

**Über den Stand von
Wissenschaft und Technik in
Fragen der Mikrostruktur von
Hochabbrandbrennelementen**

Gutachten

von

Dr. Wilfried Attenberger

Landshut
September 2004

1 Anlaß

Das Bundesamt für Strahlenschutz hat die Genehmigungen für den Betrieb von Standortzwischenlagern in ganz Deutschland erteilt¹ (z.B. [1]). Die Genehmigungsdauer, die in allen Fällen 40 Jahre beträgt, ist nach Kenntnisstand des Verfassers weltweit einzigartig. Eine Wartung der Behälter im Sinne von Öffnung und Prüfung der Brennelemente ist nicht vorgesehen. Da die Unterkritikalität des Behälterinventars nur dann sicher gegeben ist, wenn die Geometrie beibehalten wird, ist die sichere mechanische Integrität der Brennstäbe eine Voraussetzung für den Betrieb des Lagers. Die Langzeitstabilität der Brennelemente wird von der Genehmigungsbehörde als gesichert angesehen ([1] S.91).

Der maximale Abbrand der Brennelemente bei der Einlagerung ist zumindest bei den in Bayern liegenden Zwischenlagern einheitlich geregelt [1, 2, 3]. Er soll 65GWd/Mg bei Uran-Brennelementen und 50 GWd/Mg bei Mischoxyd-Brennelementen erreichen. Der minimale Abbrand der Brennelemente vor der Einlagerung ist 9 GWd/Mg. Der maximale Brennstababbrand liegt noch über diesen Werten, bei ca. 72 GWd/Mg. Ein noch höherer Brennelement-Abbrand von 75 GWd/Mg war beantragt und wurde nicht beschieden.

Im Folgenden soll untersucht werden, ob nach Stand von Wissenschaft und Technik ein systematisches Versagen der Hüllrohre der Brennelemente sicher ausgeschlossen werden kann. Dabei ist zu beachten, daß der Behälter auch am Ende der Lagerzeit noch verkehrsfähig sein muß.

2 Begutachtung

In allen dem Autor vorliegenden Gutachten wird die Langzeitstabilität der Brennelemente immer mit demselben Verfahren begutachtet (z.B. [4]):

1. Axiale und tangential Dehnung während des Reaktorbetriebs werden mit einem Brennstabauslegungsprogramm berechnet.
2. Die Hüllrohrumfangsdehnung während der Lagerung wird aus materialabhängigen Kriechgesetzen hergeleitet.
3. Aus dem Brennstabinnendruck und der zugehörigen Geometrie wird mit der Kesselformel die zugehörige tangentiale Kriechdehnung ermittelt.

¹Die einzelnen Standorte sind: Biblis, Brokdorf, Brunsbüttel, Grafenrheinfeld, Grohnde, Gundremmingen, Isar, Krümmel, Lingen, Neckarwestheim, Phillipsburg und Unterweser

4. Wenn die ermittelte Dehnung unter dem Grenzwert bleibt, gilt die Langzeitstabilität als erwiesen.

Es stellt sich die Frage, ob diese Vorgehen abdeckend für alle möglichen Schädigungen der Brennelementhülle ist. Um dies zu klären ist es notwendig, die Struktur der Brennelemente, insbesondere nach ihrem Einsatz im Reaktor, genauer zu betrachten. Danach wird der Einfluß der Struktur auf das Verfahren der Begutachtung untersucht.

3 Struktur der Brennelemente

Neue Brennelemente bestehen vor ihrem Einsatz im Reaktor aus einem Hüllrohr aus einer Zirkonlegierung (Zirkalloy), das mit dem Brennstoff (Uranoxyd) in Form von Pellets gefüllt ist. Während des Abbrandes im Reaktor treten durch die hohe Radioaktivität große strukturelle Änderungen auf (z.B. [5]).

Diese werden einerseits durch die Entstehung von mittelschweren Kernen aufgrund der Kernspaltung hervorgerufen. Dadurch kommt es im Brennstab zu Entmischungen und chemischen Reaktionen. Andererseits führt die radioaktive Strahlung zu mikrostrukturellen Schäden, die sich bis in den makroskopischen Bereich fortentwickeln können. Dazu kommt noch der hohe Innendruck der Brennelemente aufgrund der entstehenden Gase.

All dies ist nach der Entnahme des Brennelements aus dem Reaktor noch nicht abgeschlossen, sondern entwickelt sich während der Lagerung weiter. Der Grund dafür ist das weiterhin hohe Strahlungsniveau im Brennstab in Verbindung mit den dabei entstehenden Temperaturen.

4 Primäre Schädigungsmechanismen

Die Wechselwirkung von Festkörpern mit Strahlung erfolgt primär über atomare Stoßprozesse. Dabei erfolgt die Wechselwirkung entweder mit einem einzelnen Atom oder mit dem kollektiven Kristallgitter. Dieses wird dabei gestört. Diese Gitterfehler können dann bis zu makroskopischen Schäden im Material wachsen. Der entsprechende Verlauf soll im Folgenden dargestellt werden.

4.1 Direkte Stöße

Bei direkten Stößen der Strahlung mit den Atomkernen des Kristallgitters werden diese, wenn die übertragene Energie die Bindungsenergie übersteigt, aus ihrer

Position geschlagen. Übrig bleibt ein sogenanntes Frenkelpaar bestehend aus einer Gitterleerstelle und einem Atom auf einem Zwischengitterplatz. Diese Art von Gitterfehler ist üblicherweise nur metastabil [6]. Beide Partner können aber durch das Gitter diffundieren, wobei die Diffusion einer Leerstelle immer die Diffusion von Atomen in die entgegengesetzte Richtung bedeutet. Während dieses Prozesses kann das Frenkelpaar rekombinieren oder als Ausgangspunkt für eine weitere Schadensentwicklung dienen.

4.2 Stoßkaskaden

Aus ihrer Gitterposition geschlagene Atome des Kristallgitters können, ausreichende Energie vorausgesetzt, weitere Stoßprozesse auslösen und so eine ganze Stoßkaskade erzeugen. An einer derartigen Kaskade können durchaus mehrere hundert bis tausend Atome beteiligt sein. Jedes an der Kaskade beteiligte Atom bildet zunächst ein Frenkelpaar. Durch die auf einen engen Raum begrenzten Gitterfehler ist die Schadensentwicklung, wie sie weiter unten dargestellt wird, stark beschleunigt.

Stoßkaskaden treten in Brennelementen im wesentlichen bei α -Strahlung auf, da hier die Energie am effizientesten übertragen wird.

4.3 Thermal spikes

Über einen Stoß mit einem einzelnen Atom hinaus kann die Wechselwirkung auch kollektiv mit dem Festkörper erfolgen. Dies ist einerseits möglich durch eine Wechselwirkung mit den Elektronen, die zur Bindung des Gitters beitragen. Dies führt zu einer Erwärmung des Materials. Andererseits kann der Stoß auch mit dem Gitter der Atomrümpfe erfolgen, ohne daß ein Atom primär aus seiner Gitterposition bewegt wird.

Bei einem Stoß mit dem Atomgitter kann somit eine Gruppe von einigen tausend Atomen angeregt werden. Die lokale Temperatur wird dabei weit über den Schmelzpunkt angehoben. Die mathematische Behandlung kann analog zu einem Flüssigkeitstropfen in einem Festkörper erfolgen. Die Rekristallisation erfolgt ausgehend von den Rändern dieses Tropfens. Eine detaillierte Behandlung findet man unter [14]. Diese Rekristallisation erfolgt nicht zwangsläufig in derselben Gitterstruktur wie vor dem Stoß. Erfolgt die Rekristallisation zu langsam, bleibt ein amorpher Bereich in einem kristallinen Umfeld zurück. Dies führt zu einer Volumenerhöhung und Spannungen.

In diesem Fall kann die Schädigung eines Brennelements durch radioaktive

Strahlung nach der Entnahme aus dem Reaktor aufgrund der geringeren Umgebungstemperatur durchaus höher sein, als während des Betriebs.

5 Schadensentwicklung

Durch die vorgenannten Prozesse werden primäre Gitterschäden erzeugt. Sowohl Leerstellen als auch Zwischengitteratome können durch den Festkörper diffundieren. Die Schädigung des Materials entwickelt sich weiter bis zu makroskopischen Schäden. Im folgenden werden verschiedene Stationen dieser Entwicklung dargestellt.

5.1 Stabilisierung von Gitterfehlern

Da Frenkelpaare im allgemeinen instabil sind, können sie rekombinieren und den Gitterschaden heilen. Anwesender Wasserstoff oder Helium sind aber in der Lage, die Gitterfehler zu stabilisieren [15]. Zusätzlich sorgt die erhöhte Umgebungstemperatur für eine stark verlängerte Lebensdauer der Gitterfehler, was die weitere Entwicklung zu stabilen Gitterfehlern fördert [6].

5.2 Leerstellencluster

Gitterleerstellen sind bei den meisten Elementen im Festkörper mobil. Sie können geladen oder ungeladen sein und Wechselwirkungen untereinander eingehen. Wenn die atomaren Bindungen bei Annäherung von Leerstellen aneinander abgesättigt werden, baut sich ein Dimer oder Polymer von Leerstellen bis hin zum Leerstellencluster auf. Diese Cluster sind stabil und dienen als Keim für eine weitere Entwicklung der Gitterschäden. Insbesondere können sie als Keime für die Bildung von Hohlräumen dienen.

5.3 Hohlräume

Hohlräume können sich in Anwesenheit von Gitterfehlern in vielen Materialien spontan bilden (z.B. fast alle Arten von Metallen [16] oder Zirkalloy[15]). Sie sind ab einer vom Material abhängigen Mindestgröße stabil und können dann weiterwachsen. Die Dichte des Materials nimmt dann ab - ebenso wie seine mechanische Stabilität. Bei Zirkalloy wird in der Literatur [15] das Abplatzen von Plättchen an der Oberfläche beschrieben. Eine derartige Schädigung über einen längeren Zeitraum ist kumulativ.

6 Sekundäre Schädigungsmechanismen

Die mikroskopischen Veränderungen, die durch die Strahlung in den Brennelementen eingebracht werden, führen zu makroskopischen Änderungen. Diese Änderungen können die Stabilität des Brennelements bedrohen.

6.1 Entmischung

Die bei der Kernspaltung entstehenden mittelschweren Elemente führen zu verschiedenen chemischen Reaktionen. Insbesondere Metalle neigen zur Ausscheidung aus der Uranoxyd-Matrix. Dabei wird sich das Volumen des Materials erhöhen, was zu einer Druckerhöhung im Brennelement führt. Eine Detektion durch die Messung des Durchmessers des Brennstabes ist machbar. Dieser Prozeß läuft allerdings nach der Einlagerung weiter. Die Belastung des Hüllrohrs steigt nach der Entladung aus dem Reaktor an, da der Gegendruck durch das Betriebsmedium entfällt. Ein Hüllrohrversagen wird nach längerer Lagerung immer wahrscheinlicher.

6.2 Plateletbildung

Zirkalloy zeigt die für viele Materialien typische Plateletbildung [15]. Dabei ordnen sich Gitterfehler bevorzugt parallel zu Gitterebenen an und führen dann zu einer Spaltung des Materials entlang dieser Gitterebenen. Läuft dieser Prozeß nahe einer Oberfläche ab, brechen kleine Plättchen aus der Oberfläche heraus.

6.3 Bonding

Mit dem Begriff Bonding bezeichnet man die Verbindung zweier ursprünglich getrennter Festkörper durch die atomaren Kräfte ihrer Oberflächen. Sie sind nach diesem Prozeß zu einem einzigen Festkörper zusammengewachsen. Dies wurde auch zwischen dem Hüllrohr und einem Pellet beobachtet [17]. Aufgrund der unterschiedlichen Wärmeausdehnungskoeffizienten kann dies zu großen Spannungen im Material führen, die insbesondere nur sehr schwer durch makroskopische Messungen ermittelt werden können (Tangentiale Druck- und Zugspannungen). Über einen langen Zeitraum ist die Entstehung von Mikrorissen und damit die Schwächung der Hüllrohre zu erwarten.

6.4 Swelling

Durch das Einbringen von Gitterfehlern und die Bildung von Hohlräumen sinkt die Dichte von bestahlten Materialien. Dadurch steigt ihr Volumen. Diesen Prozeß bezeichnet man als Swelling. Entmischung und Entstehung von Gasblasen wurden

in Brennelementen beobachtet [18]. Damit kommt zu der Belastung der Hüllrohre durch den Gasdruck eine Belastung durch Materialdruck hinzu.

7 Strukturentwicklung während der Lagerung

Erfahrungen mit der trockenen Zwischenlagerung von abgebrannten Brennelementen existieren nur für einen Zeitraum von ca. 10 Jahren [12]. Allerdings kamen nur Brennelemente mit geringem Abbrand zur Einlagerung. Über die Strukturentwicklung von Brennelementen mit mittlerem und hohem Abbrand über eine Lagerdauer von 40 Jahren sind dem Autor keine experimentellen Daten bekannt. Eine Fortschreibung der Kurzzeitdaten ist nicht möglich, da die oben beschriebenen Prozesse teilweise hochgradig nichtlinear verlaufen können.

8 Mikrostrukturuntersuchungen

Es gibt eine Anzahl von wissenschaftlichen Untersuchungen zum Thema Mikrostrukturentwicklung von Brennelementen (z.B. [17, 18]). Es wird zwar ausschließlich die Struktur von Brennelementen unmittelbar im Anschluß an die Entnahme aus dem Reaktor behandelt. Die in diesem Gutachten beschriebene Änderung der inneren Struktur der Brennelemente ist dadurch experimentell verifiziert. Diese Erkenntnisse wurden bei der Genehmigung der Zwischenlager nicht beachtet.

9 Kesselformel

Wie in Kapitel 2 dargestellt, wird eine Sicherheit der Stabilität der Brennstäbe im wesentlichen aus der sogenannten Kesselformel hergeleitet. Sie setzt ein langes Rohr mit konischen Enden voraus, welches von innen mit Druck (skalar) beaufschlagt wird. Dies bedeutet, daß die Kraft auf das Rohr immer parallel zur Normalen der Behälterwand angreift. Außerdem wird für die Wand des Rohres homogenes Material angenommen. Ist eine der Voraussetzungen nicht gegeben, ist die Herleitung hinfällig und die Formel kann nicht mehr angewendet werden.

Aufgrund der Veränderungen des Brennstabes kommt es zu Spannungen im Hüllrohr, die nicht mehr nur in Normalenrichtung auftreten. Der Inhalt der Brennstäbe hat eine feste Verbindung mit dem Hüllrohr eingegangen. Wie aus dem Gutachten [19] hervorgeht ist dies den Antragstellern bekannt. Die Brennstäbe mußten für die Prüfung mit einem großen Schlagbohrer ausgebohrt werden.

Bei der Berechnung von Hochdruckleitungen führt schon eine nicht mehr vernachlässigbare Belastung durch die Erdbedeckung zur Ungültigkeit der Kesselformel. Diese Einflüsse sind auch nicht durch Zuschläge abdeckbar [8].

Auch im Gutachten der TÜV Hannover zum Transportbehälterlager Gorleben [9] wird ausgesagt (S. 50):

Legt man konservative Bedingungen der Brennelementauslegung zugrunde und berücksichtigt, daß durch lokal begrenzte Hüllrohrveränderungen (wie Verformungen, Korrosionsangriffe) im Zusammenwirken zum Beispiel mit Spaltprodukten bei den im Hüllrohr vorherrschenden Spannungen das Verhalten der Hüllrohre beeinflußt wird, können wir nicht ausschließen, daß Defekte in Hüllrohren auftreten. Die Anzahl der möglichen Defekte kann beim heutigen Kenntnisstand nicht quantifiziert werden.

Die aus dieser Feststellung gebotene Schlußfolgerung, daß die gewählte Näherung mit der Kesselformel nicht mehr statthaft ist, wird leider nicht gezogen.

In den Gutachten des TÜV Hannover/Sachsen-Anhalt e.V. zu den Brennelementelagern Gundremmingen [10] und Grafenrheinfeld [11] wird nur noch auf die Spannungsrißkorrosion eingegangen. Die Frage der Anwendbarkeit der Kesselformel wird nicht untersucht.

10 Schlußfolgerungen

Eine seriöse Voraussage über die Langzeitstabilität von abgebrannten Brennstäben, insbesondere bei Hochabbrandsbrennelementen kann man heute nicht geben. Allerdings sind ausreichend physikalische Effekte bekannt, aufgrund derer man höchste Vorsicht walten lassen muß. Eine lineare Interpolation der nach dem Abbrand vorgefundenen Struktur über die Dauer der Lagerung ist im Allgemeinen unzulässig.

Es ist zwar löblich, daß die RSK [12] Untersuchungsprogramme während der Lagerung fordert. Es ist aber klar, daß nach dem Stand von Wissenschaft und Technik Aussagen über die Langzeitstabilität nicht getroffen werden können. Die von den Einwendern geäußerten Zweifel stellen keine Minderheitsmeinung dar.

Da eine gesicherte Aussage über das Langzeitverhalten der Brennstäbe nicht getroffen werden kann, ist eine Einlagerung in der geplanten Form mit unabsehbaren Risiken verbunden.

A Anhang: Strahlungsarten

Die physikalische Grundlage der Veränderungen der Brennelemente ist die im Reaktor und nach dem Entladen im Brennelement entstehende radioaktive Strahlung. Dabei sind drei Typen dieser Strahlung für die Schädigungsprozesse relevant. In diesem Abschnitt sollen diese kurz dargestellt werden. Eine detaillierte Einführung findet man in [7].

A.1 α -Strahlung

Die α -Strahlung besteht aus Heliumkernen, die durch einen Zerfall von Atomkernen mit einem Protonenüberschuß entstehen. Sie besitzt eine hohe Energie im Bereich von einigen keV bis mehreren MeV. Durch den großen Streuquerschnitt ist ihre Reichweite in Materie äußerst gering. Die übertragene Energie und der durch die hohe Masse (4 Amu) bedingte hohe Impuls der α -Teilchen reicht aus, um in einem Kristallgitter gebundene Atome von ihrem Gitterplatz zu entfernen. Dies zusammengenommen erzeugt eine lokal begrenzte, starke Schädigung des Materials.

Da die Fluenz der α -Strahlung im Brennelement hoch ist und ein überwiegender Teil der entstehenden α -Strahlung noch im Brennelement absorbiert wird, bewirkt dies dort eine strukturelle Schädigung.

Zusätzlich können die nach dem Stoßprozess im Kernbrennstab verbliebenen Heliumatome eine Stabilisierung von Strukturschäden bewirken. [13]. Dies führt dazu, daß die Schädigung des Brennstabes überlinear mit der Fluenz steigt.

A.2 β^- -Strahlung

β^- -Strahlung entsteht in Kernen, bei denen ein überschüssiges Neutron in ein Elektron und ein Proton (und ein Anti-Elektron-Neutrino) zerfällt. Das Elektron und das Neutrino verlassen den Kern. Durch die geringere Masse der Elektronen ist die strukturelle Schädigung nicht so stark wie die durch α -Strahlung, da der Wirkungsquerschnitt bei Stoß mit einem Kern geringer ist und die Energie aufgrund der unterschiedlichen Massen nicht so effektiv übertragen wird.

Die Energie wird überwiegend im elektronischen System deponiert (d.h. auf die Elektronen der Materialien des Brennstabes übertragen) und trägt so zur lokalen Erwärmung bei. Dadurch wird großer Einfluß auf die Entwicklung vorhandener Gitterschäden genommen.

A.3 n⁰-Strahlung

Die Neutronenstrahlung entsteht im Reaktor bei der Kernspaltung in hoher Intensität. Bei jeder Spaltung eines Urankerns in zwei mittelschwere Kerne werden drei Neutronen frei, von denen im Betrieb im Mittel eines einen weiteren Kern spaltet und die beiden anderen den Brennstab verlassen. Die Stoßwahrscheinlichkeit eines Neutrons mit einem Atomkern in einem Kristallgitter (respektive Atom in amorpher Matriox) ist zwar gering, was die Reichweite erhöht, aber durch die Masse von 1 Amu und die hohe Energie ist ein Neutron in der Lage, ein Atom von seinem Gitterplatz zu entfernen.

Obwohl in den im Brennelementbehälter gelagerten Brennstäben keine Kettenreaktion mehr stattfindet, kommt es weiterhin zu unterkritischen Spaltprozessen mit einer Fluenz im Bereich $5 \cdot 10^9$ bei Uranbrennelementen und von $3 \cdot 10^{10}$ bei MOX-Brennelementen.

Literatur

- [1] Bundesamt für Strahlenschutz; *Genehmigung zur Aufbewahrung von Kernbrennstoffen im Standortzwischenlager Grafenrheinfeld*; AZ GZ-V1-8554 510
- [2] Bundesamt für Strahlenschutz; *Genehmigung zur Aufbewahrung von Kernbrennstoffen im Standortzwischenlager Gundremmingen*; AZ GZ-V3-85345 10
- [3] Bundesamt für Strahlenschutz; *Genehmigung zur Aufbewahrung von Kernbrennstoffen im Standortzwischenlager Niederaichbach*; AZ GZ-V1-8551 510
- [4] TÜV Hannover/Sachsen-Anhalt e.V.; *Gutachten zum Transportbehälterlager Gorleben; Lagerung von Uran- und MOX-Brennelementen in Behältern der Bauart Castor V/19*; März 1995
- [5] R. Manzel, C.T. Walker; J. Nuc. Mat. 301 (2002) 170
- [6] Ch. Kittel; *Einführung in die Festkörperphysik*; R. Oldenburgverlag; München 1993
- [7] T. Mayer-Kuckuck; *Kernphysik*; 5. Auflage; Teubner Verlag; Stuttgart 1992
- [8] M.Veenker; 3R international (40) Heft 10-11 (2001), p.651 ff
- [9] Technischer Überwachungsverein Hannover; *Gutachten zum Transportbehälterlager Gorleben*; November 1982

- [10] TÜV Hannover/Sachsen-Anhalt e.V.; *Gutachten zum Standort-Zwischenlager Gundremmingen; Lagerung von bestrahlten Uran- und MOX-Brennelementen in Behältern der Bauart Castor V/52*; Dezember 2003
- [11] TÜV Hannover/Sachsen-Anhalt e.V.; *Gutachten zum Standort-Zwischenlager Grafenrheinfeld; Lagerung von bestrahlten Uran- und MOX-Brennelementen in Behältern der Bauart Castor V/19 ab Seriennummer 06*; Februar 2003
- [12] M. Sailer, B. Kallenbacher-Herbert; *Langzeitaspekte der Brennelement-Zwischenlagerung*; atw 48 (2003) 8/9
- [13] G.C. Cerofolini, F. Corni, S. Frabboni, C. Nobili, G. Ottaviani, R. Tonnini; *Mat. Sci and Eng.* **27** (2000) 1
- [14] R.A. Johnson and A.N. Orlov (ed.); *Physics of Radiation Effects in Crystals*; Elsevier; Amsterdam 1986
- [15] V. Shutthanandan, S. Thevuthasan, J.S. Young, T.M. Orlando, W.J. Weber; *J. Nuc. Mat.* 289 (2001) 128
- [16] K. Krishan; *Ordering of Voids and Gas Bubbles in Radiation Environments*; *Radiation Effects* 66 (1982) 121
- [17] K. Nogita, K. Une, Y. Korei; *Nuc. Inst. and Meth. B* 115 (1996) 525
- [18] S.B. Fisher et al; *J. Nuc. Mat.* 306 (2002) 153
- [19] Groll, Siemens AG; *Untersuchung der Kriechdehnfähigkeit von Hüllrohr-Proben aus einem Brennstab mit 54 MWd/kgU Abbrand*; A1C-1301892-0, Rev. 0