



Bundesamt für Energie (Schweiz)
Office fédéral de l'énergie (Suisse)
Ufficio federale dell'energia (Svizzera)
Federal Office of Energy (Switzerland)

Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen
Division principale de la Sécurité des Installations Nucléaires
Divisione principale della Sicurezza degli Impianti Nucleari
Swiss Federal Nuclear Safety Inspectorate

5232 Villigen-HSK

Tel. 056 / 310 38 11

Fax : 056 / 310 39 07

Datum

21. November 2001

AN-Nummer

HSK 12/744

Typ/Charakter

Technischer Bericht

Aktenzeichen

12KFX.RT

Klassifikation

Bearbeiter

H. Wand

Visum

wh

Projekt, Thema, Gegenstand (Schlagwörter)
KKL, Brennstoff, Korrosion, SVEA-96

Seiten 18

Beilagen

Zeichnungen 6

Erhöhte lokale Korrosion von SVEA-96-Brennelementen im KKL: Abschlussbericht

Zusammenfassung

Im Frühjahr 1997 wurde festgestellt, dass die Hüllrohroberfläche unter den Abstandhaltern von SVEA-96-Brennelementen eine erhöhte lokale Korrosion (ELK) zeigt. Dieses Phänomen, das vom BE-Lieferanten inzwischen als "Enhanced Spacer Shadow Corrosion" (ESSC) bezeichnet wird, wurde in den folgenden vier Jahren umfassend untersucht, und es wurden diverse Massnahmen ergriffen, um der ELK zu begegnen. Der vorliegende Bericht, der den Statusbericht HSK 12/536 vom März 1998 aktualisiert, gibt aus Sicht der HSK und ihres Experten einen zusammenfassenden Überblick über die technischen und Genehmigungsaspekte der ELK.

Obwohl die grundlegenden Mechanismen für das Entstehen der ELK auch gegenwärtig noch nicht ausreichend bekannt sind, konnte durch kurzfristige Änderung der Wasserchemie und durch den zunehmenden Einsatz verbesserter Hüllrohrmaterialien das ELK-Phänomen wirksam bekämpft werden.

Zur Rechtfertigung des Einsatzes von durch ELK vorgeschädigten SVEA-96-BE wurden von der HSK zeitweilige Kriterien festgelegt, welche auf technischen Untersuchungen des BE-Lieferanten basieren. Zu letzteren gehört insbesondere die Herleitung eines einschränkenderen thermomechanischen Betriebsgrenzwertes (TMOL-Kurve). Zum Nachweis der Einhaltung der HSK-Kriterien hat der Betreiber während der Revisionsstillstände 1997 – 2001 umfangreiche BE-Inspektionen (Oxid-dicken-Messungen) durchgeführt. Die Konservativität dieser Messungen wurde durch zerstörende Untersuchungen am PSI-Hotlabor abgesichert.

Aufgrund der geänderten Wasserchemie und mit der Auslegung der Kernbeladung für Zyklus 18 (2001/02), welche nur noch ELK-resistente Hüllrohrmaterialien (LK2+, LK3) enthält, ist die Einhaltung der ursprünglichen Genehmigungsbasis bezüglich zulässiger Hüllrohrrooxididicke wieder gewährleistet. Dies wird durch die BE-Inspektionsergebnisse vom August 2001 bestätigt. Die Pendenz PX-311 (Erhöhte Korrosion an SVEA-96-Brennstabhüllrohren) ist damit abgeschlossen.



Verteiler

HSK: Jeschki, Schmocker, Nöggerath, Pfeiffer, Hammer, van Doesburg, Huser, Kaufmann, Wand, Maeder, Loy, Blust, Jaussi, Archiv

KKL; Westinghouse Atom via KKL; Aquarius (A. A. Strasser)

1 Ausgangslage

Der Einsatz von SVEA-96-BE begann im KKL mit Zyklus 8 (1991/92) unter den Verhältnissen der seit 1990 praktizierten Einspeisung von Zink ins Reaktorwasser. Die Einspeisung von Zink zielt darauf ab, die Ablagerung von radioaktivem Kobalt an Systemkomponenten – vor allem an den Umwälzschleifen – und somit die Höhe der Dosisleistung in der Nähe dieser Komponenten zu verringern. KKL ist die erste Anlage, die SVEA-96-BE bei Zinkeinspeisung einsetzte.

Der maximal zulässige BE-gemittelte Abbrand von SVEA-96-BE ist von der HSK auf 51 MWd/kgU begrenzt worden. Ende 1995 erfasste die Datenbasis von Westinghouse Atom (früher ABB Atom) für SVEA-96-BE Abbrände bis 49 MWd/kgU, d.h. bis zu solchen Abbränden war das auslegungsgemässe BE-Verhalten durch Messungen verifiziert. Die untersuchten BE stammten aus Anlagen mit unterschiedlichen wasserchemischen Verhältnissen. Die im KKL erreichten Maximalabbrände der SVEA-96-BE betrugen 42 MWd/kgU (1995) und 48 MWd/kgU (1996).

Mit der Zielstellung, die Genehmigung für einen Maximalabbrand der SVEA-96-BE von 55 MWd/kgU zu erreichen, begannen Westinghouse Atom und KKL in Zusammenarbeit mit dem PSI im Jahre 1995 ein "Hochabbrand-Verifikationsprogramm" (HVP). Dieses Programm beinhaltet BE-Inspektionen im KKL sowie Heisszellen-Untersuchungen im PSI von Brennstäben aus hochabgebrannten SVEA-96-BE. Bei den Untersuchungen steht das Korrosionsverhalten der BE im Vordergrund. Dazu werden die Oxidschichtdicken, Crudschichtdicken und Wasserstoffkonzentrationen der Hüllrohre gemessen und die Einhaltung der diesbezüglichen Auslegungswerte überprüft. Bei den 1995 und 1996 durchgeführten Messungen im KKL und im PSI-Hotlabor konnte ein normales Korrosionsverhalten der Hüllrohre im Bereich zwischen den Abstandhaltern festgestellt werden. Anlässlich der Präsentation des HVP erwähnte Westinghouse Atom Ende 1995, dass in einer ausländischen SWR-Anlage bei einzelnen Hüllrohren die Oxidschicht im Bereich der Abstandhalter abgeblättert war, was auf eine erhöhte Korrosion in diesem Bereich hinwies.

Im Rahmen des HVP wurden während des Revisionsstillstandes 1996 zwei Brennstäbe, die fünf Einsatzzyklen (Standzeiten) absolviert hatten, entnommen und im Dezember 1996 für Untersuchungen ins PSI-Hotlabor transportiert. Die dort im Frühjahr 1997 durchgeführten Untersuchungen zeigten eine unerwartet starke Hüllrohrkorrosion im Bereich der Abstandhalter, die als erhöhte lokale Korrosion (ELK) bezeichnet wurde. Die gleiche Art von Korrosion wurde auch in zwei ausländischen SWR-Anlagen beobachtet, allerdings in wesentlich geringerem Ausmass.

Die Ergebnisse der PSI-Hotlabor-Untersuchungen zeigten, dass bei Brennstababbränden ab ca. 45 MWd/kgU (BE-Abbrände ab ca. 40 MWd/kgU) resp. nach vier Einsatzzyklen im Bereich der unteren vier Abstandhalter eine starke Oxidation und Hydrierung auftreten kann, welche die Auslegungswerte (100 µm Oxiddicke, 500 ppm Wasserstoff) überschreitet. Das Hüllrohrverhalten im Normalbetrieb lag damit ausserhalb der Erfahrungsbasis.

Der vorliegende Bericht, der den Statusbericht /HSK3/ vom März 1998 aktualisiert, gibt aus Sicht der HSK und ihres beigezogenen Experten (A. A. Strasser, Aquarius Services Corp., USA) einen zusammenfassenden Überblick über die technischen und Genehmigungsaspekte der ELK.

2 Untersuchung der erhöhten lokalen Korrosion im KKL

2.1 Schattenkorrosion

Die (gewöhnliche) Schattenkorrosion ist eine Beschleunigung der normalen Korrosion von Zirkonium-Legierungen, die in der Nähe von – oder in Kontakt mit – einer anderen Komponente (entweder auch aus Zirkonium oder aus einem anderen Material) auftreten kann. Dieses Phänomen ist seit mehr als 20 Jahren bekannt. Es kann als generisch eingestuft werden, weil es in allen Siedewasser-Reaktoren auftritt.

Im KKL hat man z.B. die durch den Griff eines benachbarten Steuerstabes an der Wand von Brennelementkästen hervorgerufene Schattenkorrosion beobachtet. Innerhalb des "Schattens" kann die Oxidschicht wesentlich dicker sein als ausserhalb des beeinflussten Bereichs. Die Schattenkorrosion auf Hüllrohroberflächen gab bisher keinen Anlass zu Bedenken, weil trotz erhöhter Korrosion die Oxiddicken meist unterhalb des Auslegungswertes von 100 μm blieben (Dieser Auslegungswert entspricht einer Hüllrohr-Restwanddicke von ca. 90 % der nominalen Fertigungswanddicke von 630 μm).

Obwohl die Schattenkorrosion seit langem bekannt ist, sind die Mechanismen für ihr Auftreten noch immer nicht ausreichend geklärt. Diskutiert werden folgende Mechanismen:

- Einfluss der Beta-Strahlung (evtl. über die Radiolyse)
- Galvanische (elektrochemische) Effekte
- Thermische Einflüsse
- Einflüsse der Wasserchemie

Möglicherweise sind auch mehrere der vorstehend genannten Effekte im Spiel.

2.2 Erhöhte Schattenkorrosion

Eine signifikante Beschleunigung der Schattenkorrosion unter den Inconel-Abstandhaltern von SVEA-Brennelementen wurde im KKL und den Siedewasser-Reaktoren Forsmark-3 (Schweden) und Olkiluoto-2 (Finnland) beobachtet. Dieses Phänomen wird als "**Enhanced Spacer Shadow Corrosion (ESSC)**" bezeichnet. Da es lokal auftritt, wurde von der HSK auch die Bezeichnung "**Erhöhte Lokale Korrosion (ELK)**" verwendet. Im folgenden werden beide Begriffe synonym benutzt. Im Falle des KKL wurden 1997 im Bereich der Abstandhalter lokal Oxiddicken gemessen, die einer Restwanddicke des Hüllrohres von nur 36 % entsprechen (Kap. 4).

Die ELK tritt am ausgeprägtesten unter den Kontaktpunkten der Abstandhalterfedern mit der Hüllrohroberfläche und in der Nähe der Abstandhalterrahmen auf. In diesen Bereichen ist die Oxidschicht am dicksten. Dies zeigt, dass das Korrosionsverhalten vom Abstand zwischen den Materialoberflächen abhängt.

Im KKL und in neun ausländischen SWR-Anlagen mit gleichen (SVEA-) Brennelementen wurden im Jahre 1998 umfangreiche Untersuchungen ("Task Force" von Westinghouse Atom) durchgeführt, um den Einfluss folgender Parameter der Brennelemente sowie der Betriebsweise zu ermitteln:

- Hüllrohrmaterial
- Hüllrohrfertigung (spez. die Oberflächen- und Wärmebehandlung)
- Material und Auslegung der Abstandhalter
- Wasserchemie
- Leistungs- und Voidgeschichte, Abbrand
- Betastrahlung
- thermische Effekte

Das Hüllrohrmaterial vom Typ LK2, an welchem die ELK beobachtet wurde, war vom BE-Lieferanten mit dem Ziel geringer nodularer Korrosion entwickelt worden. Der massgebende Parameter ist dabei die Grösse der unlöslichen Ausscheidungen, der sog. "**Sekundärphasenpartikel (SPP)**". Durch geeignete Wärmebehandlung ("late beta quenching") wurden SPP geringer Grösse erzeugt. Die Grösse der SPP beeinflusst offensichtlich das Ausmass der ELK bei höheren Brennstoffabbränden resp. Neutronenfluenzen. So wurde im Jahre 1998 bei BE-Inspektionen im KKL (Kap. 8) festgestellt, dass LK2-Hüllrohre mit einem Innenliner deutlich weniger ELK zeigen als LK2-Hüllrohre ohne Liner /ABB13/. Durch eine andere Wärmebehandlung bei der Herstellung der Liner-Hüllrohre bilden sich grössere SPP /ABB15/.

Ferner war bei LK2-Hüllrohren die früher (bei LK0, LK1) übliche Oberflächenbehandlung ("pickling", autoklavieren) nicht mehr durchgeführt worden. Beim Autoklavieren wird unter kontrollierten Bedingungen eine Oxidschicht von 0,5 - 1 µm aufgebracht. Der Vergleich von Messungen an LK0- und LK1-Hüllrohren mit solchen an LK2-Hüllrohren zeigte, dass die gewöhnliche Schattenkorrosion im Bereich der Abstandhalter bei den früher eingesetzten Materialien weniger ausgeprägt ist /ABB7/

Die ELK wurde ausser im KKL bisher nur noch in den o.g. zwei SWR-Anlagen (ohne Zinkeinspeisung) beobachtet, allerdings in wesentlich geringerem Ausmass. Die minimale Restwanddicke der Hüllrohre bei diesen Anlagen betrug ca. 80 %. Es zeigte sich, dass in allen drei Anlagen das Auftreten der ELK mit der zeitweiligen Anwendung einer speziellen, durch "Eisenmangel" charakterisierten Wasserchemie korreliert war. Inspektionen von Westinghouse Atom in sieben anderen SWR-Anlagen ohne derartige Wasserchemie zeigten, dass die ELK dort nicht auftritt /ABB7, ABB14/.

Westinghouse Atom definiert den Eisenmangel als ein zu niedriges Verhältnis der Konzentration [Fe] von Eisenionen im Speisewasser zu jener von zweiwertigen Zink- und Nickelionen /ABB14, ABB19/:

$$[\text{Fe}] < 2 \cdot \{ [\text{Zn}] + [\text{Ni}] \}$$

Äquivalent dazu – und für die Überwachung auf Eisenmangel besser geeignet – ist gemäss Westinghouse Atom eine zu niedrige Aktivitätskonzentration von Mangan-54 im Reaktorwasser ($< 10^3$ Bq/kg).

Unter den Bedingungen einer Eisenmangel-Wasserchemie verändert sich der Aufbau von Crud auf der oxidierten Hüllrohroberfläche. Der Anteil der inneren, fest haftenden Crudschicht wird grösser. Diese fest haftende Schicht besteht aus Spinell des Typs MeFe_2O_4 (Me steht für zweiwertige Metal-

tionen, im KKL vor allem Zink). Der Anteil der äusseren, lose haftenden Crudschicht (Hämatit, Fe_2O_3) nimmt ab. Bei zu niedrigem Verhältnis von Eisen zu zweiwertigen Metallionen reicht das Angebot von Eisen nicht mehr aus, um einen stöchiometrisch ausgewogenen Spinell zu bilden. Mit einem solchen eisenarmen Spinell als Crudschicht wird die Korrosion der Zirkaloy-Hüllrohre beschleunigt.

Die Existenz zweier Crudschichten mit unterschiedlichen Eigenschaften erklärt auch, weshalb die Aktivitätskonzentration von Mangan-54 im Reaktorwasser zur Überwachung des Eisenmangels geeignet ist. Mangan-54 wird durch eine (n, p)-Reaktion aus Eisen-54 gebildet. Das in der fest haftenden und schwer löslichen Spinell-Crudschicht erzeugte Mangan-54 wird dort zurückgehalten, während das in der lose haftenden Hämatit-Crudschicht erzeugte Mangan-54 sich besser im Reaktorwasser löst. Sobald es im Reaktorwasser zu wenig Eisen gibt, um eine Hämatit-Crudschicht zu bilden, beginnt die Aktivitätskonzentration von Mangan-54 im Reaktorwasser zu sinken.

Im KKL wurde ab September 1994 (Beginn von Zyklus 11) bis Juli 1997 (Ende von Zyklus 13) mit einer Eisenmangel-Wasserchemie gefahren. Ursache dafür waren zwei gezielt eingeleitete Massnahmen /KKL2/. Einerseits wurde, wie in vielen SWR-Anlagen, ein niedriger Eisengehalt angestrebt. Dazu wurde im August 1994 die Kondensatreinigungsanlage verbessert. Andererseits wurde zum gleichen Zeitpunkt die Zinkdosierung erhöht, um einer schnellen Rekontamination der im vorhergehenden Stillstand dekontaminierten Umwälzleitung vorzubeugen. Später wurde die Zinkdosierung wieder reduziert. Während der Zyklen 11 und 12 (1994/96) waren die Eisenmangel-Bedingungen am stärksten ausgeprägt (Fig. 1, 2).

2.3 Ursachen der erhöhten lokalen Korrosion

Der gegenwärtige Stand bei der Aufklärung der Mechanismen der ESSC ist in /ABB18, ABB19/ dargelegt.

Folgende Mechanismen wurden betrachtet:

- Thermische Rückkopplung
- Galvanische (elektrochemische) Effekte
- Einfluss von Beta-Strahlung (Verstärkung der Radiolyse des Wassers)
- Einflüsse der Wasserchemie

Die Korrosionsrate von Zircaloy ist von der Temperatur an der Grenzfläche zwischen Metall und Oxidschicht abhängig. Eine thermische Rückkopplung, d.h. eine Korrosionszunahme durch Zunahme der Grenzflächentemperatur infolge der thermischen Isolationswirkung der Oxid- und Crudschicht, würde Oxidschichtdicken im Bereich von 150 – 200 μm erfordern. Daher ist dieser Mechanismus für den Beginn von ESSC nicht von Bedeutung. Bei sehr dicken Oxidschichten könnte er einen gewissen Einfluss haben.

Ein allgemeiner galvanischer Effekt, bedingt durch die Potentialdifferenz zwischen unterschiedlichen Metallen (Zircaloy, Inconel) und die Leitfähigkeit des Reaktorwassers, scheidet als Ursache der ESSC aus /ABB11/. Es ist nämlich kein Effekt bekannt, der ausgerechnet im KKL Leitfähigkeit und Potentialdifferenz erhöht. Die grösste Potentialdifferenz zwischen Zircaloy und Inconel wäre bei

einer Wasserchemie mit Einspeisung von Wasserstoff (Hydrogen Water Chemistry, HWC) zu erwarten. Jedoch wurde in SWR-Anlagen mit HWC-Fahrweise keine erhöhte Schattenkorrosion gegenüber anderen Anlagen beobachtet.

Als möglicher Mechanismus für die ESSC sowie für die gewöhnliche Schattenkorrosion wurde der Einfluss von Beta-Strahlung (Elektronen) in Betracht gezogen. Diese Beta-Strahlung entsteht bei der neutroneninduzierten Aktivierung von Mangan, welches Legierungsbestandteil der Inconel-Abstandhalter ist. Das dominierende Mangan-Nuklid ist dabei Mn-56, welches Elektronen mit einer maximalen Energie von 2,85 MeV emittiert. Die Reichweite solcher Elektronen in Wasser von 288 °C beträgt bis 19 mm. Die Mehrzahl der Elektronen besitzt jedoch nur Energien unterhalb von 0,95 MeV und eine Reichweite von ca. 5,5 mm. Die Beta-Strahlung - so das Argument - sollte zu einer Erhöhung (Verdopplung) der Strahlungsdosis resp. Energiedeposition im Wasser führen und damit die Radiolyse des Wassers mit Bildung oxidierender Radikale verstärken.

Zur Überprüfung der genannten Hypothese wurden von Westinghouse Atom Experimente am Forschungsreaktor MITR-2 des MIT (Massachusetts Institute of Technology) durchgeführt. Dabei wurden diverse Materialien mit unterschiedlicher Intensität der Beta-Strahlung in die Nähe von Zircaloy-2-Hüllrohrmaterial gebracht. Die Experimente zeigten selbst im Falle von starken Beta-Strahlern wie Nitronic 32 (ca. 10-fach höhere Beta-Energiedeposition im Wasser als bei Inconel 750) eine nur geringe Erhöhung der Korrosion von Zircaloy-2. Damit kann die Beta-Strahlung nicht als der bestimmende Mechanismus für das Zustandekommen der ESSC betrachtet werden.

Sowohl in DWR als auch in SWR beeinflusst die Wasserchemie die Korrosion von Zircaloy-Hüllrohrmaterial. In einigen SWR-Anlagen mit höherem Kupfergehalt im Reaktorwasser kam es Ende der 70er und Anfang der 80er Jahre zur Erscheinung der crudinduzierten lokalen Korrosion (Crud Induced Localized Corrosion, CILC) von Zircaloy-2-Hüllrohren. Die Untersuchungen im KKL und anderen SWR-Anlagen ergaben, dass die ESSC nur unter der Bedingung einer eisenarmen Wasserchemie und in Verbindung mit speziellen Eigenschaften des Hüllrohrmaterials auftritt.

Neuere Untersuchungen haben gezeigt, dass die SPP, welche Eisen, Nickel und Chrom enthalten, für das Korrosionsverhalten von Zircaloy wichtig sind. Diese SPP werden nur an ihrer Oberfläche oxidiert und verbleiben ansonsten unoxidiert in der durch Korrosion gebildeten Zirkonoxid-Schicht. Westinghouse Atom stellt in /ABB18/ die Hypothese auf, dass die chemische Stabilität des auf der SPP-Oberfläche gebildeten Oxidfilms (welcher aus crudähnlichen Verbindungen besteht) von der Beschaffenheit der Crudschicht abhängt, die ihrerseits vom Eisenangebot bestimmt wird (Kap. 2.2).

Zusammenfassend muss konstatiert werden, dass die Aufklärung der eigentlichen Mechanismen für das Zustandekommen der ESSC noch nicht befriedigend gelungen ist. Wie im Kap. 3 gezeigt wird, können trotzdem wirksame Massnahmen gegen die ESSC ergriffen werden. Die Situation ähnelt stark der Bewältigung des o.g. CILC-Problems. Obwohl die Mechanismen für CILC auch heute noch nicht hinreichend geklärt sind, konnte dieses Problem durch Änderungen in der Wasserchemie (Verringerung der Konzentration von Kupferionen) und beim Hüllrohrmaterial (Entwicklung von Hüllrohrmaterialien mit kleineren SPP und damit geringer Neigung zu nodularer Korrosion) behoben werden. Voraussetzung für diese Änderungen war das Auffinden der wesentlichen Einflussgrößen und das Aufstellen entsprechender Zusammenhänge (Korrelationen) zwischen diesen Einflussgrößen und dem Ausmass der Korrosion.

3 Massnahmen gegen erhöhte lokale Korrosion

Als erste Massnahme wurde ab Beginn von Zyklus 14 (September 1997) die Wasserchemie entsprechend den Empfehlungen von Westinghouse Atom geändert (Fig. 3). Zwar wurde während der Jahresrevision im August 1997 die Kondensatreinigungsanlage nochmals verbessert, jedoch wurde diesmal die Reduktion des Eisengehaltes durch eine entsprechend reduzierte Zinkdosierung kompensiert. Dies führte insgesamt zu wasserchemischen Bedingungen, unter welchen gemäss den durchgeführten Untersuchungen und Analysen keine ELK mehr auftreten sollte. Bestätigt wurde dies durch die während des Revisionsstillstandes 1998 durchgeführten BE-Inspektionen (Kap. 8).

Die radiologischen Auswirkungen der geänderten Wasserchemie (weniger Zinkeinspeisung) wurden von Westinghouse Atom analytisch untersucht. Eine geringe Abnahme der Dosisleistung an den Umwälzschleifen wurde erwartet /ABB6/. Dies hat sich bisher nicht bestätigt. Während der KKL-Revisionsstillstände 1997 bis 2001 wurden folgende Dosisleistungen gemessen: 2,10 / 2,23 / 2,19 / 2,32 / 2,12 mSv/h /KKL8/.

Als zweite Massnahme wurden ab Zyklus 15 (1998/99) Hüllrohre mit autoklavierter Oberfläche eingesetzt. Inspektionen während des Revisionsstillstandes 2000 zeigten, dass das Autoklavieren die Hüllrohrkorrosion sowohl im Abstandhalterbereich als auch zwischen den Abstandhaltern nur wenig beeinflusst (Kap. 8) und daher entfallen kann.

Als dritte Massnahme wurde der Einsatz von Brennelementen mit dem Hüllrohrmaterial LK3, das wegen grösseren SPP eine geringere Anfälligkeit gegenüber ELK zeigt, ab Zyklus 16 (1999/2000) vorgesehen. Die Inspektion von KKL-Vorläuferstäben aus LK3-Material, die seit 1994 im Einsatz sind, bestätigten das bessere Korrosions- und ELK-Verhalten dieses Materials (Kap. 8). LK3 ist eine Weiterentwicklung von LK1, welches vor der Einführung von LK2-Material von Westinghouse Atom standardmässig eingesetzt worden war und für welches aus anderen Anlagen eine umfangreiche Betriebserfahrung vorliegt. Der Unterschied zwischen LK1 und LK3 besteht darin, dass die Herstellungsparameter (chemische Zusammensetzung, Homogenität, Wärmebehandlung) bei LK3 in engeren Grenzen gehalten werden und dadurch die Streuung von Materialeigenschaften wesentlich kleiner ist /ABB7/.

Weitere, langfristige Massnahmen wie etwa die Entwicklung und Einführung eines Zirkaloy-Abstandhalters hat Westinghouse Atom bisher nicht in Betracht gezogen, da die o.g. Massnahmen sich als wirksam erwiesen haben.

4 Inspektionen von SVEA-96-Brennelementen im Jahr 1997

Nach der Identifizierung des ELK-Problems (Frühjahr 1997) wurde während des folgenden Revisionsstillstands (August 1997) eine umfangreiche Inspektionskampagne im BE-Lagerbecken des KKL durchgeführt /ABB4, KKL1/. Dabei wurden an etwa 400 Brennstäben aus fast 50 BE unterschiedlicher Abbrände und Standzeiten zerstörungsfreie Messungen der Oxidschichtdicke und des Stabdurchmessers vorgenommen. Aus diesen Messdaten wurde in konservativer Weise die minimale Restwanddicke der Hüllrohre im Bereich der Abstandhalter errechnet. Die Messungen dienten einerseits dazu, die Abhängigkeit der ELK von Abbrand, Zahl der Einsatzzyklen, Ersteinsatzzeit-

punkt und Abstandhalterposition zu ermitteln. Andererseits sollte verifiziert werden, ob die temporären HSK-Kriterien für den Weitereinsatz von durch ELK vorgeschädigten SVEA-96-BE eingehalten sind (Kap. 7).

Die Messungen ergaben folgende Abhängigkeiten /ABB7, ABB7a/:

- Mit zunehmender Zahl der Einsatzzyklen (Standzeiten) nimmt die Oxiddicke und deren Streubreich zu.
- Die Oxidschicht ist im Bereich der unteren 4 Abstandhalter besonders dick.
- Bei gleicher Standzeit der BE ist eine Abhängigkeit der Oxiddicke vom Abbrand der BE nicht erkennbar.
- Die Oxiddicken von 5-jährigen BE, die im Jahre 1996 entladen wurden, sind signifikant grösser als die Oxiddicken der im Jahre 1997 entladenen 5-jährigen BE.

Vier KKL-Brennstäbe wurden im PSI-Hotlabor auch mit zerstörenden Methoden untersucht /PSI1/. Diese Stäbe stammten aus zwei, im Stillstand 1996 entladenen SVEA-96-BE mit Abbränden von je ca. 48 MWd/kgU (5 Standzeiten) sowie aus zwei, bereits im Stillstand 1995 entladenen SVEA-96-BE mit ca. 34 resp. 42 MWd/kgU (3 resp. 4 Standzeiten).

Die zerstörenden Untersuchungen dieser Brennstäbe bestätigten, dass es infolge ELK zu erheblichen Schwächungen der Hüllrohrwanddicke kommen und die dem Auslegungsgrenzwert für die Oxiddicke (100 µm) entsprechende Hüllrohr-Restwanddicke von 90 % wesentlich unterschritten werden kann /PSI1/. So wurden an den beiden 5-jährigen, 1996 entladenen Brennstäben metallografisch minimale Restwanddicken von nur 36 % resp. 51 % der Fertigungswanddicke ermittelt /PSI1, §7.2/. Bei den Hüllrohrproben der 3- und 4-jährigen Stäbe betrug die metallografisch ermittelte minimale Restwanddicke 93 % resp. 72 % /PSI1, §7.2/. Desweiteren zeigten die Hotlaboruntersuchungen, dass die verbliebene Hüllrohrwand erheblich hydriert war und der Auslegungsgrenzwert für die Wasserstoffkonzentration (500 ppm) wesentlich überschritten wurde. So wurden für den 4-jährigen sowie einen 5-jährigen Brennstab im Abstandhalterbereich lokale Wasserstoffkonzentrationen im Hüllrohr von knapp 1000 ppm gemessen. Für den anderen 5-jährigen Stab lagen die lokalen Wasserstoffkonzentrationen infolge von Abplatzungen der Oxidschicht sogar wesentlich über 1000 ppm.

5 Hüllrohrschäden im Zyklus 13 von KKL

Im Zyklus 13 (1996/97) gab es sieben defekte Brennelemente mit je einem Defektstab. Bei drei BE, welche ein resp. zwei Einsatzzyklen absolviert hatten, ergab die Inspektion der Defektstäbe Fremdkörperreibung als primäre Schadensursache. Die übrigen vier defekten BE hatten sechs Einsatzzyklen absolviert und Abbrände zwischen 46 und 55 MWd/kgU erreicht. Die Inspektion von deren Defektstäben im Dezember 1997 (visuell und mittels Wirbelstromtechnik) zeigte starke Oxidation, Abplatzen von Oxidschichten sowie erhebliche Hydrierung, insbesondere an den Abstandhalterpositionen. Das führte zum Schluss, dass diese vier Fälle höchstwahrscheinlich auf ELK als primäre Schadensursache zurückzuführen sind. Jedoch kam es bei keinem der vier beschädigten Brenn-

stäbe zu einem schweren Sekundärschaden, welcher zur Auswaschung von Brennstoff hätte führen können.

Das Auftreten von Hüllrohrschäden im sechsten Einsatzzyklus führte dazu, dass die HSK zeitweilig eine Begrenzung der Standzeit auf fünf Einsatzzyklen verfügte (Kap. 7).

6 Beurteilung der Sicherheit

Das Phänomen der ELK wirft die Fragen auf, ob für die lokal stärker korrodierten Hüllrohre die Integrität während des Normalbetriebs und bei Betriebsstörungen noch gewährleistet ist und ob bei den gemäss Sicherheitsbericht analysierten Auslegungstörfällen die zulässige Anzahl defekt werden-der Brennstäbe eingehalten bleibt.

Die bei der ELK auftretende Oxidation und Hydrierung führt zu einer Überschreitung der im Dokument ASTAR /ABB22/ spezifizierten Auslegungswerte (100 µm Oxiddicke, 500 ppm Wasserstoff). Dies bedeutet nicht automatisch, dass die Hüllrohre undicht werden. Allerdings ist bei Überschreitung solcher Auslegungswerte die Hüllrohrintegrität zumindest potentiell gefährdet. Um die tatsächliche Gefährdung zu ermitteln, waren zusätzliche Analysen zur thermomechanischen Belastbarkeit geschwächter und stärker hydrierter Hüllrohre notwendig. Ergebnis dieser Untersuchungen war eine Änderung bzw. Herabsetzung der Grenzkurve, welche die maximal zulässige lineare Brennstableistung in Abhängigkeit vom lokalen Brennstoffabbrand angibt, entsprechend dem Ausmass der lokalen Korrosion bei den SVEA-96-BE (TMOL-Kurve: "Thermo-Mechanical Operating Limit").

Bei den für KKL massgebenden Auslegungstörfällen "Steuerstabfall (Rod Drop Accident, RDA)" und "Kühlmittelverlust bei grossem Leck (Loss of Coolant Accident, LOCA)" wird in den radiologischen Analysen angenommen, dass 1,5 % resp. 10 % der Brennstabhüllrohre defekt werden. Diese Zahlen bleiben, wie nachfolgend begründet wird, auch bei Vorhandensein von ELK eingehalten.

Die mit dem RDA-Störfall verbundenen Belastungen der Hüllrohre in der Umgebung des betroffenen Steuerstabes sind auf den Hüllrohrbereich oberhalb des 6. Abstandhalters begrenzt, wo man bisher keine ELK festgestellt hat. Durch die ELK werden daher keine zusätzlichen Brennstabhüllrohre defekt /ABB2/.

Im Falle eines LOCA könnte eine zu stark geschwächte und hydrierte Hüllrohrwand dem Brennstabinnendruck nicht standhalten, so dass die ELK zu einem Versagen zusätzlicher Hüllrohre führen könnte. Analysen von Westinghouse Atom zeigten aber, dass ein zusätzliches Versagen von Hüllrohren ausgeschlossen werden kann, wenn deren Restwanddicke mindestens 20 % und der Wasserstoffgehalt weniger als 1000 ppm beträgt /ABB8/. Abschätzungen der HSK wiesen auf eine erforderliche Restwanddicke von ca. 30 – 40 % hin /HSK1/. Bei einer Restwanddicke von mindestens 50 % (Kap. 7) sah die HSK somit kein Risiko zusätzlicher Hüllrohrschäden während eines LOCA.

7 Temporäre Kriterien für den Einsatz von SVEA-96-Brennelementen im KKL

Die Ursachen für die im KKL aufgetretene ELK waren im Sommer 1997 noch nicht bekannt, und ihre Aufklärung bis zum Beginn des Zyklus 14 (September 1997) war nicht zu erwarten. Für den 14. Betriebszyklus (1997/98) vereinbarten daher die HSK und der Betreiber, die Einsatzdauer der SVEA-96-BE auf 4 Einsatzzyklen zu begrenzen. Ferner wurde die zulässige thermische Belastung (TMOL-Kurve) der SVEA-96-BE im 4. Einsatzzyklus herabgesetzt, um trotz ELK die Hüllrohrintegrität im Normalbetrieb und bei Überleistungstransienten zu gewährleisten.

Die Herabsetzung der TMOL-Kurve ("revidierte TMOL-Kurve") erfolgte auf Basis der im Juli 1997 bekannten maximalen Schwächung und Hydrierung der Hüllrohrwand und der entsprechenden analytischen Untersuchungen des BE-Lieferanten /ABB3, ABB1, ABB9, ABB5/. Bis zu einem lokalen Abbrand von 36 MWd/kgU (d.h. bis zu drei Standzeiten) blieb die ursprüngliche TMOL-Kurve gültig, bei höheren Abbränden wurde sie herabgesetzt. Der Grad der Herabsetzung der TMOL-Kurve wurde konservativ dadurch bestimmt, dass bei lokalen Abbränden von 50 resp. 60 MWd/kgU die Restwanddicke der Hüllrohre 50 % resp. 25 % der Fertigungswanddicke (630 µm) beträgt.

Der Einsatz von SVEA-96-BE für **Zyklus 14 (1997/98)** basierte auf folgenden, zwischen Westinghouse Atom, KKL und HSK vereinbarten Kriterien:

- a) Für BE mit bis zu 3 Einsatzzyklen ist im Bereich der unteren 4 Abstandhalter eine mittlere Oxiddicke von maximal 100 µm und eine lokale Oxiddicke von maximal 196 µm zulässig.
- b) Ausserhalb des in a) genannten Bereichs, für BE mit bis zu 2 Einsatzzyklen überall, ist eine lokale Oxiddicke von maximal 100 µm zulässig (entspricht der Genehmigungsbasis gemäss ASTAR-Dokument).
- c) Für BE am Ende des 4. Einsatzzyklus muss die lokale Restwanddicke der Hüllrohre mindestens 50 % des Fertigungswertes betragen.

Die Einhaltung dieser Kriterien wurde durch die umfangreiche BE-Inspektionskampagne während des Revisionsstillstands im August 1997 nachgewiesen (Kap. 4).

Die zur Sicherheitsrelevanz der ELK durchgeführten Analysen (Kap. 6) zeigten, dass diese von der Restwanddicke der Hüllrohre im Abstandhalterbereich bestimmt wird und somit nicht primär von der Anzahl der Einsatzzyklen (Standzeiten) abhängt. Die HSK verfügte daher im Februar 1998 für den Einsatz von SVEA-96-BE im **Zyklus 15 (1998/99)** folgende Kriterien /HSK2/:

- a) Als übergeordnetes Ziel gilt, dass die lokale Restwanddicke des Hüllrohrs im Bereich der Abstandhalter jederzeit mindestens 50 % des Fertigungswertes betragen muss. Daraus abgeleitet ist die Bedingung, dass diese Restwanddicke beim BE-Einsatz mindestens 70 % des Fertigungswertes betragen muss.
Die letztere Bedingung, welche einer Verringerung der Restwanddicke um 20 % während einer Standzeit entspricht, deckt in konservativer Weise die bis Anfang 1998 vorliegenden Inspektionsergebnisse von 4- und 5-jährigen BE ab.
- b) Im übrigen Bereich der Brennstäbe gilt der Maximalwert für die lokale Oxiddicke von 100 µm.

Wegen der im Zyklus 13 (sehr wahrscheinlich) durch ELK defekt gewordenen 6-jährigen BE wurde die Standzeit der BE im Kern bis auf weiteres administrativ auf maximal 5 Einsatzzyklen begrenzt.

Davon ausgenommen waren im Zyklus 15 zwei Test-BE (LK2-Material), welche versuchsweise für eine 6. Standzeit eingesetzt wurden und die vorstehend genannten Kriterien erfüllten. Die für Zyklus 14 abgeleitete, abgesenkte TMOL-Kurve wurde für Zyklus 15 beibehalten.

Um die Einhaltung der HSK-Kriterien nachzuweisen, wurde während der Revisionsstillstände 1998, 1999 und 2000 jeweils eine umfangreiche BE-Messkampagne durchgeführt (Kap. 8). Auf der Basis von Oxiddicken-Messungen an einer repräsentativen Zahl von Brennstäben wurden standzeitabhängige statistische Verteilungsfunktionen generiert (Anteil der Brennstäbe einer gegebenen Standzeit, welche Oxiddicken resp. Restwanddicken in bestimmten Intervallen aufweisen). Daraus wurde der Anteil der Brennstäbe berechnet, deren Restwanddicken kleiner als 70 % der Fertigungswanddicke sind. Dieser Anteil sollte hinreichend klein sein ($< \text{ca. } 0,5 \%$).

Das hier kurz skizzierte statistische Konzept für die Auswertung der Oxiddicken-Messungen im BE-Lagerbecken von KKL ist in /ABB10/ ausführlich beschrieben. Das Konzept wurde durch die HSK und ihren Experten (AQUARIUS und SAFESTAT) überprüft. Die Überprüfung zeigte, dass das Konzept grundsätzlich akzeptabel ist, jedoch sollte für statistisch zuverlässige Aussagen der Stichprobenumfang mindestens 70 Brennstäbe pro Nachladung (statt 50) betragen. Im Hinblick auf die Einhaltung des Restwanddicke-Kriteriums stehen dabei Nachladungen von BE mit vier oder mehr Standzeiten im Vordergrund. Mit /HSK5/ hat die HSK dem überarbeiteten Konzept zugestimmt.

Wenn nach dem beschriebenen Konzept verfahren wird, dann ist mit hoher Wahrscheinlichkeit (95 %) das HSK-Kriterium "Restwanddicke $> 70 \%$ vor dem BE-Einsatz" für alle Brennstäbe einer Nachladung, d.h. auch für die nicht gemessenen, eingehalten. Ein Anteil von 0,5 % Brennstäben pro Nachladung, die das Kriterium nicht erfüllen, entspräche bei einer typischen Nachlademenge von 120 BE etwa 0,1 % aller Stäbe des Reaktorkerns. Unterstellt man konservativ, dass diese Stäbe defekt werden, so ist die Auslegungsbasis des KKL bezüglich zulässiger Hüllrohrdefekte immer noch eingehalten.

Die für Zyklus 15 formulierten HSK-Kriterien /HSK2/ blieben in den folgenden **Zyklen 16 (1999/2000) und 17 (2000/01)** in Kraft. Allerdings konnten zwei Einschränkungen für die Kernausslegung gelockert resp. aufgehoben werden.

Zum einen wurde ab Zyklus 16 für die SVEA-96-BE mit Liner-Brennstäben, die wesentlich weniger von ELK betroffen sind, auf Basis der Oxiddicken-Messungen von 1998 (Kap. 8) eine weniger restriktive, aber noch konservative TMOL-Kurve berechnet /ABB16/. Diese TMOL-Kurve basiert darauf, dass bei lokalen Abbränden von 50, 60 resp. 70 MWd/kgU die Restwanddicke des Hüllrohrs 70 %, 65 % resp. 50 % der Fertigungswanddicke beträgt.

Zum anderen konnte die HSK die administrative Begrenzung auf 5 Einsatzzyklen resp. Standzeiten für SVEA-96-BE mit Liner- Brennstäben ab Zyklus 17 aufheben /HSK6/. Dies basierte auf den in den Jahren 1998 und 1999 gewonnenen Erkenntnissen zur ELK /KKL5/. Die veränderte/optimierte Wasserchemie hatte sich als wirksam erwiesen, und die Hüllrohrvarianten mit Liner (LK2/L, LK2+/L und LK3/L), welche ab Zyklus 17 ausschliesslich zum Einsatz kamen, zeigten deutlich geringere Anfälligkeit gegenüber ELK als das LK2-Hüllrohr ohne Liner. Zudem hatten zwei im Zyklus 15 (1998/99) eingesetzte Test-BE mit LK2-Hüllrohr (ohne Liner), welche die HSK-Kriterien erfüllten, die 6. Standzeit ohne Defekte überstanden.

Die im Zusammenhang mit der ELK neu eingeführten Kriterien stellten im Bereich der Abstandhalter eine neue Genehmigungsbasis für die Hüllrohrauslegung dar. Die HSK akzeptierte dies nur zeitweilig und verlangte, dass die Lösung des ELK-Problems zur ursprünglichen Genehmigungsbasis zurückführen muss; eine permanente Änderung der Genehmigungsbasis sei nur dann möglich, wenn dafür international Konsens besteht.

8 Inspektionen von SVEA-96-Brennelementen in den Jahren 1998 - 2001

Im Dezember 1997 waren sieben KKL-Brennstäbe in das PSI-Hotlabor transportiert worden. Diese Stäbe stammten aus drei, im Stillstand 1997 entladenen SVEA-96-BE mit Abbränden von ca. 35 MWd/kgU (3 resp. 4 Standzeiten) sowie ca. 50 MWd/kgU (5 Standzeiten). Die Stäbe wurden im Jahre 1998 mit zerstörungsfreien und zerstörenden Methoden hinsichtlich ihres Korrosionszustandes (Oxiddicken, Wasserstoffkonzentration) im Bereich der Abstandhalter sowie dazwischen untersucht /PSI2, PSI4, PSI5/. Abgesehen vom unteren Hüllrohrbereich, wo das Signal der zerstörungsfreien Wirbelstrom-Oxiddickenmessung durch magnetischen Crud gestört war, bestand eine gute Übereinstimmung zwischen den mit beiden Untersuchungsmethoden (Wirbelstrom, Metallografie) ermittelten Oxiddicken. Die zerstörenden Untersuchungen am PSI-Hotlabor zeigten auch, dass das Verfahren zur Berechnung der Restwanddicke aus zerstörungsfrei gewonnenen Messdaten im BE-Lagerbecken des KKL (Oxiddicken, Stabdurchmesser) konservativ ist /ABB12/.

Die metallografisch ermittelten Hüllrohr-Restwanddicken unter dem 3. Abstandhalter lagen bei den 5-jährigen Stäben (LK2) im Bereich von ca. 57 % bis 63 %, bei den 4-jährigen Stäben (LK2) zwischen ca. 85 % und 90 % und bei den 3-jährigen Stäben (LK2/L, LK2+/L, LK3/L) über ca. 90 %. Gegenüber den Hotlabor-Untersuchungen aus dem Jahr 1997 /PSI1/ konnte ein klarer Trend zu weniger Korrosion festgestellt werden. Dies hängt damit zusammen, dass während Zyklus 13 (1996/97) der Eisenmangel im Reaktorwasser weniger stark ausgeprägt war (Kap. 2.2). Ein weiteres Indiz dafür ist, dass die 1997 entladenen 4-jährigen Stäbe keine Störung durch magnetischen Crud zeigten, im Gegensatz zu den 1996 entladenen 4-jährigen Stäben /PSI1/.

Die während der Revisionsstillstände 1998 bis 2001 im KKL durchgeführten BE-Messkampagnen waren darauf ausgerichtet, die Einhaltung der temporären HSK-Kriterien nachzuweisen und die Wirksamkeit der Massnahmen gegen die ELK zu verifizieren.

Revisionsstillstand 1998

Während des Revisionsstillstandes im August 1998, d.h. nach einem Betriebszyklus mit geänderter Wasserchemie (Fig. 3), wurde eine umfangreiche BE-Inspektionskampagne durchgeführt /ABB13/. Dabei wurden an 378 vierjährigen Brennstäben sowie an jeweils 120 ein- bis dreijährigen Brennstäben die Oxiddicken im Bereich des 3. und 5. Abstandhalters gemessen und die Restwanddicken berechnet. Die Zahl der gemessenen Stäbe gestattete statistisch zuverlässige Aussagen. Wegen der Standzeitbegrenzung für SVEA-96-BE im 14. Betriebszyklus (1997/98) gab es im Reaktorkern keine BE mit mehr als 4 Standzeiten. Demzufolge lag der Maximalabbrand der SVEA-96-BE bei knapp über 40 MWd/kgU.

Bei der Messkampagne ergaben sich Restwanddicken unter 70 % für 6 der 378 vierjährigen Stäbe /KKL3/. Die betreffenden zwei BE wurden nicht in den Reaktorkern geladen. Das Ergebnis aller Messungen zeigte, dass mit einer Vertrauenswahrscheinlichkeit von 95 % bei etwa 98 % der Stäbe die Restwanddicken grösser als 70 % sind /KKL3/. Desweiteren zeigte ein Vergleich von 1997 und 1998 gemessenen Brennelementen, dass die ELK-Zunahme im Abstandhalter-Bereich während der 4. Standzeit gering war und einer durchschnittlichen Verringerung der Restwanddicke um ca. 2 % entsprach. Dies lag weit unter der konservativ angenommenen Verringerung um 20 %. Damit waren die zeitweiligen HSK-Kriterien für den BE-Einsatz im folgenden Zyklus 15 (1998/99) erfüllt.

Die Auswertung der Oxiddicken-Messungen an 3- und 4-jährigen Brennstäben zeigte, dass sich die Oxiddicken-Häufigkeitsverteilung (Zahl der Oxiddicken-Messwerte vs. Oxiddicken-Intervalle), verglichen mit den Messergebnissen von 1997, deutlich in Richtung geringerer Oxiddicken verschoben hat (Fig. 5). Daraus folgte, dass die seit Beginn von Zyklus 14 (September 1997) geänderte Wasserchemie das Fortschreiten der ELK verringert hat.

Revisionsstillstand 1999

Eine weitere BE-Inspektionskampagne wurde während des Revisionsstillstandes im August 1999 durchgeführt /ABB17/. Dabei konnten auch 5-jährige SVEA-96-BE inspiziert werden. Im Bereich des 3. Abstandhalters wurden die Oxiddicken von 180 vier- und 180 fünfjährigen Brennstäben sowie von insgesamt 210 ein- bis dreijährigen Brennstäben gemessen und die Restwanddicken berechnet. Es ergaben sich keine Restwanddicken unter 70 %. Die statistische Auswertung aller Messungen ergab, dass mit einer Vertrauenswahrscheinlichkeit von 95 % bei über 99,99 % der Liner-Stäbe die Restwanddicken grösser als 70 % sind /KKL4/. Die Inspektionskampagne zeigte, dass Liner-Stäbe aus LK2-Material gegenüber ELK wesentlich weniger empfindlich sind als Nicht-Liner-Stäbe aus dem gleichen Material (Fig. 6). Brennstäbe aus den weiterentwickelten Hüllrohrmaterialien LK2+ und LK3, welche standardmässig mit Liner ausgestattet sind, zeigten ein noch besseres Korrosionsverhalten im Bereich der Abstandhalter sowie ausserhalb.

Das unterschiedliche Korrosionsverhalten von Liner- und Nichtliner-LK2 lässt sich durch einen Unterschied bei der Wärmebehandlung ("late beta quenching") erklären /ABB15/. Beim Nichtliner-Hüllrohr wird die ganze Hüllrohrwand in einem Induktionsofen erhitzt und anschliessend durch Aufsprühen von Wasser auf die Aussenseite abgeschreckt. Bei der Behandlung des Liner-Materials wird die mit dem Liner versehene Innenseite mit Wasser gekühlt, während die Aussenseite im Induktionsofen aufgeheizt wird. Die Abschreckung erfolgt durch Kühlung von innen her, ohne Sprühen. Dadurch ist die Kühlrate bedeutend geringer als im Fall des Nichtliner-Materials. Der dadurch entstehende Unterschied in der Mikrostruktur des oberflächennahen Materials (Grössenverteilung der Sekundärphasen-Partikel) ist für das unterschiedliche Korrosionsverhalten verantwortlich.

Aufgrund der positiven Inspektionsergebnisse stimmte die HSK einem Weitereinsatz von sechs 5-jährigen SVEA-96-BE als Testelemente (Hochabbrandvorläufer) für eine 6. Standzeit im Zyklus 16 (1999/2000) zu. Diese Testelemente enthielten Liner-Brennstäbe aus LK2, LK2+ sowie LK3 und erfüllten die temporären HSK-Kriterien (Kap. 7).

Revisionsstillstand 2000

Während der Zyklen 15 und 16 (1998/2000) war die von Westinghouse Atom empfohlene Wasserchemie stabil und mit ausreichender Marge eingehalten worden (Fig. 4).

Die Oxiddicken-Messungen während des Revisionsstillstandes im August 2000 /ABB20/ wurden mit einem neuen, von der HSK akzeptierten Wirbelstrom-Verfahren der Fa. Westinghouse Atom durchgeführt /HSK7/. Damit war es möglich, auch bei starkem Einfluss von ferromagnetischem Crud die Oxiddicken sehr genau zu messen (Genauigkeit ca. 10 μm). Die Messungen konzentrierten sich auf vier- bis sechsjährige BE mit Abbränden von 45 bis 55 MWd/kgU. Im Bereich des 3. Abstandhalters wurden die Oxiddicken von 14 vier-, 52 fünf- und 59 sechsjährigen Brennstäben gemessen und die Restwanddicken berechnet. Alle Restwanddicken lagen über 80 % und somit wesentlich über dem 70 %-Kriterium /KKL6/. Deshalb konnte auf die bisher übliche statistische Auswertung der Messungen verzichtet werden. An 2 vier-, 7 fünf- und 8 sechsjährigen Stäben wurde an jeweils 15 Axialpositionen die Oxiddicke zwischen den Abstandhaltern gemessen. Der Abstand zum Auslegungskriterium (100 μm) betrug bei einem BE-Abbrand von 55 MWd/kgU (6 Einsatzyklen) selbst beim ungünstigsten Hüllrohrmaterial (LK2/L) noch mindestens 10 μm /KKL6/.

Um den Effekt des Autoklavierens auf das Korrosionsverhalten zu beurteilen, wurden die Oxiddicken zweier BE, welche Hüllrohre aus einheitlichem Material (LK2+/L resp. LK3/L) jedoch mit verschiedener Oberflächenbehandlung (darunter Autoklavieren) enthalten, gemessen und ausgewertet. Die Ergebnisse zeigten, dass das Autoklavieren die Hüllrohrkorrosion sowohl im Abstandhalterbereich als auch zwischen den Abstandhaltern nur wenig beeinflusst /ABB21/. Einige nicht-autoklavierte LK3/L-Teststäbe hatten im August 2000 bereits 6 Einsatzyklen absolviert und dabei lokale Abbrände bis ca. 70 MWd/kgU erreicht. Trotz mehrjährigen Einsatzes unter ungünstigen wasserchemischen Bedingungen (Eisenmangel) zeigten diese Stäbe ein akzeptables Korrosionsverhalten im Abstandhalterbereich und ein sehr gutes Korrosionsverhalten zwischen den Abstandhaltern /ABB20/. Aufgrund der Untersuchungsergebnisse hat KKL entschieden, ab Nachladung 18, deren Einsatz mit Zyklus 19 (2002/03) beginnt, auf das Autoklavieren der Hüllrohre von SVEA-96-BE zu verzichten.

Revisionsstillstand 2001

Während des Revisionsstillstandes im August 2001 wurden alle SVEA-96-BE entladen, welche noch eine gewisse Vorschädigung durch ELK zeigten. Diese BE hatten Brennstäbe aus LK2/L-Hüllrohrmaterial und waren vor 1997 (d.h. vor Änderung/Optimierung der Wasserchemie) erstmals in den Kern geladen worden.

Während des Revisionsstillstandes wurden die Oxiddicken von Brennstab-Hüllrohren zwischen den Abstandhaltern sowie im Bereich des 3. Abstandhalters gemessen /KKL7/. Die Messungen konzentrierten sich auf vier- bis siebenjährige BE mit Abbränden von 45 bis 60 MWd/kgU. Nach 5 Standzeiten und einem BE-Abbrand von ca. 52 MWd/kgU betrug die Oxiddicke von LK2+/L-Hüllrohren zwischen den Abstandhaltern weniger als ca. 35 μm und im Bereich des 3. Abstandhalters weniger als ca. 70 μm . Damit ist das Kriterium "Hüllrohr-Oxiddicke < 100 μm ", das der gültigen Auslegungsbasis entspricht, auch im Bereich der Abstandhalter bis zu den gültigen Abbrandlimiten eingehalten. Selbst für ein 7-jähriges Hochabbrand-Vorläufer-BE (60 MWd/kgU) konnte für LK2+/L- und LK3/L-Hüllrohre die Einhaltung des Oxiddickenkriteriums gezeigt werden.

Im laufenden Zyklus 18 (2001/02) kommen faktisch nur noch SVEA-96+/L-BE mit Brennstäben aus den fortgeschrittenen Hüllrohrmaterialien LK2+/L und LK3/L zum Einsatz. Mit diesen Hüllrohrmaterialien ist - wie die Oxiddickenmessungen belegen - die gültige Auslegungsbasis bezüglich Korro-

sion auch im Abstandhalterbereich der Hüllrohre eingehalten. Die vier noch mit LK2/L-Hüllrohren ausgestatteten SVEA-96+/L-BE wurden erst im Jahre 2000 bei optimierter Wasserchemie geladen.

Damit ist das ELK-Problem im KKL gelöst. Die in /HSK2/ formulierten, zeitweiligen HSK-Kriterien für den Brennstoffeinsatz unter ELK-Bedingungen sind nicht mehr gültig.

9 Ungeklärte Probleme

Im HSK-Statusbericht /HSK3/ vom März 1998 war eine Reihe ungeklärter Probleme aufgeführt worden. Aus heutiger Sicht kann eingeschätzt werden, dass diese Probleme gelöst werden konnten, mit folgenden zwei Ausnahmen:

- Die Aufklärung der grundlegenden Mechanismen für das Zustandekommen der ESSC oder der gewöhnlichen Schattenkorrosion ist noch nicht befriedigend gelungen. Dazu gehört insbesondere die Frage, auf welche Weise die Zusammensetzung des Cruds die Hüllrohrkorrosion beeinflusst.
- Der vom BE-Lieferanten behauptete günstige Einfluss der geänderten Wasserchemie auf die Dosisleistung an den Umwälzschleifen hat sich bisher nicht bestätigt.

Die Lösung des erstgenannten Problems ist aus technisch-wissenschaftlicher Sicht, die des zweiten im Hinblick auf die Verringerung radiologischer Belastungen während der Revisionsstillstände interessant. Aus Sicht der Hüllrohrkorrosion ist das ELK-Problem im KKL gelöst. Die diesbezüglichen Massnahmen gegen die ELK haben sich als wirksam erwiesen.

10 Schlussfolgerungen

Die konsequente Einhaltung der von Westinghouse Atom empfohlenen, optimierten Wasserchemie und der Einsatz der fortgeschrittenen, ELK-resistenten Hüllrohrmaterialien LK2+/L und LK3/L haben dazu geführt, dass die Auslegungsbasis bezüglich Korrosion auch im Abstandhalterbereich der Brennstäbe wieder eingehalten ist. Damit ist das ELK-Problem im KKL gelöst und die Pendenz PX-311 (Erhöhte Korrosion an SVEA-96-Brennstabhüllrohren) abgeschlossen.

Die Erfahrungen mit der ELK haben einerseits gezeigt, dass Änderungen der Wasserchemie die Hüllrohrkorrosion ungünstig beeinflussen können. Daher fordert die HSK, dass künftige Änderungen, z.B. die allfällige Einführung der kombinierten Wasserstoff- und Edelmetalleinspeisung im KKL, vorsichtig erfolgen und von einem BE-Inspektionsprogramm begleitet werden.

Andererseits wurde deutlich, dass der Übergang zu hohen BE-Abbränden geeignete Hüllrohrtypen erfordert. Die von ELK betroffenen Hüllrohre des Typs LK2 (ohne Innenliner) zeigten auch im Bereich zwischen den Abstandhaltern ein unbefriedigendes Korrosionsverhalten, d.h. erhöhte uniforme (Flächen-) Korrosion. Die Optimierung dieses Typs auf möglichst niedrige nodulare Korrosion führte zu Sekundärphasen-Partikeln (SPP) geringer Grösse. Die Grösse der SPP beeinflusst aber das Ausmass der Flächenkorrosion: Je grösser die SPP, desto geringer die Flächenkorrosion. Zu

kleine SPP werden bei hohen Brennstoffabbränden resp. Neutronenfluenzen vollständig aufgelöst (amorphisiert). Ein für hohe BE-Abbrände geeignetes Hüllrohr erfordert somit eine Optimierung der Grössenverteilung der SPP.

Referenzen

- /HSK1/ Projekt Schattenkorrosion, KKL: Kommentare zum ABB-Bericht BLD 97-109, HSK-Memo von J.-U. Klügel vom 4.2.1998
- /HSK2/ Erhöhte lokale Korrosion von SVEA-96-Brennelementen: Bedingungen für den Einsatz im Zyklus 15, HSK-Brief VW/PS vom 17.2.1998
- /HSK3/ KKL – SVEA96 enhanced localized corrosion: current status, HSK 12/536, Rev. 0 vom 6.3.1998
- /HSK4/ Stellungnahme zur erhöhten lokalen Korrosion an SVEA-96-Brennelementen im Kernkraftwerk Leibstadt (KKL), HSK 12/540, Mai 1998
- /HSK5/ Erhöhte lokale Korrosion (ELK) an SVEA-96-Brennelementen: Statistische Analyse und Konzept für Messungen im KKL-Pool, HSK-Brief WH vom 16.7.1998
- /HSK6/ Aufhebung der Standzeitbegrenzung für SVEA-96-Liner-BE ab Zyklus 17 (2000/01), HSK-Brief WH vom 5.5.2000
- /HSK7/ KKL: Beurteilung einer neuen Methode von Westinghouse Atom AB zur Messung von Brennstab-Oxidschichtdicken, HSK-Brief LD/WH vom 14.7.2000
- /ABB1/ KKL SVEA-96 Fuel Assembly: Stress analysis of fuel cladding with spotwise enhanced corrosion: A parameter study by use of FE calculations, ABB Atom Report BLD 97-065 vom 2.7.1997
- /ABB2/ Analysis of consequences due to localised enhanced corrosion on SVEA-96 bundles, ABB Atom Report BCB 97-111 vom 2.8.1997
- /ABB3/ KKL SVEA-96 Fuel Assembly: Methodology for establishing the Thermal Mechanical Operating Limit for fuel rods with localised enhanced corrosion, ABB Atom Report BLD 97-066, Rev. 1 vom 13.8.1997
- /ABB4/ Summary of KKL 1997 outage inspection data for assessment of localised cladding corrosion, ABB Atom Report BUC 97-079 vom 20.8.1997
- /ABB5/ KKL SVEA-96 Fuel Assembly: Material strength parameters used in stress analysis of fuel cladding with spotwise enhanced corrosion, ABB Atom Report BLD 97-093 vom 2.11.1997
- /ABB6/ Impact from recommended water chemistry changes on the dose rates on recirculation lines in NPP Leibstadt, ABB Atom Report PAF 97-302 vom 10.11.1997

- /ABB7/ A review of spacer shadow corrosion on ABB Atom BWR fuel,
ABB Atom Report BUC 97-115 vom 24.11.1997
- /ABB7a/ Spacer shadow corrosion in KKL: Inspections in August, September and November 1997,
ABB Atom Report BUC 97-098 vom 27.11.1997
- /ABB8/ Consequences of localised enhanced corrosion for LOCA design basis criteria,
ABB Atom Report BLD 97-109 vom 10.12.1997
- /ABB9/ SVEA-96 Fuel Assembly: Validation of FE calculations of spotwise enhanced corrosion,
ABB Atom Report BLD 97-121 vom 22.12.1997
- /ABB10/ KKL SVEA-96 Fuel Assembly: Statistical Evaluation of Poolside Measurements,
ABB Atom Report BLD 98-030 vom 17.4.1998
- /ABB11/ Clarifications of Some Aspects of the ESSC Phenomenon,
ABB Atom Report BUA 98-046, Rev. 1 vom 10.6.1998
- /ABB12/ Spacer Shadow Corrosion on ABB Atom BWR Fuel: Comparison between PSI Hotcell
and KKL Poolside Measurements for Irradiated Fuel,
ABB Atom Report BUA 98-042, Rev. 2 vom 26.6.1998
- /ABB13/ KKL: Results from the Fuel Inspection during the Outage 1998: Final report,
ABB Atom Report BUA 98-212 vom 12.11.1998
- /ABB14/ Summary of the Status of ESSC in ABB Atom Fuel BWR Plants, November 1998,
ABB Atom Report BUA 98-232 vom 20.1.1999
- /ABB15/ Explanation of Difference in Corrosion Performance between LK2 Mono and LK2 Liner
Tubes,
ABB Atom Report BUA 99-020 vom 5.3.1999
- /ABB16/ KKL SVEA-96 Fuel Assembly: Thermal Mechanical Operating Limit for Liner Fuel,
ABB Atom Report BLD 99-004, Rev. 1 vom 12.4.1999
- /ABB17/ KKL: Results from the Fuel Inspection during and after the Outage 1999,
ABB Atom Report BUA 99-154 vom 30.11.1999
- /ABB18/ The Enhanced Spacer Shadow Corrosion Phenomenon,
KTG-Fachtagung "Verifikation des Brennelementverhaltens durch
Nachbestrahlungsuntersuchungen und Experimente", 29.2.-1.3.2000, Karlsruhe, BRD
- /ABB19/ Enhanced Spacer Shadow Corrosion on SVEA Fuel Assemblies in the Leibstadt Nuclear
Power Plant,
ANS International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, April 10-13,
2000, Park City, Utah, USA
- /ABB20/ KKL: Results from the Fuel Inspection during and after the Outage 2000,
Westinghouse Atom Report BTM 00-108, Rev. 1 vom 15.1.2001
- /ABB21/ Evaluation of autoclaved cladding in Westinghouse Atom surface treatment matrices,
Westinghouse Atom Report BTM 00-116 vom 22.12.2000
- /ABB22/ ASTAR - Westinghouse Atom Standard Analysis for SVEA Reloads,
Westinghouse Atom Report RPA 90-026, Rev. 12 vom 11.7.2001
- /PSI1/ Post Irradiation Examination of SVEA-96 Fuel Rods Irradiated in KKL,
PSI Report TM-43-97-31 (Confidential) vom 29.10.1997

- /PSI2/ Post Irradiation Examinations (PIE) of SVEA-96 Fuel Rods Irradiated at KKL (1998 Investigation; Part 1),
PSI Report TM-43-98-13 (Confidential) vom 17.3.1998
- /PSI3/ Post Irradiation Examinations (PIE) of SVEA-96 Fuel Rods Irradiated at KKL (1998 Investigation - Part 2: Fission Gas Release),
PSI Report TM-43-98-37 (Confidential) vom 17.8.1998
- /PSI4/ Post Irradiation Examinations (PIE) of SVEA-96 Fuel Rods Irradiated at KKL (1998 Investigation - Part 3),
PSI Report TM-43-98-42 (Confidential) vom 23.7.1999
- /PSI5/ Post Irradiation Examinations (PIE) of SVEA-96 Fuel Rods Irradiated at KKL (1998 Investigation - Part 4),
PSI Report TM-43-99-31 (Confidential) vom 1.2.2000
- /KKL1/ Update on locally enhanced corrosion, cycle 14 reload licensing submittal,
Meeting with HSK, ABB Atom, KKL, Aug. 20, 1997, KKL,
KKL-Sitzungsprotokoll PRS/97/138 vom 29.8.1997
- /KKL2/ Beschleunigte Hüllrohrkorrosion im Abstandhalterbereich von SVEA-96-Brennelementen,
KKL-Bericht BET/98/028, Rev. 0 vom 5.3.1998 ("Topical Report")
- /KKL3/ Fuel Inspection Results from Outage 1998:
Evaluation of Enhanced Spacer Shadow Corrosion,
KKL-Bericht BET/98/132 vom 4.9.1998
- /KKL4/ Fuel Inspection Results from Outage 1999:
Demonstrating ESSC Fuel Inspection Criteria,
KKL-Bericht BET/99/147 vom 30.8.1999
- /KKL5/ Removing Administrative ESSC Residence Time Restrictions on SVEA-96 Liner Fuel,
KKL-Bericht BET/00/001, Rev. 0 vom 26.1.2000
- /KKL6/ KKL: Compilation of Oxide Measurement Results and Water Chemistry Data for Showing
Compliance with HSK Criteria and Westinghouse Atom Recommendations,
KKL-Bericht BET/00/092, Rev. 2 vom 4.7.2001
- /KKL7/ Fuel Inspection Meeting HSK – W-Atom – KKL – EGL, 17.8.2001,
KKL-Sitzungsprotokoll PRS/01/137 vom 23.8.2001
- /KKL8/ Dosisleistung Umwälzschleifen,
E-Mail von KKL (R. Lundmark) an HSK (H. Wand) vom 8.10.2001
- /KKL9/ Irradiation Data and Poolside Inspections Campaign D, August 2000,
KKL-Bericht BET/00/159, Rev. 0 vom 13.9.2001

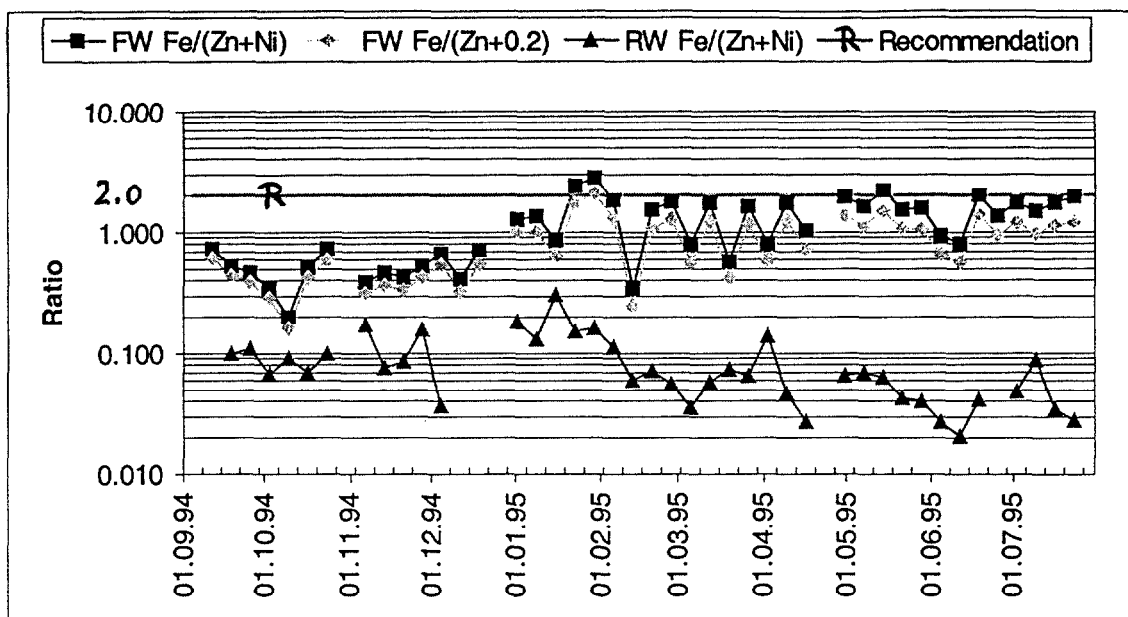


Figure 1. Ratio of Iron to divalent corrosion products Zinc and Nickel in the feed water (FW) and the reactor water (RW) during cycle 11 /κκΛ9/

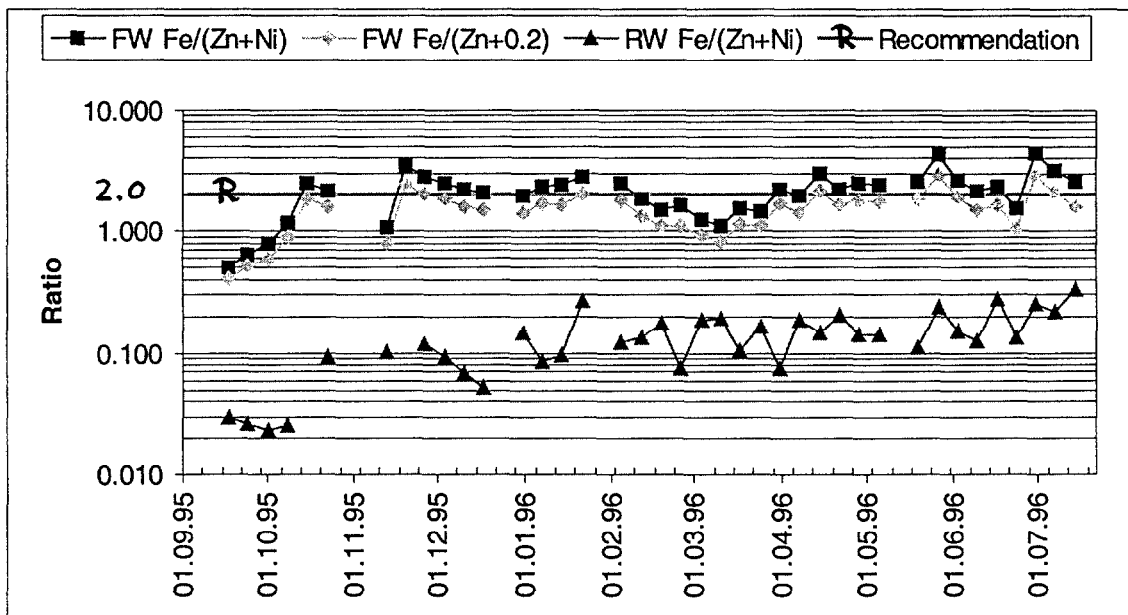


Figure 2. Ratio of Iron to divalent corrosion products Zinc and Nickel in the feed water (FW) and the reactor water (RW) during cycle 12 /κκΛ9/

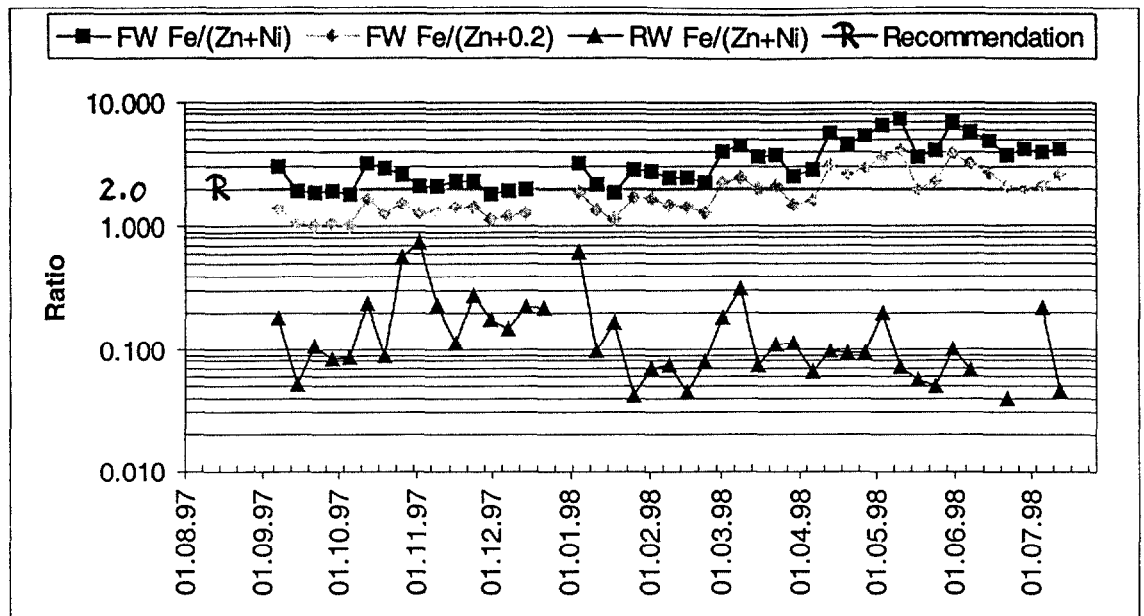


Figure 3. Ratio of Iron to divalent corrosion products Zinc and Nickel in the feed water (FW) and the reactor water (RW) during cycle 14 /KκL9/

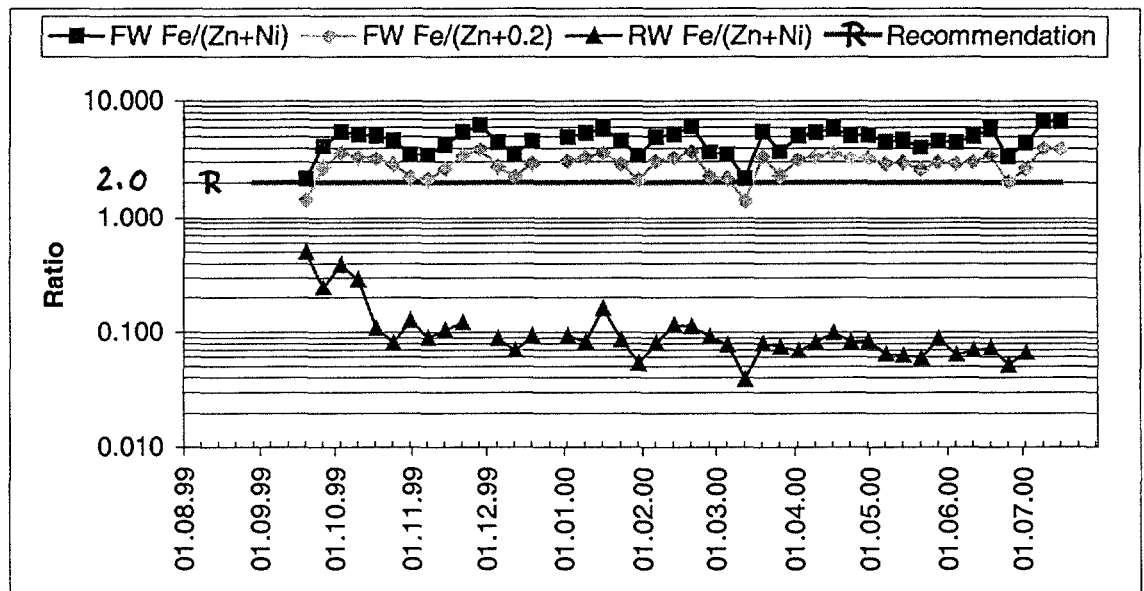


Figure 4. Ratio of Iron to divalent corrosion products Zinc and Nickel in the feed water (FW) and the reactor water (RW) during cycle 16 /KκL9/

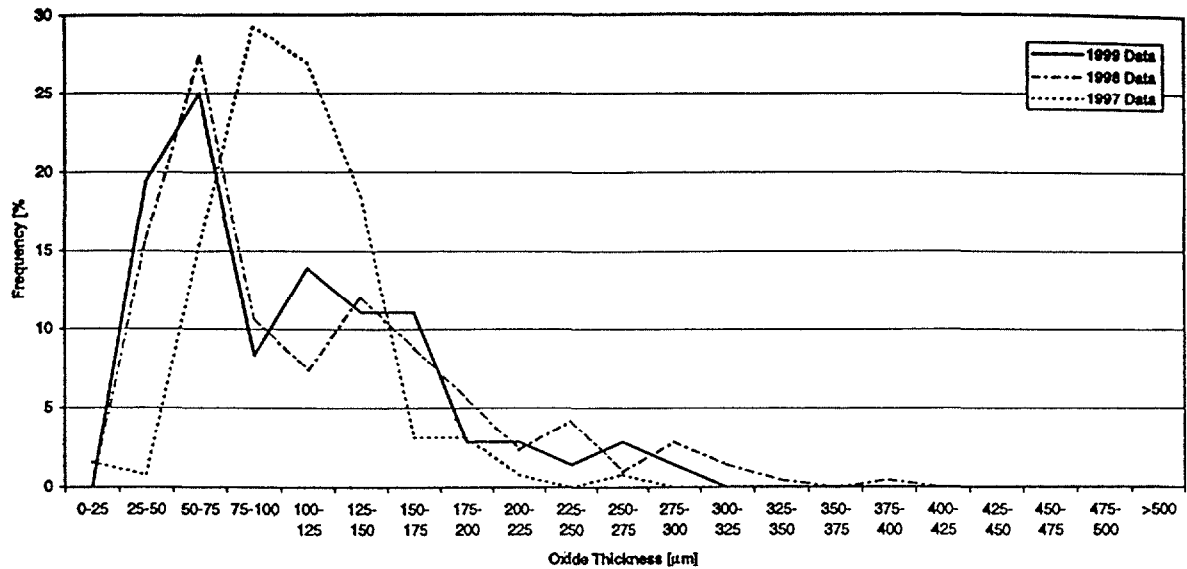


Figure 5. Analysis of Water Chemistry Effects.
Comparison of 4-Cycle Non-Liner Fuel from 1997, 1998 and 1999.
Peak Oxide Thickness Data 3rd Spacer. /KKL5/

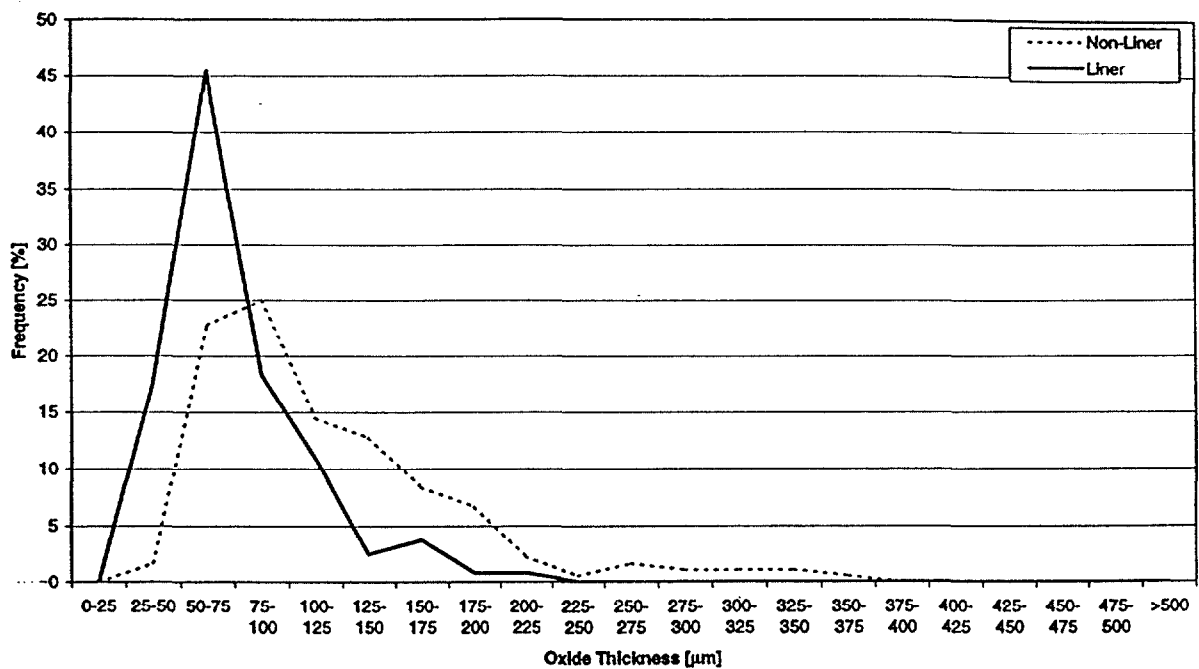


Figure 6. Analysis of Cladding Material Differences.
Comparison of 5-Cycle Liner and Non-Liner Fuel from 1999.
Oxide Thickness Data 3rd Spacer. /KKL5/