchung der Vorgänge beim Abkühlen von technischen HAW-Glasprodukten

von

B. Kienzler K. Müller

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

,

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

.

· ·

Experimentelle und theoretische Untersuchung der Vorgänge beim Abkühlen von technischen HAW-Glasprodukten

Zusammenfassung

In diesem Bericht werden die bisher durchgeführten experimentellen und theoretischen Arbeiten zur Untersuchung des Abkühlens abgefüllter HAW-Glaskokillen vorgestellt. Die Arbeiten sollten dazu führen, daß der Abkühlprozeß so gesteuert werden kann, daß möglichst rißfreie Abfallproduktblöcke entstehen.

Neben der Beschreibung der experimentellen und theoretischen Instrumentarien werden die Ergebnisse von Messungen und Rechnungen miteinander verglichen. Modellmäßig werden Einflüsse von verschiedenen Auskleidungsmaterialien, Isolierschichten und Rissen im Glasprodukt auf die Wärmeabfuhr untersucht. Für radioaktive Glasblöcke werden Temperaturrechnungen durchgeführt und die Zentraltemperaturen bei verschiedenen Kokillendurchmessern und Zwischenlagerbedingungen modellmäßig untersucht.

Die Rechnungen wurden mit den finiten Elemente Programmen ADINAT/ADINA durchgeführt. Bei Spannungsrechnungen wurden nur die Volumenelemente berücksichtigt, deren Temperaturen unter der Transformationstemperatur lagen. Diese wurde mit einen thermoelastischen Stoffgesetz beschrieben. Modellrechnungen wurden auch für wärmeproduzierende HAW Glasprodukte durchgeführt und die Entwicklung der mechanischen Spannungen bei Variation des Wärmeflusses und bei Änderung der Wärmeleistung infolge des radioaktiven Zerfalls untersucht. Glasgebinde mit 30 cm Durchmesser wurden mit Gebinden mit 43 cm Durchmesser verglichen. Experimental and Theoretical Investigation of Effects Occurring during the Cooling of Technical HLW Glass Products

Abstract

The paper presents the experimental and theoretical results from investigating the effects occuring during the cooling of HLW glass melts in canisters. It was intented to produce monolithic HLW glass blocks by controlled cooling.

The experimental and numerical tools are specified and the results of measurements are compared with computed data. The influence of lining, isolation materials and crack systems in glass blocks on the heat transfer were modelled. Temperature calculations were performed for heat producing HLW glass blocks and the computed center-line temperature were analysed for various canister diameters and various conditions of interim storage.

The calculations were performed by means of the finite element programs ADINA/ADINAT. For stress calculations only those volume elements were considered having temperatures below the transition temperature. A thermoelastical material model was applied. Model calculations were also performed for radioactive glass products with a thermal power of 17 W/l. The development of mechanical stresses depending on variations of heat flow from the canister surface and on change of thermal power by the radioactive decay were studied. Temperatures and arising stresses of vitrified waste forms in canister having 0.30 m and 0.43 m diameter respectively, were compared.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung

1. Einleitung	1
2. Experimentelle Erfassung von Temperaturprofilen	3
2.1 Experimentelle Einrichtungen	3
2.2 Beschreibung der Experimente	4
2.2.1 Befüllung am Ofen K2	6
2.2.2 Freie Abkühlung in Luft	7
2.2.3 Abkühlung im Wasserbassin	8
2.2.4 Abkühlung einer Kokille in der V-W1 Anlage	10
2.3 Analyse der Rißverteilungen	11
2.4 Direkte Erfassung von Bruchvorgängen	11
2.5 Herstellung von monolithischen Glasblöcken	13
3. Stoffdaten	15
4. Modellrechnungen	19
4.1 Berechnung der Temperaturen	19
4.2 Spannungsrechnungen	19
5. Anwendungsrechnungen	22
5.1 Nachrechnung der Experimente	22
5.2 Temperaturrechnung für eine etappenweise	
befüllte Kokille	24
5.3 Temperaturrechnungen für radioaktive Kokillen	26
5.4 Spannungsaufbau im Glasvolumen	27
5.4.1 Anfangstemperatur unter Tg; spannungsfreier	
Anfangszustand	28
5.4.2 Anfangstemperatur über Tg; inaktiver Fall	29
5.4.3 Anfangstemperatur über Tg; radioaktiver Fall	30
5.5 Vergleich zwischen unterschiedlichen	
Behälterdurchmesser	34
6. Diskussion	36
7. Literatur	39

1. Einleitung

Zur Gewährleistung einer optimalen Barrierenwirkung im Endlager sollte ein HAW-Glasprodukt möglichst wenig Risse und innere Spannungen aufweisen, denn Risse vergrößern die Oberfläche und führen beim Kontakt mit Salzlaugen zu einer beschleunigten Freisetzung von Radionukliden. Außerdem könnten luftgefüllte Risse im Glasprodukt während der Zwischenlagerung den Wärmeabfluß aus der Kokille behindern und somit eine erhöhte Zentraltemperatur im Glasblock erwarten lassen. Deshalb sollte die Zahl und Ausdehnung der Risse gering sein. Ideal wären monolithische Blöcke.

Das Konzept für die Abfallbehandlung bei der Wiederaufarbeitungsanlage Wackersdorf sieht die Herstellung einer Borosilikatglasschmelze mit einem Gehalt von 15 Gew.% Abfalloxiden vor. Diese soll bei einer Temperatur von 950 – 1000°C in Edelstahlkanister mit 0.43 m Außendurchmesser, 1.335 m Höhe und 5 mm Wandstärke abgefüllt werden. Der Abfüllvorgang wird etwa 3 Stunden dauern; die Wärmeleistung durch den radioaktiven Zerfall in der Glasschmelze wird ca. 17 W/l betragen.

Bei der Herstellung von großen rißfreien Glasprodukten geht man i.A. von einem isothermen und spannungsfreien Zustand aus, wobei die Anfangstemperatur deutlich über der Transformationstemperatur der Glasschmelze liegt. Durch langsames Abkühlen werden die Temperaturgradienten gering gehalten und der Aufbau von Spannungen vermieden /1/. Beim schnellen Abkühlen können die aus den Temperaturgradienten resultierenden Spannungen eingefroren werden /1,2,3/.

Das Abkühlen von technischen HAW Glasprodukten ist durch die Notwendigkeit der Hantierung dieser Abfälle in heißen Zellen stark beeinflußt. Es ist nur mit großem Aufwand möglich, Glasprodukte einer aufwendigen Abkühlprozedur zu unterziehen. Im wesentlichen bleibt die freie Abkühlung oder die Abkühlung in einem isoliertem Behälter (Overpack). Es muß deshalb immer mit Spannungen im Glasprodukt gerechnet werden, die zu Rissen führen können. Beim Abkühlen von simulierten HAW-Glasprodukten wurden Rißverteilungen in Abhängigkeit von den Abkühlbedingungen von verschiedenen Autoren untersucht und diskutiert /4,5,6/. Das Hauptproblem ist die Übertragung der an simulierten Abfällen gewonnenen Ergebnisse auf echte Produkte, bei denen ein Temperaturgradient über lange Zeit erhalten bleibt, jedoch bei Variation der Wärmeabfuhrbedingungen kurzzeitigen Änderungen unterworfen ist /7/.

Früher im INE durchgeführte Arbeiten erstreckten sich auf die Untersuchung der Abkühlvorgänge und Rißverteilungen des Glases bei verschiedenen Auskleidungen in und Isolierungen außen an der Kokillen. Kokillen wurden mit Hilfe von Schallemissionsanalyse und Computertomographie zerstörungsfrei sowie nach Entmantelung bzw. Zersägen, auf Risse untersucht.

Als Ergebnisse der Untersuchung von entmantelten Glasblöcken konnten mehrere typische Rißsysteme aufgezeigt werden:

- Zwickelrisse im Boden- und Einlaufbereich.
- Schichtrisse koaxial in Umfangsrichtung.
- Querrisse senkrecht zur Achse.
- Achsparallele Risse in radialer Richtung.

Bei schneller Abkühlung können alle aufgeführten Rißarten auftreten, bei langsamerer Wärmeabfuhr vermindert sich die Anzahl der in Umfangsrichtung verlaufenden koaxialen Schichtrisse. Die Anzahl der übrigen Risse nimmt ebenfalls ab, es kann aber die Stärke der Bruchgabelung im Zentralbereich des Glasblockes zunehmen. Auch die Zwickelrisse werden beim langsamen Abkühlen reduziert /8/. Dieses Ergebnis liefert auch die Schallemissionsanalyse. Je höher die Abkühlgeschwindigkeit ist, desto früher setzt die Schallemission ein. Diese erfolgt zu einem Zeitpunkt, zu dem sich Teile der Glasschmelze auf Temperaturen unterhalb des Transformationsbereiches abgekühlt haben. Aus der emittierten Schallenergie kann aber kein Maß für den Zerstörungsgrad des Glasblockes abgeleitet werden /9,10/.

Werden Kokillen nach den Abkühlen zur Untersuchung entmantelt, kann kein Rückschluß auf die Rißbreite in Glasblock gezogen werden, da beim Aufsägen des Kokillenstahls eine Entspannung des Systems erfolgt und sich Gleitflächen gegeneinander verschieben können. Auf diese Weise können Rißbreiten vorgetäuscht werden, die bei Glasblöcken im Verbund mit Kokillenstahl oder unter dem Gebirgsdruck in einem Endlager in einer Steinsalzformation nicht auftreten können. Im vorliegenden Abschlußbericht werden die Experimente an simulierten Abfallprodukten sowie Modellrechnungen vorgestellt, mit deren Hilfe das Abkühlverhalten und das Auftreten von mechanischen Spannungen in heißen radioaktive Glasprodukten vorhergesagt werden soll.

2. Experimentelle Erfassung von Temperaturprofilen

Zur Kontrolle des Abkühlvorgangs von HAW-Glasblöcken genügt es nicht die Außentemperatur der Kokille zu bestimmen. Es muß vielmehr der Temperaturverlauf im Innern des Glasblocks an mehreren vertikal und horizontal verteilten Meßpunkten in Abhängigkeit von der Zeit erfaßt werden.

2.1 Experimentelle Einrichtungen

Die bisher untersuchten Kokillen hatten Außendurchmesser von 0.3 m und 0.43 m, besaßen eine Wandstärke von 6.5 mm bzw. 5 mm und waren aus ST37 bzw. V4A Stahl hergestellt. Sie waren mit 13 bis 19 NiCrNi-Thermoelementen von 2 mm Durchmesser bestückt. Diese waren in mehreren Ebenen angeordnet. Abb.1 zeigt ein Beispiel für die Anordnung und die Nummern der Thermoelemente. Der Ursprung des Koordinatensystem liegt in der Kokillenachse, die z-Koordinate entspricht der Höhe.

Bei den Kokillen mit 0.43 m Durchmesser waren alle Thermoelemente durch V2A Stahlröhrchen fixiert, bei den 0.3 m dicken Kokillen waren nur die zentralen Thermoelemente mit einer Halterung versehen. Die Thermoelemente waren über ca. 10 m lange Ausgleichsleitungen an eine Datenerfassungsanlage von Hewlett-Packard (HP44422A 20 Channel T Couple ACQ mit HP3497A Data Acquisition/Control Unit) angeschlossen. Die Daten wurden über eine HPIB Schnittstelle an einem HP9816 Rechner registriert, korrigiert, in Temperaturen umgerechnet und auf Floppydisks gespeichert. Mit dem Datenerfassungsprogramm konnten die Frequenz der Temperaturmessung und die Ausgabe auf Drucker bzw. Floppylaufwerk gesteuert werden. Es war in BASIC geschrieben. Temperaturmeßwerte wurden im zeitlichen Abstand von 2 bis 15 min erfaßt.



Abb. 1: Anordnung der Thermoelemente in den Gebinden VW 1/15 und W4/17

Ein Temperofen mit 0.75 m Innendurchmesser und etwa 1.5 m Höhe erlaubt das Aufheizen bzw. das gezielte Abkühlen von Glasgebinden. Der Temperstand war mit einer Luftkühlungseinrichtung ausgestattet. Er kann eine maximale Temperatur von 900°C erreichen, die in 3 Ebenen getrennt geregelt werden kann, so daß ein homogenes vertikales Temperaturprofil eingestellt werden kann. Mittels eines Programmgebers können beliebige Abkühlgeschwindigkeiten realisiert werden. In Abbildung 2 ist der Aufbau des Temperofens skizziert.

2.2 Beschreibung der Experimente

Das Abkühlen von Glasgebinden wurde unter verschiedenen Bedingungen untersucht, wobei die Wärmeabfuhr und die Anfangstemperaturverteilungen variiert wurden. Abbildungen, die den zeitlichen Temperaturverlauf zeigen, finden sich im Zusammenhang mit Vergleichen zwischen berechneten und gemessenen Temperaturen in Kap. 5.1.

-4-





2.2.1 Befüllung am Ofen K2

Zwei Abkühlexperimente, die unter den Nummern GT860219-01 und GT860219-02 archiviert sind, wurden im Rahmen der Verglasungskampagne V111 durchgeführt. Die Kokillen wurden durch den Bodenauslauf des Schmelzers K2 befüllt, wobei sie jeweils innerhalb von 2 Stunden ihren maximalen Befüllgrad von ca. 150 kg Glas erreichten. Beide Kokillen bestanden aus V4A Stahl und waren außen mit einer 25 mm dicken FIBERFRAX DURABLANKET-H Schicht isoliert. Die Kokille -02 war innen mit einer 6 mm dicken Auskleidung aus dem gleichen Material versehen.

FIBERFRAX DURABLANKET-H ist ein keramisches Fasermaterial aus ca. 53% Al₂O₃ und 47% SiO₂ mit Faserlängen bis ca. 50 mm bei Faserdurchmessern um ca. 3 μ m. Die Fasern sind über Kreuz zu einer relativ dichten und handhabbaren Matte verkettet. Dieses Material ist als Wärmedämmstoff geeignet, seine thermischen Daten sind bekannt. Als Auskleidungsmaterial sollte dieses Material das Glasprodukt und die Stahlkokille mechanisch entkoppeln und besonders das Ankleben des abgefüllten Glases am Kokillenstahl verhindern. Die letzte Anforderung konnte das Material jedoch auf Grund seiner geringen Raumausfüllung und seiner Durchläßigkeit für die Glasschmelze nur bedingt erfüllen.

Die Abfülltemperatur am Bodenauslauf des Schmelzers betrug zwischen 1050 und 1133°C. Die höchsten Randtemperaturen betrugen ca. 820°C am Thermoelement in der Mittelebene.

Das verwendete Grundglas hatte die Bezeichnung SM519FR. Die Abfallbeladung war gering, das Glas war durchsichtig und von hellgrüner Farbe. Die Zusammensetzung des Glases und des Abfallsimulates ist von Roth et al. /11/ beschrieben.

Die Kokille V113/4 mit 30 cm Durchmesser (6 mm Wandstärke aus Baustahl ST 37) mit einer 5 cm dicken FIBERFRAX DURABLANKET H Isolierschicht auf der Mantelfläche wurde mit 13 radial ins Glas eingeführten Thermoelementen, 2 Thermoelementen auf dem Kokillenmantel und 2 außen auf der Isolierschicht instrumentiert. Zur Abschätzung einer möglichen Wärmeleitung von Armierungsröhrchen wurden 2 Thermoelemente senkrecht von oben in die Kokille eingeführt. Als Isoliermaterial wurde FIBERFRAX DURABLANKET H benutzt. Seine Eigenschaften sind in /13/ aufgeführt. Insgesamt war die Kokille mit 19 Thermoelementen instrumentiert. Sie wurde mit 131.3 kg simuliertem HEWC-Glas mit der Fritte SM 527 FR befüllt. Die Abfülltemperatur lag über 1000°C. Die Abfüllung dauerte knapp 90 Minuten. Die Kokille hatte eine Gesamthöhe von 1120 mm, die Innenhöhe betrug 1010 mm. Nach dem Abkühlen war die Kokille bis 180 mm unter den oberen Rand gefüllt.

Die gemessenen Temperaturen dieses Versuchs sind unter der Versuchsnummer GT861203-01 archiviert. Nach dem Erkalten konnte auf der Glasoberfäche eine Teilkristallisation des Glasproduktes beobachtet werden. Das Abklingen der Zentraltemperatur dauerte in diesem Experiment mehr als 160 Stunden, wobei die Temperatur 10 Stunden lang über 700°C blieb. An der Oberfläche zeigten sich keine Risse.

2.2.2 Freie Abkühlung in Luft

Beim Versuch GT860521-01 wurde die Kokille des Versuchs GT860219-01 -ohne Innenauskleidung und ohne Isolierschicht – im Temperstand etappenweise auf 850°C erwärmt. Dann wurde die glühende Kokille aus dem Temperstand entnommen und auf eine Abkühlposition gebracht. Der Abkühlvorgang verlief bei einer Raumtemperatur von ca. 24°C. Analog wurde der Versuch GT860926-01 durchgeführt, wobei eine Kokille aus ST 37 Stahl, die mit VG 98/12 Grundglaspulver befüllt war, auf ca. 900°C aufgeheizt wurde. Leider waren bei diesem Experiment die Thermoelemente nicht fixiert, so daß diese, bevor der Schmelzprozess einsetzte, durch das zusammengeschmolzene Glaspulvers verbogen wurden und nicht mehr exakt positioniert waren.

Die Kokillen standen während der Abkühlphase aufrecht auf einer Unterlage aus Betonsteinen. Der Abkühlvorgang erstreckte sich bei 30 cm Kokillen über ca. 25 Stunden und bei 43 cm Kokillen über ca. 50 Stunden. Während die Edelstahlkokillen beim Aufheizen eine Anlauffarbe annahmen, entstanden auf den Oberflächen der ST 37 Kokillen blättrige Kohlenstoffausscheidungen. In Kontakt mit dem Glasprodukt lösten sich bzw. reagierten diese und es entstand eine rauhe Oberfläche, die eine feste Verbindung zwischen Glasprodukt Kokillenstahl bewirkte.

2.2.3 Abkühlung im Wasserbassin

Bei diesem Experiment wurde die aufgeheizte, mit dem geschmolzenen HAW Produktsimulat gefüllte Edelstahlkokille (30 cm Durchmesser) aus dem Temperofen entnommen, in einen Kühlbehälter eingesetzt und sofort mit Leitungswasser gekühlt. Der Wasserzufluß erfolgte durch 3 radiale Anschlußstutzen direkt über dem Boden des Kühlbehälters. Das Kühlwasser floß über dessen oberen Rand ab. Die Kokille ragte ca. 15 cm über den Kühlwasserspiegel hinaus, so daß kein Kontakt zwischen Glasprodukt und Kühlwasser möglich war. Die Oberflächentemperatur der Gebindes betrug bei Entnahme dem Temperofen ca. 900°C und wurde innerhalb von wenigen Minuten auf aus ca. 20°C abgesenkt. Es entstand eine turbulente Strömung längs der Kokille, die Wasserdampfblasen mitriß. Zu Beginn des Experimentes, d.h. beim ersten Füllen des Kühlwasserbehälters, gab es eine geringe Dampfbildung, die nach ca. 30 Sekunden aufhörte. Der Verbrauch an Kühlwasser betrug zu Beginn des Experiments ca. 1000 l/min und wurde nach und nach auf ca. 10 1/min reduziert. Der gesamte Kühlwasserverbrauch betrug ca. 50 m³. Zu diesem Experiment wurde die gleiche Kokille verwendet, wie für die Versuche GT860219-01 und GT860521-01. Die gemessenen Temperaturen dieses Versuchs sind unter der Versuchsnummer GT861121-01 archiviert.

Das Abklingen der Zentraltemperatur dauerte in diesem Experiment ca. 12 Stunden, wobei die Temperatur am Rand innerhalb weniger Minuten auf ca. 20°C abfiel. Geringe Schwankungen der Randtemperatur traten bei Reduktion des Wasserdurchflusses auf.

Infolge der raschen Abkühlung des Glasproduktes zeigte sich eine ausgeprägte Verformung der Glasoberfläche. Anfänglich war die Glasoberfläche eben, nach einigen Minuten wölbte sich die Oberfläche ringförmig auf, und in der Mitte bildete sich bis zum völligen Abkühlen ein tiefer Trichter mit ca. 2.6 l Volumen und 32 cm Tiefe. Dadurch lagen die Thermoelemente der oberen Ebene nicht mehr innerhalb des Glases, diese Messwerte mußten verworfen werden. Später wurde diese Kokille der Länge nach aufgesägt. Abbildung 3 zeigt Fotos, die einen Eindruck von der Rißhäufigkeit und -verteilung und den während dem Abkühlens entstandenen Trichter vermitteln. Lunker in tieferen Bereichen des Glaskörpers treten kaum auf. Dem subjektiven Eindruck nach hat diese Kokille nicht mehr Risse, als eine frei in der Luft abgekühlte. Dieser Eindruck wird durch eine amerikanische Arbeit untermauert. In /12/ ist eine Untersuchung beschrieben, bei



30 cm



der die resultierenden gesamten Oberflächen von Glasblöcken, die verschiedenen Abkühlprozeduren unterworfen waren, analysiert wurden. Hierbei ergab sich eine relativ ähnliche Gesamtoberfläche der Glasprodukte unabhängig ob diese frei in Luft, bzw. im Wasserbad mit fester Randtemperatur abgekühlt wurden.

2.2.4 Abkühlung einer Kokille in der V-W1 Anlage

Die Kokille VW 1/15 mit 43 cm Durchmesser (5 mm Wandstärke aus Edelstahl) wurde nach dem für die Anlage VW 1 üblichen Verfahren mit 400.5 kg GP 98/12.2 Glasprodukt mit ca. 11,5 Gew.% Abfalloxidgehalt befüllt. Zur Befüllung wurde die Kokille in einem Overpack auf dem Kokillenwagen an den Bodenablauf des Ofens angekoppelt. Der Füllvorgang dauerte 3 Stunden. Danach blieb die Kokille für weitere 9 Stunden im Overpack, wurde dann daraus entnommen und konnte an der Luft frei abkühlen. Nach dem Abkühlen wies die Glasoberfläche nur eine geringe Verformung aber viele Risse auf, der zentrale Bereich war um ca. 25 mm gegen den Randbereich eingesunken.

Die Kokille VW 1/15 war mit 13 Thermoelementen im Innern und 3 auf der Mantelfläche ausgestattet. Um eine exakte Positionierung zu gewährleisten, wurden die Thermoelemente durch am Mantel verschweißte Röhrchen fixiert. Die Temperaturverläufe sind unter der Bezeichnung GT870224 archiviert. Beim Abfüllen erreichten die zentralen Meßstellen Temperaturen bis über 1050°C, die Temperatur nahm danach aber innerhalb einiger Minuten wieder ab. Der relativ schnellere Temperaturabfall an den oberen Thermoelementen erklärt sich durch die Bauhöhe des Overpacks: Die Kokille ragt über den Overpack hinaus, deshalb wirkt in diesem Bereich die höhere Wärmeabfuhr durch Wärmestrahlung und Konvektion. Die Temperaturen im Zentrum der Kokille fallen innerhalb der Zeit, die der Glasblock im Overpack verbleibt, bis nahezu auf die Transformationstemperatur ab, innerhalb von 2 Tagen nach Entnahme aus dem Overpack erfolgt der Temperaturausgleich.

Im Rahmen der Befüllung der Kokille W4/17 (archiviert unter GT880512) traten Störungen am Schmelzer auf, so daß die Befüllungszeit unrealistisch lang war. Deshalb wurde diese Temperaturmessung nicht ausgewertet.

2.3 Analyse der Rißverteilungen

Die direkte Bestimmung der Rißverteilung und Rißweiten in einem ungestörten Glasprodukt ist nicht möglich, daher wurden Kokillen in axialer Richtung und senkrecht dazu zersägt. Verschiedene Methoden wurden angewandt:

- Sägen mit einer Drahtsäge in einem steinverarbeitendem Betrieb
- Auftrennen des Kokillenstahl mit einer Trennscheibe und Sägen des Glasprodukts mit einer Bandsäge.

Beide Verfahren belasten das Glasprodukt durch Schwingungen und plötzliche Entspannungen; man muß deshalb mit Umlagerungen von mechanischen Spannungen im Produkt rechnen, die zu weiteren Rissen führen können. Bei Schnitten senkrecht zur Kokillenachse kann der Kornverband erhalten bleiben, wenn der Kokillenstahl als Mantel seine Stützfunktion beibehält. An derartigen Schnitten konnten die Rißweiten ermittelt werden. Sie lagen für radiale Risse, die für den Wärmetransport relevant sind, in Bereich von 0.1 bis 0.2 mm.

Die Häufigkeitsverteilung der Bruchstücke des Gebindes VW1/14 wurde erfaßt und in Abbildung 4 aufgetragen. Die Kokille war analog wie die Kokille VW1/15 abgekühlt worden. Unter der Annahme kugelförmiger Bruchstücke ließ sich ein Maß für die integrale Oberfläche des Glasproduktes abschätzen. Diese beträgt etwa das zehnfache der geometrischen Oberfläche. Je nach Form der Bruchstücke kann die Oberfläche noch mehr vergößert sein. Deshalb sollte die Angabe eines Oberflächenvergrößerungsfaktors nicht überbewertet werden.

2.4 Direkte Erfassung von Bruchvorgängen

Schallemisionsanalysen (SEA), die an abkühlenden Glasgebinden durchgeführt wurden, zeigten eine äußerst komplexe Signalform bei relativ langer Signaldauer. Die Signale beim Bruch des Glasses werden durch Vielfachreflexionen des primären Ultraschallimpulses in der Kokille, an Bruchflächen und an Schalleitern verändert. Typische Signale dauerten bis zu 5 ms an. Es ist deshalb sehr aufwendig konventionelle SEA im Ultraschallbereich zur Detektion von Rissen zu verwenden. Vielfach waren die Schallereignisse akkustisch wahrnehmbar. Deshalb wurde versucht, die Methode zu vereinfachen und die an der Kokille auftretende Schwingung mit einem



.

<u>Abb. 4:</u> Verteilung der mittleren Bruchstück-Durchmesser und ihrer formalen Oberfläche in einem simulierten HAW-Gebinde, das unter den gleichen Bedingungen wie das Gebinde VW 1/15 (siehe Abb.9) gekühlt wurde

piezoelektrischen Schwingungsaufnehmer (Resonanzfrequenz 11 kHz) direkt zu erfassen. Der Schwingungsaufnehmer (Typ KKH-114 der Firma Mikro Epsilon, Ortenburg) konnte mit einem Gewinde an der Kokille oder an einem angeschweißten Stab befestigt werden. Es war nicht erforderlich Schalleiter in das Glasprodukt einzubringen. Der Schwingungsaufnehmer war an einer Verstärker- und Kontrolleinheit (SK-200) angeschlossen, die einen Rechteckpuls als Ausgangssignal lieferte. Die Rechteckpulse wurden von einem Zähler erfaßt und im Rechner gespeichert.

Die Untersuchungen wurden am abgekühlten Gebinde VW1/13 durchgeführt. Die Abbildung 5 zeigt die gemessenen kummulierten Zählraten von Brüchen, die durch einen Hammerschlag ausgelöst wurden. Man erkennt aus dem Kurvenverlauf, daß mehrere Stunden nach der Anregung noch Schallereignisse auftraten. Leider konnte diese Methode nur an Wochenenden eingesetzt werden, da alle schallintensiven Vorgänge in der Technikumshalle die Messungen verfälschten.



<u>Abb. 5:</u> Gemessene Schwingungssignale am Gebinde VW 1/13 zur Erfassung von Bruchvorgängen

2.5 Herstellung von monolithischen Glasblöcken

Mit Hilfe des beschriebenen Gebindes V-W1/15 (GP 98/12.2) wurde die Charakteristik des Temperstandes untersucht. Die Wärmeabfuhr des Temperstandes wird nicht nur durch die Heizelemente, sondern auch durch die Einbauten und mögliche Zwischenräume zwischen den Heizelementen bzw. dem Deckel- und Bodenstück hervorgerufen.

Die Isolation des Temperofens bewirkt, daß in einem Glasgebinde mit 0.43 m Durchmesser die Temperaturdifferenz zwischen dem Zentrum der Kokille und dem Rand im Temperaturbereich unter 600°C maximal 60°C beträgt. Für die Herstellung eines monolithischen Glasblocks war diese Differenz zu hoch, wie durch visuelle Inspektion der abgekühlten Kokille festgestellt werden konnte. Aus diesem Grund wurde im nachfolgenden Versuch die Kokille langsamer abgekühlt. Folgendes Temperprogramm lieferte schließlich einen monolithischen Glasblock:

Nach der homogenen Aufheizung des Gebindes auf 850° C und einer entsprechenden Verweildauer bei dieser Temperatur (ca. 10 h) wird der Glasblock entsprechend der Charakteristik des Temperstandes bis auf ca. 650° C abgekühlt. Die Zeitdauer hierfür beträgt 10 h. Danach wird innerhalb von 5 h der Temperstand auf 620° C hochgeheizt. Dadurch wird eine nahezu homogene Temperaturverteilung in der Kokille erreicht. Die Temperatur liegt im Bereich des oberen Kühlpunktes AP (n = 10^{13} dPas), der beim Abkühlen von Glasgegenständen in der Glasindustrie von Bedeutung ist. Von diesem Wert aus wird die Temperatur innerhalb von 300 h linear bis auf Raumtemperatur reduziert, d.h. die Abkühlgeschwindigkeit beträgt ca. 2° C/h. Damit liegt die maximal auftretende Temperaturdifferenz zwischen dem Zentrum der Kokille und dem Rand bei ca. 20° C. Insgesamt dauerte das Herstellen des monolithischen Glasblocks mehr als 350 h, d.h. über 2 Wochen.

Nachdem diese Prozedur an der mit Thermoelementen versehenen Kokille V-W1/15 getestet war, wurde das Gebinde W-2/11 mit Glasprodukt GP 98/12.2Li nach der gleichen Prozedur behandelt.

Die Abb. 6 zeigt Fotos des entmantelten monolithischen Glasblocks W-2/11, wie er nach der genannten Abkühlprozedur erzeugt wurde. Man erkennt, daß lediglich im Bereich des Kokillenbodens ein Rißkegel aufgetreten ist. Dieser Rißkegel wird durch die Einspannung des Glases in den Kokillenstahl am Boden und an der Mantelfläche hervorgerufen. Zu bemerken ist, daß bei Herstellung dieses Monolithen keine Auskleidung der Kokille verwendet wurde. Auf Grund von rasterelektronenmikroskopischen Aufnahmen konnte festgestellt werden, daß durch das Aufheizen und Abkühlen keine merkliche Korrosion durch die Glasschmelze an dem Kokillenstahl (V4A Werkstoff-Nr. 1.4571) eingetreten ist. Aus diesem Grund entwickelte sich keine feste Bindung mit dem Glas und es konnte während des Abkühlens an der Behälteroberfläche gleiten, so daß keine zusätzliche vertikale Spannung auftreten konnte. Dieser Effekt tritt stark in Erscheinung, wenn Ko-



Abb. 6: Foto des entmantelten Glasblocks W-2/11

killen verwendet werden, die eine sehr rauhe oder reaktive innere Oberfläche besitzen. Insgesamt waren beim Gebinde W-2/11 nur einige wenige Glassplitter an der Kokillenoberfläche haften geblieben.

Nach der gleichen Methode wurde das Gebinde VW 1/12 behandelt und ebenfalls ein Glasblock hergestellt, der nur in der Mitte senkrecht zur Achse gerissen war.

3. Stoffdaten

Für Modellrechnungen sind die verwendeten Stoffdaten von entscheidender Bedeutung. Die wichtigste Größe für die Temperaturrechnungen ist die Wärmeleitfähigkeit, die bis ca. 400°C für alle untersuchten Gläser bekannt war /14/ und bis zu dieser Temperatur einen linearen Verlauf aufweist. Zu höheren Temperaturen nimmt der Strahlungsanteil zu und die Wärmeleitfähigkeit steigt überproportional an. Messungen für Temperaturbereiche über 400°C liegen für die Abfallgläser nicht vor. In /15/ wurde die Wärmeleitfähigkeit eines Borosilikatglases für den In-Can Melting Prozess als Funktion einer effektiven Temperatur bis ca.1000°C angegeben. Von einem japanischen Abfallglas sind Wärmeleitfähigkeitsmessungen bis 1250 K bekannt /16/. Hierbei existiert ebenfalls eine lineare Temperaturabhängigkeit bis zur Transformationstemperatur Tg, darüber dominiert der Strahlungsanteil. Bei Weißgläsern kann die Wärmeleitfähigkeit durch Strahlung bei 1000°C bis auf ca. 80 W/mK ansteigen /17/. In den folgenden Rechnungen wurden bis zur Transformationstemperatur die im INE gemessenen und extrapolierten Wärmeleitfähigkeiten, darüberhinaus die nach /16/ berechneten Werte benutzt.

Die Infrarotdurchlässigkeit der Gläser der Kampagnen V111 und V112 zeigt im Wellenzahlenbereich von 1700 1/cm bis 400 1/cm (entsprechend dem Wellenlängenbereich von 5900 nm bis 25.000 nm) eine schwindende Transmission. Zum sichtbaren Wellenlängenbereich hin ist die Transmission konstant bei 100%.

Meßdaten der spezifischen Wärme liegen für das Glasprodukt GP98/12 und die Glasfritten VG98/12 und SM513 LW 11 zwischen Raumtemperatur und ca. 600°C bzw. 650°C vor. Die spezifischen Wärmen des GP 98/12 und des VG 98/12 weisen einen ähnlichen Verlauf auf mit einem Maximum im Bereich der Transformationstemperatur. Das Maximum der spezifischen Wärme der SM Gläser liegt, wie deren Transformationstemperatur, etwa 100°C tiefer. Erhebliche Unterschiede zeigen sich, wenn die spezifischen Wärmen mit unterschiedlichen Methoden (z.B. kalorimetrisch oder mit einer DSC Apparatur) ermittelt wurden. In /18/ wurde gezeigt, daß sich je nach Aufheizgeschwindigkeit die Maxima der spezifischen Wärmen einiger Gläser um mehr als 50°C verschieben können. Am GP 98/12.2 Glasprodukt wurde bei Variation der Aufheizgeschwindigkeit nur eine geringfügige Verschiebung der Transformationstemperatur bzw. des Maximums der spezifischen Wärme beobachtet.

Der temperaturabhängige Dichteverlauf der Gläser ist bekannt. Für GP 98/12.2 bzw. VG 98/12.2 liegen Messungen der Dichte zwischen 900°C und 1150°C vor /14/. Es wurden die thermischen und mechanischen Daten des Stahles 1.4571 verwendet, dessen Stoffdaten gut bestimmt sind. Die Daten des Auskleidungsund Isoliermaterials DURABLANKET-H wurden einer Firmendatensammlung entnommen /13/.

Schwierigkeiten bereitet die Ermittlung der Bruchfestigkeit der Abfallgläser, da diese Größe stark von der zu untersuchenden Probe und ihrer Oberfläche abhängt. Publizierte Werte streuen zwischen 30 bis 100 MPa für Borosilikatgläser /19/; mit einer speziellen Meßmethode, die sich jedoch nur für relative Vergleiche eignet, wurden höhere Werte gefunden /20/.

Für die Berechnung des Spannungsaufbaus in Glasblöcken sind die elastischen Daten des Glases im relevanten Temperaturbereich erforderlich. Aus Messungen an GP 98/12 waren der E-Modul und die Querdehnungszahl bis 300°C bekannt /21/. Ebenfalls gemessen war der thermische Ausdehnungskoeffizient. Für das Temperaturintervall von 500-700°C wurden am Institut für Nichtmetallische Werkstoffe der TU Berlin die Viskosität und die elastischen Konstanten als Funktion der Temperatur für das Glasprodukt GP 98/12.2 aus dem Gebinde VW1/14 bestimmt. Die Untersuchungen erbrachten Viskositätsmeßwerte zwischen 1,0x10¹⁴ und 2,0x10⁵ Pa s.

Zur Ermittlung der elastischen Konstanten wurde zum einen wie bei der Viskositätsmessung die Zylinderstauchmethode angewandt, zum andern wurden Ultraschalluntersuchungen durchgeführt. In diesem Temperaturbereich ist der E-Modul zeitabhängig, der maximale Wert wird mit Relaxiationsmodul bezeichnet. Bei der Zylinderstauchmethode konnte bei sehr hohen Deformationsgeschwindigkeiten ein großer Abfall des maximalen Relaxiationsmoduls bis 640°C festgestellt werden. Die Ultraschallversuche ergaben dagegen im Bereich zwischen 550°C und 700°C bei 4 MHz Prüffrequenz nur einen graduellen Abfall des Elastizitätsmoduls von 65 GPa auf 40 GPa, während die Querkontraktionszahl in diesem Temperaturbereich von 0.245 auf 0.38 ansteigt.

Einen erheblichen Einfluß auf die Meßwerte hat die Blasigkeit der Proben. Bei etwa 10% Blasigkeit wurde nur noch 25% des Relaxiationsmoduls von blasenfreien homogenen Glasprodukt erreicht. Aus den Messungen konnten Aussagen über die Zugfestigkeit des Glasproduktes im Temperaturbereich zwischen 550 und 700°C getroffen werden. Die Zugfestigkeit liegt in diesem Temperaturintervall zwische 150 und 200 MPa, also erheblich über den Werten, die für Borosilikatgläser im elastischen Temperaturbereich gefunden werden.

Die für die Rechnungen benutzten Daten sind in der folgenden Tabelle aufgeführt:

Tabelle 1:	Thermische	und	mechanische	Daten	für	die	FEM-Rechnungen
							•

		Zimmer-	300°C	500°C	1000°C
Thermisch		temperatur			
Wärmeleitfähigkeit	∧ cW/mKj	1,012	1,249	1,755	3,333
Dichte	⊖ [g/cm³]	2,772	2,753	2,725	2,445
spezifische Wärme Wärmekonvektions- koeffizient	c _p [J/gKj	0,86	1,33	1,76	1,16
	h [W/m²K]	5			7,5
Wärmestrahlungs- koeffizient	r	0,6	konstant		
Mechanisch					
E-Modul	E [MPa]	81900	78000	64500	
Poisson Zahl	V	0,245		0,245	
Thermischer Ausdehnungs- koeffizient	сх [К−1]	8,3·10 ⁻⁶		8,3·10 ⁻	6
Transformations- temperatur	Tg [°C]	536	konstant		

4. Modellrechnungen

4.1. Berechnung der Temperaturen

Zur Modellierung der Abkühlvorgängen von HAW-Kokillen wird von der Wärmeleitungsgleichung ausgegangen. Zur Lösung erforderlich ist die Angabe der Stoffeigenschaften und Rand- sowie Anfangstemperaturverteilungen im Glasprodukt. Für verschiedene Materialzonen wie z.B. Glas, Auskleidungsschichten, Kokillenstahl und Isolierschichten müssen Wärmeleitfähigkeit, spezifische Wärme und Dichte angegeben werden. Als Lösungsmethode für die Wärmeleitungsgleichung mit verschiedenen Randbedingungen steht das Programm ADINAT, ein finites Elemente (FE) Programm zur Verfügung /22/. Wärmeleitfähigkeit, spezifische Wärme und Dichte können von der Temperatur, der Zeit und den räumlichen Koordinaten abhängen.

Randbedingungen, die die Wärmeabfuhr aus einer Kokille bestimmen, werden i. A. durch Vorgabe eines Wärmeflusses oder einer festen (aber zeitlich variabeln) Temperatur definiert. So kann ein Wärmefluß durch Konvektion bzw. durch Wärmestrahlung berechnet werden. Konvektionsvorgänge in der umgebenden Luftschicht werden jedoch nicht explizit modelliert, es wird lediglich ein temperaturabhängiger Wärmeübergangskoeffizient verwendet. Das gleiche gilt für den Wärmeübergang durch Strahlung.

Die finiten Elemente (Gitternetz) wurden mit dem Programm FEMGEN /23/ erzeugt und zusammen mit den Stoffdaten, Randbedingungen usw. als Datensatz für das Programm ADINAT verfügbar gemacht. Die berechneten Temperaturen können in einem Ausgabefile abgelegt und mit Hilfe von Auswerteprozeduren weiter verwendet werden. Bei allen beschriebenen Rechnungen wurden zweidimensionale achsensymmetrische 'Conduction Elements' mit je 4 Knotenpunkten verwendet. Das benutzte Materialmodell verwendet temperaturabhängige isotrope Wärmeleitfähigkeiten und temperaturabhängige spezifische Wärmen.

4.2 Spannungsrechnungen

Das für die Temperaturrechnungen erzeugte Gitternetz kann zusammen mit den berechneten Knotenpunkttemperaturen direkt für eine Stress-Strain Analyse verwendet werden. Hierfür wird das FE Programm ADINA /24/ benutzt. Dieses Programm kann lineare und nichtlineare, statische und dynamische Probleme behandeln. Wie ADINAT erlaubt auch ADINA die Modellierung von komplizierten geometrischen Strukturen in ein-, zwei-und dreidimensionaler Geometrie. Eine große Anzahl von Stoffmodellen kann simuliert werden. Mittels eines thermoelastischen Stoffgesetzes, das die durch die Temperaturänderung hervorgerufenen Verformungen beschreibt, konnten die resultierenden Spannungen berechnet werden. Die Ergebnisse wurden an den Integrationspunkten der Rechteckelemente gespeichert; sie konnten mit dem Graphikprogramm ADINA-PLOT dargestellt werden.

Die Tatsache, daß eine Glasschmelze beim Abkühlen von der Abfülltemperatur zuerst am Rand die Transformationstemperatur Tg unterschreitet und somit als elastischer Körper aufgefaßt werden kann, während er im Innern noch flüssig ist, wird mit Hilfe des "quick freeze" Modells simuliert. Dieses Modell beinhaltet, daß Volumenelemente erst dann zu den Verformungen und damit zu den Spannungen beitragen, wenn sie unter Tg abgekühlt sind. Für höhere Temperaturen wird angenommen, daß eine schnelle Spannungsrelaxiation stattfindet. Das "quick freeze" Modell, das auch bei der Untersuchung der Erzeugung von Vorspannungen in Glasplatten eingesetzt wird /3/, wurde als analytische Beziehung auf das Abkühlen von simulierten HAW Glasprodukten verwendet /12/. In /2 und 3/ wurden zur Berechnung Spannungen in dünnen Glasplatten (7.2 mm) bei hohen Kühlraten von (a>150 W/m² K) auch viskose Vorgänge berücksichtigt, diese aber in dieser erster Näherung vernachlässigt. Der Vorgang des "quick-freeze" wird für die FE Rechnungen mit der "birth of elements" Option der ADINA Programms modelliert. Mit dieser Option wird erreicht, daß Elemente erst für jene Zeiten aktiv und in der Rechnung berücksichtigt werden, die größer als die "birth of element" Zeit sind. Die Zeit, zu der die mittlere Temperaeines Elements die Transformationstemperatur erreicht, wurde mit eitur nem Interpolationsprogramm aus den gespeicherten Knotenpunkttemperaturen ermittelt und als "birth of element" Zeit in den ADINA Inputfile eingetragen.

Ein Beispiel für ein Gitternetz, das für Temperatur und Spannungsrechnungen benutzt wurde, zeigt die Abbildung 7. Der Einfluß der Diskretisierung auf die berechneten Ergebnisse wurde untersucht; es zeigte sich, daß eine Diskretisierung mit 15 radialen und 30 vertikalen Elementen ausreichend war. Die Verwendung von mehr Elementen oder Elementen mit höherer Anzahl von Knoten veränderte die Ergebnisse nicht. Der Stahlkanister wurde durch ein radiales Element charakterisiert.



Abb. 7: Beispiel für ein für Temperatur- und Spannungsrechnungen benutztes finites Element-Netz

Die Randbedingungen wurden durch Beschränkung des vertikalen Freiheitsgrades der Knotenpunkte der Behältergrundfläche definiert. Knotenpunkte auf der Mantelfläche der Kokille und auf der Glasoberfläche wurden in ihren Freiheitdgraden nicht eingeschränkt. Bei den Rechnungen traten keine numerischen Probleme auf, wenn der Stahlbehälter durch ein thermoelastisches oder elastisches Stoffgesetz beschrieben wurde. Allerdings wird in ADINA die thermoelastische Verformung nach der Gleichung

ि : Dehnung ६ = α (T - T_{ref}) α : Wärmedehnungskoeffizient T : Temperatur berechnet. Die Größe T_{ref} gibt die Temperatur an, bei welcher das System spannungsfrei ist. Für das Glasprodukt wurde bei allen Rechnungen für T_{ref} die Transformationstemperatur Tg angenommen, für den Kanisterstahl wurde T_{ref} zwischen der Abfülltemperatur des Glases (T_i) und der Raumtemperatur variiert.

5. Anwendungsrechnungen

5.1 Nachrechnung der Experimente

Die Abbildungen 8 und 9 zeigen Vergleiche zwischen berechneten und gemessenen zeitlichen Temperaturverläufe in verschiedenen Experimenten. Die Anfangstemperaturverteilungen wurden aus den gemessenen Temperaturen interpoliert. Bei diesen Rechnungen wurden die in Kapitel 3 aufgeführten Stoffdaten verwendet. In Abbildung 10 sind Temperaturprofile in der Mit-



Abb. 8: Vergleich zwischen gemessenen und berechneten Temperaturen im Zentrum des wassergekühlten Gebindes (Versuch GT 861121)



Abb. 9: Gemessene und berechnete Temperaturen beim Abkühlen des Gebindes VW 1/15 (Versuch GTZ 870224)



<u>Abb. 10:</u> Vergleich zwischen gemessenen und berechneten Temperaturprofilen zu verschiedenen Zeitpunkten beim Abkühlen des Gebindes VW 1/15

telebene der Kokille für verschiedene Zeiten nach der Befüllung der Kokille VW1/15 dargestellt. Durch Vergleich zwischen gemessenen und gerechneten Temperaturen konnte der Wärmeübergang im Overpack auf ca. 6 W/m² K ermittelt werden. Temperaturrechnungen für die Zeit nach der Entnahme aus dem Overpack wurden mit Konvektions- und Stahlungsrandbedingungen mit einer Lufttemperatur von 25°C durchgeführt. Die Übereinstimmung zwischen gemessenen und berechneten Temperaturen ist gut: die maximalen Abweichungen betragen ca. 30°C.

5.2 Temperaturrechnung für eine etappenweise befüllte Kokille

Der Durchsatz des Schmelzers K2 reichte nicht aus, um "Cogemakokillen" mit 43 cm Durchmesser in nur einer Etappe zu befüllen. Deshalb wurde als Beispiel für Rechnungen mit ADINAT der zeitliche Verlauf der Zentraltemperatur bei Kokillen untersucht, bei denen sich die Befüllung einer Kokille über 2 bis 3 Etappen erstreckt mit jeweils mehreren Stunden Abstand. Das eingebrachte Glas kühlt sich in der Zwischenzeit ab und wird beim Einfüllen der nächsten Charge wieder erwärmt. Das Ziel der Rechnungen war festzustellen, ob infolge dieser gestörten Abkühlung Teilvolumina der Kokille längere Zeit oder mehrfach im Bereich der Transformationstemperatur verweilen.

Es wurde die Befüllung der Kokille Nr.7 (Kampagne V103) in 3 Etappen simuliert. Der Füllvorgang begann am 13.7. um 3.19 Uhr und dauerte bis 4.48 Uhr. Die 2. Etappe begann am 14.7. um 10.31 Uhr und endete um 12.37 Uhr. Die letzte Etappe verlief am 15.7. von 8.45 Uhr bis 11.35 Uhr. In der 1. Etappe wurden 145.0 kg Glas eingefüllt, in den folgenden 139,1 kg bzw. 136,3 kg.

Für das Rechenmodell wurde angenommen, daß die Kokille (43 cm Durchmesser) in 3 gleichen Chargen befüllt wird. Aus den Füllmengen und der Dichte des Glases (2.5 g/cm³) ergeben sich Füllhöhen von 40 cm je Etappe. Da außerdem der Befüllvorgang kurz ist (zwischen 1.5 und 3 Stunden) im Vergleich zu den Zwischenzeiten, kann angenommen werden, daß die jeweilige Charge instantan eingefüllt wird. Für die Rechnungen wird keine Auskleidung oder Abdeckung der Kokille in den Zwischenzeiten berücksichtigt. Als weitere Vereinfachung wird der Stahlmantel um das Glasprodukt nicht modelliert, sondern die Randbedingungen werden direkt an das Glas angekoppelt. Abb. 11 zeigt die Temperaturverläufe im Zentrum der zuerst einge-





füllten Charge und an der Grenzfläche zwischen der 1. und 2. Charge. An der Grenzfläche (in 40 cm Höhe) nimmt die Temperatur zu Beginn durch Abstrahlung und Konvektion rasch ab und beträgt nach 32 Stunden ca. 50°C. Durch das Einbringen der 2. Charge mit 1000°C wird die Grenzfläche wieder auf ca. 520°C aufgeheizt, danach fällt die Temperatur stetig ab und erreicht nach ca. 44 Stunden 200°C. Ein Einfluß durch das Einfüllen der 3. Charge nach 56 Stunden auf das weitere Abkühlen des unteren Drittels ist nicht zu beobachten.

In Zentrum des unteren Drittels (bei 20 cm Höhe) liegt die Temperatur nach 32 Stunden bei ca. 80°C. Das Einbringen der 2. Charge führt hier zu einem Temperaturanstieg auf ca. 120°C. Hier läßt sich erst recht kein Einfluß der 3. Charge feststellen. An der Grenzfläche zur 3. Charge steigt nach 56 Stunden die Temperatur von ca. 100°C auf ca. 560°C an. Ca. 7 Stunden später ist die Temperatur auf ca. 500°C abgesunken. Im Zentrum der mittleren Charge wird durch das Einbringen der 3. Charge die Temperatur für ca. 10 Stunden bei knapp 200°C gehalten.

5.3 Temperaturrechnungen für radioaktive Kokillen

Für die folgenden Rechnungen wurde von 17 Watt/l Wärmeleistung des HAW-Glases ausgegangen. Dieser Wert entspricht den Planungen für die Wiederaufarbeitungsanlage in Wackersdorf. Inaktive Kokillen kühlen je nach Wärmeabfuhr und Durchmesser innerhalb von 1 bis 2 Tagen ab. Bei aktiven Kokillen nimmt nach der Abfüllung die Temperatur des Glases zunächst wie im inaktiven Fall ab, nach einiger Zeit wird aber die Abkühlrate geringer. Schließlich stellt sich im Zentrum der Kokille eine Gleichgewichtstemperatur ein, die vom Durchmesser der Kokille, der Wärmeleistung und der Wärmeabfuhr am Kokillenmantel abhängt (bei konstanter Wärmeleitfähigkeit des HAW-Glases).

Unterstellt man Wärmeabfuhr durch Wärmestrahlung und Konvektionsvorgänge, kühlt eine rißfreie Kokille mit 30cm Durchmesser innerhalb von zwei Tagen auf ihre Gleichgewichtstemperatur im Zentrum von 204°C ab. Auf der Mantelfläche beträgt die Gleichgewichtstemperatur 126°C. Unter den gleichen Wärmeabfuhrbedingungen liegt die Gleichgewichtstemperatur einer Kokille mit 43cm Durchmesser im Zentrum bei 320°C und 160°C auf der Mantelfläche. Die Einstellung des Gleichgewichtes erfordert nahezu die doppelte Zeit. In Abbildung 12 ist der zeitliche Temperaturverlauf dargestellt, der unter Annahme der Wärmeabfuhr durch Strahlung und Konvektion berechnet wurde.

Der Einfluß eines Rißsystems auf die Gleichgewichtstemperatur und die Zeitdauer zu ihrer Einstellung wurde ebenfalls mit FE-Rechnungen analysiert. Es wurde ein Glasgebinde mit 0.43 m Durchmesser und 5 konzentrischen Rissen modelliert. Die Rißweite wurde zwischen 0.1 und 0.2 mm variiert. In radialer Richtung wurden einzelne Elemente zur Beschreibung der Spalte benutzt. Als Randbedingung wurde wieder Wärmeabfuhr durch Strahlung und Konvektion angenommen. In erster Näherung wurde für die Wärme-



Abb. 12: Berechneter zeitlicher Temperaturverlauf im Zentrum von Glasgebinden, die durch Konvektions- und Strahlungsvorgänge gekühlt wurden Anfangstemperatur : 1000°C Umgebungstemperatur : 20°C Wärmeleistung : 17 W/l

leitfähigkeit des Spaltes diejenige von Luft verwendet. Die berechneten Gleichgewichtstemperaturprofile sind in Abbildung 13 im Vergleich mit einem ungerissenen Glasprodukt dargestellt. Die Zentraltemperatur erhöht sich bei 0.1 mm Rissen um 13°C und um 27°C bei 0.2 mm breiten Rissen.

5.4 Spannungsaufbau im Glasvolumen

Die im Kapitel 5.4 vorgestellten Rechnungen und Ergebnisse beziehen sich ausschließlich auf Kokillen mit 0.43 m Durchmesser. Während der Abkühlperiode treten in einem Glasvolumen erhebliche vertikale und horizontale Temperaturgradienten auf. Zur Vermeidung undefinierter Anfangszustände



Abb. 13: Radiale Gleichgewichtstemperaturprofile in einem HAW-Gebinde mit 17 W/l Wärmeleistung mit und ohne Risse (konzentrisches Rißsystem aus 5 luftgekühlten Spalten)

wurden für die numerische Spannungsanalyse die komplexen Anfangsbedingungen und Gebindegeometrien vernachlässigt und von isothermen Anfangstemperaturen (T_i =850°C) und ausgewählten Abkühlbedingungen ausgegangen.

5.4.1 Anfangstemperatur unter Tg; spannungsfreier Anfangszustand

In diesem Fall wurde das Glas als thermoelastischer Block aufgefaßt. Wie erwartet, entwickeln sich beim Abkühlen Druckspannungen im Innern des Blocks und Zugspannungen in der Nähe des Zylindermantels. Mit abnehmendem radialen Temperaturgradient nehmen auch die Spannungen ab und verschwinden völlig, wenn der Glasblock die Gleichgewichtstemperatur erreicht hat. Die berechneten Spannungen beliefen sich, je nach Abkühlgeschwindigkeit auf über 50 MPa. Diese Rechnungen wurden zum Test des numerischen Modells durchgeführt. 5.4.2 Anfangstemperatur über Tg; inaktiver Fall

Kühlt sich ein Glaskörper mit einer Anfangstemperatur über Tg ab, können sich Spannungen aufbauen, die nach Erreichen der Gleichgewichtsbedingungen erhalten bleiben. Unterstellt man freie Abkühlung, d.h. Wärmeabfuhr durch Konvektion und Strahlung, betragen die berechneten Zugspannungen auf der Zylinderachse etwa 160 MPa. Derart hohe Zugspannungen sind für ein Abfallglasprodukt unrealistisch, da das Glas bereits bei niedrigeren Zugspannungen bricht. Die Maximale Zugfestigkeit von Borosilikatgläsern im elastischen Bereich wird mit 50 bis 60 MPa angegeben /24/. Nach dem Bruch erfolgt eine Spannungsumlagerung, die vom Ort und der Dimension des Risses abhängt. Mit dem Programm ADINA kann die Spannungsumlagerung z.Zt. nicht analysiert werden. Der Ort der Bruchentstehung ist zufällig und wird durch lokale Inhomogenitäten wie Poren oder Einschlüsse beeinflußt. Der kritische Spannungsintensitätsfaktor des Abfallglases GP 98/12 liegt zwischen 0.6 MPa m^{-2/3} bei 300°C und 0.86 MPa m^{-3/2} bei Raumtemperatur /21/. Unterstellt man die Gültigkeit des Griffith Kriteriums kann die kritische Rißlänge abgeschätzt werden, ab welcher ein Riß in einem einachsigen Spannungsfeld wächst /1/. Bei Zugspannungen von 50 MPa vergrö-Bern sich Risse ab einer Länge von etwa 0.1 mm.

einige Abkühlungsprozesse wurden Spannungsrechnungen durchgeführt. Für Rechnungen begannen bei einem isothermen Zustand bei 640°C, wie in Die Kap. 2.5 für die Herstellung von monolithischen Glasblöcken beschrieben. Es wurden Kühlgeschwindigkeiten von 4 K/h und 2 K/h eingestellt. Bei der Kühlgeschwindigkeit von 4 K/h betrug in den Glaskanistern mit 0.43 m Durchmesser die maximale Temperaturdifferenz zwischen Kokillenachse und -mantel ca. 40 K. Trotzdem traten einige Risse im Glasprodukt auf. Mit einer Kühlgeschwindigkeit von 2 K/h (maximale Temperaturdifferenz etwa 20 K) konnten monolitische Glasblöcke hergestellt werden. Die Temperatur- und Spannungsverteilungen wurden numerisch simuliert. In Abbildung 14 ist die zeitliche Entwicklung der Radial- und Axialspannungen für die verschiedenen Abkühlbedingungen dargestellt. Bei der Kühlgeschwindigkeit 2 K/h sind nur Druckspannungen zu beobachten, die von der Einspannung des Glaskörpers durch den Stahlbehälter herrühren. Bei Kühlung mit 4 K/h treten leichte Zugspannungen im Zentrum des Glasvolumens auf (7 MPa), während man bei relativ rascher Kühlung mit 5 W/m² K, die einer Abkühlung in einem Overpack entspricht, Zugspannungen bis 80 MPa berechnet. Die Zeit-



<u>Abb. 14:</u> Berechnete zeitliche Entwicklung der Radial- (σ_{rr}) und Axialspannung (σ_{ZZ}) im Zentrum eines simulierten HAW-Gebindes mit 0,43 m Durchmesser bei verschiedenen Kühlbedingungen

skala dieser Abbildung liefert auch eine Vorstellung über den Zeitbedarf, der benötigt wird, um Kanister mit 0.43 m so abzukühlen, daß monolithische Glasblöcke entstehen. Unterstellt man freie Abkühlung in Luft, wird auch der Wärmestrahlungsanteil, der besonders bei hohen Temperaturen wirksam ist, berücksichtigt; in diesem Fall belaufen sich die maximalen Zugspannungen auf ca. 160 MPa.

5.4.3 Anfangstemperatur über Tg; radioaktiver Fall

Rechnungen für heiße Abfallprodukte mit 17 W/l Wärmeleistung (2500 W/Kanister) zeigten, daß die absoluten Temperaturen im Glas von den Wärmeflußbedingungen außen an der Kokille abhängen. Wie in Kap. 5.3 beschrieben, beträgt im Gleichgewicht die Oberflächentemperatur einer Cogema Kokille 160°C, die Zentraltemperatur 320°C. Diese Zahlen belegen den permanent vorhandenenm Temperaturgradienten im Glasprodukt. Dieser Temperaturgradient ändert sich nur, wenn sich die Wärmeleistung des Glases durch den radioaktiven Zerfall ändert. Änderungen der Wärmeabfuhr an der Oberfläche der Kokille bewirken nur eine kurzzeitige Änderung des Temperaturgradienten, dieser stellt sich nach Erreichen der neuen Gleichgewichtstemperatur wieder ein.

Die Abbildung 15 zeigt die Veränderung der axialen Spannung, die sich in einem HAW Glasblock aufbaut, wenn seine Umgebungstemperatur von 200°C auf 250°C erhöht wird. Dabei erhöht sich die Zugspannung auf der Achse um etwa 20 MPa über die Gleichgewichtsspannung. Nach dem Temperaturausgleich fällt die Spannung wieder auf einen Wert ab, der nur geringfügig über dem vorherigen Spannungswert liegt. Diese geringe Erhöhung ist auf die leichte Änderung des Temperaturgradienten auf Grund der veränderten Wärmeleitfähigkeit bei der höheren absoluten Temperatur des Glasblocks zurückzu-



<u>Abb. 15:</u> Berechnete Änderung der Axialspannung im Zentrum eines HAW-Gebindes bei instantaner Erhöhung der Oberflächentemperatur von 200°C auf 250°C Wärmeleistung : 17 W/l Durchmesser : 0,43 m führen. Analog ist eine Abnahme der Zugspannung im axialen Bereich zu beobachten, wenn die Umgebungstemperatur erniedrigt wird (siehe Abbildung 16). Auch diese stellt sich nach dem Erreichen des neuen Gleichgewichtes wieder auf annähernd den Ausgangswert ein.



Abb. 16: Berechnete Änderung der Axialspannung im Zentrum eines HAW-Gebindes bei instanter Erniedrigung der Oberflächentemperatur von 200°C auf 100°C Wärmeleistung : 17 W/l Durchmesser : 0,43 m

Für das Nuklidgemisch der radioaktiven Abfälle, die in der WA Wackersdorf verglast werden sollen, kann angenommen werden, daß die Halbwertszeit zum Zeitpunkt der HAW-Verglasung bezüglich der Wärmeleistung ca. 30 Jahre beträgt. Innerhalb dieses Zeitraums nimmt auch der Temperaturgradient auf etwa die Hälfte ab. Mit dem Temperaturgradienten ändern sich auch die Spannungen im Glasvolumen. Nimmt man an, daß nach dem Abfüllen des Glases die Abkühlung so langsam vorgenommen wurde, daß sich der Temperaturgra-

dient nicht änderte und ein spannungsfreier Zustand eingefroren wurde, werden bei Abnahme der Wärmeleistung Zugspannungen im Glasprodukt aufgebaut. Anschaulich läßt sich der Vorgang verstehen, indem man sich die unterschiedlichen Wärmedehnungsbeträge vorstellt, die die inneren und äußeren Zonen eines Glasblocks erfahren. Da sich der gesamte Block (in spannungsfreiem Zustand) unter der Transformationstemperatur befindet, können keine plastischen Prozesse ablaufen; deshalb ist der Aufbau dieser Spannungen nicht von der Zeit abhängig. In einem Glasblock mit 0.43 m Durchmesser bildet sich im Zentrum innerhalb einer Halbwertszeit eine Zugspannung von 35 MPa aus, die bis zum völligen Abklingen der Radioaktivität auf 70 MPa anwächst (siehe Abbildung 17). Werden Abkühlprozesse angewandt, die zu einer Vorspannung der Glasprodukte führen, müssen diese Vorspannungen hinzu addiert werden.



<u>Abb. 17:</u> Berechneter Spannungsaufbau in einem HAW-Gebinde als Folge der verminderten Wärmeleistung durch den radioaktiven Zerfall. Zum Zeitpunkt t=0 wurde das System spannungsfrei angenommen. Wärmeleistung zum Zeitpunkt t=0 : 17 W/l Durchmesser : 0,43 m

5.5 Vergleich zwischen unterschiedlichen Behälterdurchmesser

Zum Verständnis des Spannungsaufbaus in HAW Glasgebinden werden im folgenden einige berechnete Vergleiche zwischen Gebinden der "Cogema" Typs und Gebinden mit 30 cm Durchmesser angestellt. Für beide Gebindetypen wurden die gleiche Diskretisierung (15 Radialelemente und 30 vertikale) und die gleichen Rand- bzw. Anfangsbedingungen gewählt. Bei der Simulades radioaktiven Zerfalls, wie im vorhergehenden Kapitel beschrietion ben. beträgt in Kokillen mit 0.3 m Durchmesser die maximale Zugspannung nach einer Halbwertszeit nur ca. 20 MPa und nach dem Abklingen ca. 40 MPa. Die Abbildung 18 zeigt die radialen Verteilungen der Axialspannungen für beiden Kokillentypen im Vergleich. Die durch die Abnahme der Wärmeleistung aufgebauten Spannungen sind im Falle der Kokille mit größerem Durchmesser deutlich höher.



<u>Abb. 18:</u> Berechneter Vergleich des Spannungsaufbaus als Folge der durch den radioaktiven Zerfall verminderten Wärmeleistung Anfangswärmeleistung : 17 W/l

Betrachtet man die sich aufbauenden Spannungen unter gleichen Abkühlbedingungen, zeigt sich unerwartenderweise, daß die Thermospannungen nahezu gleich sind. In Abbildung 19 ist die zeitliche Entwicklung des Spannungsaufbaus im Zentrum der beiden Kokillentypen miteinander verglichen. Als Abkühlprozess wurde freies Kühlen in Luft (Konvektion und Strahlung) unterstellt. Wegen des geringeren Durchmessers erfolgt die Abkühlung und der damit verbundene Spannungsaufbau in der Kokille mit 0,3 m Durchmesser rascher, als in der 0,43 m Kokille. Die Ursache für die nahezu gleichen Zugspannungen im Innern dieser Gebinde liegt an den vergleichbaren Temperaturgradienten während des Abkühlvorgangs.

Es wurden Rechnungen durchgeführt um den Einfluß der Wandstärke des Stahlbehälters zu untersuchen. Unter den hier getroffenen Modellannahmen ergaben sich keine wesentlichen Änderungen der berechneten Spannungen.



Abb. 19: Berechneter Spannungsaufbau beim Abkühlen von HAW-Gebinden durch Konvektion und Strahlung Wärmeleistung : 17 W/l

6. Diskussion

Während Modellrechnungen mit relativ geringem Aufwand durchgeführt werden können, sind Experimente erheblich aufwendiger. Nach anfänglichen Schwierigkeiten bei der Instrumentierung von Kokillen, die sich im Verbiegen der Thermoelemente beim Wiederaufheizen äußerten, konnten die Probleme durch Verwendung von Thermoelementhalteröhrchen vermieden werden. Durch den Bau eines neuen Temperstandes mit 0.75 m Durchmesser und 1.5 m Höhe konnten auch "Cogemakokillen" aufgeheizt und gezielt abgekühlt werden.

Gute Übereinstimmung zwischen gemessenen und berechneten Abkühlvorgängen wurde mit dem FE Programm ADINAT bei Verwendung der aufgeführten Daten erzielt. Deshalb kann angenommen werden, daß die Vorhersagen für radioaktive Kokillen belastbar sind. Sicher müssen bei den Temperaturberechnungen für konkrete Fälle die Umgebungsbedingungen eingehender modelliert werden. Hierzu gehören auch Vorgänge, denen die Abfallgebinde nach der Abfüllung unterworfen sind, wie zum Beispiel Verschweißen des Deckels, Dekontaminieren, Transportvorgänge usw..

Für die Spannungsrechnungen ist anzumerken, daß ein stark vereinfachtes Modell untersucht wurde. Die Spannungsrechnungen gingen von isothermischen und spannungsfreien Zuständen aus. Einfache Modellannahmen wurden an Stelle der wirklichen Abkühlprozesse betrachtet. Der viskose Zustand des Glases wurde ebenfalls ignoriert, denn es wurden nur der flüssige Zustand (Zeiten kleiner als "birth of element") und der thermoelastische Zustand berücksichtigt. Die Beachtung viskoelastischer Vorgänge führt zu nicht spannungsfreien Zuständen am Transformationspunkt. Außerdem hängen die tatsächlichen Spannungen von der Homogenität des Glasprodukts ab. Die hier durchgeführten Rechnungen geben keinen Aufschluß über das Auftreten und die Geometrie von Rissen. Trotzdem erlauben die Spannungsanalysen Rückschlüsse auf das Auftreten bzw Vermeiden von Rissen, wie anhand der beschriebenen Experimente gezeigt wurde.

Rechnungen mit der vorgestellten Methode wurden auch auf das Tempern von Glasplatten angewandt. Es wurden umfangreiche Analysen der bei den hohen Kühlgeschwindigkeiten erforderlichen räumlichen und zeitlichen Diskretisierungen durchgeführt. Zwar konnte in Randnähe ein Spannungsverlauf berechnet werden, der dem publizierten /3/ analog war, doch im Zentrum der Platte ergaben sich starke Abweichungen. Offensichtlich war für diesen Fall das verwendete Modell nicht anwendbar.

Es ließ sich zeigen, daß bei vorsichtigem Abkühlen von hochradioaktiven Gebinden Temperaturgradienten im Glas eingefroren werden. Diese führen beim Abklingen der Wärmeleistung des Produkts zum Aufbau von Zugspannungen im Innern, so daß bei derart behandelten Glasblöcken relativ lange Zeit nach der Herstellung mit Rissen gerechnet werden muß. Wie die Temperaturgradienten hängen auch die resultierenden Spannungen vom Durchmesser der HAW Gebinde ab. Der Spannungsaufbau in einem Gebinde mit 30 cm Durchmesser beläuft sich nur auf die Hälfte dessen, der sich in einem Gebinde mit 0.43 m Durchmesser ergibt. Während der Transportvorgänge und der Zwischenlagerung der HAW Gebinde, sind Änderungen der Umgebungstemperaturen und somit der Wärmeabfuhrbedingungen (von den Kanisteroberflächen) kaum zu vermeiden. Wie berechnet wurde, können hierdurch ebenfalls vorübergehende Zugspannungen aufgebaut werden, die sich im ungestörten Glasblock zwar wieder abbauen können, die aber auch das Entstehen von Rissen auslösen können. Aus diesen Untersuchungen ergibt sich, daß es erfolgreicher sein wird, die Herstellung von monolithischen Glasblöcken gegen Ende einer Zwischenlagerung vorzunehmen.

Nachdem die Bedingungen, unter denen Risse in einem HAW Glasprodukt aufdiskutiert wurden, sollten einige Überlegungen über die Bedeutreten. tung eines Rißsystems in einen HAW Glasprodukt angestellt werden. Wie im Kapitel 5.3 gezeigt, führen konzentrische Risse zu relativ geringen Erhöhungen der Zentraltemperaturen. Radiale Risse und Zwickelrisse beeinflussen die Wärmeabfuhr nur mit ihren konzentrischen Komponenten. Bei der Auslegung der maximalen Temperaturen in einem HAW-Gebinde müssen Risse daher nicht als limitierende Größe angesehen werden. Wesentlicher für die tatsächlichen Zentraltemperaturen der HAW Gebinde sind die Wärmeabfuhrbedingungen nach der Abfüllung und im Zwischenlager. Einfluß auf die sich einstellenden Spannungen hat auch der Stahlbehälter, der das Glasprodukt spielen das verwendete Material, die Wandstärke und innere umgibt. Hier Vorspannungen eine Rolle. Detailierte Rechnungen wurden hierzu nicht durchgeführt, da z. Zt. nur dünnwandige Behälter berücksichtigt werden.

Die Auswirkungen eines Rißsystems in HAW-Glasprodukten in einem Endlager hängen wesentlich vom Endlagerkonzept ab. Nach dem derzeitigen Konzept in der Bundesrepublik Deutschland soll die Endlagerung von HAW in einer Steinsalzformation in Bohrlöcher erfolgen. Nach der Befüllung eines Bohrlochs bis ca. 10 m unterhalb der Strecke mit HAW Gebinden, wird es mit einem Stopfen verschlossen und die Strecke wird nach Beendigung der Einlagerung ebenfalls verfüllt und verschlossen. Es bildet sich ein Temperaturfeld aus, das von der Wärmeleistung des Abfalls, dessen Alter und der Lagergeometrie abhängt. Der ursprünglich vorhandene Ringspalt zwischen den Gebinden und dem festen Steinsalz wird durch die Konvergenz des Steinsalzes bei den herrschenden Drücken von über 20 MPa und Temperaturen um 200°C schnell geschlossen /25/. Somit wird innerhalb relativ kurzer Zeit ein fester Einschluß der Abfälle in die Salzformation erreicht. Der Einschluß bewirkt, daß auch gerissene HAW Produkte nicht als einzelne Fragmente verteilt vorliegen sondern in ihren Verband bleiben.

Die im Falle eines Laugenzutritts in ein HAW Bohrloch einfließende Laugenmenge hängt vom verfügbaren Restvolumen ab. Dieses wird in der Nachbetriebsphase eines Endlagers im Steinsalz durch die Form der Gebinde und ihres nicht mit Glasprodukt verfüllten Restvolumens beeinflußt. Der Laugendruck in einem HAW Bohrloch liegt zwischen dem hydrostatischen Druck in der Endlagerteufe und dem Gebirgsdruck. Deshalb kann angenommen werden, daß wenn ein HAW-Behälter defekt ist, alle inneren Oberflächen des Abfallproduktes benetzt werden. Da der Kornverband des Gebindes jedoch erhalten bleibt, hängt die aus einem gerissenen HAW-Produkt ausgelaugte Aktivität von den Transportprozessen in den Rißsystemen ab. Die Freisetzung aus Rißsystemen wird derzeit experimentell untersucht.

- 7. Literatur
- /1/ Kerkhof, F. Mechanik und Bruchfestigkeit in Ed.: Jebsen - Marwedel, H., Brückner, R. Glastechnische Fabrikationsfehler Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York (1980), S. 50 ff
- /2/ Weymann, H.D. A Thermoelastic Description of the Tempering of Glass J. Am. Ceramic Soc. 45, No. 11, 517 (1962)
- /3/ Blank, K. Thermisch vorgespanntes Glas Glastechn. Ber. 52, Nr. 1, 1 (1979)
- /4/ Kahl, L. Qualitätssicherung von 1:1-Gebinden mit Glasprodukt in: Institut für Nukleare Entsorgungstechnik Ergebnisbericht über Forschungs- und Entwicklungsarbeiten 1986 KfK 4228 (1987), S. 18
- /5/ Peters, R.D.; Slate, S.C. Fracturing of Simulated High-Level Waste Glass in Canisters Nucl. Eng. Design 67, 425 (1981)
- /6/ Farnsworth, R.K. Model Predictions of Glass Fracturing in Canisters During Decontamination PNL-SA-13812 (1986)
- /7/ Faletti D.W., Etheridge L.J. A Method for Predicting Fracture in Waste Glass Canisters. PNL-5947, 1986
- /8/ H. Richter, H. Stöckl, L. Kahl unveröffentlichter Bericht des Kernforschungszentrums Karlsruhe (1985)

- /9/ P. Jax unveröffentlichter Bericht des Kernforschungszentrums Karlsruhe (1981)
- /10/ W. Storch unveröffentlichter Bericht des Kernforschungszentrums Karlsruhe (1984)
- /11/ G. Roth, W. Grünewald, H. Koschorke unveröffentlichter Bericht des Kernforschungszentrums Karlsruhe (1986)
- /12/ Martin, D.M.
 Fracture in Glass/High-Level Waste Canisters
 NUREG/CR-4198 (1985)
- /13/ Carborundum
 Fiberfrax Handbuch
 Carborundum Resistant Materials G.m.b.H.
 Düsseldorf (1984)
- /14/ Luckscheiter B. persönliche Mitteilung (1986)
- /15/ Mendel J. E. et al Annual Report on the Characteristics of High-Level Waste Glasses BNWL-2252, 1977
- /16/ Sato S., Furuya H., Nishino Y., Sugisaki M. Thermal conductivity of simulated radioactive waste glass Nuclear Technology Vol 70, 235 - 242, 1985
- /17/ Blazek A., Endrys J., Kada J., Stanek J. Strahlungswärmeleitfähigkeit von Glas - Einfluß der Glaszusammensetzung auf seine Wärmedurchlässigkeit -Glastechnische Berichte Vol. 49, 75 - 81, 1976

- /18/ Martens R. M. Kalorimetrische Untersuchung der kinetischen Parameter im Glastransformations-Bereich bei Gläsern im System Diopsid-Anorthit-Albit und bei einem NBS-710-Standardglas Dissertation Johann Wolfgang Goethe-Universität, Frankfurt, 1985
- /19/ Ashly, M.F. Jones, D.R.H. Engineering Materials II Pergamon Press, Oxford (1986)
- /20/ Richter H., Offermann P. Characterisation of mechanical properties of nuclear waste glasses. in: Scientific Basis for Radioactive Waste Management V Proceedings of the Material Research Society Fifth International Symposium on the Scientific Basis for Nuclear Waste Management 7. - 10. Juni 1982, Berlin Ed.: W. Lutze, 229 - 238 Elsevier Science Publishing Co., Inc., New York, 1982
- /21/ Matzke H., Toscano E., Routbort J., Reimann K. Temperatur Dependence of Fracture Toughness and Elastic Moduli of a Waste Glass. Journal of the American Ceramic Society Vol. 69, No. 7, pp. C-138 - C-139, 1986
- /22/ ADINA Engineering AB A Finite Element Program for Automatic Dynamic Incremental Nonlinear Analysis of Temperatures Report AE 81-2 Västeras, Schweden (1981)
- /23/ IKKOS FEMGEN Users Manual Stuttgart (1980)

- /24/ ADINA Engineering Inc. ADINA-A Finite Element Program for Automatic Dynamic Incremental Nonlinear Analysis Report AE 81-1, ADINA Engineering Inc. Watertown, Massachusetts, (Sept. 1981, Revised Dec. 1984).
- /25/ Pudewills, A., Korthaus, E., Köster, R. H. Model Calculations of the Thermomechanical Effects in the Near Field of a High-level Radioactive Waste Disposal Nuclear Technology, Vol. 82, 71 - 80, 1988