

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

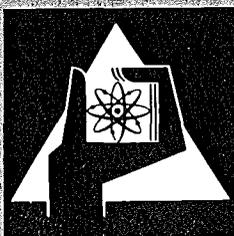
September 1973

KFK 1863

Institut für Material- und Festkörperforschung
Projekt Schneller Brüter

**Analyse der Leervolumenverteilung in Oxid-Brennstäben
hoher Stableistung**

H. Hoffmann



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1863

Institut für Material- und Festkörperforschung

Projekt Schneller Brüter

Analyse der Leervolumenverteilung in Oxid-Brennstäben
hoher Stableistung

von

H. Hoffmann

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

10. Aug. 1973

KURZFASSUNG

Das Ziel dieser Arbeit war ein quantitatives Verständnis der Leervolumenverlagerungen in Brennstab-Proben während der Bestrahlung zu erhalten. Hierzu wurden radiale Leervolumenverteilungen, wie Riß- und Porenvolumenverteilungen, nach der Bestrahlung gemessen und mit modelltheoretisch gewonnenen verglichen. Zu diesem Zweck wurden kurzzeitig (He-Loop-Versuchsgruppe 2) und langfristig (Bündelbestrahlung Mol-7A) bestrahlte Prüflinge bezüglich des Leervolumens analysiert.

Die Prüflinge wurden mittels Diamant-Trennscheiben in zylindrische Proben geteilt, diese in Araldit eingebettet und auf SiC-Papier geschliffen. Als optimalste Präparationsmethode erwies sich das Vibrationspolieren mit $\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{CrO}_3$ als Poliermittel. Die Rißvolumenverteilung wurde durch Vermessen der Risse in angefertigten Übersichtsaufnahmen (ca. 70x) und die Porenvolumenverteilung durch elektronische Auswertung der Fotomontagen radialer ungerissener Brennstoffbereiche (200 x) bezüglich des Porengehaltes gewonnen.

Die quantitative Deutung erfolgte durch Leervolumenvergleichsrechnungen mit dem Rechenprogramm SATURN-la. Dieses bietet die Möglichkeit, sowohl die Poren- als auch die Rißvolumenverteilung als Funktion der Zeit für veränderliche Betriebsbedingungen zu berechnen. Erstere errechnet sich aus der Bilanz der zu- und abwandernden Porosität eines Ringelements. Letztere wurde auf der Basis eines vielfach gerissenen Brennstoff-Modells errechnet. Es wurde angenommen, daß der Brennstoff in beliebig viele Keile aufreißt, wenn die Thermospannungen Zuspaltungen sind und die Bruchspannung des Brennstoffes überschreiten. Bezüglich der Porenwanderung erhärtete eine kritische Literaturstudie die Annahme, daß der Verdampfungs-Kondensations-Mechanismus den Hauptanteil der Gesamtwanderungsgeschwindigkeit für Poren größer $10 \mu\text{m}$ bildet. Im Rechenprogramm wurde nur dieser Beitrag berücksichtigt und vereinfachend als vom Porenradius unabhängig angesetzt. Bei den langfristig bestrahlten Prüflingen wurde für die heiße Brennstoffzone ($T > 1700^\circ\text{C}$) eine Porositätszunahme infolge Spaltgasschwellung in Rechnung gestellt, die durch die Porenwanderung begrenzt wurde.

Der Vergleich zwischen Experiment und Theorie brachte folgende Ergebnisse:

- Die gemessenen Porositätsverteilungen der kurzzeitig bestrahlten Prüflinge konnten durch geeignete Wahl der Wärmeübergangszahl zwischen Brennstoff und Hülle rechnerisch angenähert werden.
- Die gemessenen Rißvolumenverteilungen ließen sich rechnerisch verifizieren. Bei den Kurzzeitbestrahlungen war die Übereinstimmung von der Wärmeübergangszahl unabhängig.
- Diskrepanzen bezüglich der errechneten und gemessenen Porositätsverteilungen bei hohem Abbrand lassen sich durch axiale Materialtransporte, Spaltgasblasenbildung und negative Schwellraten der äußeren Brennstoffzone deuten.

A B S T R A C T

Analysis of Void Volume Distribution of Oxide Fuel Pins with High Linear Rod Power

The aim of this work was to gain a quantitative knowledge of the void volume redistribution by measuring radial void volume profiles of irradiated fuel pins, such as porosity and crack volume, and by comparing these profiles with calculated ones. Short-term (He-Loop-Versuchsgruppe 2) and long-term irradiated pins (bundle irradiation Mol-7A) were analysed.

The irradiated fuel pins were separated with diamond-coated cutting wheels imbedded in araldite and ground with emery paper of SiC. The vibrational polishing with $Al_2O_3 + CrO_3$ as abrasives was selected as an optimum method of sample preparation. The crack volume was taken with a ruler from cross sectional micrographs ($\sim 70 \times$). The porosity distributions were provided by composite micrographs (200 \times) of uncracked radial fuel regions with an image analysing computer.

The quantitative interpretation was done by comparison calculations with the fuel pin modeling computer code SATURN-1a. One of the features of SATURN-1a is the capability of calculating the porosity as well as the crack volume distributions as a function of time and variable irradiation conditions. The former was calculated by means of a balance of porosity migrating into and out of a ring element. The latter was computed on the basis of a multifractured fuel model. It was assumed that a multifractured fuel is formed if the thermal stresses are tensile stresses and exceed the fracture stress of the fuel. A critical literature survey confirmed that the evaporation-condensation mechanism is the main contribution to the total migrating velocity of pores larger than 10 μm . Only this contribution was considered in the computer code and set independent of the pore radius. An additional porosity increase in the hot fuel region ($T > 1700^\circ C$) due to fission gas swelling was computed for long-term irradiations.

The comparison between predicted and measured radial porosity distributions gives the following results:

- The measured radial porosity distributions of the short-term irradiated fuel pins could be fitted with calculated ones, using suitable heat transfer coefficients.
- The measured crack volume distributions were verified by predicted profiles. For short-term irradiations the agreement was independent of the choice of the heat transfer coefficient.
- The discrepancies between calculated and measured porosity distributions for high burn-ups were explained by axial material transports, production of fission gas bubbles, and negative swelling rates simulating hot pressing of the outer fuel region.

I n h a l t	Seite
1. Einleitung	1
2. Diskussion und Herleitung der Porenwanderungsgeschwindigkeit	2
2.1 Literaturübersicht	2
2.2 Herleitung der Gesamtwanderungsgeschwindigkeit	6
2.3 Abschätzung der Einzelbeiträge zur Gesamtwanderungsgeschwindigkeit	11
3. Berechnung der Leervolumen- und der Temperaturverteilung	25
3.1 Berechnung der Temperaturverteilung in Brennstoff und Hülle	25
3.2 Berechnung der Verteilung der Rißvolumenanteile	30
3.3 Berechnung der Verteilung der Porenvolumenanteile	31
3.4 Schwellen des Brennstoffes	33
4. Experimentelle Bestimmung der radialen Leervolumenverteilung	35
4.1 Probenvorbereitung	35
4.2 Probenpräparation	35
4.3 Bestimmung der radialen Rißvolumenverteilung	38
4.4 Bestimmung der radialen Porositätsverteilung	40
4.5 Leervolumenbilanz	42
4.6 Ermittlung der optimalen Präparationsmethode	44
5. Vergleich von errechneten mit gemessenen Leervolumenverteilungen an kurzzeitig bestrahlten Prüflingen	49
5.1 Radiale Verteilung der Rißvolumenanteile	51
5.2 Radiale Porositätsverteilung	58
5.3 Thermische Analyse	62
5.4 Parameterstudien	66
6. Vergleich von errechneten mit gemessenen Leervolumenverteilungen an langfristig bestrahlten Prüflingen	70
6.1 Radiale Verteilung der Rißvolumenanteile	73
6.2 Radiale Porositätsverteilung	78
6.3 Leervolumenbilanz	83
6.4 Thermische Analyse	88
6.5 Materialverdampfung im Bereich des Zentralkanals	90
6.6 Porositätsverminderung in der Randzone	95
7. Beeinflussung der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes durch Form, Verteilung und Orientierung der Poren	98
8. Zusammenfassung und Schlußfolgerung	105
Literatur	109

1. Einleitung

Im Gegensatz zu den Brennstäben in thermischen Reaktoren werden die Brennstäbe in schnellen Brutreaktoren einer hohen thermischen Belastung ausgesetzt. Daraus ergeben sich Konsequenzen bezüglich des Brennstabverhaltens. Im Institut für Material- und Festkörperforschung wurden deshalb in Zusammenarbeit mit dem "Projekt Schneller Brüter" Bestrahlungsexperimente unter simulierten Schnell-Brüter-Bedingungen konzipiert und durchgeführt. Die Bestrahlungen fanden in den Reaktoren FR 2 und BR 2 - zum Teil unter Cd-Abschirmung zur Erzeugung eines schnellen Flusses - bei hohen Stableistungen statt. Sie bilden die Grundlage für die Analysen der Leervolumenverlagerungen, die sich bemerkenswert unterschiedlich gegenüber dem Verhalten der Leichtwasser-Reaktor-Brennstäbe erwiesen haben.

Die fotografischen Aufnahmen der bestrahlten Brennstab-Abschnitte liefern z.T. ein qualitatives Verständnis von den während der Bestrahlung ablaufenden Leervolumenverteilungen. Die auffallendsten Vorgänge finden in den ersten Bestrahlungsstunden durch die Wanderung der Herstellungsporen statt. Diese sind ursprünglich statistisch verteilt und wandern unter dem Einfluß des Temperaturgradienten zum thermischen Zentrum und bilden dort den Zentralkanal. Auf ihrem Wege agglomerieren sie zu linsenförmigen Poren, die die Verdichtung und die Stengelkornstruktur des Brennstoffes hervorrufen.

Infolge thermischer Zyklisierung reißt der Brennstoff in eine Vielzahl radialer und tangentialer Risse auf. Die durch die Porenwanderung und Rißbildung verursachte inhomogene Leervolumenverteilung, die sich zudem mit der Bestrahlungszeit ändert, hat direkten Einfluß auf die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes sowie auf die radiale Wärmequelllichtverteilung und damit auf das Temperaturprofil.

Will man Aussagen über das Bestrahlungsverhalten von Schnell-Brüter-Brennstäben gewinnen, so ist ein quantitatives Verständnis der Rißbildung, der Rißausheilung und der Porenwanderung nötig. Letztere ist von fundamentaler Bedeutung, da sie nicht nur die Wanderung der Fertigungsporen, sondern auch die Bildung der Spaltgasblasen und deren Transport zum Zentralkanal beinhaltet. Im weitesten Sinne ist der Spaltgasdruckaufbau, das "Gasschwellen" des Brennstoffes und - hierdurch verursacht - die Wechselwirkung Brennstoff-Hülle miteinbezogen. Die Beanspruchungsgrößen wie Temperaturverteilung, Spaltgasdruck, Brennstoffschwelldruck, Hüllverformungen sind u.a. eine direkte Folge des ursprünglichen Leervolumens und dessen Umverteilung.

Im Rahmen dieser Arbeit sollten Leervolumenverteilungen nach der Bestrahlung gemessen und mit modellmäßigen Rechnungen verglichen werden. Hierzu mußten geeignete Verfahren entwickelt werden. Das Ziel war es, Aufschlüsse bezüglich der Porenwanderungskinetik zu erhalten und einen systematischen Zusammenhang zwischen Stabileistung, Hüllaußentemperatur, Bestrahlungszeit und der Leervolumenverteilung im Brennstoff herzuleiten. Es sollte letztlich geklärt werden, ob die Leervolumenverlagerungen für die Lebensdauer eines Brennstabes limitierende Vorgänge sind.

2. Diskussion und Herleitung der Porenwanderungsgeschwindigkeit

2.1 Literaturübersicht

Barnes und Mazey [1] hatten als erste beobachtet, daß in Cu-Folien durch Beschuß mit ^{38}MeV - α -Teilchen, gebildete Gasblasen entlang eines Temperaturgradienten wanderten. Sie konnten weiterhin feststellen, daß einige dieser Blasen auf ihrer Wanderschaft kollidierten und sich zu größeren Blasen vereinigten. Durchmessermessungen vor und nach der Kollision ließen die Deutung zu, daß das Gas in den größeren Blasen dem idealen Gasgesetz folgte. Durch die Vereinigung wurde eine Volumenzunahme gemessen, die der Relation

$$\sum_{n=1}^m \rho_n^2 = R^2 \quad (1)$$

gehört (ρ_n = Blasenradius vor, R = Blasenradius nach der Kollision) und die zur Deutung der Volumenzunahme des Cu herangezogen wurde.

In der darauffolgenden Zeit setzten systematische Untersuchungen sowohl in experimenteller als auch in theoretischer Sicht ein. So stellten sowohl Barnes und Mazey [2] als auch Cornell und Williamson [3] fest, daß die Wanderungsgeschwindigkeit von Gasblasen in Metallfolien und dünnen UO_2 -Schichten ihrem Radius umgekehrt proportional war; auch erfolgte die Wanderung stets zur heißen Seite hin. Dieser Sachverhalt wurde später von Weaver [4] und Selleck und Decrescente [5] für die Wanderung von Gasblasen in UN und UC bestätigt. Shewmon [6] war es dann, der den Temperaturgradienten als treibende Kraft der Blasenbewegung und die r^{-1} -Abhängigkeit durch die Oberflächendiffusion der

der Matrixatome als geschwindigkeitsbestimmenden Materialtransport deutete. Er war es auch, der die zusätzliche Bedeutung des Blasenradius erkannte. Mit zunehmendem Blasenradius wird der Beitrag zur Gesamtwanderungsgeschwindigkeit über die Transportmechanismen der Gitterdiffusion und Verdampfung-Kondensation bedeutender. Greenwood und Speight [7] behandelten die ungerichtete Wanderung von Spaltgasblasen, die der Brown'schen Bewegung analog ist, über den Mechanismus der Oberflächendiffusion der Matrixatome. Diese Betrachtungsweise erlaubt ebenfalls die Berechnung der Volumenvergrößerung der Blasen bei der Verschmelzung und die dadurch verursachte Volumenzunahme des Struktur- bzw. Spaltmaterials. Barnes und Nelson [8] zeigten hingegen, daß eine ungeordnete Blasenbewegung im allgemeinen gegenüber einer gerichteten vernachlässigbar ist. Als treibende Kräfte können auftreten ein Temperaturgradient, ein Spannungsgradient, Wechselwirkungen mit Korngrenzen und Versetzungslinien. Sowohl Barnes und Nelson [8] als auch Speight [9] und Biersack [10, 11] führten theoretische Analysen nicht nur bezüglich der Oberflächendiffusion, sondern auch bezüglich des Dampftransportes quer durch die Blasen (Verdampfung und Kondensation der Matrixatome) durch. Sie fanden heraus, daß für Blasenradien $< 1 \mu\text{m}$ der Transportmechanismus der Oberflächendiffusion und für $\rho > 1 \mu\text{m}$ der der Verdampfung-Kondensation der dominante ist. Gruber [12, 13] untersuchte die Blasenwanderung über die Oberflächendiffusion detaillierter. Er stellte der Verschmelzung bei ungerichteter Bewegung die Verschmelzung bei gerichteter Bewegung in einem Temperaturgradienten gegenüber. Er fand, daß der mittlere Blasenradius bei ungerichteter Bewegung proportional der (Zeit)^{1/5} und bei gerichteter Bewegung proportional der (Zeit)¹ zunahm. Für beide Fälle berechnete er die Blasengrößenverteilungen als Funktion der Zeit und fand, daß der Schwellbeitrag, hervorgerufen durch die Blasen-Verschmelzung bei ungerichteter Bewegung, vernachlässigbar ist. Barnes und Nelson [8] schlugen für die Blasenwanderung im Brennstoff ein wirklichkeitsnäheres Modell vor: Sie nahmen an, daß sich die Blasen zuerst an Versetzungen bilden, von denen sie sich nicht losreißen können; erst bei Überschreiten eines Blasenradius von einigen hundert Å können sie diese Rückhaltekraft überwinden und den Temperaturgradienten entlang weiterwandern. Sie werden dann erneut und zwar von Korngrenzen eingefangen; erst nach Übersteigen

des Blasenradius von einigen 1000 Å können sie sich auch von diesen Hindernissen losreißen und weiter den Temperaturgradienten entlang zum Brennstoffzentrum wandern, um im gebildeten Zentralkanal das Spaltgas freizulassen. Nichols [14] erweiterte dieses Konzept quantitativ. Bei einer Rückhalte­kraft von ca. 10^{-4} dyn kann sich eine Blase nicht durch eine ungerichtete Brown'sche Bewegung von einer Ver­setzung losreißen, dies gelingt nur bei einer gerichteten Bewegung (z.B. entlang eines Temperaturgradienten bei Oberflächendiffusion als Transportmechanismus) unter Überschreiten eines kritischen Blasenradius von ca. 670 Å. Den zweiten kritischen Blasenradius, bei dem die Rückhalte­kraft der Korngrenze durch die des Temperaturgradienten kompensiert wird, errechnete Nichols zu 5300 Å. Nichols et al. [14, 15, 16] bauten dieses Blasenwanderungsmodell zu einem Spaltgasfrei­setzungsmodell für bestrahlte UO_2 -Brennstäbe aus. Wapham [17] be­richtete als erster von der Möglichkeit, daß Gasblasen während der Bestrahlung verschwinden können. Bestrahlte Proben, in denen durch Erhitzung nachweislich Gasblasen gebildet worden waren, wurden bei tieferen Temperaturen ($\leq 100^\circ C$) einer erneuten Bestrahlung unter­zogen. Hierbei verschwanden die ursprünglich gebildeten Gasblasen, was bedeutete, daß das schon ausgeschiedene Gas wieder in Lösung ging. Diese Feststellung der Wiederauflösung von gebildeten Spalt­gasblasen wurde von Ross [18] und Cornell et al. [19] bestätigt. Cornell folgerte aus dieser Tatsache, daß die von Nichols abgeleitete Spaltgasfreisetzung unter Außerachtlassung der Wiederauflösung der Spaltgasblasen das Phänomen überbetont. Elektronenmikroskopische Unter­suchungen an Brennstäben, durchgeführt von Ross [18], Cornell et al. [19], Clough et al. [20] und Coquerelle et al. [21], zeigen eine ziemlich konstante Blasen­konzentration (10^{14} bis 10^{17} / cm^3) eines ziem­lich konstanten Durchmessers (< 400 Å), obwohl die Zentraltemperatur zwischen 1000 und $2800^\circ C$, der Neutronenfluß zwischen 10^{13} und $2 \cdot 10^{14}$ n/ $cm^2 \cdot sec$ und die Neutronendosis zwischen $3 \cdot 10^{19}$ und $3 \cdot 10^{20}$ n/ cm^2 variierten. Dieser Befund steht im Gegensatz zu den älteren Überlegun­gen, die eine starke Abhängigkeit der Blasen­konzentration und -größe von der Temperatur und dem Abbrand vorhersagen, Neuere Vorstellungen für ein Schwell- bzw. Spaltgasfrei­setzungsmodell, die auf der Wieder­auflösung der Spaltgasblasen basieren, wurden entwickelt [20,21,22,23]. Sowohl Matzke [24] als auch Nelson [22] folgerten aus ihren Modellen,

daß bei niedrigeren Temperaturen das meiste Gas in dynamischer Lösung, hingegen bei hoher Temperatur das meiste Gas in Blasen ausgefallen ist. Weiter folgerte Matzke, daß die Konzentration an Gas sowohl in Blasen im Korn als auch an den Korngrenzen linear mit der Bestrahlungszeit wächst; dies bedeutet, daß der Schwellvorgang und die Gasabgabe über die Korngrenzen die gleiche Zeitabhängigkeit haben.

In der Literaturübersicht wurde, der Vollständigkeit halber, die Bildung und Wanderung von Blasen sowohl im Strukturmaterial als auch im Kernbrennstoff behandelt. Im englischen und deutschen Sprachgebrauch wird zwischen "Pore" (= void) und "Blase" (= bubble) unterschieden. Es hat sich eingebürgert, einen geschlossenen Hohlraum beliebiger Gestalt im Brennstoff als "Pore" zu bezeichnen, wenn der Gasdruck kleiner als der Gleichgewichtsdruck (d.h. der Gasdruck mit der Oberflächenspannung des Brennstoffes im Gleichgewicht steht) ist. Dergleichen bezeichnet man einen geschlossenen Hohlraum meist kugeligiger Gestalt im submikroskopischen Bereich ($\varnothing < 1 \mu\text{m}$) dessen Gasdruck gleich bzw. größer dem Gleichgewichtsdruck ist als "Blase". Diese Trennung erlaubt zwischen Kurz- und Langzeitphänomenen zu unterscheiden. Die Bildung des Zentralkanals und der Stengelkornzone ist zum größten Teil auf die Wanderung vorhandener Sinterporen und das Schwellen und die Gasfreisetzung mit zunehmendem Abbrand auf die Bildung von Spaltgasblasen und deren Transport zum Brennstoffzentrum zurückzuführen. In systematischer Fortführung dieser Einteilung wird der Begriff "Linsenpore" benutzt.

Nach dieser Definition können Spaltgasblasen mit dem Gefügebildungsanalysator (s. Kap. 4.4) nicht nachgewiesen werden, da die fotografische Vergrößerung der Gefügebildungen und die Empfindlichkeit des Meßgerätes nicht ausreichen, schwarze Flächenanteile mit $\varnothing < 1 \mu\text{m}$ zu messen. Weiterhin kann mit zunehmendem Abbrand, nach obiger Definition, nicht mehr einwandfrei zwischen Pore und Blase unterschieden werden, da z.B. eine von der Randzone nach innen wandernde Sinterpore auf ihrem Wege interstitiell gelöstes Spaltgas und Spaltgasblasen aufnehmen kann ($\varnothing > 1 \mu\text{m}$; $p \geq 10 \text{ atm}$). Die mit dem Gefügebildungsanalysator gemessene Leervolumenverteilung enthält dann sowohl Poren- als auch Blasenvolumenanteile. Der Einfachheit halber wird nur von Porositätsverteilungen bzw. von Verteilungen der Porenvolumenanteile gesprochen.

In dieser Arbeit wird vorzugsweise der Transport von Fertigungsporen zum Zentralkanal untersucht. Weiterhin wird versucht, die Porositätsverteilung auch nach langer Bestrahlungszeit ($t \approx 1$ Jahr) durch die Wanderung der Sinterporen zu deuten. Wo dies nicht gelingt, werden die Spaltgasblasen in mehr empirischer Art und Weise berücksichtigt. Wir haben es demnach vorwiegend mit Poren zu tun und in den nachfolgenden Kapiteln wird deshalb nur von Poren die Rede sein.

2.2 Herleitung der Gesamtwanderungsgeschwindigkeit

Die Wanderungsgeschwindigkeit der Poren setzt sich aus 3 verschiedenen Anteilen zusammen, die hervorgerufen werden

- durch Gitterdiffusion
 - durch Oberflächendiffusion
 - durch Verdampfung und Kondensation
-) } der Matrixatome

Greift an der Pore eine Kraft an, hervorgerufen z.B. durch einen Temperatur- bzw. Spannungsgradienten oder auch durch Wechselwirkung der Pore mit einer Versetzungslinie bzw. Korngrenze, so lautet die Driftgeschwindigkeit in der allgemeinsten Form:

$$v = B_P \cdot F_P \quad \text{wobei } B_P = \text{Beweglichkeit der Pore} \quad (2)$$

$F_P = \text{treibende Kraft auf die Pore}$

Mit Hilfe der Nernst-Einstein-Relation, die die Beweglichkeit mit dem Diffusionskoeffizienten D_P in einfacher Weise verbindet:

$$B_P = \frac{D_P}{kT} \quad \begin{array}{l} k = \text{Boltzmann-Konstante} \\ T = \text{Temperatur in } ^\circ\text{K} \end{array} \quad (3)$$

läßt sich Gl. (2) schreiben:

$$v = \frac{D_P}{kT} \cdot F_P \quad (2a)$$

Nach der Diffusionstheorie [6, 25] läßt sich die Kraft F_P auf die Pore auf die Kraft f auf ein einzelnes Atom bzw. Molekül zurückführen:

$$F_P = \frac{4/3\pi\varrho^3}{\Omega} \cdot f = \frac{4/3\pi\varrho^3}{\Omega} \cdot \frac{Q^*}{T} \cdot \left(\frac{dT}{dr} \right)_P \quad (4)$$

wobei $\Omega =$ Atom bzw. Molekylvolumen

$\varrho =$ Porenradius

$r =$ Brennstoffradius

$\left(\frac{dT}{dr} \right)_P$ = Temperaturgradient innerhalb
der Pore

Q^* = Transportwärme

Q^* ist die Transportwärme, die das Molekül mit sich führt, wenn es sich entlang des Gradienten bewegt; dies ist nichts anderes als der Überschuß der mittleren Energie der driftenden Moleküle über die Enthalpie der umgebenden Matrix. Hieraus folgt:

- Die Transportwärme Q^* , hervorgerufen durch einen Materialtransport, ist von der Art des Mechanismus anhängig. Deshalb ist sie bei der Gitter-Diffusion (Q_G^*), der Oberflächendiffusion (Q_O^*) und der Verdampfung-Kondensation (Q_{VK}^*) verschieden.
- Q^* ist eine absolute und keine relative Größe.
- Da bei der Diffusion in der Gasphase die driftenden von den umgebenden Molekülen nicht unterscheidbar sind, ist die Transportwärme Null. Der Mechanismus der Verdampfung und Kondensation beinhaltet die Verdampfung der Matrixatome, die Diffusion derselben über die Gasphase und die Kondensation. Da Q^* für die Diffusion Null ist, ist die Transportwärme der Verdampfung-Kondensation gleich der Verdampfungswärme ΔH der Matrixatome.

Für die Oberflächendiffusion existieren weder experimentell gemessene noch theoretisch fundierte Transportwärmen; es existiert eine Relation zwischen Transportwärme Q_O^* und der Aktivierungsenergie Q_O , welche besagt, daß $Q_O^* \leq Q_O$ ist. Für die weiteren Betrachtungen wurde $Q_O^* = Q_O$ gesetzt.

Berücksichtigt man die unterschiedliche Wärmeleitfähigkeit der Pore und der sie umgebenden Matrix, so läßt sich der mikroskopische Temperaturgradient in der Pore $\left(\frac{dT}{dr} \right)_P$ zu dem makroskopischen in der Matrix $\left(\frac{dT}{dr} \right)$ in Relation setzen [26, 27]:

$$\left(\frac{dT}{dr} \right)_P = \begin{cases} 3/2 \left(\frac{dT}{dr} \right) & \text{Oberflächendiffusion} \\ \left(\frac{dT}{dr} \right) & \text{Gitterdiffusion} \\ 3/2 \left(\frac{dT}{dr} \right) & \text{Verdampfung-Kondensation} \end{cases} \quad (5)$$

Die Porenwanderungsgeschwindigkeit wird nun:

$$v = \frac{D_P}{kT} \cdot \frac{4/3 \pi S^3}{\Omega} \cdot \frac{Q^*}{T} \cdot \left(\frac{dT}{dr} \right) \cdot \begin{cases} 3/2 \\ 1 \end{cases} \quad (6)$$

Der noch fehlende Diffusionskoeffizient läßt sich über die Atomtheorie der nichtgerichteten Diffusion herleiten. Nach Shewmon [25] ist der Porendiffusionskoeffizient mit der Sprungfrequenz Γ_P und dem mittleren Sprungabstand λ_P der Pore wie folgt gekoppelt:

$$D_P = \frac{1}{6} \cdot \Gamma_P \cdot \lambda_P^2 \quad (7)$$

Der Porendiffusionskoeffizient ist vom Transportmechanismus abhängig:

- a) Bei der Oberflächendiffusion läßt sich die Sprungfrequenz der Pore auf die des diffundierenden Moleküls Γ_0 zurückführen:

$$\Gamma_P = \Gamma_0 \cdot \frac{4\pi S^2}{\lambda^2} \quad (8a)$$

wobei λ der Elementarabstand ist. Die Verschiebung der Pore um λ_P läßt sich auf die Verschiebung der Moleküle in die entgegengesetzte Richtung darstellen:

$$\lambda_P = \lambda \cdot \frac{\Omega}{\frac{4}{3} \pi S^3} \quad (9a)$$

Mit dem Diffusionskoeffizienten der Oberflächendiffusion:

$$D_0 = \frac{1}{4} \Gamma_0 \cdot \lambda^2 \quad (10a)$$

(Γ_0 = Sprungfrequenz der Oberflächenmoleküle)

läßt sich Gl. (7) wie folgt darstellen:

$$D_P = \frac{3 \cdot D_0 \cdot \lambda \cdot \Omega}{2 \pi \varrho^4} \quad (7a)$$

b) In analoger Weise lassen sich die entsprechenden Gleichungen für die Gitterdiffusion angeben:

$$\Gamma_P = \Gamma_G \cdot \frac{\frac{4}{3} \pi \varrho^3}{\Omega} \quad (8b)$$

$$\lambda_P = \lambda \cdot \frac{\Omega}{\frac{4}{3} \pi \varrho^3} \quad (9b)$$

$$D_G = \frac{1}{6} \Gamma_G \cdot \lambda^2 \quad (10b)$$

Setzt man die Gl. (8b) bis (10b) in Gl. (7) ein, so erhält man:

$$D_P = \frac{3 \cdot D_G \cdot \Omega}{4 \pi \varrho^3} \quad (7b)$$

c) Bei der Verdampfung-Kondensation gelten die Gl. (9) und (10) analog zu denen der Gitterdiffusion. Lediglich Gl. (8) unterscheidet sich durch die unterschiedlichen Konzentrationen der Matrix- und Dampf-moleküle:

$$\Gamma_P = \Gamma_{VK} \cdot \frac{\frac{4}{3} \pi \varrho^3}{\Omega} \cdot \frac{c_D}{c_G} = \Gamma_{VK} \cdot \frac{4}{3} \pi \varrho^3 \cdot \frac{p}{kT} \quad (8c)$$

Ω = Volumen der Matrixmoleküle

p = Gleichgewichtsdampfdruck

c_D, c_G = Konzentration der Dampf- bzw. Matrixmoleküle

$$\lambda_P = \lambda \cdot \frac{\Omega}{\frac{4}{3} \pi \varrho^3} \quad (9c)$$

$$D_{VK} = \frac{1}{6} \Gamma_{VK} \cdot \lambda^2 \quad (10c)$$

Gl. (8c) bis (10c) in Gl. (7) eingesetzt liefert den gesuchten Diffusionskoeffizienten für den Verdampfungs-Kondensationsmechanismus:

$$D_P = \frac{3 \cdot D_{VK} \cdot \Omega^2 \cdot p}{4 \tilde{\mu} kT \varrho^3} \quad (7c)$$

Setzt man nun die Gl. (7a - c) in Gl. (6) ein, so erhält man die Einzelbeiträge zur Gesamtporenwanderungsgeschwindigkeit:

$$v_O = \frac{3 \cdot D_O \cdot v \cdot \Omega \cdot Q_O}{kT^2 \varrho} \cdot \left(\frac{dT}{dr} \right) \quad (11a)$$

$$v_G = \frac{D_G \cdot Q_G^*}{kT^2} \cdot \left(\frac{dT}{dr} \right) \quad (11b)$$

$$v_{VK} = \frac{3 D_{VK} \cdot \Omega \cdot p \cdot \Delta H}{2 k^2 T^3} \cdot \left(\frac{dT}{dr} \right) \quad (11c)$$

mit $v = v_O + v_G + v_{VK} \quad (11)$

wobei v_O, v_G, v_{VK} = Porenwanderungsgeschwindigkeit,
 verursacht durch Oberflächen-
 Gitterdiffusion bzw. Verdampfungs-
 Kondensation
 v = $\Omega^{-2/3}$ = Zahl der diffundierenden
 Oberflächenatome pro Oberflächen-
 einheit
 p = $p_0 \cdot \exp(-\Delta H/kT)$ = Dampfdruck

Im Falle der Oberflächendiffusion ergibt sich die Porenwanderungsgeschwindigkeit proportional ϱ^{-1} ; bei der Gitterdiffusion ist v unabhängig von ϱ .

Nach Tab. 1 ist D_{VK} dem Druck p_{tot} umgekehrt proportional. Ist $p_{tot} \neq f(\rho)$, so ist auch $D_{VK} \neq f(\rho)$ und nach Gl. (11c) ist v_{VK} ebenfalls von ρ unabhängig. Ist der Druck allerdings gleich $2\gamma/\rho$ (wobei γ die Oberflächenenergie von UO_2 ist), so ergibt sich $v_{VK} \propto \rho$. Eine experimentelle Ermittlung von $v_P = f(\rho)$ könnte somit den Wanderungsmechanismus festlegen.

Nun gilt es den Beitrag der Einzelgeschwindigkeiten abzuschätzen.

2.3 Abschätzung der Einzelbeiträge zur Gesamtwanderungsgeschwindigkeit

Für diese Abschätzung werden 3 verschiedene Abhängigkeiten betrachtet: Die Geschwindigkeit als Funktion des Porenradius ρ , der Temperatur T (bzw. des Brennstoffradius r) und der Porenform [28].

2.3.1 Die Porenwanderungsgeschwindigkeit als Funktion des Porenradius:

Mit den in Tabelle 1 angegebenen Diffusionskoeffizienten und Materialdaten lassen sich die Gleichungen (11a) bis (11c) zu

$$v_0 \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}} \right) = 3 \cdot 10^{-12} \cdot \frac{1}{\rho (\text{cm})} \quad (12a)$$

$$v_G \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}} \right) = 1,84 \cdot 10^{-11} \quad (12b)$$

$$v_{VK} \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}} \right) = 8,38 \cdot 10^{-3} \cdot \frac{1}{p_{tot} (10^6 \text{ dyn/cm}^2)} \quad (12c)$$

vereinfachen; hierbei wurde eine mittlere Brennstofftemperatur von 2000°K und ein Temperaturgradient von $5 \cdot 10^3 \text{ }^\circ\text{K/cm}$ angenommen. Für Gl. (12c) müssen noch einige Annahmen bezüglich des totalen Druckes in der Pore getroffen werden:

- a) Da die Sintertemperatur von 1600°C mit der mittleren Brennstofftemperatur im Reaktor (ca. 1700°C) näherungsweise übereinstimmt, und die Sinteratmosphäre ca. 1 atm beträgt, liegt der Schluß nahe, $p_{tot} = 1 \text{ atm}$ zu setzen. Gl. (12c) wird dadurch ebenfalls von ρ unabhängig und man erhält:

$$v_{VK} \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}} \right) = 8,38 \cdot 10^{-9} \quad (12c')$$

Tabelle 1 Materialdaten

D_0	=	$5 \cdot 10^6 \exp(-120\,000/RT) \text{ cm}^2/\text{sec}$	[29]
D_G	=	$0,23 \cdot \exp(-104\,600/RT) \text{ cm}^2/\text{sec}$	[30]
D_{VK}	=	$\frac{3}{8} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \cdot \frac{kT}{\pi \sigma^2 p_{\text{tot}}} \sqrt{\frac{M_1 + M_2}{M_1 \cdot M_2}} \cdot RT \text{ cm}^2/\text{sec}$	[31]
p	=	$1,64 \cdot 10^{14} \exp(-142\,600/RT) \text{ dyn/cm}^2$	[32]
Q_0^*	=	$120\,000 \text{ cal/Mol} = Q_0$	
Q_G^*	=	$35\,000 \text{ cal/Mol}$	[33]
Q_{VK}^*	=	$142\,600 \text{ cal/Mol} = \Delta H$	
Ω	=	$4,09 \cdot 10^{-23} \text{ cm}^2$	
M_1	=	270 g/Mol	
M_2	=	4 g/Mol	
$\pi \sigma^2$	=	$2,8 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2$	
γ	=	10^3 erg/cm^2	
r_B	=	$0,3 \text{ cm}$	
T_B	=	1070°K	
\bar{k}_B	=	$0,02 \text{ W/cm } ^\circ\text{C}$	

- b) Ist die Dichte des Brennstoffes jedoch so niedrig, daß offene Porosität vorhanden ist, so erhöht sich der Druck im Brennelement bzw. in den Poren, da das Füllgas im Spalt eine mittlere Temperatur von ca. 600°C erreicht. Eine Änderung des Gasdruckes durch Spaltgase bleibt unberücksichtigt.

Mit $T_0 = 293$ °K, $p_0 = 1$ atm und unter der Annahme, daß das Gasvolumen konstant bleibt, gilt: $p_{\text{tot}} = p_0 \sqrt{T_0 \cdot T_{\text{Spalt}}} \approx 3$ atm. Die Porenwanderungsgeschwindigkeit nimmt daher um den Faktor 3 ab:

$$v_{\text{VK}} \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}} \right) = 2,8 \cdot 10^{-9} \quad (12c'')$$

- c) Bei den im Reaktor auftretenden hohen Temperaturen kann auch von der Annahme ausgegangen werden, daß sich der Porenradius immer so einstellt, daß Gasdruck und Oberflächenspannung im Gleichgewicht sind, d.h. $p_{\text{tot}} = p_a + 2\gamma/\rho$. Hier ist γ die Oberflächenenergie von UO_2 und p_a der äußere Druck ($p_a \approx 3$ atm). Somit wird aus Gl. (19c)

$$v_{\text{VK}} \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}} \right) = \frac{8,38 \cdot 10^{-3}}{3 \cdot 10^6 + 2 \cdot 10^3 / \rho \text{ (cm)}} \quad (12c''')$$

Für Porenradien $< 10^{-5}$ cm bleibt Gl. (12c''') radiusabhängig und man erhält:

$$v_{\text{VK}} \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}} \right) = 4,2 \cdot \rho \text{ (cm)} \cdot 10^{-6} \quad (12c''''')$$

Gl. (12c''''') gilt auch für Poren beliebiger Radien und $p_a = 0$. Für große Poren ($\rho > 10^{-2}$ cm) wird der Beitrag der Oberflächenspannung vernachlässigbar und Gl. (12c''''') geht in Gl. (12c'') über, d.h. wird radiusunabhängig.

Ein Vergleich der einzelnen Geschwindigkeitsbeiträge zeigt, daß der Beitrag der Gitterdiffusion vernachlässigbar ist; die übrigen Beiträge sind in Abb. 1 aufgetragen. Man erkennt, daß kleine Sinterporen ($\phi < 1$ μm) bevorzugt über die Oberflächendiffusion und große Sinterporen ($\phi > 20$ μm) bevorzugt über den Mechanismus der Verdampfung-

Kondensation wandern. Die Radien der Sinterporen haben Werte zwischen 0,5 und 10 μm . Durch Agglomeration der wandernden Poren erweitert sich dieser Bereich zu höheren Radien (ca. 50 μm). Im Gesamtbereich wird die Dominanz der Oberflächendiffusion durch die der Verdampfung und Kondensation abgelöst.

Die Gesamtwanderungsgeschwindigkeit läßt sich durch die Einzelbeiträge v_0 und v_{VK} darstellen:

$$v \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}} \right) = v_0 + v_{VK} =$$
$$= \left\{ \frac{c_1}{\rho} \cdot \frac{1}{T^2} \cdot \exp \left(- \frac{60500}{T} \right) + \frac{c_2}{p_{\text{tot}}} \cdot \frac{1}{T^{3/2}} \cdot \exp \left(- \frac{71700}{T} \right) \right\} \cdot \left(\frac{dT}{dr} \right)$$

(13)

$$\text{mit } p_{\text{tot}} = p_a + \frac{2\gamma}{\rho} = c_3 + \frac{c_4}{\rho}$$

wobei ρ in cm , T in $^{\circ}\text{K}$, $\frac{dT}{dr}$ in $\frac{^{\circ}\text{K}}{\text{cm}}$ und p_{tot} in atm

$$\begin{aligned} \text{und } c_1 &= 3,13 \cdot 10^4 \\ c_2 &= 5,48 \cdot 10^8 \\ c_3 &= 3 \\ c_4 &= 2 \cdot 10^{-3} \end{aligned} \quad \text{zu setzen ist.}$$

Hierbei ist jedoch zu beachten, daß v_0 maximal abgeschätzt wurde, da Q_0^* unbekannt ist.

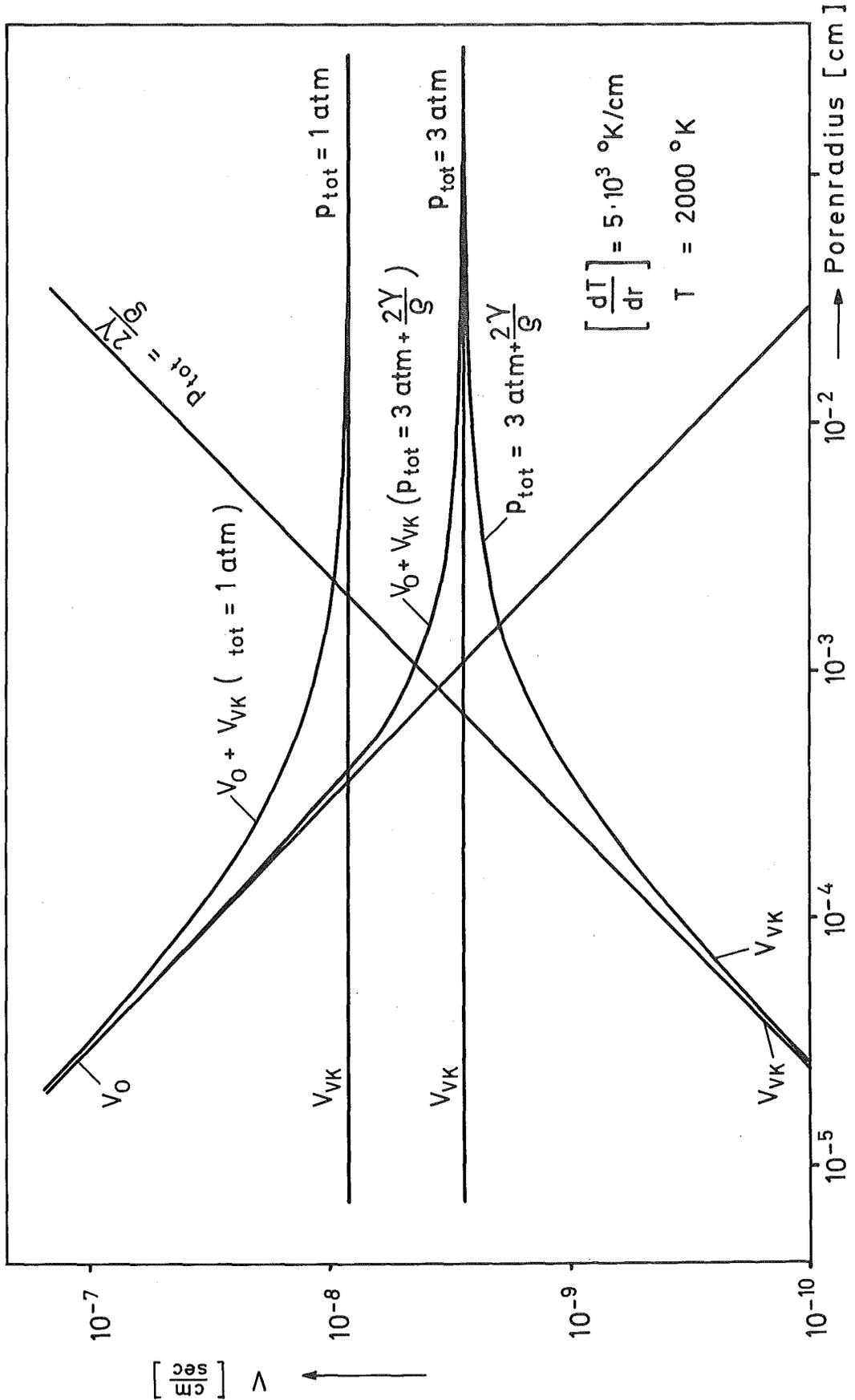


Abb. 1 Porenwanderungsgeschwindigkeit, hervorgerufen durch Oberflächen-
 diffusions (v_0) und Verdampfungs-Kondensation der Matrixatome (v_{VK}), als Funktion des Porenradius

2.3.2 Die Porenwanderungsgeschwindigkeit als Funktion der Temperaturverteilung im Brennstoff:

Der Temperaturverlauf wird vereinfachend als parabolisch angesehen:

$$T(r) = T_B + \frac{\lambda}{4\pi \bar{k}_B} \cdot \left(1 - \frac{r^2}{r_B^2} \right) \quad (14)$$

T_B = Brennstoffrandtemperatur

r_B = Brennstoffradius

λ = Stabileistung

\bar{k}_B = mittlere Wärmeleitfähigkeit

Der Temperaturgradient ergibt sich hieraus zu:

$$\left(\frac{dT}{dr} \right) = - \frac{r}{r_B^2} \cdot \frac{\lambda}{2\pi \bar{k}_B} \quad (15)$$

Mit den Materialdaten der Tabelle 1 und einer Brennstoffrandtemperatur von 1070°C sind die Einzelbeiträge der Porenwanderungsgeschwindigkeiten für 2 verschiedene Stabileistungen (250 W/cm und 500 W/cm) und 3 verschiedene Porenradien ($5 \cdot 10^{-5}$ cm, $5 \cdot 10^{-4}$ cm und $5 \cdot 10^{-3}$ cm) errechnet worden und in Abb. 2 aufgetragen. Berücksichtigt wurde nur die Oberflächendiffusion und der Transport über den Verdampfungs-Kondensations-Mechanismus für $p_{\text{tot}} = 1$ atm. Für $r = 0$ cm wurde willkürlich $dT/dr = 5^\circ\text{K/cm}$ statt 0°K/cm gesetzt. Zur Brennstoffmitte nehmen die Wanderungsgeschwindigkeiten, nach Erreichen eines Maximums, wieder beträchtlich ab. Dies ist auf die Abnahme des Temperaturgradienten bei nahezu gleichbleibender Temperatur zurückzuführen. Dies dürfte auch die Erklärung für Porenanhäufungen in der Nähe des Brennstoffzentrums bzw. Zentralkanals sein.

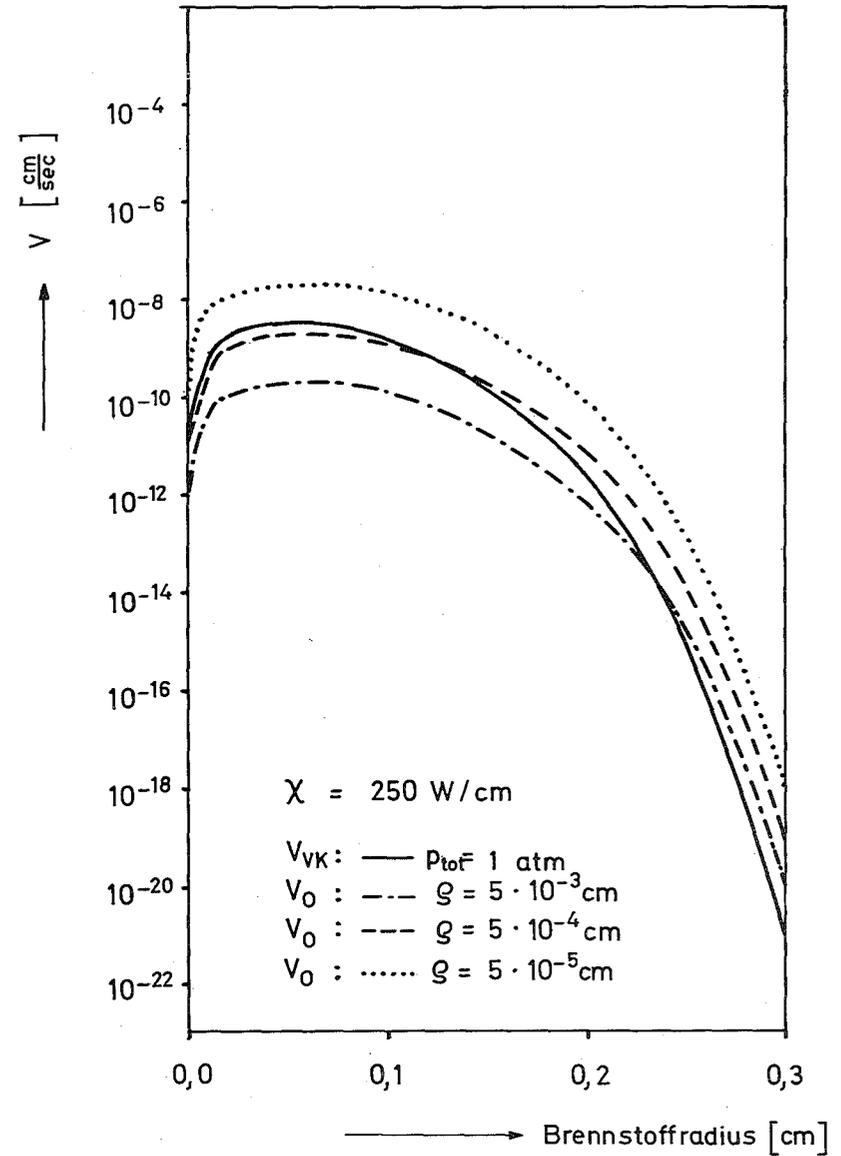
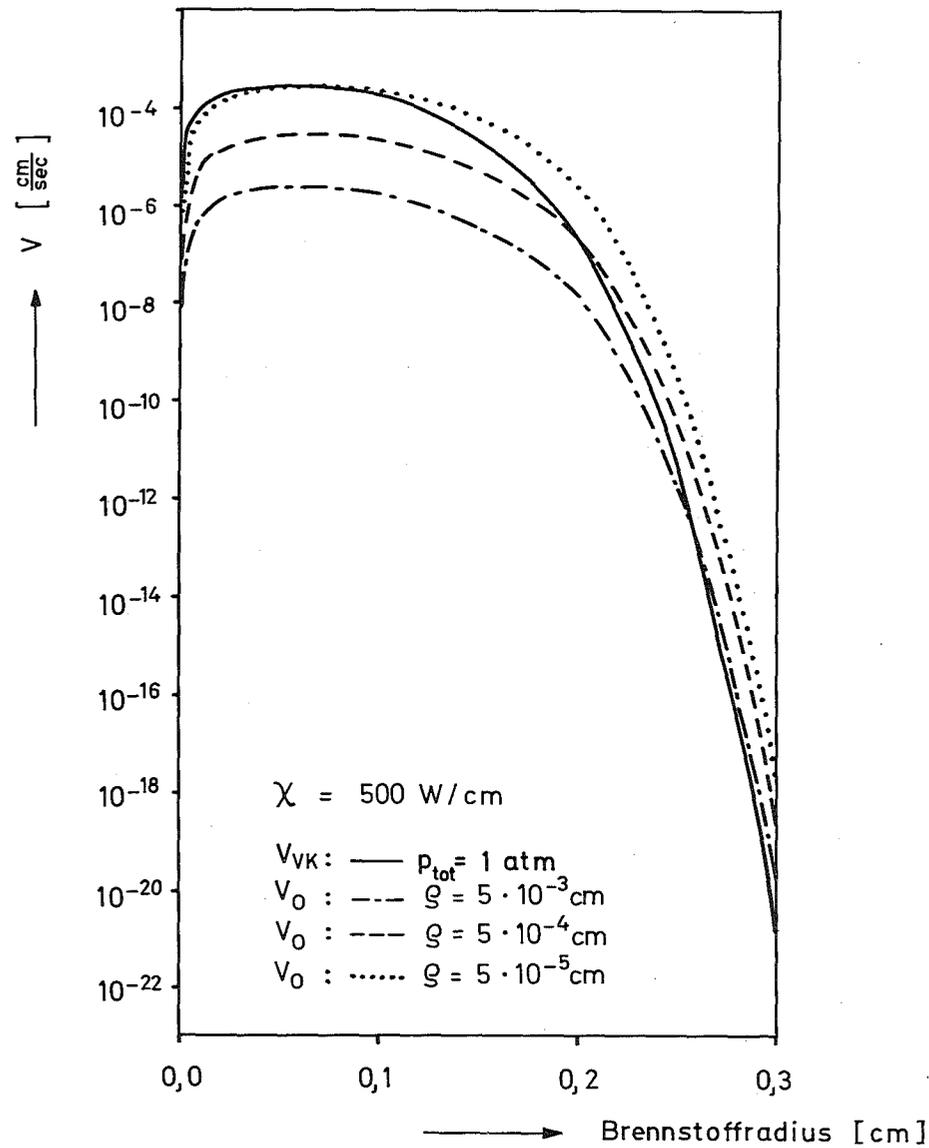


Abb. 2 Radiale Verteilung der Porenwanderungsgeschwindigkeiten, hervorgerufen durch Oberflächendiffusion (V_0) und Verdampfung-Kondensation der Matrixpore (V_{VK}) für die Stabileistungen 250 und 500 W/cm

Abb. 3 zeigt die gleichen Ergebnisse in der Form $v_{VK}/v_0 = f(r)$ mit dem Porenradius ρ als Parameter. Diese Auftragung ermöglicht eine leichtere Überschaubarkeit der Einzelbeiträge zur Wanderungsgeschwindigkeit: Mit zunehmendem Porenradius nimmt der Beitrag über den Verdampfungs-Kondensations-Prozeß stark zu, hingegen mit zunehmendem Brennstoffradius merklich ab.

2.3.3 Porenwanderungsgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Porenform:

Es wird nun versucht, an Hand des experimentellen Befundes zu entscheiden, ob Gl. (15) in der vollen Länge zu benutzen ist bzw. ob nicht v_0 bzw. v_{VK} alleine ausreicht, die Wanderung der Fertigungsporen zum Brennstoffzentrum zu beschreiben. Diese Entscheidung kann man an Hand der Abb. 11 treffen: Sie zeigt einen radialen Brennstoffbereich vom Hüllinnenradius bis zum Zentralkanal, eine Querschnittsaufnahme und 3 Detailaufnahmen des Prüflings L6-1. Diese Aufnahmen sind typisch für Kurzzeitbestrahlungen folgender Auslegungsparameter: UO_2 ; $0,85 \leq D_B \leq 0,95$; $\kappa = 650 \text{ W/cm}$, $t = 2 \text{ h}$ bzw. niedrigere Stableistung und längere Bestrahlungszeit. Sie lassen mit den bisher durchgeführten quantitativen Abschätzungen folgende Interpretationen zu:

- Durch die kurze Bestrahlungszeit existiert noch eine Brennstoffrandzone mit ursprünglichem Gefüge und ursprünglicher Porenverteilung. Die Sinterporen sind sehr klein ($\emptyset < 1 \mu\text{m}$) und statistisch verteilt. (Die Bereiche unterschiedlichen Porengehaltes deuten auf mangelhafte Homogenisierung der Ausgangspulver hin.)
- Nach innen schließt sich eine Zone ungerichteten Kornwachstums an. In dieser Zone haben sich die Sinterporen zu größeren runden Poren ($0,5 \mu\text{m} \leq \emptyset \leq 20 \mu\text{m}$) vereint. Die statistische Verteilung (unabhängig von dT/dr) deutet auf Brown'sche Bewegung der Poren und bei deren Zusammentreffen auf Agglomeration hin beziehungsweise auf eine ungerichtete Bewegung von Defektstellen im Gitter. Die experimentell ermittelte Porositätsverteilung zeigt in diesem Bereich keine Verdichtung (siehe hierzu Abb. 19).

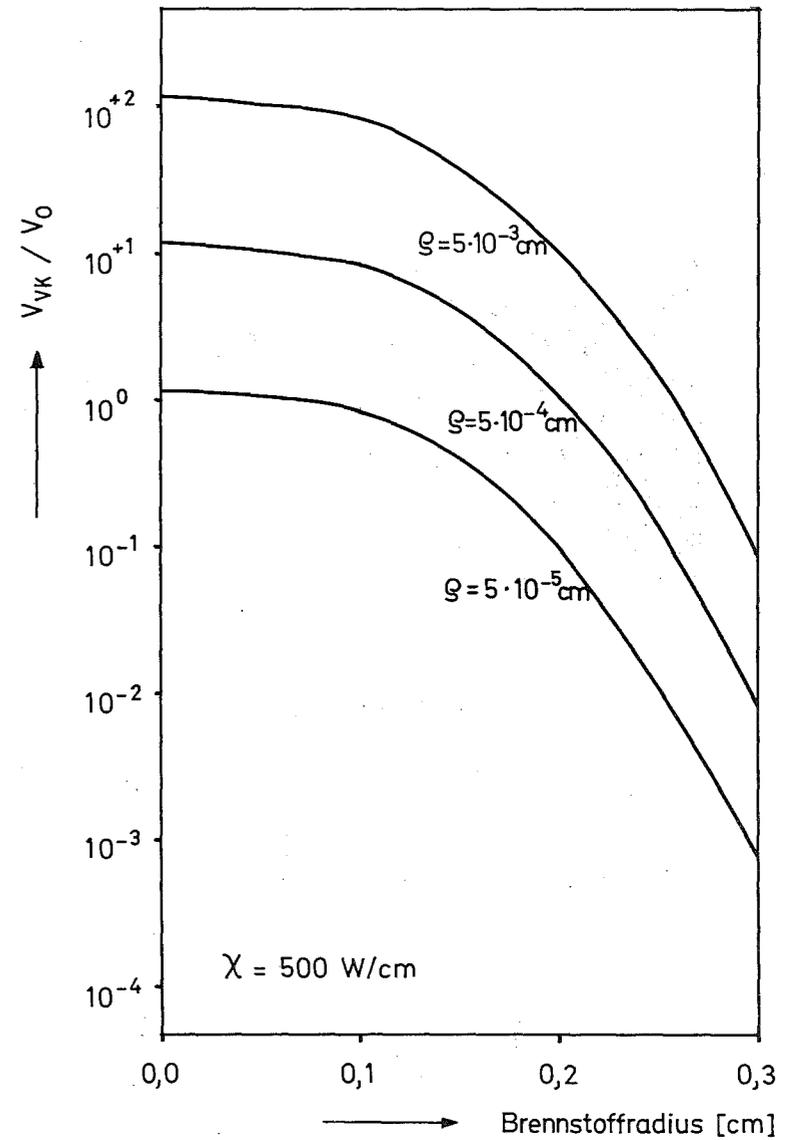
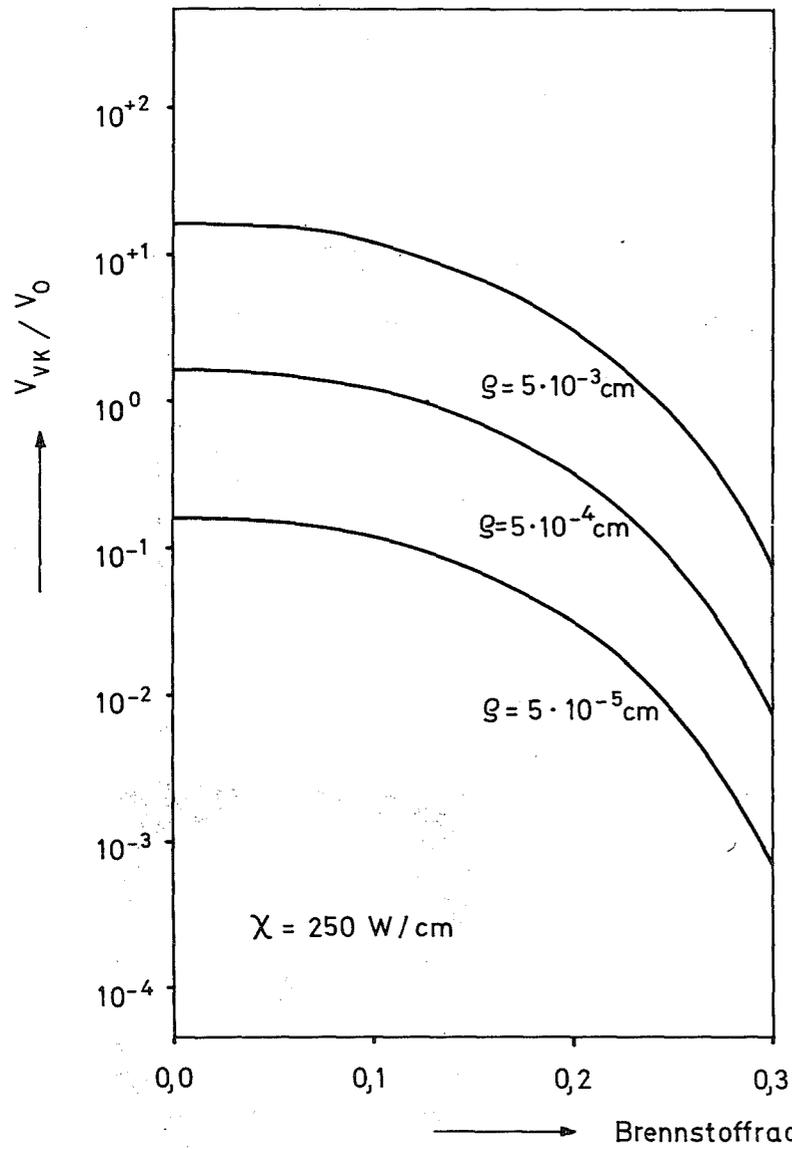


Abb.3 Verhältnis der Porenwanderungsgeschwindigkeiten (Verdampfung-Kondensation/Oberflächendiffusion) über den Brennstoffradius für die Stableistungen 250 und 500 W/cm

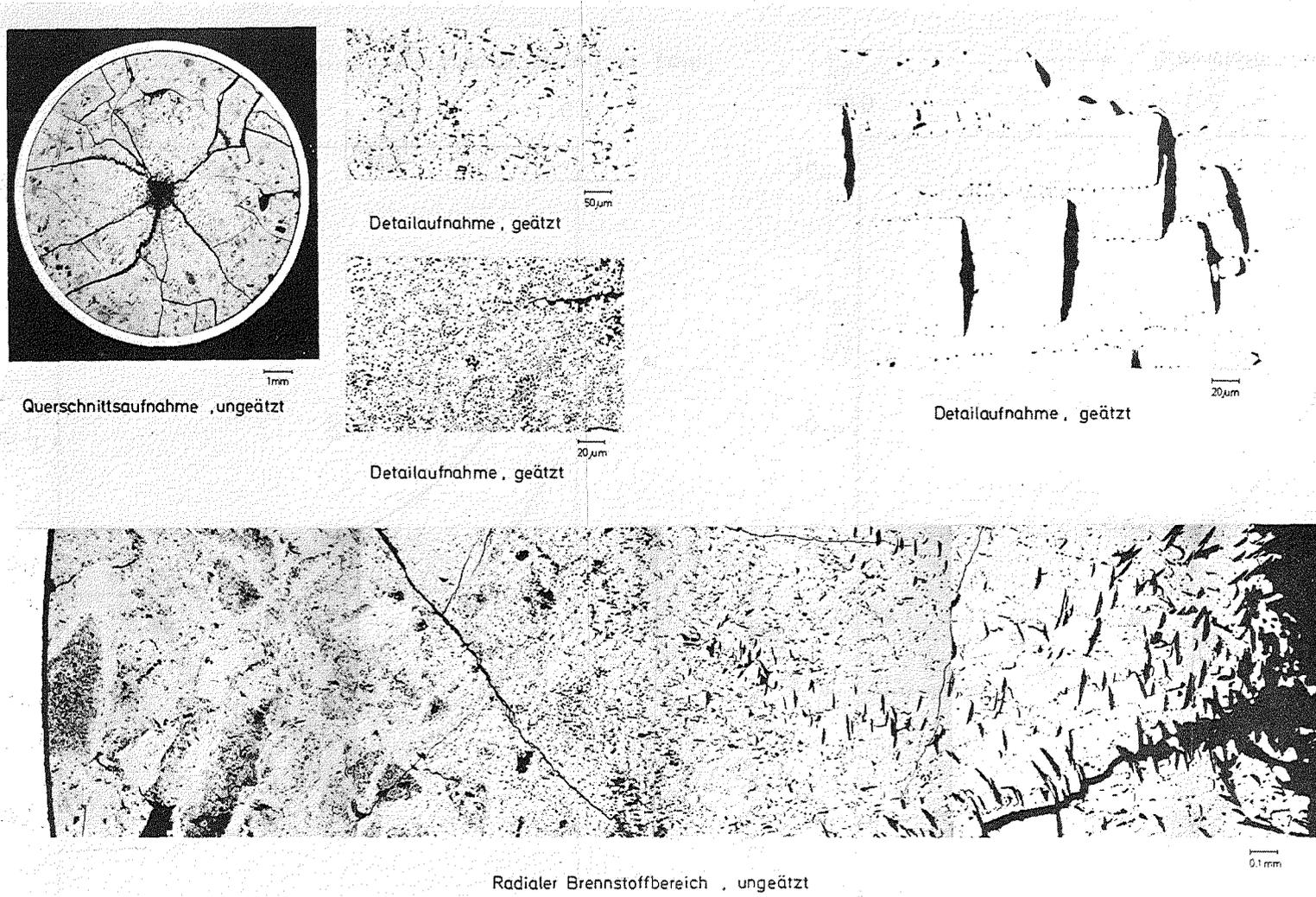


Abb. 4 Radiale Porenverteilung des Prüflingsabschnittes L6-1
 ($X = 645 \text{ W/cm}$; $t = 2 \text{ h}$; UO_2 (7,5 % U-235; P = 9,5 %)

- Im Bereich des gerichteten Kornwachstums wandern die Poren zu den Korngrenzen und dann bevorzugt an den Korngrenzen entlang in Richtung Brennstoffzentrum. Da der Dampfdruck in der Pore exponentiell von der Temperatur abhängt, ist die Verdampfungsgeschwindigkeit an der heißesten Stelle größer als die Kondensationsgeschwindigkeit an der kältesten Stelle der Pore; dies führt zu einer zigarrenförmigen Verlängerung derselben. Durch Agglomeration können sie an den dem Zentrum zugewandten heißeren Korngrenzenflächen längliche bzw. zwickelähnliche Poren bilden. Nach Abb. 1 erfolgt die Wanderung der Poren in diesem Bereich sowohl über den Mechanismus der Oberflächendiffusion als auch über die Verdampfung und Kondensation der Matrixatome. Je nach Temperatur und Radius der Poren dominiert der eine oder andere Mechanismus. Die experimentell ermittelte Porositätsverteilung zeigt hier den Beginn der Verdichtung an (vergl. Abb.19). Die Gleichungen (11a) bis (11c) bzw. (13) gelten exakt nur für kugelige Poren, die ihre Gestalt auch während der Wanderung nicht verändern. In erster Näherung lassen sich diese Gleichungen auch für die Poren dieses Bereiches anwenden. Unter der Annahme, daß für die Wanderung der Sinterporen der Verdampfungs-Kondensationsprozeß der dominierende ist, berechnete Nichols [34] einen Korrekturterm, der die zigarrenförmige Verformung in Wanderungsrichtung beschreibt. Für v_{VK} wird angesetzt:

$$v_{VK} = - D_{VK} \cdot \Omega \cdot C_0 \cdot \Delta H \cdot \frac{\nabla T}{k \cdot T_0^2} \left\{ P_1 (\cos \theta) + P_2 (\cos \theta) \cdot \frac{2}{3} \alpha \right\} \quad (16)$$

T_0 = mittlere Temperatur in der Pore

C_0 = $\frac{p_0}{RT} \cdot \exp \left(- \frac{\Delta H}{RT} \right)$ = Gleichgewichtskonzentration der Matrixatome in der Dampfphase bei T_0

(∇T) = Temperaturgradient in der Pore

θ = Polarwinkel

$P_n (\cos \theta)$ = Legendre - Polynom

α = $(\nabla T \cdot \rho / T_0) \cdot (\Delta H / kT_0) < 1$

Gleichung (16) ohne das Legendre-Polynom zweiter Ordnung ist identisch mit Gleichung (11c). Der zweite Term vergrößert die zur Oberfläche senkrechte Wanderungsgeschwindigkeit an der heißen Seite und verkleinert sie an der kälteren Seite. Dadurch wird eine Verlängerung der Pore entlang des Temperaturgradienten unter gleichzeitiger Porenvolumenkonstanz hervorgerufen. Die resultierende, abgeflachte Pore ist oberhalb einer kritischen Größe ebenfalls nicht stabil; sie zerfällt in eine Reihe nahezu kugeligere Poren, die alle entlang des Wanderweges der ursprünglichen Pore aufgereiht sind. Nichols [35] schätzte diesen kritischen Radius zu:

$$r_{kr} \cong \sqrt[3]{\frac{\gamma \cdot \Omega \cdot T_0^2}{3 \cdot \Delta H \cdot (dT/dr)^2}} \quad (17)$$

ab. Mit $T = 2000^\circ\text{K}$, $(dT/dr) = 10^3 \text{ }^\circ\text{K/cm}$ und den Materialdaten der Tabelle 1 ergibt sich $r_{kr} \cong 20 \text{ } \mu\text{m}$.

Der kritische Porenradius, unterhalb dessen keine zigarrenförmige Verlängerung auftritt, wurde zu

$$r_{kr}^* \cong \sqrt[3]{\frac{3 \gamma \cdot \Omega \cdot k \cdot T_0^3}{4 \cdot (\Delta H)^2 \cdot (dT/dr)^2}} \quad (18)$$

abgeschätzt [34]. Mit $T = 2000^\circ\text{K}$, $(dT/dr) = 10^3 \text{ }^\circ\text{K/cm}$ und den Materialdaten der Tabelle 1 ergibt sich $r_{kr}^* \cong 5 \text{ } \mu\text{m}$.

- Im Bereich der sich bildenden Stengelkörner wandern die Poren hauptsächlich in Form von plankonvexen bzw. konkavkonvexen Linsensporen zum Brennstoffzentrum und bilden dort den Zentralkanal (Detailaufnahme). Die auf ihrem Wege liegenden Hohlräume, in Form von Poren und Korngrenzen, werden aufgesaugt und zum Teil längs der neugebildeten Stengelkörner zurückgelassen. Die Wanderung der Linsensporen ($\phi > 5 \text{ } \mu\text{m}$) erfolgt nach Abb. 1 hauptsächlich nach dem Verdampfungs-Kondensationsmodell. Da die Porenwanderung in der ungerichteten und gerichteten Kornwachstumszone größtenteils dem Aufbau der Linsensporen dient und die eigentliche

Verdichtung des Brennstoffes durch die Wanderung der Linsenporen erfolgt, wird als Näherung nur der rechte Teil der Gleichung (13) benutzt:

$$v\left(\frac{\text{mm}}{\text{h}}\right) \cong v_{\text{VK}} = \frac{2 \cdot 10^{13}}{p_{\text{tot}}(\text{atm})} \cdot \frac{1}{T(^{\circ}\text{K})^{3/2}} \cdot \exp\left(-\frac{71700}{RT}\right) \cdot \left(\frac{dT}{dr}\right) \quad (19)$$

Diese Näherung ist um so mehr gerechtfertigt, wenn man die Unsicherheit in den Absolutangaben der Porenwanderungsgeschwindigkeit berücksichtigt. Diese sind zurückzuführen auf Unsicherheiten in den benutzten Materialdaten und auf die Beschränkung einer einzigen Herleitungsmethode. Andere Methoden, die Materialströme in Porenbewegungen umrechnen, liefern Relationen, die sich von obiger geringfügig unterscheiden. Die Absolutwerte dürften um einen Faktor 2 bis 3 unsicher sein. Ähnliches gilt auch für den Beitrag der Oberflächendiffusion, wobei hier noch berücksichtigt werden muß, daß dieser Beitrag durch $Q_0^* \cong Q_0$ maximal abgeschätzt wurde. Eine Verschiebung der Geraden v_0 in Abb. 1 zu kleineren Werten läßt obige Näherung noch günstiger erscheinen. Die relativ großen Unsicherheiten lassen nicht zwischen $v_{\text{VK}}(p_{\text{tot}} = 1 \text{ atm})$ und $v_{\text{VK}}(p_{\text{tot}} = 3 \text{ atm})$ unterscheiden. Es wird $p_{\text{tot}} = 1 \text{ atm}$ gewählt; hierdurch wird Gleichung (19) vom Radius unabhängig und gilt deshalb näherungsweise auch für die Wanderung von Linsenporen.

Die Bildung der Linsenporen ist bis heute nur qualitativ erklärbar: Erste Modellvorstellungen gehen auf De Halas [36] zurück. Wie oben ausgeführt, bilden sich die Linsenporen in der frühen Bestrahlungsgeschichte durch Agglomeration von kleineren Poren an den Korngrenzen. Auch Risse können als Quelle von Linsenporen auftreten. Die Wanderung der Poren im Temperaturgradienten nach dem Verdampfungs-Kondensationsmodell und ihre Formstabilität wurde in einer neueren Arbeit von Sens [37] untersucht: Durch numerische Lösung der Diffusions- bzw. Transportgleichung für verschiedene Porenformen mit der Randbedingung, daß der Gleichgewichtsdampfdruck der Matrix nur für die Porenoberfläche gilt, erhielt er Materialströme, die Aufschlüsse über die Störung der Porenform lieferten. In Tabelle 2 sind jeweils 3 der errechneten Materialtransportgeschwindigkeiten zusammengestellt. Sie lassen sich am Porenanfang und -ende als Verdampfungs- und Kondensationsgeschwindigkeit des Brennstoffes und in Porenmitte als Porenwanderungsge-

schwindigkeit interpretieren. Aus den Absolutwerten kann man folgendes schließen:

- Der Porenanfang, sowohl der kugeligen als auch der tuben- (= zigarren)-förmigen Pore, bewegt sich schneller als das Porenende. Dies führt
 - a) zu einer Verschmälerung des "Verdampfer"-Teiles und zu einer Verbreiterung des "Kondensations"-Teiles,
 - b) zur Verlängerung der beiden Porentypen.

Die Verlängerung der kugeligen Pore führt diese in eine tubenförmige über, die sich weiter verlängert und dabei immer langsamer wird.

- Die diskus-(=linsen)-förmige bleibt formstabil; auch ist ihre mittlere Geschwindigkeit die größte aller 3 Porentypen. Dies macht sie hauptverantwortlich für die Verdichtung des Brennstoffes und die Bildung der Stengelkörner zu Bestrahlungsbeginn.

Die von Sens errechnete mittlere Linsenporengeschwindigkeit (siehe Tab. 2) stimmt mit der in Abb. 1 aufgetragenen recht gut überein.

Tabelle 2 Material-Transportgeschwindigkeiten für Poren verschiedener Gestalt
(für $T = 2000 \text{ }^\circ\text{K}$ und $(dT/dr) = 5 \cdot 10^3 \text{ }^\circ\text{K/cm}$) [37]

Porenform	Porenanfang 10^{-8} cm/sec	Porenmitte 10^{-8} cm/sec	Porenende 10^{-8} cm/sec
Kugel	0,5	0,36	0,26
Tubus*	0,5	0,26	0,22
Diskus**	0,84	0,84	0,84

* Hauptachse // zum Temperaturgradient

** Hauptachse \perp zum Temperaturgradient

3. Berechnung der Leervolumen- und der Temperaturverteilung

Sowohl die Temperaturverteilung als auch die Verteilungen der relativen Poren- und Rivolumenanteile wurden mit dem Rechenprogramm SATURN-la [38,39] ermittelt. Mit diesem wird das mechanische und thermische Verhalten von Brennstben in Abhngigkeit von der Bestrahlungszeit fr stationre und zyklische Bedingungen quantitativ behandelt. Es enthlt weitgehend den gegenwrtigen Kenntnis- und Erfahrungsstand bezglich der Materialdaten und Materialphnomene ; letztere wurden in einem Arbeitskreis vorgetragen und in einem KFK-Bericht zusammengestellt [40].

In den nachfolgenden Unterkapiteln wird eine kurze Programmbeschreibung und ein berblick ber die theoretischen Grundlagen gegeben.

3.1 Berechnung der Temperaturverteilung in Brennstoff und Hlle

Die Temperaturverteilung in Hlle und Brennstoff ist durch die Vorgabe der Hllaentemperatur T_{Ha} und der Stbleistung λ fr jede beliebige Zeit gegeben. Von auen nach innen wird iterativ zuerst die Hllinnentemperatur, dann der Temperatursprung im Spalt und schlielich die Zentraltemperatur errechnet.

Bei stationren Wrmestrmungsverhltnissen ist die Temperaturverteilung im Hllinnenraum durch die Wrmebilanzgleichung

$$\iiint_V q \, dV = \iint_F j \cdot df \quad (20)$$

und durch die Fouriersche Gleichung

$$j = -k \cdot \text{grad } T \quad (21)$$

gegeben, wobei gilt:

q	=	Wrmequellldichte (W/cm^3)
j	=	Wrme­trumdichte (W/cm^2)
V	=	Volumen (cm^3)
F	=	Oberflche des Volumens
k	=	Wrmeleitfhigkeit ($W/cm \text{ } ^\circ C$)
T	=	Temperatur ($^\circ C$)

Für Zylindergeometrie und radialen nach außen gerichteten Wärmefluß erhält man aus Gl. (20) und (21) nach [41, 42]:

$$\int_{r_0}^R q(r) r dr = j(R) \cdot R - j(r_0) \cdot r_0 \quad (22)$$

$$\text{und } j = -k \frac{dT}{dr} \quad (21a)$$

Aus den Gl. (20), (21a) und (22) erhält man die Differentialgleichung:

$$q(r) = \text{div } j = \frac{1}{r} \frac{d}{dr} (j \cdot r) = \frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left(-k(T(r)) \cdot \frac{dT}{dr} \cdot r \right) \quad (23)$$

Man erkennt, daß die radiale Temperaturverteilung durch den radialen Verlauf der Wärmequellldichte q und der Wärmeleitfähigkeit k gegeben ist. Der zylindrische Brennstab wird in Koaxialzylinder eingeteilt, in denen sowohl k wie auch q als konstant angenommen werden; hierdurch vereinfacht sich Gl. (23) zu:

$$-\frac{q}{k} = \frac{d^2 T}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{dT}{dr} \quad (23a)$$

Die Integration dieser Gleichung führt zur radialen Temperaturverteilung:

$$T(r) = -\frac{q}{4k} \cdot r^2 + A \cdot \ln r + B \quad (24)$$

in der die Integrationskonstanten noch zu bestimmen sind.

a) Temperaturverteilung in der Hülle:

Es wird vereinfachend angenommen, daß in der Hülle keine Wärme produziert wird ($q = 0$), da von einer evtl. auftretenden γ -Heizung abgesehen wird. In Gl. (24) wird das 1. Glied Null. Die Konstanten A und B lassen sich aus den Randbedingungen

$$T_{Ha} = A \cdot \ln r_{Ha} + B \quad (25a)$$

$$j_{Ha} = -k \cdot \frac{dT}{dr} \Big|_{Ha} = -k \cdot \frac{A}{r_{Ha}} = \frac{\lambda}{2\pi r_{Ha}} \quad (25b)$$

berechnen. In Gl. (24) eingesetzt wird die Temperaturverteilung in der Hülle:

$$T(r) = T_{Ha} + \frac{\lambda}{2\pi k} \cdot \ln \frac{r_{Ha}}{r} \quad (24a)$$

Ersetzt man T_{Ha} durch T_{M+1} und wählt T_M als innere Temperatur des äußersten Hohlzylinders, so läßt sich über

$$\bar{T}_M = \frac{1}{\pi (r_{M+1}^2 - r_M^2)} \int_{r_M}^{r_{M+1}} 2\pi T r dr \quad (26)$$

als die mittlere Temperatur des M-ten (sprich äußersten) Rings T_M berechnen:

$$T_M = T_{M+1} + \frac{\lambda}{2\pi k_M} \ln \frac{r_{M+1}}{r_M} \quad (24a)$$

$$\bar{T}_M = T_{M+1} + \frac{\lambda}{2\pi k_M} \left[\frac{1}{2} - \frac{r_M^2}{r_{M+1}^2 - r_M^2} \ln \frac{r_{M+1}}{r_M} \right] \quad (26a)$$

k_M , hier die mittlere Wärmeleitfähigkeit des äußersten Ringes, ist eine temperaturabhängige Funktion, die iterativ bestimmt werden muß: Man berechnet zuerst den Wert \bar{T}_M mit dem k-Wert, der T_{M+1} entspricht. Mit dem k-Wert, der dem errechneten \bar{T}_M -Wert entspricht, errechnet man einen neuen \bar{T}_M -Wert und dies wird solange wiederholt, bis die Differenz zweier aufeinanderfolgender \bar{T}_M -Werte kleiner als eine vorgegebene Schranke ist. Mit dem letzten k-Wert wird dann T_M berechnet. Dieser Prozeß wird für die nach innen anschließenden Hohlzylinder sukzessive bis zum Hüllinnenradius fortgeführt.

b) Temperatursprung im Spalt:

Hier kann man im Prinzip mehrere Fälle unterscheiden: Ist zwischen Brennstoff und Hülle ein Gasspalt, so kann man den Temperatursprung iterativ über die allgemeine Spaltgleichung [43] errechnen. Tritt der Brennstoff mit der Hülle in Kontakt, so läßt sich der Temperatursprung bei Kenntnis der Wärmeübergangszahl direkt berechnen. Da bei den analysierten Bestrahlungsproben schon vor Erreichen der Nennleistung (Loop-Versuchsgruppe 2) bzw. infolge der Spaltgasswellung (Mol-7A) der Brennstoff mit der Hülle in Kontakt trat, wurden fixierte Wärmeübergangszahlen gewählt.

Integriert man die Fouriergleichung (21a), nach Trennung der Variablen, über die Spaltbreite unter Berücksichtigung der Quellenfreiheit des Mediums, so wird

$$j = \frac{\bar{k}}{\delta} \cdot (T_1 - T_2) = \frac{\bar{k}}{\delta} \cdot \Delta T \quad (21b)$$

wobei $h = \frac{\bar{k}}{\delta}$ als Wärmeübergangszahl definiert wird (δ = Spaltbreite; \bar{k} = mittlere Wärmeleitfähigkeit). Die Wärmestromdichte hängt mit der im Brennstoff produzierten Stableistung λ und dem Hüllinnenradius entsprechend Gleichung (25b) zusammen.

$$j = \frac{\lambda}{2\pi r_{Hi}} \quad (25b')$$

Der Temperatursprung ΔT in der Kontaktzone, und damit die Brennstoffrandtemperatur T_B , läßt sich aus der vorgegebenen Wärmeübergangszahl errechnen:

$$T_B = T_{Hi} + \Delta T = T_{Hi} + \frac{\lambda}{2\pi \cdot h \cdot r_{Hi}} \quad (27)$$

Die Wärmeübergangszahl ist nicht bekannt, sie wird als Parameter behandelt.

c) Temperaturverteilung im Brennstoff:

Die Temperaturverteilung im Brennstoff läßt sich im Prinzip wie die der Hülle berechnen. Der einzige Unterschied besteht in der Berücksichtigung der Wärmequellendichte des Brennstoffes.

Die Konstanten A und B in Gl. (24) lassen sich über die Randbedingungen

$$T_B = T_{N+1} = - \frac{q}{4k} r_{N+1}^2 + A \ln r_{N+1} + B \quad (25a')$$

$$j_{N+1} = -k \frac{dT}{dr} \Big|_B = \frac{q \cdot r_{N+1}}{2} - k \cdot \frac{A}{r_{N+1}} = \frac{\chi}{2\pi r_{N+1}} \quad (25b')$$

bestimmen. In Gl. (24) eingesetzt, ergibt sich für die Innenrandtemperatur T_N und die mittlere Temperatur des äußersten Ringes:

$$T_N = T_{N+1} + \frac{q_N}{4k_N} (r_{N+1}^2 - r_N^2) + \frac{1}{k_N} \left[\frac{\chi}{2\pi} - q \cdot \frac{r_{N+1}^2}{2} \right] \ln \frac{r_{N+1}}{r_N} \quad (24c)$$

$$\bar{T}_N = T_{N+1} + \frac{q_N}{8k_N} (r_{N+1}^2 - r_N^2) + \frac{1}{k_N} \left(\frac{\chi}{2\pi} - q \cdot \frac{r_{N+1}^2}{2} \right) \left(\frac{1}{2} - \frac{r_N^2}{r_{N+1}^2 - r_N^2} \ln \frac{r_{N+1}}{r_N} \right) \quad (26b)$$

wobei q_N die mittlere Wärmequellldichte und k_N die mittlere Wärmeleitfähigkeit im N-ten Ring ist. Es wird nun wie bei der Hülle \bar{T}_N iterativ berechnet. Mit dem T_N entsprechenden k_N -Wert wird T_N am Innenrand des äußersten Ringes berechnet. Die iterative Berechnung wird sukzessive für die nach innen anschließenden Hohlzylinder bis zum Zentrum fortgesetzt. Hierbei muß berücksichtigt werden, daß sich die Randbedingung (Gl.(25b')) für die inneren Hohlzylinder ändert: Die Beiträge der Wärmequellldichte der äußeren Zylinder zur Wärmestromdichte am Außenrand des i-ten Ringes entfallen.

$$j_{i+1} r_{i+1} = \frac{\chi}{2\pi} - \sum_{j=i+1}^N \frac{q_j}{2} (r_{j+1}^2 - r_j^2) \quad (25b'')$$

N = Index des äußersten Ringes

Die Wärmequellldichteverteilung ist nach [41] eine Funktion des über die Isotopen gemittelten mikroskopischen Spaltquerschnittes σ_{fiss} , des Neutronenflusses ϕ und der Gesamtzahl der spaltbaren Kerne pro Volumeneinheit n_{fiss} :

$$q = e \cdot n_{fiss} \cdot \sigma_{fiss} \cdot \phi \quad (28)$$

(wobei $e = 200 \text{ MeV}$ = die pro Spaltung freiwerdende Energie).

Im Falle des schnellen Flusses ist sowohl ϕ als auch σ_{fiss} radius-unabhängig. Vernachlässigt man Entmischungseffekte, so ist auch q radiusunabhängig und es gilt nach [39] für die mittlere Wärmequell-dichte des i -ten Hohlzylinders:

$$q_i = \frac{\chi \cdot \rho_{Hi}}{0,88 \cdot m_{F/L}} = \frac{\chi \cdot \rho_{Bi}}{m_{F/L}} = \frac{\chi \cdot \rho_{th,B,i} (1-P_i)}{\sum_{i=1}^N \rho_{th,B,i} (1-P_i) (r_{i+1}^2 - r_i^2) \cdot \pi} \quad (28a)$$

wobei ρ_{Bi} = Brennstoffdichte
 ρ_{Hi} = Dichte der schweren Atome
 $\rho_{th,B,i}$ = theor. Dichte des Brennstoffes
 $m_{F/L}$ = Brennstoffmasse pro Längeneinheit
 ρ_H = $0,88 \cdot \rho_B$ für oxidischen Brennstoff

} im i -ten
 } Zylinder

Hieraus ersieht man, daß Porositätsänderungen zu Wärmequell-dichte- und damit zu Temperaturänderungen führen.

Im Falle des thermischen Flusses wurde eine solche Kopplung nicht vorgenommen, da die Verhältnisse viel komplizierter sind. Verursacht durch den um mehr als zwei Größenordnungen höheren Spaltquerschnitt, tritt in den äußeren Brennstoffringen eine bevorzugte Neutronenab-sorption auf. Dies führt innerhalb des Brennstoffes zu einer von der Anreicherung abhängigen Flußabsenkung und damit zu einer radiusabhän-gigen Wärmequell-dichteverteilung. Diese wird porositätsunabhängig in Form eines Potenzreihenansatzes vorgegeben:

$$q(r) = Q_0 (a_0 + a_1 r^2 + a_2 r^4) \quad (28b)$$

wobei die Normierungskonstante Q_0 über $\chi/2L = \int_{R_i}^R q(r) \cdot r \cdot dr$ errechnet wird ($a_1 = \text{Konstanten}$).

3.2 Berechnung der Verteilung der Rißvolumenanteile

Beim Überschreiten von Rißspannungen infolge thermischer Zyklierung reißt der Brennstoff auf. Das Rechenprogramm enthält ein thermisches und ein auf der Tangentialspannung basierendes Aufreißkriterium:

Überschreitet die Tangentialspannung einen bestimmten Maximalwert (30 kp/mm^2) bzw. überschreitet die Änderung des Temperaturgradienten pro Zeiteinheit einen Grenzwert $\left[(\delta T / \delta r)_1 - (\delta T / \delta r)_2 \right] \cdot \frac{1}{\Delta t} > \epsilon$ und bleibt gleichzeitig die mittlere Brennstofftemperatur unterhalb einer kritischen Temperatur, so reißt der Brennstoff auf. Das Rißvolumen selbst wird durch Vergleich der Brennstoff-Ringelementflächen vor und nach der thermischen Ausdehnung berechnet:

$$F' - F'_{\text{Riss}} = (F - F_{\text{Riss}}) \cdot \frac{(1 + \alpha' (T' - T_0))^2}{(1 + \alpha (T - T_0))^2} \quad (29)$$

F, F' = Ringelementfläche vor und nach der thermischen Ausdehnung

$F_{\text{Riss}}, F'_{\text{Riss}}$ = Rißfläche im Ringelement vor und nach der thermischen Ausdehnung.

Nach dem Aufreißen heilen die Risse, z.B. durch Bildung von Linsporen, teilweise bis zu einer Grenztemperatur wieder aus. Diese Grenztemperatur T_{Gr} wird im Programm als Parameter betrachtet. Das Rißvolumen wird für $T > T_{\text{Gr}}$ als Porenvolumen betrachtet und unterliegt wie dieses der Geschwindigkeitsrelation (Gl. (19)).

3.3 Berechnung der Verteilung der Porenvolumenanteile

Für die Porosität im i -ten Brennstoff-Ring gilt:

$$P_i = 1 - \frac{\rho_i}{\rho_{\text{th},i}} \quad (30)$$

wobei $\rho_{\text{th},i}$ und ρ_i die theoretische bzw. die tatsächliche Dichte im i -ten Ring ist. Die Porosität enthält das Leervolumen der Herstellungsporen und, mit zunehmendem Abbrand (s. Kap. 3.4), das der gebildeten Spaltgasblasen. Heilen vorhandene Risse aus (für $T > T_{\text{Gr}}$), so wird in diesen Zonen das Rißvolumen dem Porenvolumen hinzugefügt:

$$P'_i = P_i + \frac{F_{\text{Riss},i}}{F_i} \quad (31)$$

Die Wanderung der so definierten Porosität erfolgt nach Gl. (19) unter der Annahme $p_{\text{tot}} = 1 \text{ atm}$. Im Zeitintervall Δt wandert vom i -ten Ringelement zum nächst heißeren $(i-1)$ -ten Ringelement ein Porenanteil ΔP_i :

$$\Delta P_i = P_i(t) \cdot \frac{\Delta t}{\Delta r_i} \cdot v_i \quad (32)$$

und vom nächst kälteren $(i+1)$ -ten zum i -ten Ringelement ein Porenanteil ΔP_{i+1} :

$$\Delta P_{i+1} = P_{i+1}(t) \cdot \frac{\Delta t}{\Delta r_{i+1}} \cdot v_{i+1} \frac{(1 + \alpha_i (T_i - T_0))^3}{(1 + \alpha_{i+1} (T_{i+1} - T_0))^3} \quad (33)$$

so daß sich nach der Porenwanderung die im i -ten Ringelement verbleibende Porosität P_i^* zu

$$P_i^*(t + dt) = P_i(t) - \Delta P_i + \Delta P_{i+1} \quad (34)$$

berechnet, wobei P = die ursprüngliche Porosität
 v = die Geschwindigkeit der wandernden Porosität (ΔP)
 Δr = die Dicke
 α = der thermische Ausdehnungskoeffizient des entsprechenden Ringelementes ist.

Übersteigt die Porosität im innersten Ring einen Maximalwert (80 %), so wird das Ringelement als Leervolumen, d.h. als Zentralkanal erklärt, bzw. einem schon bestehenden Zentralkanal hinzugefügt. Das verbleibende Material wird dem nächst äußeren Ring zugeteilt. Ebenso wird dem Programm eine Minimalporosität eingegeben, die sich am experimentellen Befund orientiert ($P_{\text{min}} = 0,02$).

Die Porenwanderung ist stark temperaturabhängig ($\propto e^{-Q/RT}$); sie selbst beeinflusst über die porositätsabhängige Wärmeleitfähigkeit wiederum die Temperaturverteilung [44, 45]:

$$k(T, P) = (1 - P^{2/3}) \frac{1 + a_0 T^2 + a_1 T^4}{(a_2 + a_3 \cdot \theta) \cdot a_4} \quad (35)$$

$$\text{mit } \theta = \begin{cases} T & \text{für } T < 2050^\circ\text{C} \\ 2050^\circ\text{C} & \text{für } T \geq 2050^\circ\text{C} \end{cases}$$

$$a_i = \text{Konstanten}$$

Infolge Porenwanderung, d.h. zunehmender Verdichtung des Brennstoffes, und Zentralkanalausbildung nimmt die Brennstofftemperatur ab (siehe Kap. 5.3 und 7.1); diese Änderung wird iterativ errechnet: Mit der ursprünglichen Temperaturverteilung wird eine Porositätsverteilung errechnet, der eine bestimmte Endverteilung der Temperatur entspricht. Mit dem arithmetischen Mittel aus Anfangs- und Endverteilung der Temperatur wird eine neue Porositätsverteilung ermittelt. Dies wird solange fortgesetzt, bis zwischen dem errechneten und dem für das Zeitintervall benutzten Mittelwert hinreichende Übereinstimmung besteht.

3.4 Schwellen des Brennstoffes

Mit zunehmendem Abbrand werden sowohl feste als auch gasförmige Spaltprodukte gebildet. Die festen Spaltprodukte können sowohl durch Einlagerung in der Brennstoffmatrix als auch durch Ausscheidungen in metallischer und oxidischer Form zu Brennstoffschwellen führen. Die gasförmigen Spaltprodukte, ursprünglich ebenfalls in der Matrix gelöst, können sich mit Überschußleerstellen vereinigen und sich als Spaltgasblasen ausscheiden. Blasenbildung und -wachstum führen zum sogenannten Spaltgasschwellen. Obwohl beide Schwellvorgänge gemeinsam auftreten, wird hier nur der letztgenannte untersucht. Er führt zu einer Volumenvergrößerung des Brennstoffes

$$V(t + dt) = V(t) \cdot (1 + \beta dt) \quad (36)$$

und, unter der Voraussetzung der Massenkonzanz, zu einer lokalen Porositätszunahme:

$$P' = 1 - (1 - P) \frac{1}{1 + \beta \cdot dt} \quad (37)$$

β ist die Gasschwellgeschwindigkeit, sie wird dem Programm in der Form $\beta/q = S(T)$ tabellarisch eingegeben.

Die Berücksichtigung der Spaltgasschwellung führt (siehe Kap. 6) zur lokalen Porositätssteigerung im Bereich der Stengelkornzone. Die Wanderung der neugebildeten Porosität wird ebenfalls, entgegen den in Kap. 2.1 geschilderten komplizierten Vorgängen (wie Erzeugung an Versetzungen, Losreißen, Auffangen an Korngrenzen, Loßreißen, Transport zum thermischen Zentrum; Wiederauflösung der Blasen; Oberflächendiffusion als dominierender Transportmechanismus für kleine Radien) mit Gl. (19) beschrieben. Dies stellt, da auch $p_{\text{tot}} = 1 \text{ atm}$ angesetzt wird, eine grobe Näherung dar. Es wird keine isotrope Volumenzunahme angenommen. Die Schwellung in axialer Richtung wird vernachlässigt, dieser Anteil wird dem in radialer und tangentialer Richtung hinzugeschlagen.

$$\Delta Z = \Delta Z'$$

(38)

$$\Delta r = (1 + \beta^* \cdot \Delta t)^{3/2} \cdot \Delta r'$$

Die Gl. (38) stellen die Ausdehnung einer Brennstoffscheibe in axialer und radialer Richtung infolge Gasschwellung dar ($\beta^* = (1 + \beta \cdot \Delta t)^{1/3} - 1) \cdot \Delta t^{-1}$ = lineare Gasschwellgeschwindigkeit). Das Ringelementvolumen nimmt demnach bei Blasen volumenzunahme nur in radialer Richtung zu. Bei der Blasenfreigabe zum Zentralkanal tritt eine Volumenkontraktion nur an der dem Zentralkanal zugewandten Seite des Ringelementvolumens ein. Dies führt zu einer Verlagerung des Brennstoffes in Richtung Hülle, damit verbunden zu einer Abnahme des radialen Spaltes und einer Zunahme des Zentralkanalradius. Diese Verlagerung kommt zum Stillstand, wenn der Brennstoff mit der Hülle in Kontakt tritt. Die Gasschwellung führt dann zu einem "pulsierenden" Brennstoff: Die lokale Porositätszunahme in der Stengelkornzone, durch die Wanderungsgeschwindigkeit (Gl. (19)) begrenzt, führt zur Verkleinerung und die Blasenfreigabe zur Vergrößerung des Zentralkanals. Über die Zeit gemittelt ändert sich letzterer nicht. Die Spaltgasfreigabe führt zur Druckzunahme des Gases im Zentral-

4. Experimentelle Bestimmung der radialen Leervolumenverteilung

4.1 Probenvorbereitung

Die Bestrahlungseinsätze werden nach dem Einsatz im Reaktor im Abklingbecken zwischengelagert, wobei sich die Lagerzeit nach der Aktivität der Stäbe, d.h. nach ihrem Abbrand richtet. Anschließend werden sie in die Heißen Zellen transportiert und demontiert. Die separierten Brennstab-Prüflinge werden zuerst einer zerstörungsfreien Nachuntersuchung zur Festlegung der Trennschnitte unterworfen. Hierzu gehören die äußere Vermessung, das Anfertigen einer Betatrondurchleuchtung und eines γ -Profils eines nichtwandernden Radionuklides. Parallel hierzu besitzt man meistens ein Stableistungsprofil, welches aus Thermolement-Anzeigen während der Bestrahlung errechnet wurde. Hat man also Aussagen über das Stableistungsprofil und die Brennstoffstruktur (Ausbildung von radialen und tangentialen Rissen, Lage und Form des Zentralkanals), so kann man die Lage der einzelnen Schnittebenen festlegen. Abb. 5 zeigt typische Nachbestrahlungsergebnisse des Prüflings L3 und den Schnittplan für die zerstörende Nachuntersuchung.

Anhand des Schnittplanes werden den Prüflingen für die keramografische Nachuntersuchung mit schnellaufenden Diamanttrennscheiben (1,5 mm Breite, 225 mm Durchmesser, 20 m/sec Schnittgeschwindigkeit) Proben von 3 bis 20 mm Länge entnommen. Eine solche Probe besteht aus einem Edelstahl-Hüllrohr und dem Brennstoff (UO_2 bzw. $(U,Pu)O_2$). Zur Wärmeabfuhr und Bindung des hochradioaktiven Trennstaubes tauchen die Scheiben in Wasser ein, welches umgepumpt und über ein Tuch- oder ein Zentrifugalfilter gereinigt wird. Um das Ausfallen von Partikeln aus dem zerklüfteten Brennstoff zu verhindern, werden die Proben nach vorheriger Entgasung mit flüssigem Araldit-Gießharz im Vakuum gefestigt. Beim Belüften des Rezipienten drückt der Umgebungsdruck das Gießharz, von der offenen Stirnseite her, in die Risse des Brennstoffes.

4.2 Probenpräparation

Zur metallografischen Präparation wurden die ausgewählten Proben mit Araldit D in einheitliche Formen eingebettet (31,7 mm Durchmesser und 19 mm Höhe). Das Vorschleifen erfolgte auf SiC-Papier der Körnung 220.

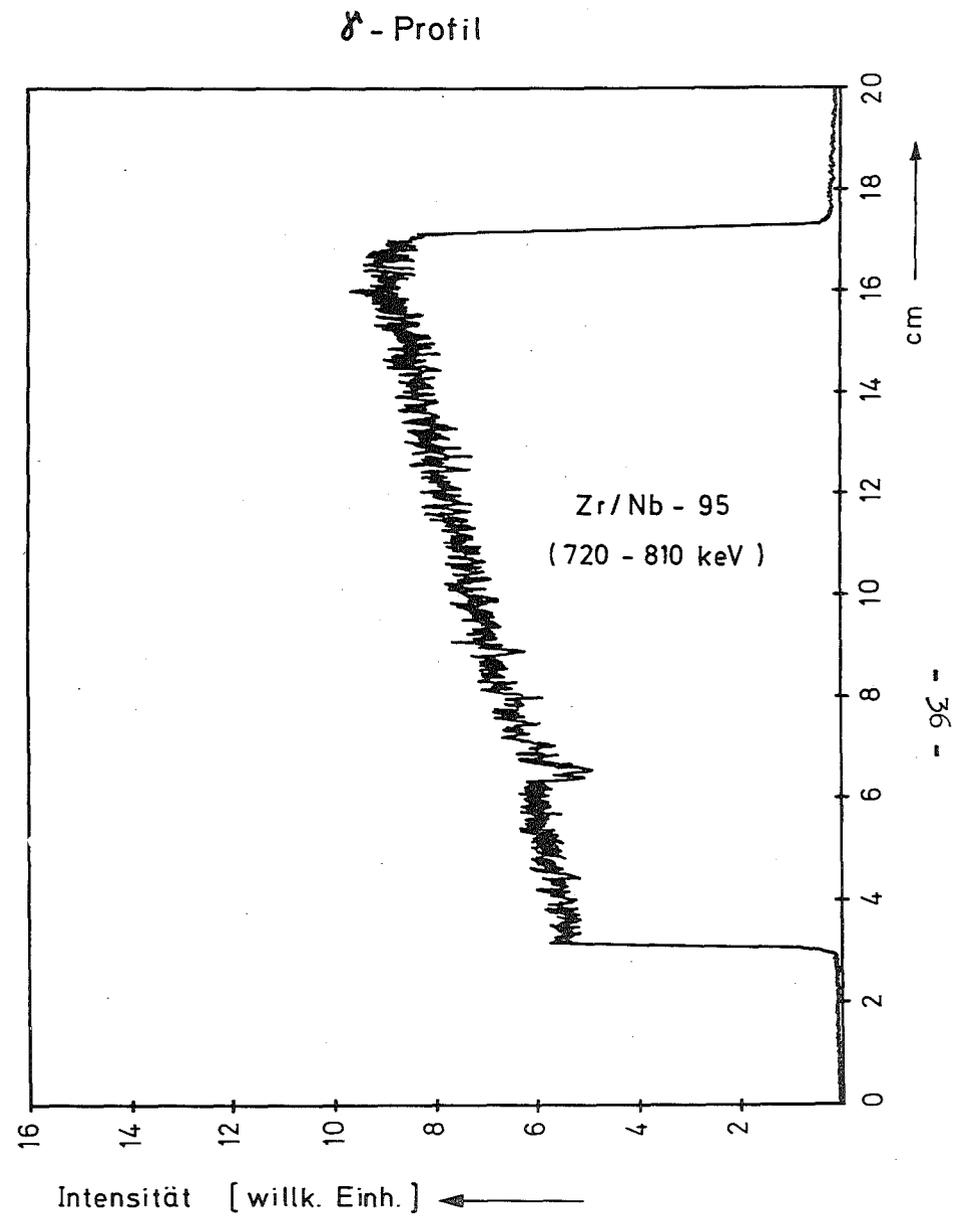
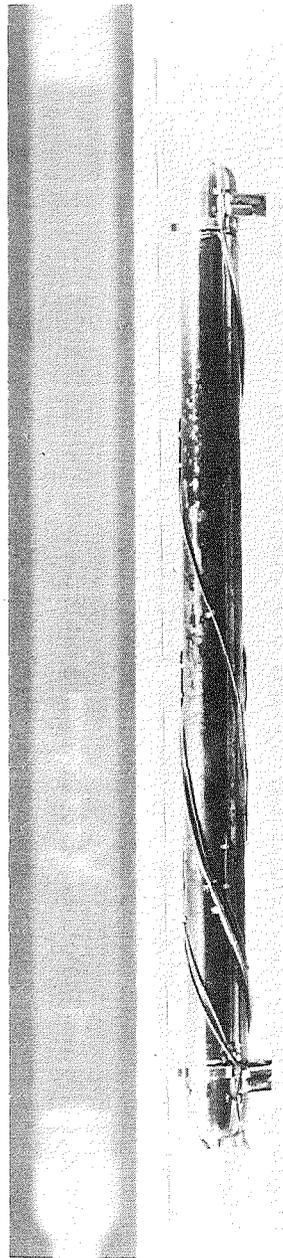
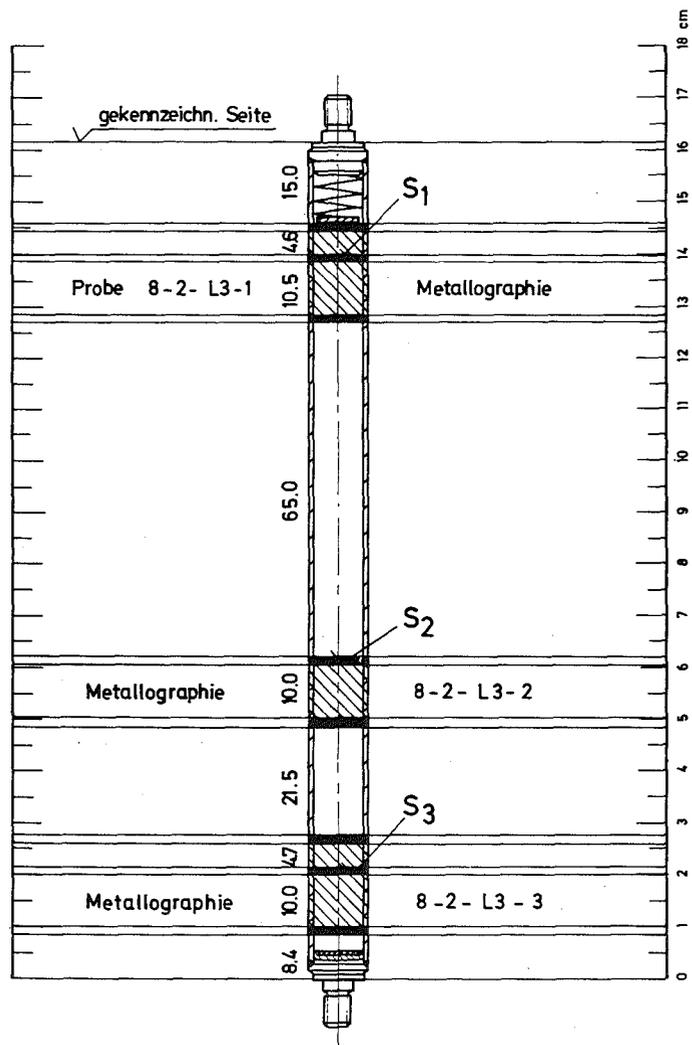


Abb. 5 Schnittplan, Betatrondurchleuchtung, lichtoptische Aufnahme und Zr/Nb-Profil des Prüflings L3

Da die angeschliffenen Poren und Risse des stark zerklüfteten Brennstoffes SiC-Partikel und Flüssigkeit aufnehmen könnten, wurde eine erneute Gießharz-Einbettung vorgenommen. Beim weiteren Naßschleifen wurde SiC-Papier der Körnung 320, 400 und 600 verwendet.

Das Polieren erfolgte auf Vibrationsgeräten. Die Poliergeschwindigkeit wurde so geregelt, daß die Probe ruhig lief und sich um ihre eigene Achse drehte; als optimale Geschwindigkeit wurden ca. 6 Probenumläufe pro Minute gefunden.

Das Ziel des Polierens bestand darin, für die quantitative Analyse reelle Oberflächen zu erzeugen, d.h. deren Riß- und Porengehalte reproduzierbar und richtig zu erfassen. Zu diesem Zwecke wurden 4 verschiedene Poliermittel getestet:

- (1) Tonerde Nr. 1 plus Diamantpaste (Körnung 3 µm)
- (2) Tonerde Nr. 1
- (3) Tonerde Nr. 1 plus H₂O₂ (Vol.-Anteile 5:1)
- (4) Tonerde Nr. 1 plus CrO₃ (Gew.-Anteile 20:1)

Tonerde Nr. 1 + CO₃ erwies sich für das Polieren von UO₂ und (U,Pu)O₂ - sowohl in bestrahlter als auch in unbestrahlter Form - als bestes Poliermittel (siehe hierzu Kap. 4.6). Die Polierzeit lag zwischen 30 und 50 min, je nach Zusammensetzung, Abbrand und Dichte des Brennstoffes

Unmittelbar nach dem Polieren wurden die Proben mit Alkohol gesäubert und einer Ultraschallreinigung unterzogen. Letztere erwies sich als nicht erforderlich, da keine Rückstände des Poliermittels in den Poren und Rissen vorhanden waren.

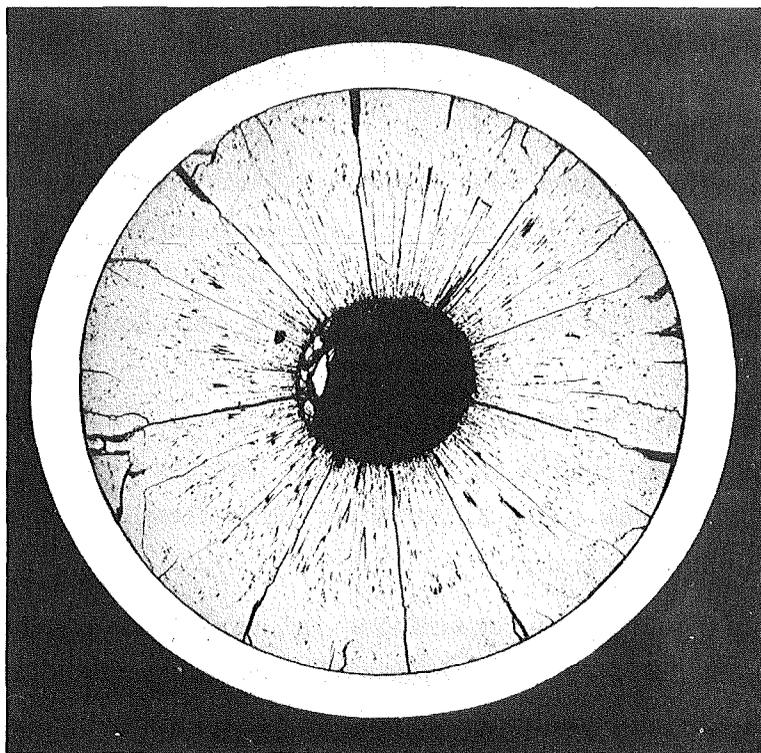
Zur Bestimmung der Strukturzonennradien ist es zweckmäßig, die Brennstoffproben zu ätzen. Hierzu eignen sich verschiedene Methoden [46]. Wir benutzten ein chemisches Ätzmittel der Zusammensetzung:

HNO ₃ (65 %)	- 80 ml
H ₂ O ₂ (30 %)	- 20 ml
H ₂ O	- 10 ml

welches sich sowohl für die Ätzung von UO₂ als auch von (U,Pu)O₂ eignet. Nach dem Ätzen ist das Gefüge über den gesamten Probenquerschnitt gut sichtbar.

4.3 Bestimmung der radialen Rißvolumenverteilung

Sowohl die Riß- als auch die Porenvolumenverteilungen wurden auf fotografischem Wege gefunden [47]. Abb. 6 zeigt einen typischen Querschnitt eines UO_2 -Brennstab-Prüflings (Nr. 3-29-AG-3) nach der Bestrahlung im FR 2. Es ist deutlich der Zentralkanal, die Stengelkornzone und eine Zone mit dem ursprünglichen Gefüge zu erkennen. Radiale Risse teilen den Brennstoff in einzelne Segmente. Zur Ermittlung der Rißvolumenverteilung wurde von einem solchen Querschnitt eine fotografische Aufnahme in ca. 75-facher Vergrößerung angefertigt. In diese wurden, vom Zentrum aus, konzentrische Kreise eingezeichnet und die Schnittlängen dieser Kreise mit den Rissen von Hand ausgemessen und auf die Kreisumfänge bezogen. In Abb. 7 ist die Rißflächenverteilung des in Abb. 6 dargestellten Querschnittes als Treppenkurve aufgetragen.



1mm

Abb. 6 Querschnitt des Prüflingsabschnittes 3-29-AG-3
(UO_2 poliert mit $Al_2O_3 + CrO_3$)

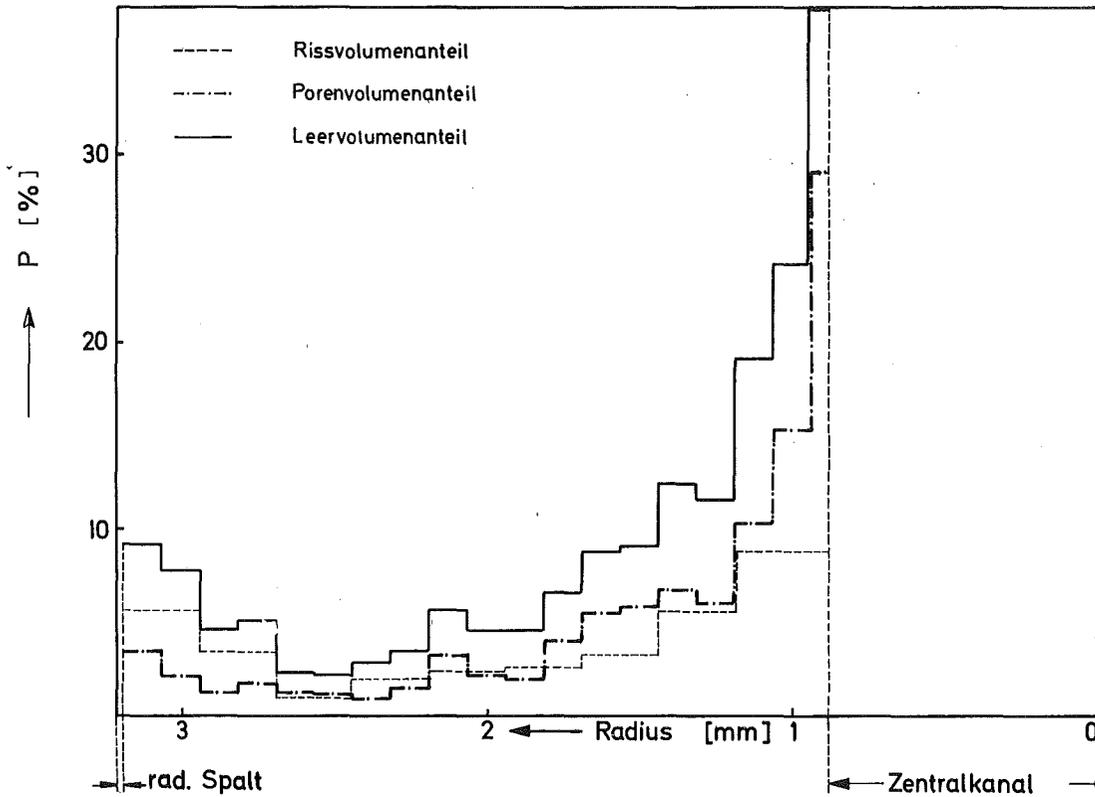


Abb. 7 Radiale Riß- und Porenvolumenverteilung des Prüflingsabschnittes 3-29-AG-3

Für eine beliebig kleine Schichtdicke stellt die Rißflächenverteilung auch die Rißvolumenverteilung dar. Mehrere Messungen in verschiedenen Ebenen der gleichen Prüflingsprobe ergaben die gleichen Verteilungen. Dies führt zu dem Schluß, daß die Rißflächenverteilung mit der Rißvolumenverteilung der bestrahlten Brennstofftablette identisch ist. Es gilt:

$$P_1 = \frac{F_R}{F_B} = \frac{V_R}{V_B} \quad \text{wobei} \quad \begin{array}{l} F_R = \text{Rißfläche} \\ F_B = \text{Brennstoff-Fläche} \\ V_R = \text{Rißvolumen} \\ V_B = \text{Brennstoffvolumen (einschl.} \\ \quad \text{Riß- und Porenvolumen)} \end{array} \quad (39)$$

Die in Abb. 7 dargestellte Rißflächenverteilung des Brennstabquerschnitts 3-29-AG-3 ist also identisch mit der Rißvolumenverteilung⁺ der bestrahlten Brennstofftablette.

Anmerkung: Es sollte genauer "Verteilungen der Rißvolumenanteile" heißen.

4.4 Bestimmung der radialen Porositätsverteilung

Die Bestimmung der radialen Porositätsverteilung erfolgte durch elektronische Auswertung von Schlifffbildern nichtgerissener Brennstoffbereiche bezüglich des Porengehaltes. Von einem Querschnitt wurden bis zu 3 radiale Brennstoffbereiche vom Hüllinnenradius bis zum Zentralkanal ausgewählt. Die Bereiche wurden in 200-facher Vergrößerung fotografiert und die Einzelaufnahmen zu sogenannten "Panoramaaufnahmen" zusammenmontiert. Abb. 8 stellt im oberen Teil eine solche Fotomontage dar (Prüfling 3-29-AG-3).

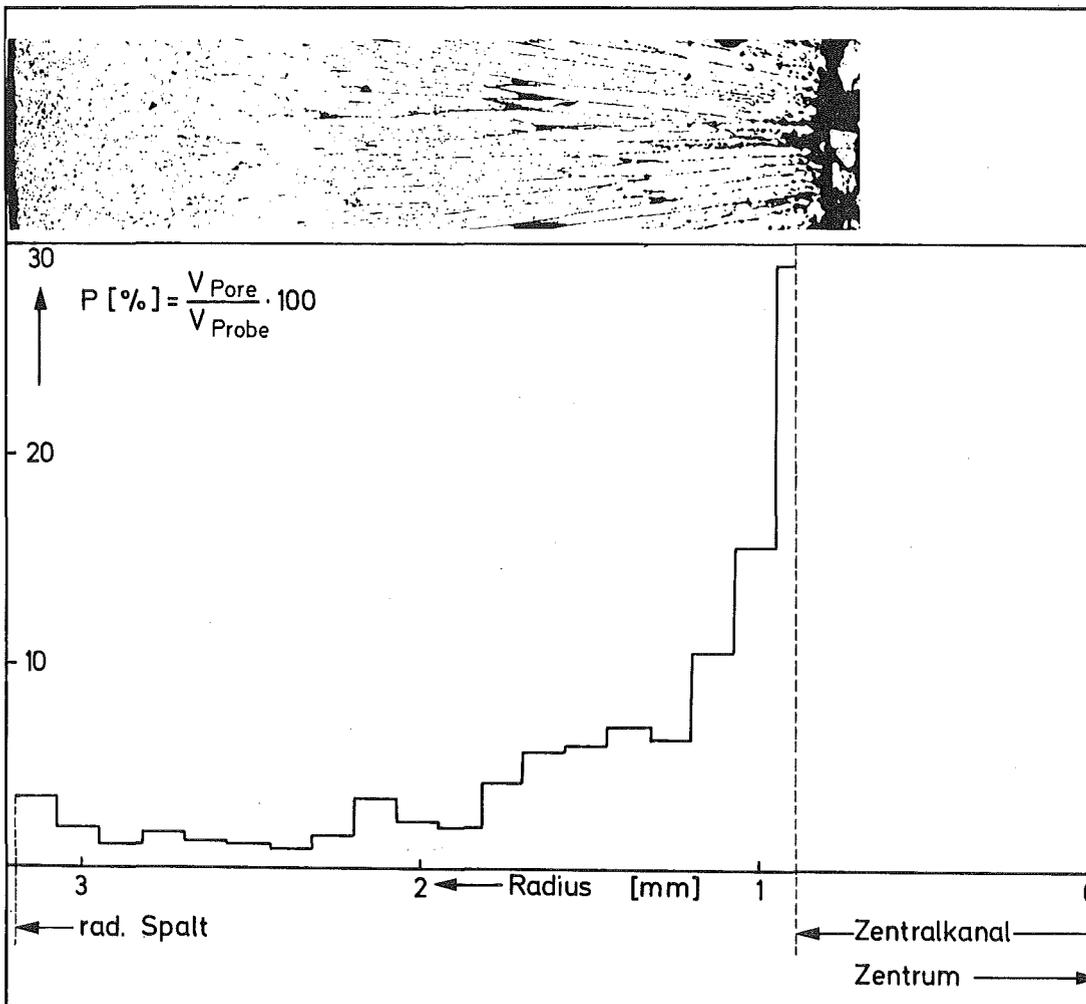


Abb. 8 Radiale Porositätsverteilung des Prüflingsabschnittes 3-29-AG-3

Das Filmmaterial der Negative trägt die Typenbezeichnung 23 D 56 und DIN 10-12 (Agfa-Gaevert). Die Gradation der Abzüge war normal und spezial (Agfa-Lupex-Papier L1).

Der Flächenanteil der schwarzen Poren auf hellem Untergrund (Brennstoff) wurde durch elektronische Ausmessung mit einem Gefügebildanalytator (G B A) (Quantimet der Fa. Metals Research Ltd., Cambridge) bestimmt. Der GBA besteht (Abb. 9) aus einem Epidiaskop, einem Mikroskop, zwei eingebauten Fernsehkameras mit Bildwandlerröhre, einem Monitor und der elektrischen Verarbeitungseinheit nebst Digitalanzeige und Drucker. Die Messung des Porengehaltes mit der Mikroskopeinrichtung direkt an den präparierten Proben mußte aus mehreren Gründen entfallen:

(1) eventuelle Strahlenschädigung der Linsen, (2) eventuell mangelnder Kontrast auf den Probenoberflächen. Aus diesen Gründen wurde der aufwendigere Weg über die fotografischen Arbeiten und deren Auswertung über die Epidiaskopeinrichtung gewählt. Das zu untersuchende Bild wird in der Bildwandler-Röhre (Vidicon) auf einer elektrisch leitenden Platte, die mit einer Halbleiterschicht ($Sb S_3$) überzogen ist, fokussiert. Diese Schicht ändert je nach Helligkeit der Bildpunkte (es sind $312,5 \times 480$ Bildpunkte) ihren elektrischen Widerstand. Jeder Bildpunkt ist somit für den kameraseitig abtastenden Elektronenstrahl unterschiedlich durchlässig, d.h. es entsteht ein der Helligkeit proportionales Ausgangssignal. Mit einer geeignet eingestellten Schwelle können schwarze Poren auf hellem Untergrund flächenmäßig, d.h. auf eine bestimmte einblendete Bildgröße bezogen, quantitativ erfaßt werden.



Abb. 9

Gefügebildanalytator
mit Mikroskop- und
Epidiaskopeinrichtung

Die Treppenkurve in Abb. 7 und 8 stellt die mit dem GBA gemessene Porenflächenverteilung des Prüflings 3-29-AG-3 in der Fläche dar. Sie ist, nach dem Delesse-Prinzip [48], identisch mit der Verteilung des relativen Porenvolumenanteils. Es gilt:

$$P_2 = \frac{F_P}{F_B} = \frac{V_P}{V_B} \quad (40)$$

$$P = P_1 + P_2 = \frac{V_R + V_P}{V_B} \quad (41)$$

mit P_2 = Porenvolumenanteil
(= Porosität)

P = Leervolumenanteil

V_P = Porenvolumen

F_P = Porenfläche

Fotografisch wie elektronisch wurden Poren bis herab zu 1 μm Durchmesser erfaßt.

4.5 Leervolumenbilanz

Die Leervolumenbilanz beinhaltet den Vergleich des Gesamtleervolumens vor der Bestrahlung mit dem nach der Bestrahlung gemessenen. Eine solche Bilanz wird durchgeführt in Kap. 4.6 zur Ermittlung der optimalen Präparationsmethode und in Kap. 6.3 zur Deutung der radialen und axialen Leervolumentransporte. Das Gesamtleervolumen eines Brennstababschnittes beliebiger Höhe setzt sich aus dem radialen Spalt V_{Sp} zwischen Brennstoff und Hülle, dem Zentralkanal V_Z und dem Poren- und Rißvolumen (V_P und V_R) im Brennstoff zusammen:

$$V = V_{Sp} + V_Z + V_R + V_P \quad (42)$$

Da die Bestrahlungsexperimente zur Zeit dieser Arbeit schon abgeschlossen waren, konnte der Porengehalt der Brennstofftabletten vor der Bestrahlung nicht mit dem GBA ermittelt werden. Für jede Tablette war aber die relative Brennstoffdichte $D_B = \rho_B / \rho_{th}$ (ρ_{th}, ρ_B = theor., wirkliche Brennstoffdichte) aus Volumen- und Gewichtsmessungen bekannt,

so daß nach

$$D_B = 1 - P = 1 - \frac{V_P}{V_B} \quad (43)$$

die Porosität bzw. das Porenvolumen berechnet werden konnte.

Nach der Bestrahlung liegt eine Porositäts- und Rißvolumenverteilung im Brennstoff vor. Ein volumetrisch gemitteltes Leervolumen wird durch Einteilung des Brennstoffes in 6 bis 7 Ringelemente wie folgt errechnet:

$$V_{P/R}^i = \pi (r_{i+1}^2 - r_i^2) \cdot h \cdot \frac{F_{P/R}}{F_B} \quad (44)$$

$$\bar{V}_R + \bar{V}_P = \frac{\sum_{i=1}^n V_P^i + \sum_{i=1}^n V_R^i}{\pi (r_a^2 - r_z^2) \cdot h} \quad (45)$$

- wobei r_i, r_{i+1} = Radien des i-ten Ringelementes
 r_a = Brennstoffaußenradius
 r_z = Zentralkanalradius
 h = Höhe des Brennstababschnittes
 n = Zahl der Ringelemente

Die Höhe des Brennstababschnittes wurde willkürlich zu 10 mm gesetzt.

Das Spaltvolumen vor der Bestrahlung wurde den Herstellungsberichten entnommen, das Spalt- und Zentralkanalvolumen nach der Bestrahlung wurde durch Vermessen der präparierten Brennstababschnitte unter dem Mikroskop in den Heißen Zellen gewonnen.

4.6 Ermittlung der optimalen Präparationsmethode

Die optimale Schliffpräparationsmethode läßt sich über die Leervolumenbilanz ermitteln. Unter der Annahme, daß beim Einsatz im Reaktor keine axialen Leervolumentransporte stattfinden, und auch kein nennenswerter Beitrag zum Leervolumen hinzukommt, sollte das Gesamtleervolumen einer Brennstabprobe vor der Bestrahlung gleich dem nach der Bestrahlung sein. Diejenige Präparationsmethode, die die beste Übereinstimmung liefert, ist die optimale Methode.

Der erste Schritt bestand darin, für die 4 möglichen Poliermittel die optimalen Polierzeiten zu ermitteln. Quantitativ wurden diese Untersuchungen an nichtbestrahlten Proben durchgeführt und die Ergebnisse auf bestrahlte Proben übertragen, wo sie qualitativ bestätigt wurden. Abb.10 gibt die mit dem GEA gemessenen Porositäten einer unbestrahlten Eichprobe (UO_2) für die beiden Poliermittel Tonerde Nr. 1+ CrO_3 und Tonerde Nr. 1+ H_2O_2 wieder. Sowohl die Porosität wie auch die Schliffgüte ist eine Funktion der Polierzeit. Für Polierzeiten größer 20 min (Tonerde + CrO_3) bzw. 40 min (Tonerde + H_2O_2) ändern sich die gemessenen Porositätswerte nicht mehr, d.h. für das jeweilige Poliermittel sollte dies die "reale" Porosität sein. Die Poliermittel Tonerde und Tonerde + Diamant lieferten auch nach längerer Polierzeit kein Plateau. Dieses Ausscheidungskriterium ließ die letztgenannten Poliermittel als ungeeignet erscheinen. Der Vollständigkeit halber wurden aber die Leervolumenbilanzen mit den 4 Poliermitteln durchgeführt. Folgende Polierzeiten wurden gewählt:

Tonerde + Diamant	:	180 min
Tonerde	:	150 min
Tonerde + H_2O_2	:	40 min
Tonerde + CrO_3	:	30 min

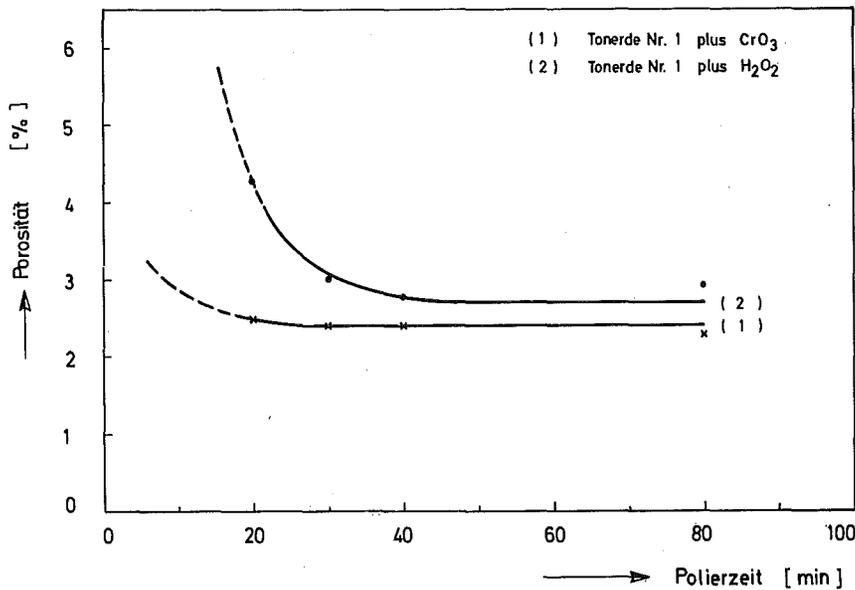
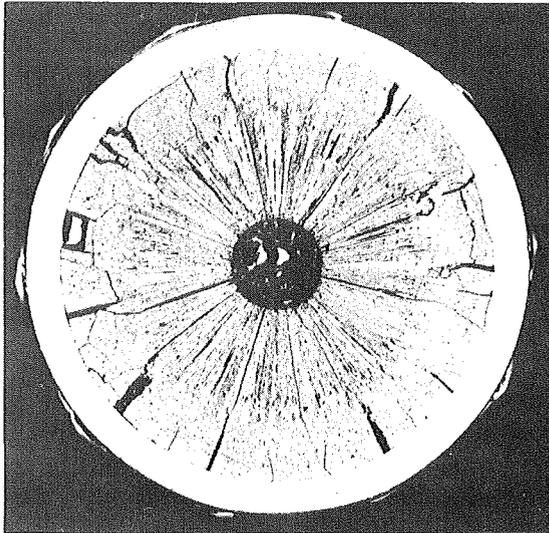


Abb. 10 Abhängigkeit der Porosität von der Polierzeit
(unbestrahlte Eichprobe)

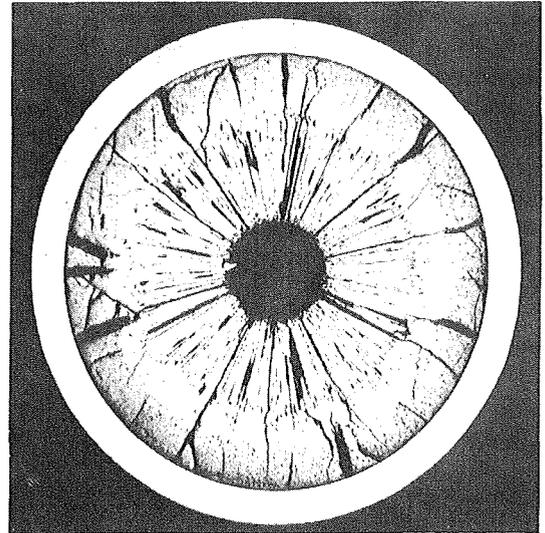
Abb. 11 zeigt den Querschnitt eines Prüflings (Nr. 3-29-CG-3) nach den 4 verschiedenen Polierverfahren. Vom optischen Eindruck her kann man die beiden Poliermittel unter a) und b) wegen der zahlreichen Ausbrüche ausschließen. Zwischen c) und d) muß die quantitative Auswertung entscheiden. In Tabelle 3 sind diese Ergebnisse zusammengestellt. Aus den Herstellungsdaten wurde ein mittlerer Leervolumenanteil in der Hohlzylindertablette von 7,1 % errechnet. Dieser Sollwert wurde mit dem aus den gemessenen Riß- und Porenvolumenverteilungen gewonnenen Mittelwert verglichen. Mit dem Poliermittel $Al_2O_3 + CrO_3$ ergab sich die beste Übereinstimmung.

Tabelle 3 Vergleich der errechneten und gemessenen Leervolumina des Prüflings 3-29-CG-3

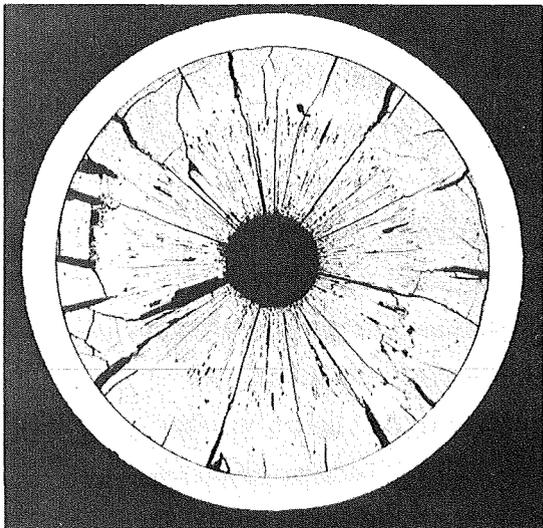
Polierverfahren	relativer Riß- u. Porenvolumenanteil (%)	
	gemessen	errechnet
Diamantpaste	> 25,5	7,1
Al_2O_3	25,5	7,1
$Al_2O_3 + H_2O_2$	10,9	7,1
$Al_2O_3 + CrO_3$	8,3	7,1



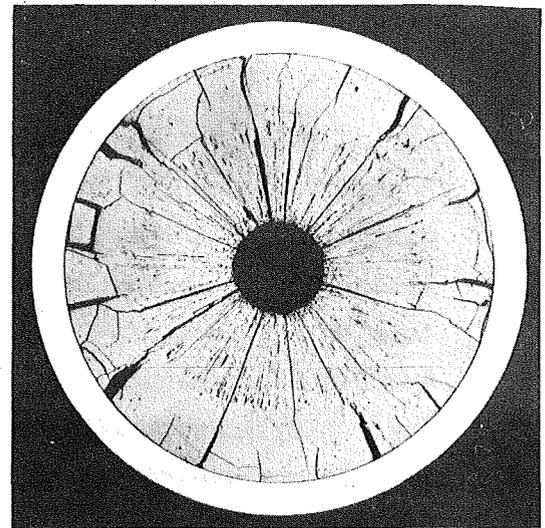
a.) Diamantpaste



b.) Al_2O_3



c.) $\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{H}_2\text{O}_2$



d.) $\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{CrO}_3$

Prüfling:
3-29-CG-3

1 mm

Abb. 11 Querschnitt des Prüflingsabschnittes 3-29-CG-3 nach verschiedenen Polierverfahren

Der hier durchgeführte Vergleich kann nur dann zu einer Übereinstimmung führen, wenn

- keine axialen Materialtransporte stattgefunden haben,

- kein Leervolumen vorgetäuscht wurde (z.B. durch Ausbrüche bzw. durch Auflösung oxidischer Einschlüsse von Sr und Ba bei der nassen Schliﬀpräparation),
- die mit dem GBA gemessene Porosität (Nachweisgrenze für die Porendurchmesser: 1 µm) die Gesamtporosität darstellt.

Die gleichmäßige Ausbildung des Zentralkanals über die gesamte Stablänge und die Leervolumenbilanz deuten darauf hin, daß keine axialen Transporte stattgefunden haben. Der Prüfling 3-29-CG3 hatte einen mittleren Abbrand von ca. 25000 Mwd/t M, so daß der volumetrische Anteil der oxidischen Einschlüsse von Sr und Ba vernachlässigt werden kann. (Der volumetrische Anteil aller oxidischen und metallischen Ausscheidungen wurde zu < 0,8 % abgeschätzt.) Die in Abb. 7 dargestellte Leervolumenverteilung läßt sich in der Form (1-P) als Dichteverteilung interpretieren.

Tabelle 4 Vergleich errechneter und gemessener Leervolumenanteile verschiedener Brennstoffproben

Geschichte	Proben-Nr.	Material	Riß- und Porenvolumenanteil (%)	
			gemessen	errechnet
unbestrahlt	1	UO ₂	4,5	4,0
	2	UO ₂	4,9	5,5
	3	UO ₂	6,0	6,8
	4	UO ₂	11,2	10,9
elektrisch geheizt	5	UO ₂	3,4	3,5
bestrahlt im therm. Fluß	6	UO ₂	8,3	7,1
	7	UO ₂	7,2	6,7
epitherm. Fluß	8	(U,Pu)O ₂	11,9	11,4

Das Poliermittel Al₂O₃ + CrO₃ wurde an den verschiedenen UO₂- und (U,Pu)O₂-Proben getestet (siehe Tabelle 4):

- Die Proben Nr. 1 bis 4 wurden kaltgepreßt und bei 1600°C unter $\text{Ar}/5\% \text{-H}_2$ -Atmosphäre auf verschiedene Dichten gesintert. Sie waren 1 bzw. 2 mm hoch, hatten einen Durchmesser von 5 mm und zeigten einheitliche Dichten über den gesamten Querschnitt. Die Brennstoffdichten wurden durch Volumen- und Gewichtsmessungen ermittelt und die Porositäten nach Gl. (43) errechnet.
- Probe Nr. 5 wurde von Freund und Sari in einer neuentwickelten Anlage direkt elektrisch geheizt [49]. Sie zeigte einen kleinen Zentralkanal, der durch Porenwanderung hervorgerufen worden war. Die Dichte wurde über die Auftriebsmethode in H_2O mit und ohne Zaponlack bestimmt und die Porosität nach Gl. (43) errechnet.
- Die Proben Nr. 6 und 7 sind aus verschiedenen Prüflingen des gleichen Kapselversuchseinsatzes (3-29-CG-3 und 3-29-AG-3). Sie wurden im thermischen Fluß bis ca. 25 000 MWd/t M bestrahlt. Die Querschnittsaufnahme der Probe Nr. 7 zeigte gegenüber der Probe Nr. 6 weniger Ausbrüche und dadurch eine bessere Übereinstimmung mit dem errechneten Wert. Letzterer wurde aus den Herstellungsdaten gewonnen.
- Probe Nr. 8 (17b-Mol 7A-9-6/3) wurde im BR 2 unter Cd-Abschirmung zur Simulation eines schnellen Flusses bis ca. 35 000 MWd/t M bestrahlt. Die Ausgangszusammensetzung war 20 % PuO_2 und 80 % UO_2 (80 % U-235 im Uran); der Brennstoffquerschnitt war oval, der Brennstoffrand zackentartig ausgerissen und der Zentralkanal außermittig. Eine Übereinstimmung war hier am wenigsten zu erwarten. Die Untersuchung an diesem Querschnitt war in der Tat zufällig, da dieser Brennstoffabschnitt, wie sich in Kap. 6.2 herausstellte, keinen axialen Materialtransport zeigte.

Die Präparationsmethode mit Tonerde Nr. 1 + CrO_3 als Poliermittel, verbunden mit einer Polierzeit von 40 min erwies sich für Vibrationsgeräte als optimal. Es wurden hohe Schlifffgüten und reale Porositäten erzeugt. Die Abweichungen der in Tabelle 4 aufgelisteten Werte, umgerechnet in % th.D., sind $< 1\%$.

5. Vergleich von errechneten mit gemessenen Leervolumenverteilungen an kurzzeitig bestrahlten Prüflingen

Die Auswertung bezüglich der Riß- und Porenvolumenverteilung wurde an 5 Brennstabproben der He-Loop-Versuchsgruppe 2 durchgeführt. Sie zeigen eine stufenweise Änderung der Brennstoffstruktur und stellen damit einen repräsentativen Querschnitt dar.

Die Auslegungs- und Herstellungsdaten sowie die Bestrahlungsgeschichte der untersuchten Prüflinge sind im KFK-Bericht 1521 [50] dokumentarisch zusammengestellt. Es sollen hier nur die wichtigsten Daten angeführt werden:

Hüllmaterial	X8CrNiMoVNb 1613 (Werkstoff-Nr. 1.4988)
Brennstoff-Zusammensetzung	UO ₂ (7,5 Gew.-% U-235 im Uran)
Brennstoff-Form	Tabletten (Zylindermantel geschliffen)
Brennstoff-Dichte	89 - 93 % th.D.
Bestrahlungszeit	2 h ; 24 h ;
Stableistung	380 - 645 W/cm
Hüllaußentemperatur	460 - 510°C

Die Bestrahlung erfolgte im Zentralloop des FR 2.

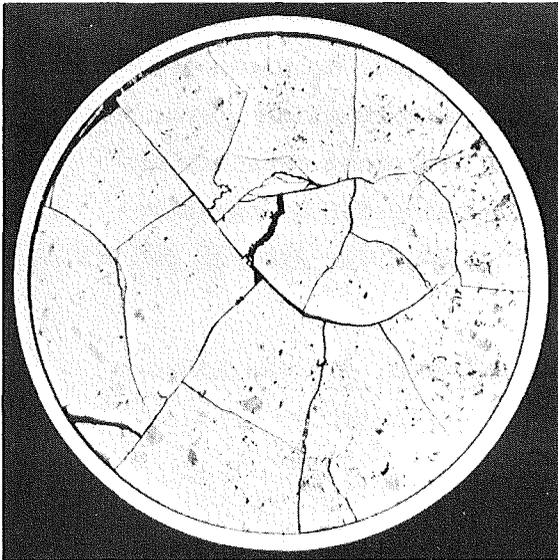
Die Eingabedaten für das Programm finden sich in Tabelle 5 und auf den einzelnen Abbildungen (siehe Abb. 14 - 19). Die Rechnungen wurden durchgeführt für einen thermischen Fluß mit einer Flußabsenkung im Brennstoff von 30 %. Der Bestrahlungsablauf wurde für alle Prüflinge als nichtzyklisch angenommen. (Die Bestrahlungsgeschichte des Prüflings L6 umfaßte 2 Zyklen.) Die Wärmeübergangszahl für die Kontaktzone Brennstoff-Hülle wurde als Parameter behandelt.

Tabelle 5 Programmeingabedaten für die Berechnung der Leervolumenverteilung kurzzeitig bestrahlter Brennstabprüflinge [40, 50]

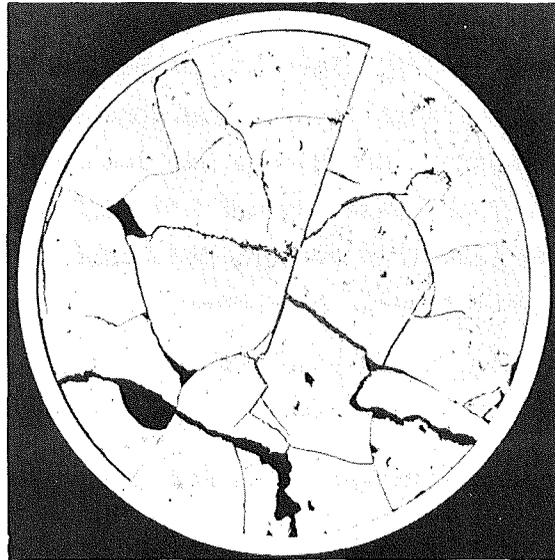
Ausgangsgeometrie der Hülle und des Brennstoffes Zahl der konz. Ringe	$r_{Hi} = 5,0 \text{ mm}; r_{Ha} = 6,0 \text{ mm}; N = 20$		Bestrahlungsgeschichte, bestehend aus Zeitpunkt, Stableistung, Hüllaußentemperatur, Kühlmitteldruck, Gasdruck und schnellem Neutronenfluß						
	$r_{Bi} = 0,0 \text{ mm}; r_{Ba} = 4,95 \text{ mm}; N = 50$								
Herstellungsporosität; theoretische Dichte	$P = 0,078 \text{ (I2z-2)}; 0,103 \text{ (I6-3)}$ $0,090 \text{ (I6-2)}; 0,095 \text{ (I6-1)}$ $0,072 \text{ (I3-1)}; S_{th} = 10,95 \text{ g/cm}^3$								
E-Modul und Poisson-Zahl der Hülle	$E = 16 \text{ 000 kp/mm}^2; \nu = 0,3$		t (h)	X (W/cm)	T_{Ha} (°C)	p_1 (atm)	p_2 (atm)	ϕ_s (n/cm ² sec)	
Wärmeleitfähigkeit der Hülle (X8CrNiMoVNb 1613)	T (°C)	K (W/cm°C)	I2z-2						
			20	0,151	20.	30.	1.	0.	
	100	0,159	0,15	380.	470.	30.	1.	0.	
	200	0,172	2,23	380.	470.	30.	1.	0.	
	300	0,180	2,3	0.	20.	30.	1.	0.	
	400	0,193	I6-3						
	500	0,201	0,0	0.	20.	30.	1.	0.	
	600	0,218	0,1	430.	460.	30.	1.	0.	
	700	0,250	1,95	430.	460.	30.	1.	0.	
	Integraler linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient der Hülle		T (°C)	α (°C ⁻¹)	I6-2				
		20	0,0	0,0	0.	20.	30.	1.	0.
		100	$0,157 \cdot 10^{-4}$	0,1	530.	460.	30.	1.	0.
		200	$0,167 \cdot 10^{-4}$	0,33	530.	460.	30.	1.	0.
		300	$0,171 \cdot 10^{-4}$	0,54	565.	460.	30.	1.	0.
		400	$0,174 \cdot 10^{-4}$	0,70	565.	460.	30.	1.	0.
		500	$0,176 \cdot 10^{-4}$	0,80	515.	460.	30.	1.	0.
		600	$0,178 \cdot 10^{-4}$	2,0	515.	460.	30.	1.	0.
		700	$0,180 \cdot 10^{-4}$	2,1	0.	20.	30.	1.	0.
		800	$0,187 \cdot 10^{-4}$	I6-1					
E-Modul und Poission-Zahl des Brennstoffes	$E = 16 \text{ 000 kp/mm}^2; \nu = 0,3$		0,0	0.	20.	30.	1.	0.	
Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes (UO ₂)	$a_0 = 0,461 \cdot 10^{-7}; a_1 = 0,282 \cdot 10^{-13}$ $a_2 = 10,8; a_3 = 0,0218$ $a_4 = 0,926 \text{ in Gl. (42)}$	0,1	650.	460.	30.	1.	0.		
		0,33	650.	460.	30.	1.	0.		
		0,43	680.	460.	30.	1.	0.		
		0,6	680.	460.	30.	1.	0.		
		0,72	640.	460.	30.	1.	0.		
Integraler linear thermischer Ausdehnungskoeffizient des Brennstoffes	$\alpha_B = 7,4189 \cdot 10^{-6} + 5,855 \cdot 10^{-9} T \text{ (}^\circ\text{C}^{-1}\text{)}$		2,0	640.	460.	30.	1.	0.	
2,1	0.	20.	30.	1.	0.				
Porenwanderungsgeschwindigkeit max. und min. Porosität	$v \left(\frac{\text{mm}}{\text{h}} \right) = 1,98 \cdot 10^{13} \cdot T^{-3/2} \exp\left(-\frac{71700}{T}\right) \frac{dT}{dr}$ $P_{\text{max}} = 0,8; P_{\text{min}} = 0,02$		0,0	0.	20.	30.	1.	0.	
0,1	470.	260.	30.	1.	0.				
0,25	470.	260.	30.	1.	0.				
0,33	490.	360.	30.	1.	0.				
0,6	490.	360.	30.	1.	0.				
0,68	600.	500.	30.	1.	0.				
1,13	600.	500.	30.	1.	0.				
1,22	550.	500.	30.	1.	0.				
24,3	550.	500.	30.	1.	0.				
24,4	0.	20.	30.	1.	0.				
Wärmeübergangszahl	$h = 1,0 \text{ W/cm}^2 \text{ }^\circ\text{C (I6-1)}$ $h = 0,75 \text{ W/cm}^2 \text{ }^\circ\text{C sonst}$		0,0	0.	20.	30.	1.	0.	
0,1	470.	260.	30.	1.	0.				
0,25	470.	260.	30.	1.	0.				
0,33	490.	360.	30.	1.	0.				
0,6	490.	360.	30.	1.	0.				
0,68	600.	500.	30.	1.	0.				
1,13	600.	500.	30.	1.	0.				
1,22	550.	500.	30.	1.	0.				
24,3	550.	500.	30.	1.	0.				
24,4	0.	20.	30.	1.	0.				
Thermische Wärmequellichte- verteilung	$a_0 = 1,0; a_1 = 1,7$ $a_2 = 0,0 \text{ in Gl. (35b)}$		I3-1						
0,0	0.	20.	30.	1.	0.				
0,1	470.	260.	30.	1.	0.				
0,25	470.	260.	30.	1.	0.				
0,33	490.	360.	30.	1.	0.				
0,6	490.	360.	30.	1.	0.				
0,68	600.	500.	30.	1.	0.				
1,13	600.	500.	30.	1.	0.				
1,22	550.	500.	30.	1.	0.				
24,3	550.	500.	30.	1.	0.				
24,4	0.	20.	30.	1.	0.				
Rißbedingung: a) Spannungskriterium b) Thermisches Kriterium	$\sigma_{\text{Riss}} = 30 \text{ kp/mm}^2$ $\frac{1}{2} (T_{Ba} + T_{\text{max}}) < 1000^\circ\text{C}$ $\frac{1}{\Delta t} \left\{ \left(\frac{dT}{dr} \right)_1 - \left(\frac{dT}{dr} \right)_2 \right\} > \epsilon$ mit $\epsilon \cdot dr = 5 \text{ }^\circ\text{C/h}$								
Rißausheilung	$T_{Gr} = 2200^\circ\text{C (I6-1)}$ $2100^\circ\text{C (I3-1)}$ $> T_z \text{ (I6-3, I2z-2, I6-2)}$								

5.1 Radiale Verteilung der Rißvolumenanteile

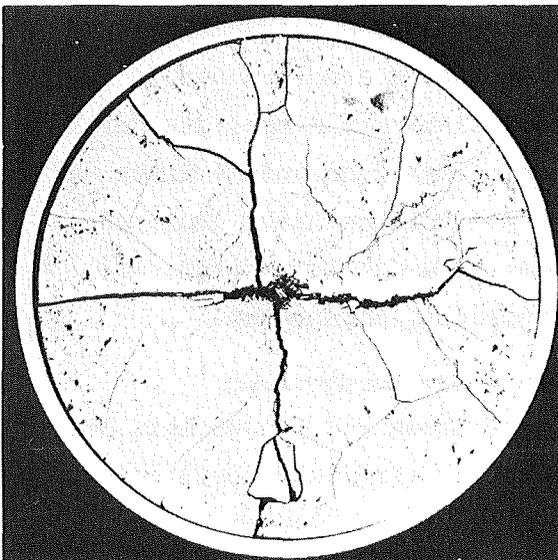
Abb. 12 zeigt 4 der untersuchten Querschliffe. Der Prüflingsquerschnitt I6-3 ähnelt dem I2z-2 und wurde deshalb nicht abgebildet. Der Querschliff I2z-2 zeigt ein mehr oder minder unregelmäßiges Aufreißen des Brennstoffes. In den Prüflingsabschnitten I6-1 und I3-1 verlaufen die Risse bevorzugt in radialer Richtung und münden in einen Zentralkanal.



I2z-2

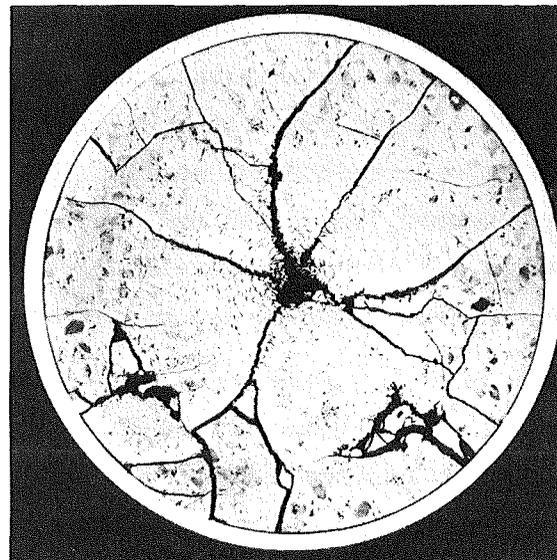


I6-2



I3-1

1 mm



I6-1

Abb. 12 Querschliffe der untersuchten Brennstababschnitte

Beim Überschreiten von Reißspannungen infolge thermischer Zyklierung reißt der Brennstoff auf. Dies geschah bei den untersuchten Prüflingen mindestens zweimal, einmal beim Einfahren des Prüflings in den laufenden Reaktor und zum zweiten Mal beim Herausfahren. Das Aufreißen beim Aufheizen dürfte von außen nach innen erfolgen, da infolge der unterschiedlichen thermischen Ausdehnung der Ringzonen, Thermospannungen bevorzugt in der Außenzone auftreten. Die Reißausbreitung beim Abkühlen dürfte von innen nach außen erfolgen. Abb. 13 zeigt ein Brennstoffsegment eines Prüflings der gleichen Versuchsgruppe (8-2-I22-2/4). Nach 13,5 d Bestrahlungszeit ist nur noch ein keilförmiger Riss in der Außenzone sichtbar; die ursprünglich vorhandene Fortsetzung des Risses bis zum Zentralkanal ist nicht mehr vorhanden. Dies deutet darauf hin, daß Risse im Bereich der Stengelkornzone ausheilen können. Das Ausheilen kann an Hand der Abb. 12 und 13 wie folgt gedeutet werden:

- (a) Die Risse können als Quellen von Linsenporen, die das Reißvolumen zum Zentralkanal transportieren, auftreten.

Daneben existiert eine modellmäßige Vorstellung:

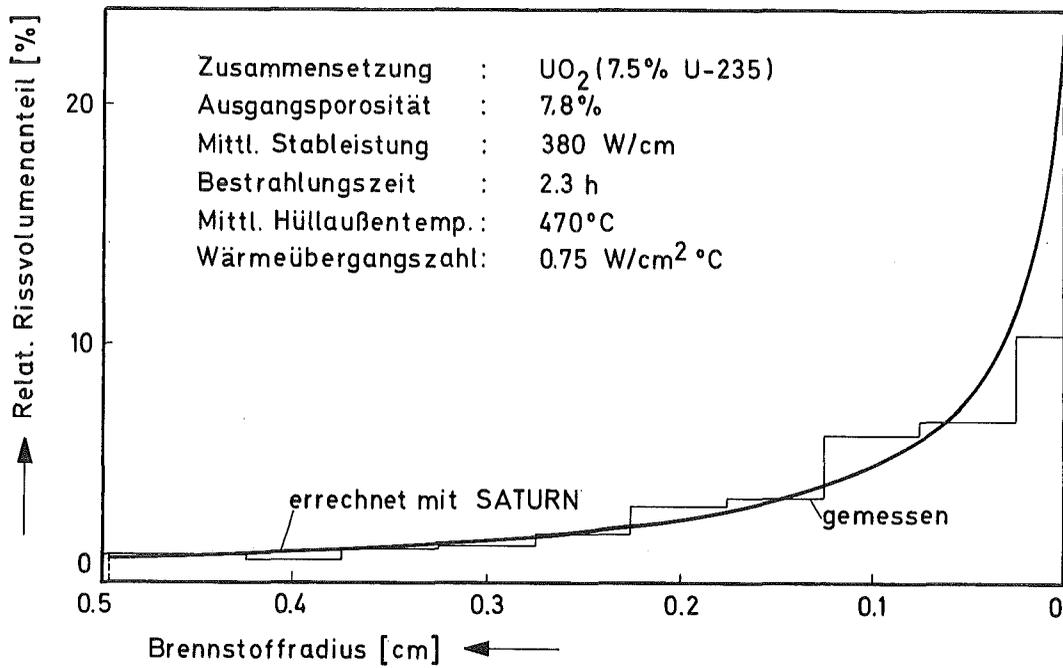
- (b) Für Temperaturen $T > T_{PL}$ (wobei T_{PL} = Plastizitätsgrenze) schließen sich die Risse spontan.

Die Abbildung 12 läßt keine Interpretation nach Modell (b) zu, wenn man für die Plastizitätsgrenze einen Wert von 1850°C zugrundelegt [51]. Es existieren keine Risse, die vom Brennstoffrand ausgehen und in Bereichen dieser Temperatur enden. Wohl aber sieht man Risse, die durch Linsenporen abgetragen werden. (Unberücksichtigt sind solche Risse und Linsenporen, bei denen man die zeitliche Reihenfolge nicht eruieren kann.) Als Ausheiltemperatur T_{Gr} der Risse wird die Temperatur, die dem äußersten Radius der Linsenporen entspricht, angenommen.

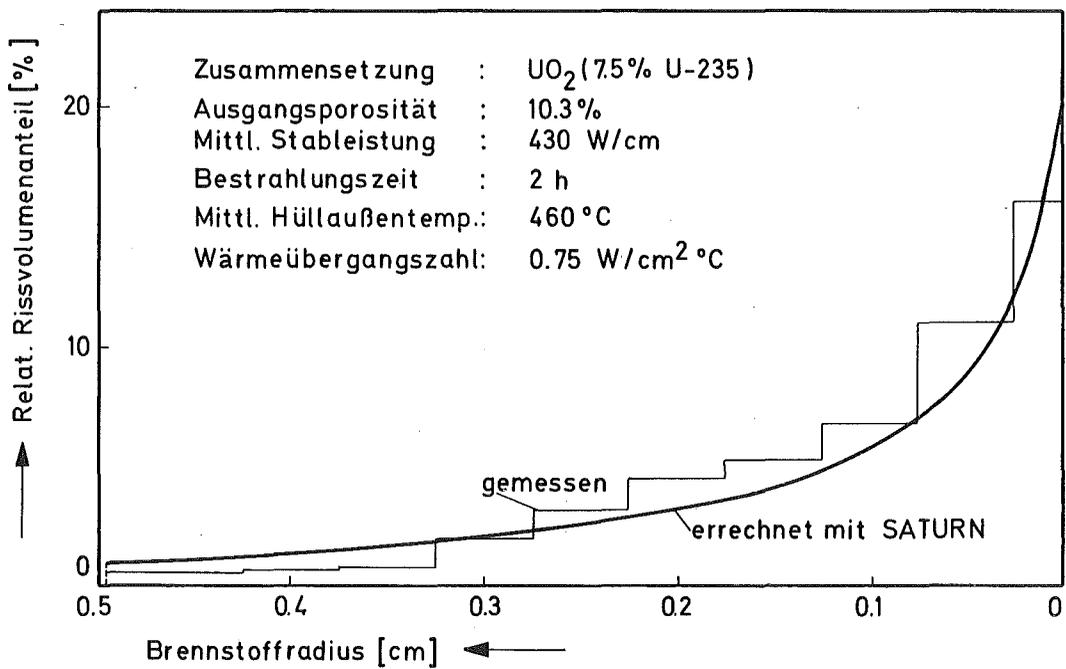
Die radialen Verteilungen der Reißvolumenanteile wurden nach der in Kap. 4.3 beschriebenen Methode ausgemessen und in den Abb. 14 bis 16 aufgetragen. Ausbrüche, wie sie Abb. 12 (Prüfling I6-2) zeigt, wurden selbstverständlich nicht berücksichtigt; auch wurden keine tangentialen Risse vermessen. Die Verteilungen zeigen alle ähnlichen Verlauf, nämlich vom Brennstoffrand zum Zentrum eine stetige Zunahme des Reißvolumens.



Abb. 13 Transport von Risfvolumen durch Bildung von Linsenporen

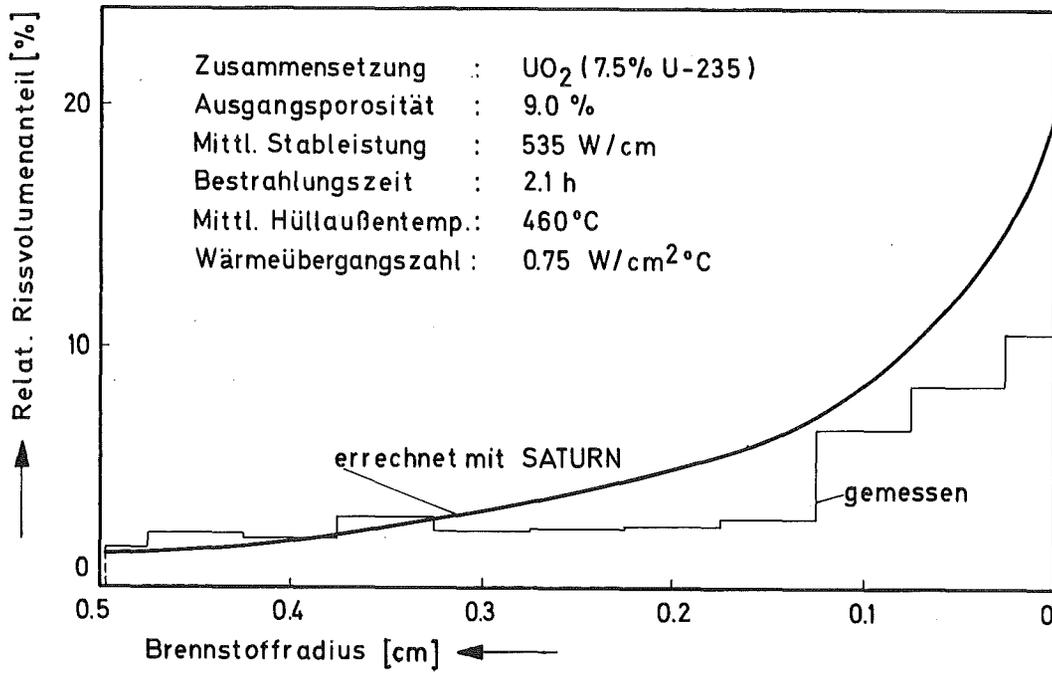


a) Prüflingsabschnitt L2z-2

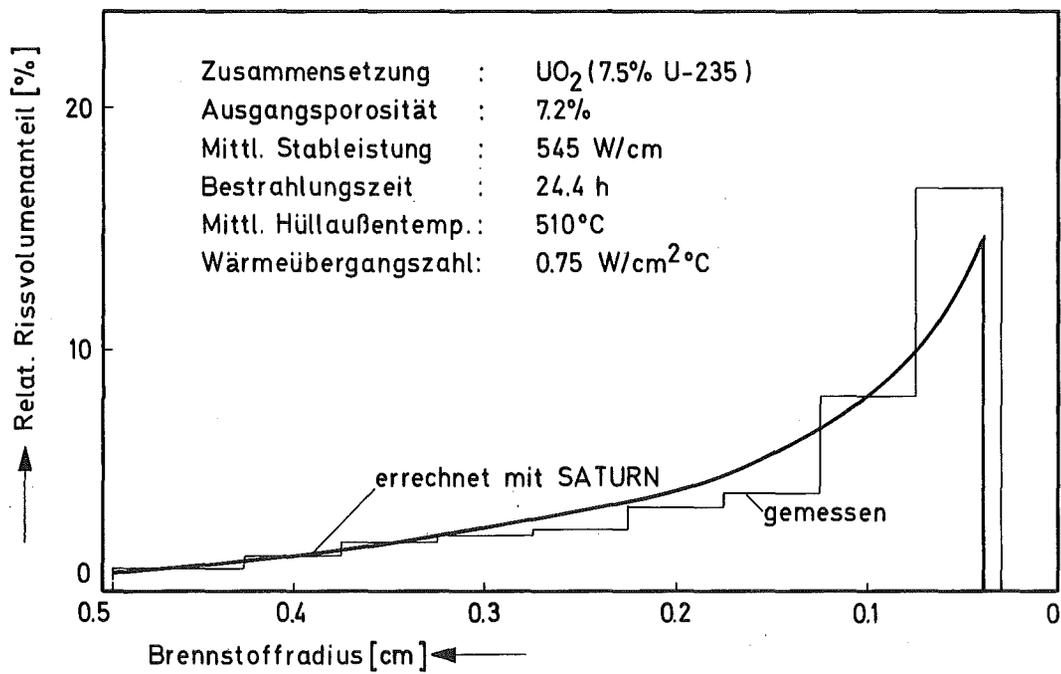


b) Prüflingsabschnitt L6-3

Abb. 14 Errechnete und gemessene radiale Rißvolumenverteilung der Prüflingsabschnitte L2z-2 (a) und L6-3 (b)



a) Prüflingsabschnitt L6-2



b) Prüflingsabschnitt L3-1

Abb. 15 Errechnete und gemessene radiale Rißvolumenverteilung der Prüflingsabschnitte L6-2 (a) und L3-1 (b)

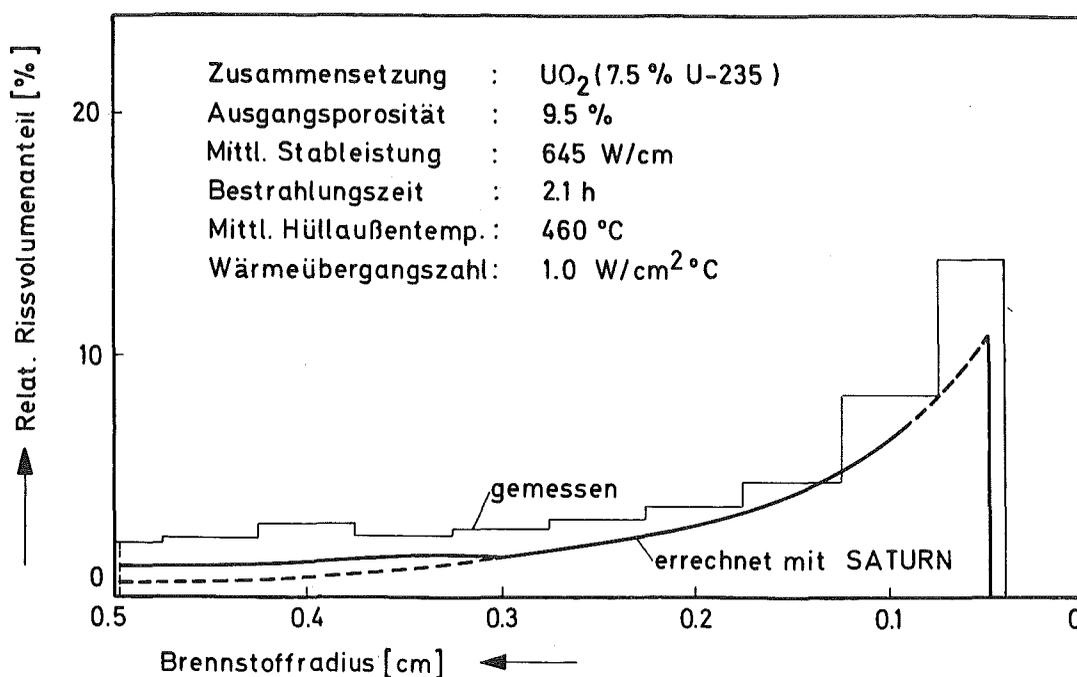


Abb. 16 Errechnete und gemessene radiale Rißvolumenverteilung des Prüflingsabschnittes L6-1

Im Rechenprogramm wird angenommen, daß der Brennstoff, wenn eine der beiden in Kap. 3.2 aufgeführten Rißbedingungen anspricht, der Brennstoff in hinreichend viele Keile radial aufreißt. Es wird hierbei keine Annahme getroffen, ob die Rißausbreitung von außen nach innen oder umgekehrt erfolgt. Ein Aufreißen des Brennstoffes kann nach [39] nur durch Übergang von der Brennstabphase 1 (freistehender ungerissener Brennstoff und freistehende Hülle) in die Phase 2 (freistehender völlig oder teilweise gerissener Brennstoff; freistehende Hülle) erfolgen. In der Phase 2, wie auch in der Phase 3 (druckloser Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle) ist Ausheilen der Risse möglich. Bei den Prüflingen I2z-2, L6-3 und L6-2 fand keine Rißausheilung statt; für die Prüflinge I3-1 und L6-1 wurde die Rißausheiltemperatur zu 2100 bzw. 2200 °C angenommen (siehe thermische Analyse in Kap. 5.4). Die Risse werden für $T > T_{Gr}$ als spontan ausgeheilt betrachtet; das ursprüngliche Rißvolumen wird zum Porenvolumen hinzugefügt (siehe Gl. (31)) und unterliegt wie dieses der Transportgleichung (19). In dieser Phase ist der Brennstoff nur in der "kalten" Außenzone aufgerissen. Das Aufreißen beim Abkühlen erfolgt wiederum nur beim Übergang der Brennstabphase 1 in die Brennstabphase 2. Zwischen der

Phase 3 und 1 liegt noch die Phase 4, in der die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle unter Bildung eines Kontaktdruckes stattfindet. In dieser Phase wird der Brennstoff als rißfrei betrachtet, so daß der Übergang von 4 nach 1 möglich wird. Das in der Phase 4 zu Null gemachte Rißvolumen wird gespeichert und beim Übergang von der Phase 1 nach 2 abgerufen und dem Abkühlrißvolumen hinzugefügt. Der Brennstab durchläuft so nacheinander vom Aufheizen bis zum Abkühlen die Phasen 1, 2, 3, 4, 1 und 2.

Die errechneten Rißvolumenanteile sind in den Abb. 14 bis 16 als Kurven eingetragen. Die Abb. 14a, b und 15a geben die Rißvolumenverteilungen der Prüflinge L2z-2, L6-3 und L6-2 ohne Rißausheilung wieder. Es kann sowohl experimentell als auch rechnerisch nicht zwischen den Aufheiz- und Abkühlungsrisen unterschieden werden. Zwischen den vorhergesagten und den gemessenen Verteilungen ergibt sich eine gute Übereinstimmung.

Beim Prüfling L6-1 (Abb. 16) haben sich die Grenzen des Programms gezeigt. Mit den Eingabedaten der Tabelle 5 (hohe Stableistung, sehr kleiner Spalt) erfolgte kein Aufreißen beim Phasenwechsel. Dies war nur mit einer modifizierten Bestrahlungsgeschichte möglich, bei der die Aufheizgeschwindigkeit gleich der Abkühlgeschwindigkeit gewählt wurde (20 W/cm / 0,1 h). Die thermische Ausdehnung des Brennstoffes und das "Restraining" der Hülle war so groß, daß im zentralen Bereich Brennstoffringe axial weggequetscht wurden, d.h. Material verloren ging. Das Rißvolumen der Außenzone wurde in diesen Bereich hinein extrapoliert. Die errechnete Kurve zeigt weiterhin bei $r = 0,3$ cm einen Wendepunkt, der auf die Ausheiltemperatur zurückzuführen ist. Rechnerisch kann man zwischen Abkühlrißvolumen und Außenrißvolumen unterscheiden, experimentell ist dies leider nicht möglich. Die Bestrahlungszeit hat hier nicht ausgereicht, ein totales Ausheilen der Risse für $T > 2200^{\circ}\text{C}$ herbeizuführen. Auch Abb. 15b bestätigt diesen Sachverhalt. Die Ausheiltemperatur von 2100°C sollte bei $r = 0,22$ cm liegen. In der rechnerisch ermittelten Kurve geht der Wendepunkt ebenfalls verloren.

Der Prüfling L6 wurde entgegen der in Tabelle 5 angegebenen Bestrahlungsgeschichte nach 24 min wieder aus dem Reaktor herausgefahren; die Bestrahlung wurde am darauffolgenden Tag fortgesetzt. Testrechnungen haben ergeben, daß sowohl die radialen Riß- als auch die

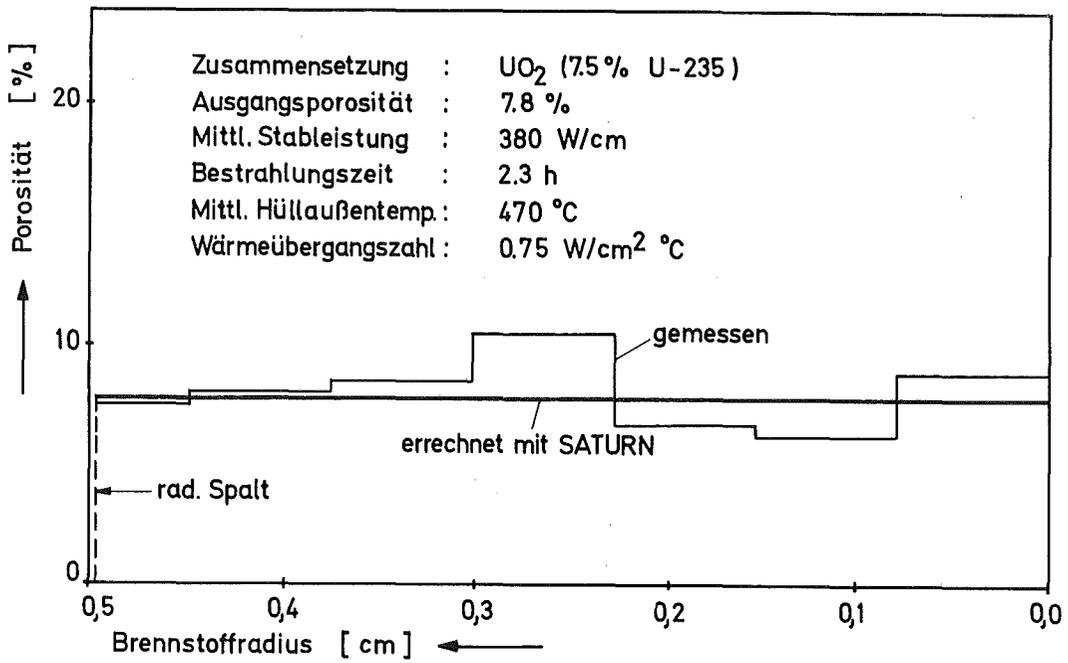
Porenvolumenverteilungen von der Zahl der Zyklen unabhängig waren. Geringe Rißvolumenzunahmen im Bereich der Außenzone von ca. 10 % lagen innerhalb der Rechenungenauigkeit.

Für das Rißvolumen ist in erster Linie die Größe des ursprünglich zur Verfügung stehenden Spaltvolumens maßgebend. So dürfte bei kleinem Spaltvolumen und niedriger Stableistung die Rißvolumenverteilung von der Bestrahlungszeit und der Zyklenzahl unabhängig sein. Die Rißvolumenverteilung erweist sich als eindeutige Funktion des ursprünglichen Spaltvolumens. Das ursprüngliche Spaltvolumen hat sich nach der Bestrahlung, bis auf einen verschwindenden Restspalt, total in Rißvolumen umgewandelt. Eine hohe Stableistung und eine längere Bestrahlungszeit beeinflussen über die Zentralkanalausbildung und Rißausheilung (siehe auch Kap. 6.1) sowohl den absoluten Betrag des Rißvolumens als auch dessen radiale Verteilung.

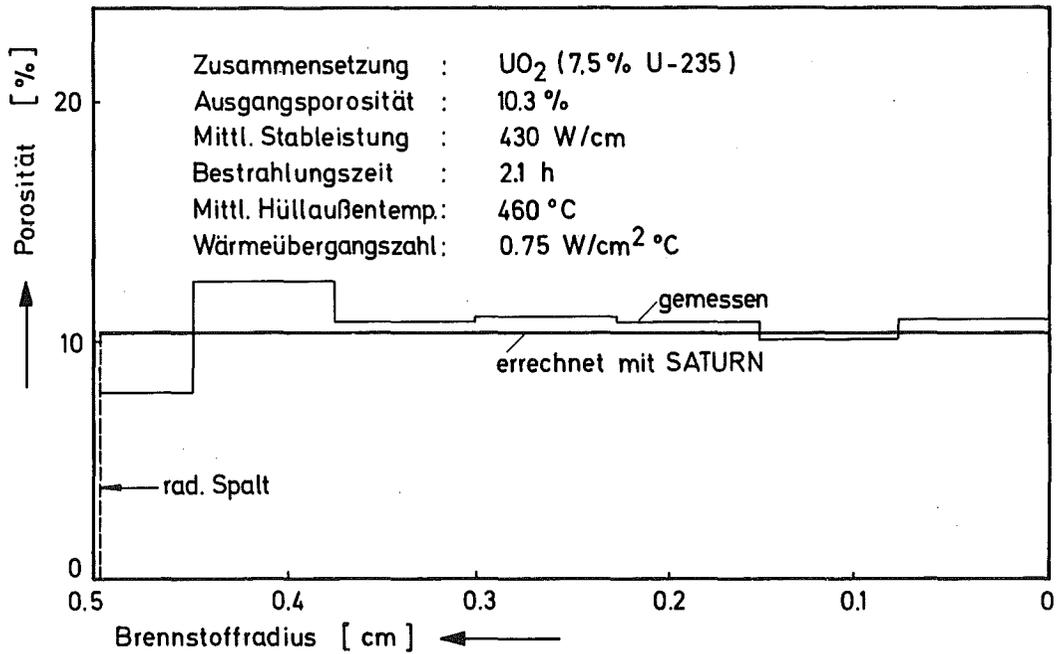
5.2 Radiale Porositätsverteilung

Von den in Abb. 12 dargestellten Querschnitten, nebst dem des Prüflingsabschnittes L6-3, wurden 3 radiale Brennstoffbereiche ohne Risse ausgewählt und in 200-facher Vergrößerung fotografiert. Die hergestellten "Panoramaaufnahmen" wurden nach der in Kap. 4.4 beschriebenen Methode bezüglich des Porengehaltes elektronisch ausgewertet. Die gemessenen Porositätsverteilungen (= Treppenkurven) werden in den Abb. 17 bis 19 mit den errechneten verglichen.

Da der Brennstoff schon während des Hochfahrens, d.h. bevor die nominelle Stableistung erreicht war, mit der Hülle in Kontakt trat, wurden dem Programm fixierte Wärmeübergangszahlen eingegeben. Sie sind Eingabewerte, die variiert werden können, da man sie nicht genau kennt. Das gleiche gilt für die Wärmeleitfähigkeitswerte des UO_2 , die nur auf $\pm 8\%$ genau für Temperaturen $> 1400^\circ C$ bekannt sind. Auch läßt sich die Absenkung der Wärmequellldichte nicht exakt angeben. Auf diese Unsicherheiten wird im nachfolgenden Kapitel 5.3 noch genauer eingegangen. Es wurde die Wärmeleitfähigkeit für UO_2 nach Schmidt [45] und eine Wärmequellldichteabsenkung von 30 % ($q_{\min}^{r=0} / q_{\max}^{r=R} = 0,7$) zugrundegelegt. Somit trat nur noch der Wärmeübergang im Spalt als freier Parameter auf. Dieser wurde so gewählt, daß optimale Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie auftrat. Die in Abb. 17 bis 19 angegebenen Werte liegen innerhalb der von Schmidt [52] angegebenen Streubreiten und stimmen mit dort angeführten Literaturwerten überein.

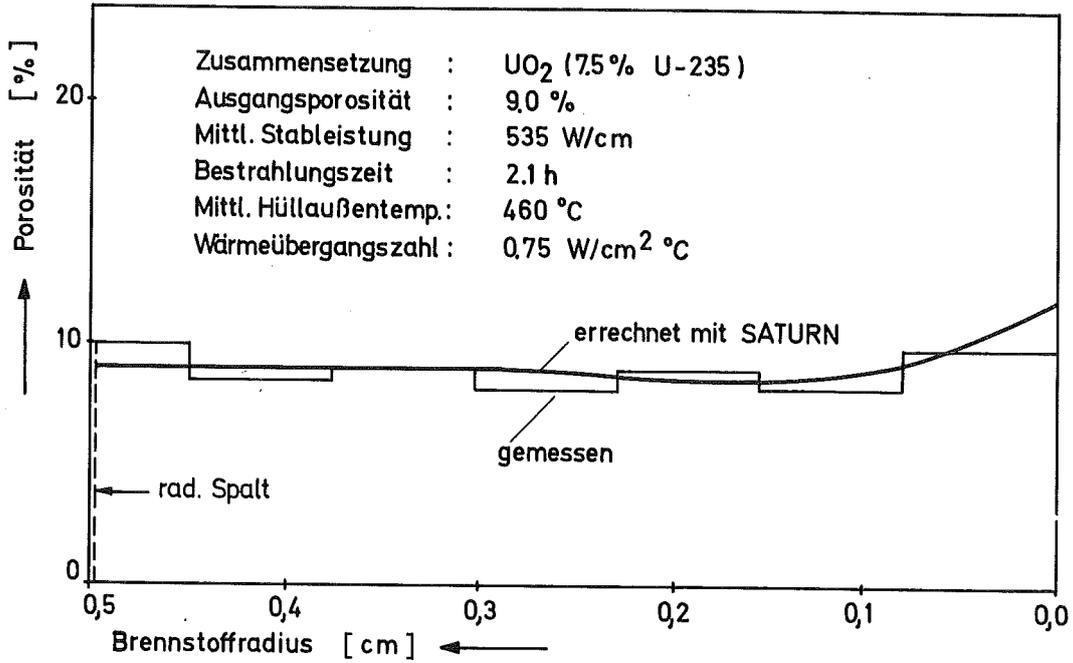


a) Prüflingsabschnitt L2z-2

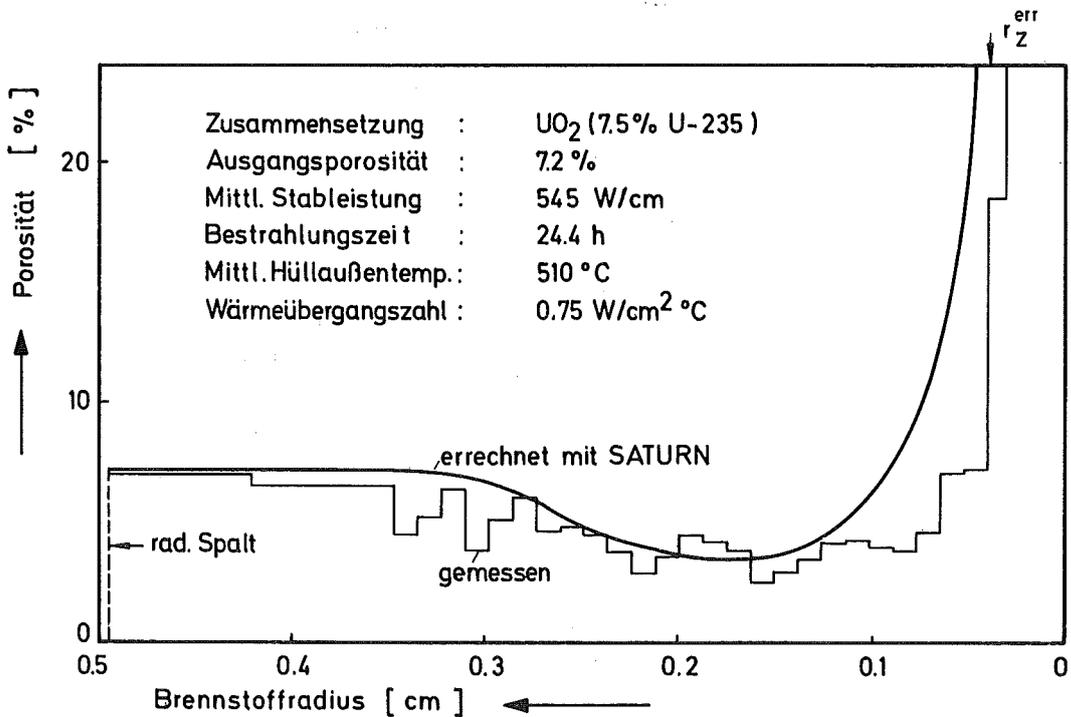


b) Prüflingsabschnitt L6-3

Abb. 17 Errechnete und gemessene radiale Porositätsverteilung der Prüflingsabschnitte L2z-2 (a) und L6-3 (b)



a) Prüflingsabschnitt L6-2



b) Prüflingsabschnitt L3-1

Abb. 18 Errechnete und gemessene radiale Porositätsverteilung der Prüflingsabschnitte L6-2 (a) und L3-1 (b)

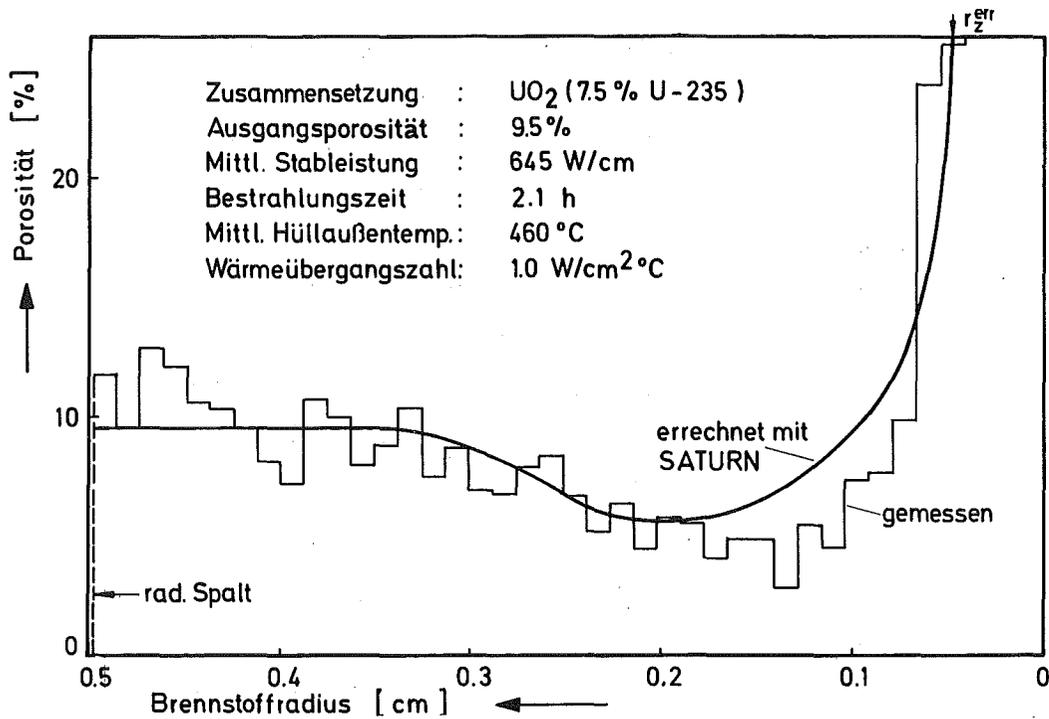


Abb. 19 Errechnete und gemessene radiale Porositätsverteilung des Prüflingsabschnittes L6-1

Die Brennstabquerschnitte L2z-2 und L6-3 zeigen keine Verdichtung im zentralen Bereich (s. Abb. 17a und b). Eine Stableistung von 430 W/cm und eine Bestrahlungszeit von 2 h sind nicht ausreichend, um eine radiale Porositätsänderung herbeizuführen. Im zentralen Bereich fand wohl eine Agglomeration der Sinterporen, aber keine Verdichtung statt. Größere Schwankungen in den Treppenkurven sind auf mangelhafte Homogenisierung der Ausgangspulver zurückzuführen (vergleiche Abb. 4).

Eine Erhöhung der Stableistung auf 535 W/cm bei gleicher Bestrahlungszeit führt, zumindest rechnerisch, zu einem Porositätsanstieg im zentralen Brennstoffbereich. Da die Brennstabprobe gerissen ist, finden sich in diesem Bereich Häufungen wandernder Poren an diesen Rissen. Eine Mittelung der Porositätswerte über einen Bereich von ca. 0,9 mm führt ebenfalls zu einem leichten Porositätsanstieg im Brennstoffzentrum.

Abb. 19 zeigt die Porositätsverteilung des Prüflings L6-1, die auf eine deutliche Porenwanderung zurückzuführen ist ($\chi = 645$ W/cm, $t = 2$ h). Die Linsenblasen haben im Brennstoffzentrum einen

Zentralkanal mit einem Porositätsanstieg zu diesem hin hervorgerufen. Zwischen unveränderter Außenzone und Zentralkanal fand eine merkliche Verdichtung statt. Eine ähnliche Verteilung zeigt auch der Prüfling L3-1 (Abb. 18b) für eine niedrigere Stableistung und eine erhöhte Bestrahlungszeit ($\lambda = 545 \text{ W/cm}$; $t = 24,4 \text{ h}$). Bei einer Stableistungserniedrigung von ca. 15 % muß die Bestrahlungszeit verzwölffacht werden, um eine ähnliche Porenverteilung hervorzurufen. Dies ist verständlich, da die Porenwanderungsgeschwindigkeit exponentiell von der Temperatur und das transportierte Porenvolumen linear von der Zeit abhängt (siehe Gl. (19) und (32)).

Optimale Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie wurde durch Vorgabe bestimmter Wärmeübergangszahlen zwischen Brennstoff und Hülle erzielt. Dadurch liegt die Temperaturverteilung im Brennstoff fest (siehe Abb. 20). Da keine Zentraltemperaturen während der Bestrahlung gemessen wurden, kann leider nicht festgestellt werden, ob die der Porenwanderung zugrundegelegten Temperaturen real sind. Hierzu sind besser instrumentierte Bestrahlungsexperimente notwendig. Die Erhöhung der Wärmeübergangszahl von 0,75 auf $1,0 \text{ W/cm}^2 \text{ }^\circ\text{C}$ bei 645 W/cm Stableistung deutet auf eine Druckabhängigkeit dieser Zahl hin, wie sie in [50] festgestellt wurde. Ungeachtet der Anpassung an das Experiment kann aus der Übereinstimmung der Porositätsverteilungen geschlossen werden, daß das zugrundegelegte Porenwanderungsmodell die Vorgänge bei Kurzzeitbestrahlung richtig wiedergibt [53].

5.3 Thermische Analyse

Unter thermischer Analyse versteht man die Ermittlung des sich zeitlich ändernden Temperaturprofils und die Zuordnung von aus out-of-pile-Messungen gewonnenen Temperaturen und Strukturzonenradien. Die thermische Analyse ist Voraussetzung für das Studium der Porenwanderung. In Abb. 20 sind die Temperaturprofile der hier untersuchten Prüflinge zusammengestellt. Für die Stababschnitte L2z-2, L6-3 und L6-2 unterscheiden sich die Temperaturverteilungen zu Beginn und am Ende der Bestrahlung kaum (max. Abweichung der Zentraltemperaturen - 4°C). Erst bei Ausbildung eines Zentralkanals nimmt die Zentraltemperatur merklich ab. Für die Prüflinge L6-1 und L3-1 sind sowohl die Anfangs- als auch die Endwerte aufgetragen.

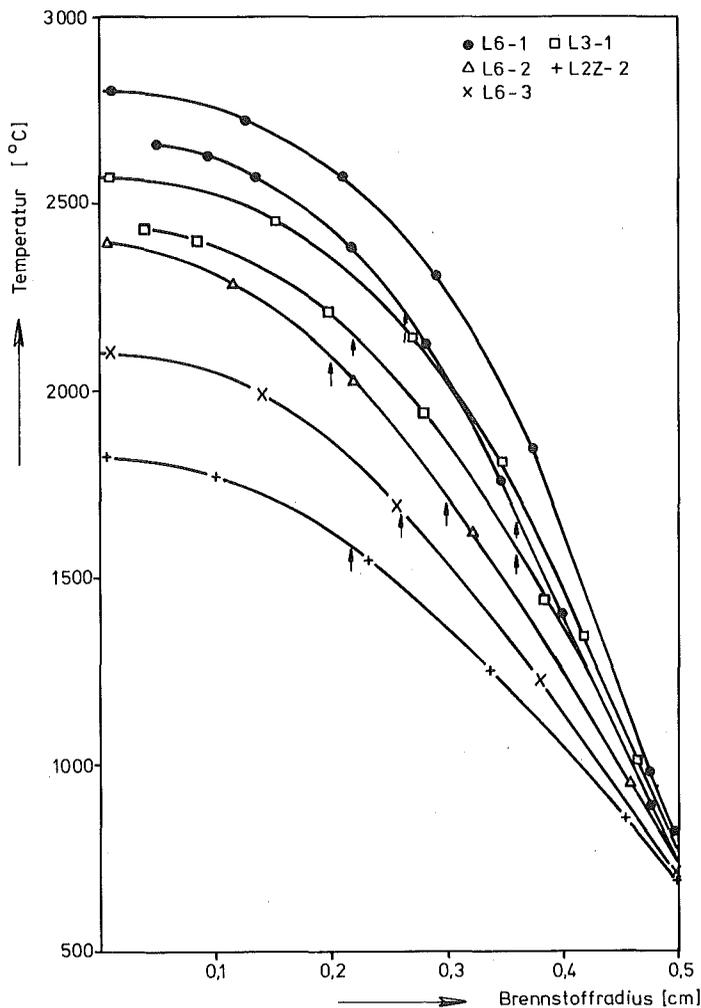


Abb. 20 Berechnete Temperaturprofile der Brennstababschnitte

Es wurde der Versuch unternommen, den aus den Schliffbildern entnommenen Strukturzonenradien aus out-of-pile-Experimenten gewonnene Temperaturen zuzuordnen und diese mit den errechneten zu vergleichen. Die Strukturzonen wurden durch Ätzen der Schliffe (siehe Kap. 4.2) sichtbar gemacht. Die Gefügebilder zeigten keine ausgeprägten Stengelkorn Grenzen; die Radien wurden den vom Zentralkanal am weitesten entfernten Linsenblasen zugeordnet. Ordnet man den äußeren Radien der Stengelkornzone und der Rekristallisationszone $1750 \pm 50^\circ\text{C}$ [54, 55, 56] bzw. $1350 \pm 50^\circ\text{C}$ [54, 55, 57] zu, so erhält man die in Abb.21 wiedergegebene Diskrepanz. Die Bestrahlungszeit ist zu kurz, um die Ausbildung der Strukturzonen bei diesen niedrigen Temperaturen hervorzurufen. Eine Übereinstimmung zwischen den gemessenen und errechneten Werten läßt sich erreichen, wenn man für das Auftreten der Linsenporen $2100 - 2200^\circ\text{C}$ und für die Rekristallisationszone 1600 bis 1750°C annimmt (s. Pfeile in Abb. 20).

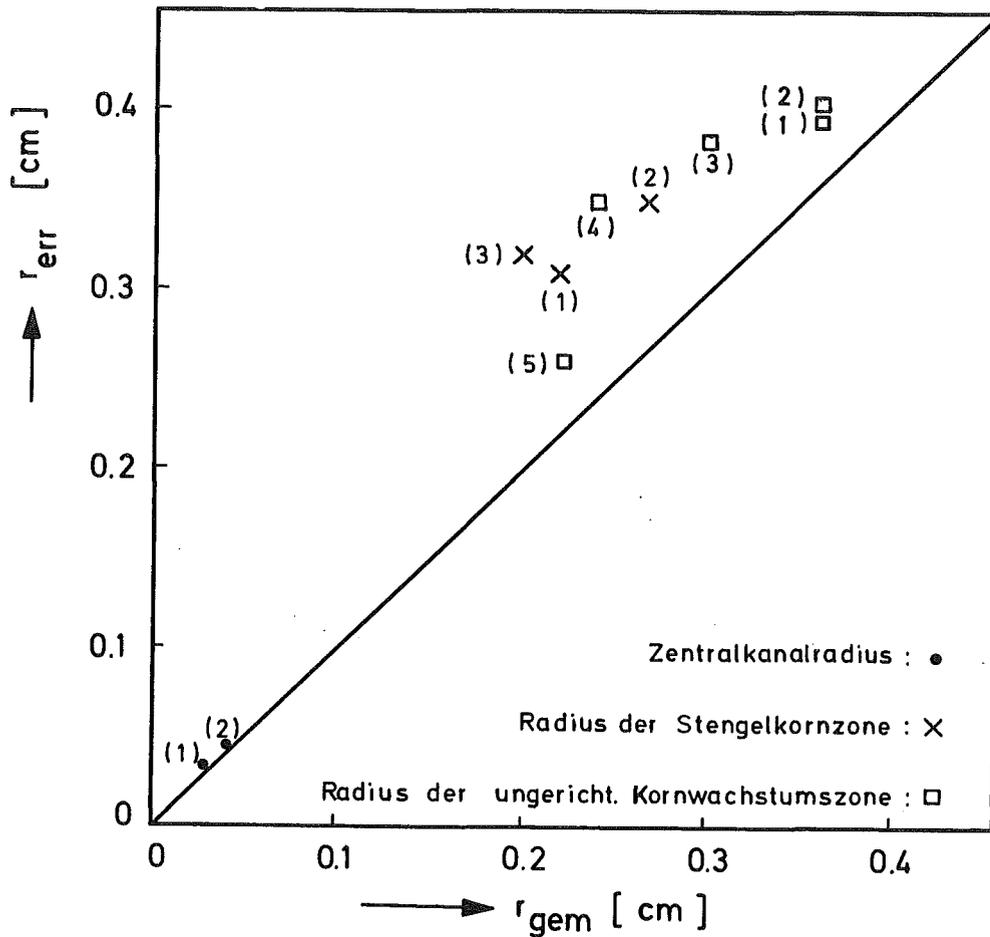


Abb. 21 Vergleich von errechneten mit gemessenen Strukturzonradien

Die thermische Analyse, die an allen Prüflingen der He-Loop-Versuchsgruppe 2 durchgeführt wurde, führt zu folgenden Ergebnissen [50]:

- Die Temperaturgrenze der Stengelkornbildung nimmt für gleiche Bestrahlungszeiten mit steigender Stabileistung ab.
- Die Temperaturgrenze der Stengelkornbildung nimmt bei konstanter Stabileistung mit steigender Bestrahlungszeit stetig ab.
- Die Temperaturgrenze der Kornwachstumszone ist bei konstanter Bestrahlungszeit von der Stabileistung unabhängig.

Ein Vergleich zwischen errechneten und gemessenen Strukturzonradien über die oben zugrundegelegten Temperaturen von 1750 bzw. 1350°C sollte sinnvoller an länger bestrahlten Prüflingen durchgeführt werden.

Als ein typisches Beispiel dient hier Abb. 22. Der untersuchte Prüfling

(3-29-AG-3) gehört einem anderen Bestrahlungsexperiment an und besitzt folgende Spezifikationen: UO_2 ; $\rho = 88\%$ th.D.; $r_{Ha} = 7,4$ mm; $\delta = 90$ μ m; $T_{Ha} = 433^\circ\text{C}$; $\bar{\kappa} = 535$ W/cm; $t = 133$ d; $F = 25\ 000$ MWd/t Me. Die gemessenen Strukturzonenradien und die entsprechenden Temperaturen sind mit ihren Fehlerflächen eingezeichnet. Das Temperaturprofil wurde hier nicht mit dem Rechenprogramm SATURN, sondern einem älteren, genannt TEPRO, ermittelt. Die Wärmequelldichteverteilung wurde mit dem Zellprogramm WIMS [58] berechnet und in Form einer Parabel dritten Grades dem Programm eingegeben. Für die Wärmeübergangszahl $h = 0,55$ W/cm² °C ergab sich beste Übereinstimmung zwischen zugeordneten und errechneten Temperaturen. Der Zentralkanal konnte ebenfalls über ein einfaches Verdichtungsmodell errechnet werden.

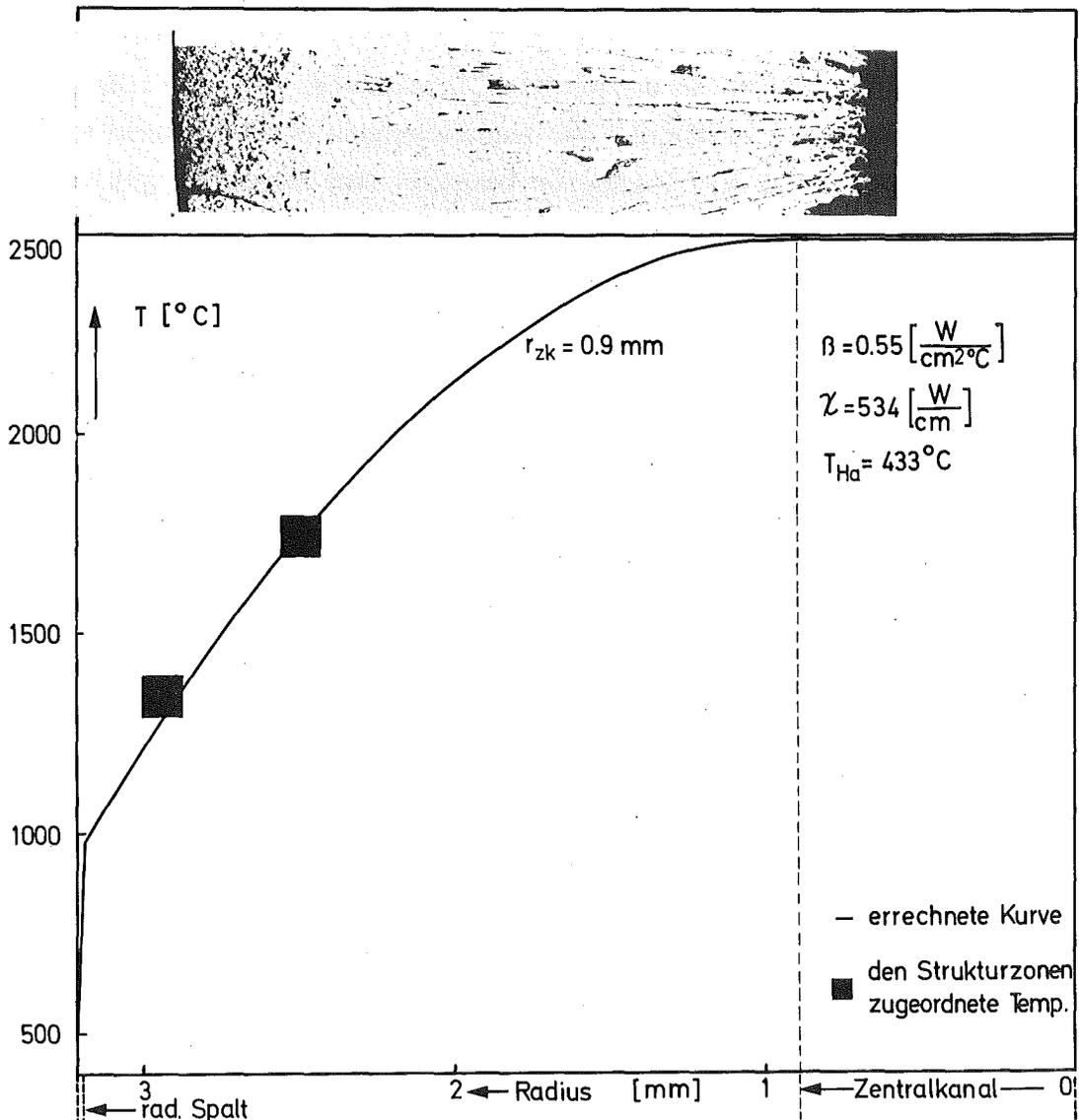


Abb. 22 Radiale Temperaturverteilung des Prüflingsabschnittes 3-29-AG-3

Parameterstudien

Die Parameterstudien sollen veranschaulichen, wie kritisch das Temperaturprofil im Brennstoff bzw. die Porenwanderungsgeschwindigkeit und damit die Porositätsverteilung von den einzelnen Parametern Wärmeleitfähigkeit, Wärmequelllichtverteilung und Wärmeübergang zwischen Brennstoff und Hülle abhängt. In der Literatur werden für die Wärmeübergangszahl Werte zwischen $0,25$ und $2 \text{ W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$ angegeben [52]. Die Wärmeleitfähigkeit des UO_2 ist für hohe Temperaturen nur auf $\pm 8 \%$ genau bekannt und für die Wärmequelllichtverteilung wird ebenfalls eine Unsicherheit von $\pm 10 \%$ angenommen. Es soll nun untersucht werden, wie sich diese Unsicherheiten auf die obengenannten Verteilungen auswirken.

Für die Parameterstudien wurden die Eingabedaten des Prüflings L3-1 benutzt. Für das Verständnis der nachfolgenden Betrachtungen wurde in Abb. 23 die Zeit als Parameter benutzt. Man kann sehr gut verfolgen, wie die Porositätsverteilung das Temperaturprofil und damit die Porenwanderungsgeschwindigkeit beeinflusst. Nach einer Aufheizzeit von $0,75 \text{ h}$ stellt sich das abgebildete Temperaturprofil ein; diesem entspricht die nebenstehende Verteilung der Wanderungsgeschwindigkeit. Während der Aufheizphase hat noch keine Porositätsverteilung stattgefunden. Mit zunehmender Bestrahlungszeit erfolgt im zentralen Bereich eine Porositätszunahme, die erstaunlicherweise das Temperaturprofil und somit auch die Wanderungsgeschwindigkeit kaum beeinflusst (nicht eingezeichnet). Erst die Ausbildung eines Zentralkanals erniedrigt die Zentraltemperatur merklich und mit dieser die Wanderungsgeschwindigkeit.

In Abb. 24 wurde die Wärmeübergangszahl h im Kontaktfall als Parameter gewählt. Es ist aufgetragen die Temperaturverteilung zu Beginn der Bestrahlung (gestrichelte Linien) als direkte Folge des unterschiedlichen Wärmeübergangs und nach einer Bestrahlungszeit von 24 h (durchgezogene Linien). Die Endtemperaturverteilung ist nicht nur von h , sondern auch von der Größe des Zentralkanalradius abhängig. Der Endverteilung entspricht die gegenüberliegende Geschwindigkeitsverteilung. Für verschiedene Wärmeübergangszahlen erhält man verschiedene Temperaturprofile und Geschwindigkeitsverteilungen; letztere unterscheiden sich um mehrere Größenordnungen voneinander.

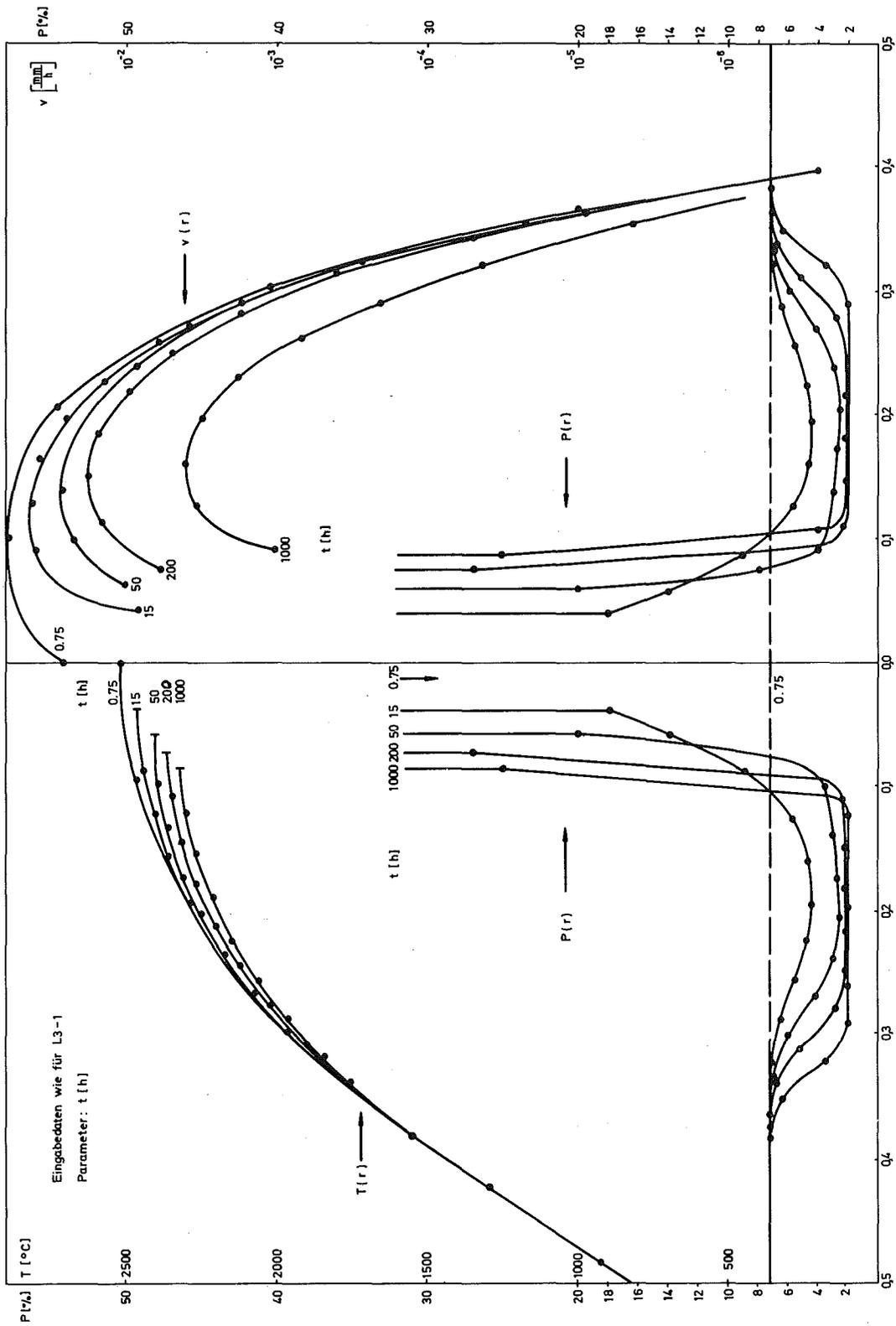


Abb. 23 Temperatur, Porenwanderungsgeschwindigkeit und Porosität als Funktion des Brennstoffradius mit der Zeit als Parameter

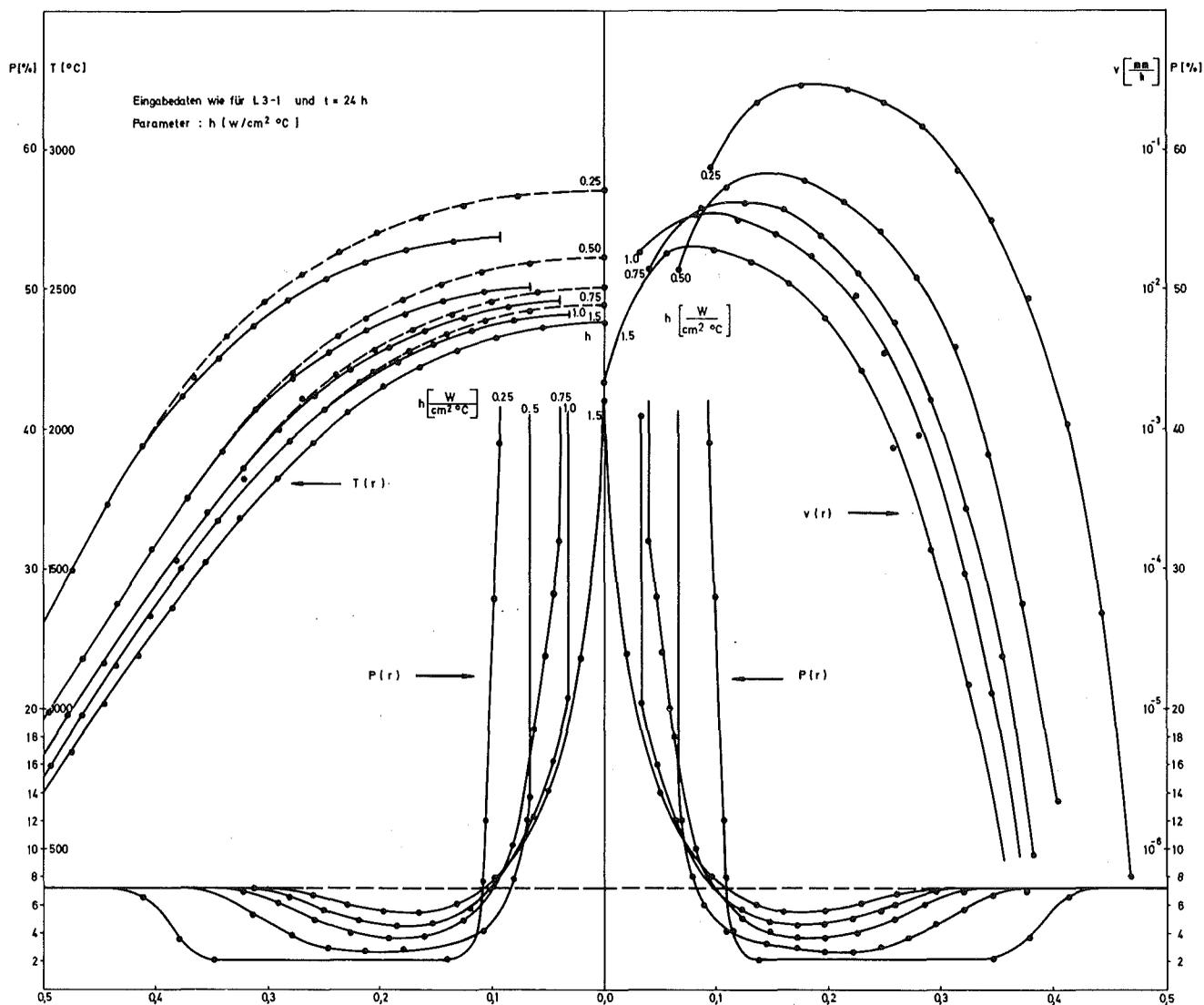


Abb. 24 Temperatur, Porenwanderungsgeschwindigkeit und Porosität als Funktion des Brennstoffradius mit der Wärmeübergangszahl als Parameter

In Abb. 25 wurde die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes und die Wärmequell-dichte in den angegebenen Fehlerbreiten als Parameter benutzt. Änderungen der Wärmeleitfähigkeit um ± 8 % beeinflussen die Porositätsverteilung sehr stark. Die Änderung der Wärmequell-dichte, es wurde hier das Verhältnis q_{min}/q_{max} um ± 10 % variiert, wirkt sich hingegen nicht stark auf die Porositätsverteilung aus.

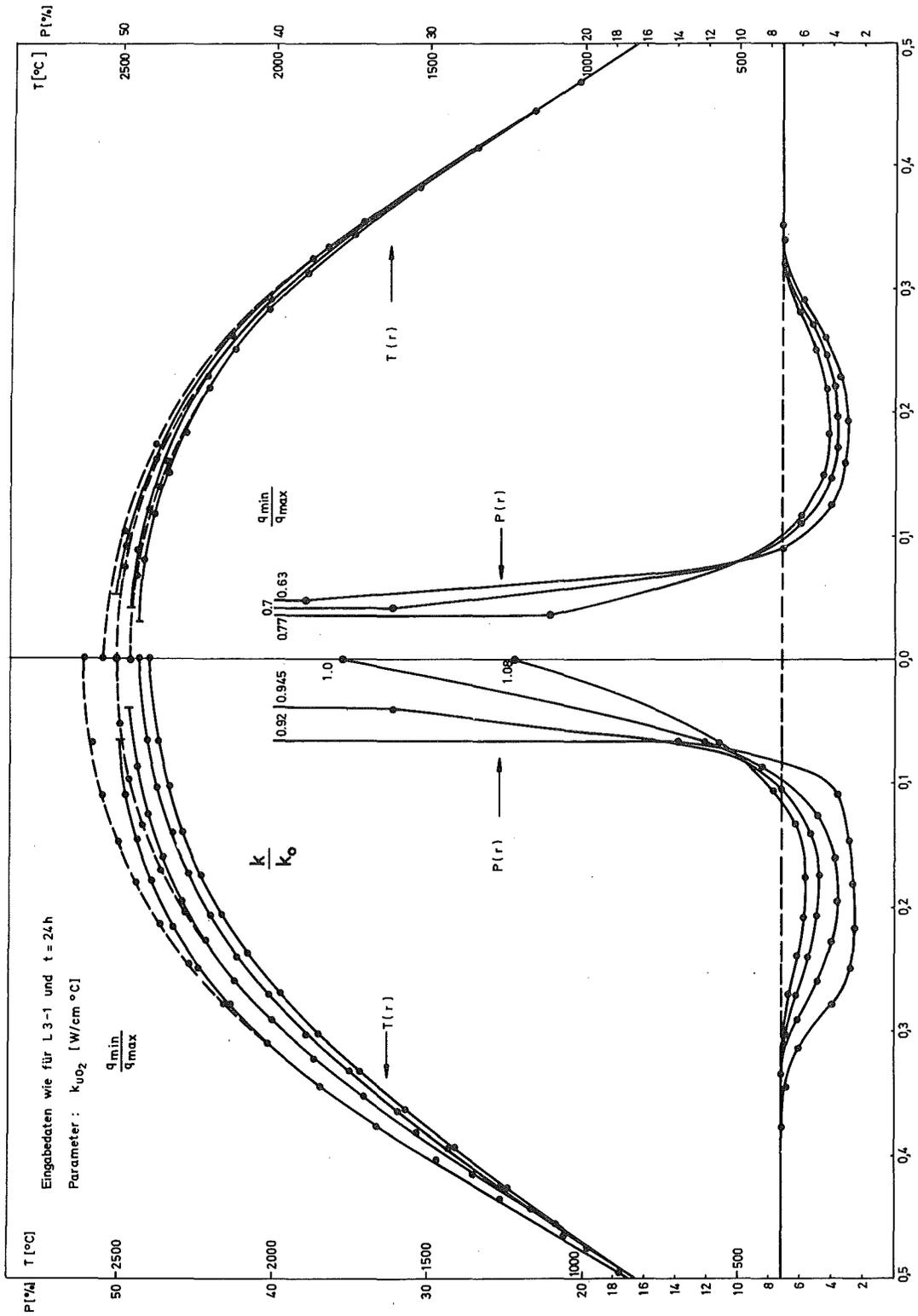


Abb. 25 Temperatur und Porosität als Funktion des Brennstoffradius mit der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes und der Wärmequellendichte als Parameter

Abschließend kann gesagt werden, daß sowohl die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes als auch die Wärmeübergangszahl die Temperaturverteilung und über diese die Porositätsverteilung sehr stark beeinflussen. Mit den in der Literatur üblichen Wärmeübergangszahlen ($h = 0,5$ bis $1,5 \text{ W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$) lassen sich Temperaturverteilungen berechnen, deren Zentraltemperaturen um mehr als $200 \text{ } ^\circ\text{C}$ differieren. Bezüglich der rechnerischen Festlegung z.B. der Stengalkornzone (mit $1750 \text{ } ^\circ\text{C}$) bedeutet dies eine Unsicherheit von $\pm 0,3 \text{ mm}$ bzw. $\pm 0,2 \text{ mm}$.

6. Vergleich von errechneten mit gemessenen Leervolumenverteilungen an langfristig bestrahlten Prüflingen

Das Bestrahlungsexperiment Mol-7A beinhaltet die Bestrahlung eines Sieben-Stab-Bündels im Zentralloop des BR 2. Ein Cd-Schirm absorbierte die thermischen Neutronen, so daß innerhalb des Loop-Einsatzes ein schnell-epithermisches Neutronenspektrum herrschte.

Die 7 Stäbe waren wie folgt angeordnet: Stab Nr. 1 in zentraler Position, die übrigen 6 punktsymmetrisch und in gleichem Abstand zu Stab Nr. 1. Die Untersuchungen wurden nur an Stab Nr. 3, stellvertretend für die äußeren Stäbe sowie an Stab Nr. 1 durchgeführt.

Der Abbrand betrug, je nach Probenquerschnitt, zwischen 35 000 und 45 000 Mwd/t Me. Die Bestrahlungsgeschichte umfaßte 13 Zyklen unterschiedlicher Dauer. Die Auslegungs-, die Herstellungs- und die Bestrahlungsdaten sind im KFK-Bericht Nr. 1522 [59] dokumentarisch zusammengefaßt. Die wichtigsten Daten sind:

- Hüllmaterial	X8CrNiMoVnb 1613 (Werkstoff-Nr. 1.4988)
- Brennstoffzusammensetzung	UO ₂ -PuO ₂ (20 % PuO ₂ , 80 % UO ₂ mit 80 % U-235)
- Brennstoff-Form	Tabletten
- Brennstoff-Dichte	88,2 % th.D.
- Bestrahlungszeit	3335 h

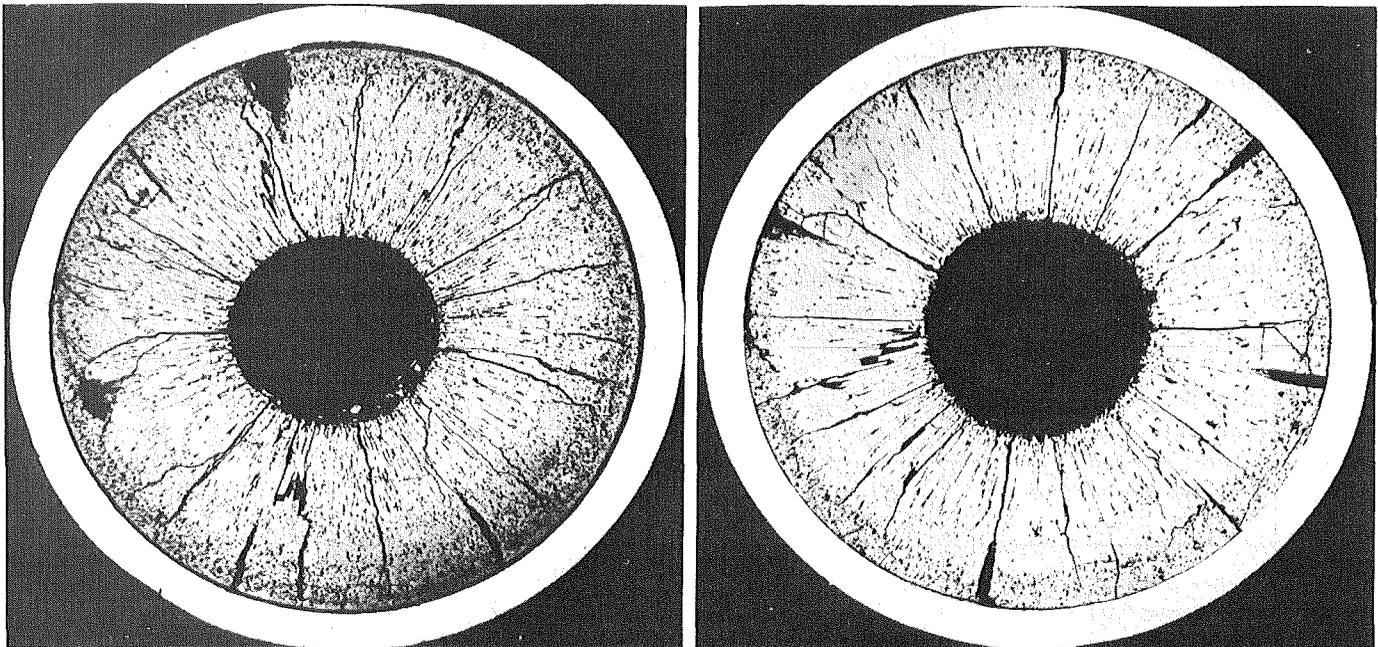
Weitere Eingabedaten für das Rechenprogramm sind in Tabelle 6 aufgeführt.

Tabelle 6 Programmeingabedaten für die Berechnung der Leervolumenverteilung der langzeitbestrahlten Brennstabprüflinge [40,59]

Ausgangsgeometrie der Hülle und des Brennstoffes Zahl der konz. Ringe	$r_{Hi} = 2,62 \text{ mm}; r_{Ha} = 3,0 \text{ mm}; N = 20$ $r_{Bi} = 0,0 \text{ mm}; r_{Ba} = 2,51 \text{ mm}; N = 95$			Bestrahlungsgeschichte, bestehend aus Zeitpunkt, Stableistung, Hüllaußentemperatur, Kühlmitteldruck, Gasdruck und schnellem Neutronenfluß					
Herstellungsporosität; theoretische Dichte	$P = 0,118; \rho_{th} = 10,996 \text{ g/cm}^3$								
Sekundäres Kriechen der Hülle: $\dot{\epsilon}_H = K \cdot \sigma^n$	T (°C)	K	n	t (h)	X (W/cm)	T_{Ha} (°C)	P_1 (atm)	P_2 (atm)	β_s (n/cm ² sec)
	20	$0,1 \cdot 10^{-44}$	15						
	400	$0,1 \cdot 10^{-44}$	15						
	550	$0,1 \cdot 10^{-44}$	15						
	600	$0,3 \cdot 10^{-27}$	15						
	650	$0,9 \cdot 10^{-14}$	8						
	700	$0,5 \cdot 10^{-12}$	7						
	750	$0,3 \cdot 10^{-7}$	4						
Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes (U,Pu)O ₂ :	$a_0 = 0,274 \cdot 10^{-7}$ $a_1 = 0,25 \cdot 10^{-13}$ $a_2 = 10,8$ $a_3 = 0,0235$ $a_4 = 1,0 \text{ in Gl. (42)}$			Mol-7A-1-5					
				0.0	0.0	20.	1.	1.	0,0
				0.5	440.	600.	1.	3.	10^{14}
				1.0	440.	600.	1.	3.	10^{14}
				10.	440.	600.	1.	3.	10^{14}
				100.	440.	600.	1.	4.	10^{14}
				1000.	440.	600.	1.	13.	10^{14}
				2000.	440.	600.	1.	23.	10^{14}
				3000.	440.	600.	1.	33.	10^{14}
				3335.	440.	600.	1.	36.	10^{14}
				3336.	0.0	20.	1.	10.	0.0
				3337.	0.0	20.	1.	10.	0.0
Sekundäres Kriechen des Brennstoffes: $\dot{\epsilon}_B = a \cdot \frac{\lambda}{r_{Ba}^2 - r_{Bi}^2} \cdot \sigma \left(\sigma + d e^{-\frac{b}{T}} \right)$	$a = 8,9 \cdot 10^{-7} \text{ cm} \cdot \text{mm}^4 / \text{W} \cdot \text{kp} \cdot \text{h}$ $b = 45 \text{ 000 } ^\circ\text{K}$ $c = 0,4$ $d = 9,8 \cdot 10^{14}$			Mittlere Hüllaußentemperaturen und Stableistungen der Brennstababschnitte					
				Stab-Abschnitt	X (W/cm)	T_{Ha} (°C)			
Wärmeübergangszahl	$h = 0,6 \text{ W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$			Mol-7A-1-5	440	600			
Konstante Wärmequellidichteverteilung	$a_0 = 1,0; a_1 = 0,0$ $a_2 = 0,0 \text{ in Gl. (35b)}$			-1-8	510	530			
				-1-10	505	510			
				-1-11	420	460			
Gasschwellraten und Gasschwellbetrag S (T)	T (°C)	Schwellrate (%/10 ²⁰ Sp/cm ³)	S (T) (cm ³ /Wh)	-3-5	425	575			
	1700	0,1	$1,0 \cdot 10^{-9}$	-3-9	545	510			
	2000	9,0	$1,0 \cdot 10^{-7}$	-3-13	465	435			
	2500	35,0	$3,5 \cdot 10^{-7}$						
	3000	60,0	$7,0 \cdot 10^{-7}$						

Die Nachbestrahlungsuntersuchungen zeigen für die äußeren Stäbe eine durchgehende Verlagerung des Zentralkanals (infolge Leistungsdichteabsenkung) bis zu 0,2 mm über die gesamte Stabachse. Diese Stäbe eignen sich deshalb nur bedingt zur Leervolumenanalyse, da die Strukturzonen in verschiedenen radialen Richtungen unterschiedlich ausgebildet sind. Der zentrale Stab (Nr. 1) zeigt eine vernachlässigbare Leistungsdichteabsenkung und damit keine Zentralkanalverschiebung. Das Hauptgewicht liegt deshalb auf der Untersuchung des Stabes Nr. 1.

Da die Stäbe kein konstantes axiales Leistungsprofil zeigten, wurde die Leervolumenanalyse an Stab Nr. 1 in 4 und an Stab Nr. 3 in 3 verschiedenen Stabhöhen durchgeführt. Abb. 26 zeigt den oberen und einen mittleren Stababschnitt des Prüflings Mol-7A-1.



Mol-7A-1-5 (oben)

1 mm

Mol-7A-1-8 (Mitte)

Abb. 26 Querschnitt des oberen und mittleren Stababschnittes des Prüflings Mol-7A-1

Die Rechnungen wurden durchgeführt für einen schnellen Fluß ohne Flußabsenkung und einen nichtzyklischen Bestrahlungsablauf. Die Wärmeübergangszahl zwischen Brennstoff und Hülle wurde wiederum als Parameter behandelt. Die Schwellgeschwindigkeiten (s. Tabelle 6) wurden aus extrapolierten Schwellraten von Chubb et al. [60] errechnet. Im Gegensatz zu den experimentellen Arbeiten von Dollins und Ocken [27] wurden die Schwellraten für $T < 1700^{\circ}\text{C}$ vernachlässigt, da im Experiment kein Porositätsanstieg in der Randzone gemessen wurde. Die Stableistungswerte wurden aus Abbrandwerten (Nd-148) rückgerechnet und stellen deshalb Mittelwerte dar.

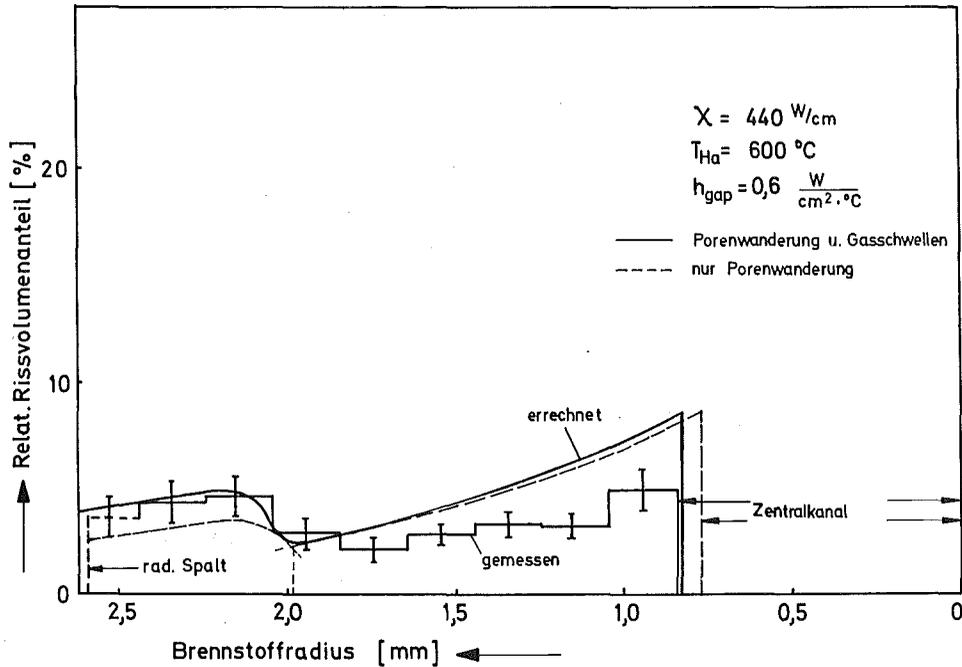
6.1 Radiale Verteilung der Rißvolumenanteile

In den Abb. 27 bis 29 werden die errechneten mit den gemessenen Rißvolumenverteilungen verglichen. Für den Querschnitt Mol-7A-3-5, der zu viele Ausbrüche hatte, wurde kein Vergleich angestellt. Die Kurven zeigen alle, entgegen denen des Kap. 5.1, in der Außenzone einen Rißvolumenanteil von 3 bis 5 %, der auf die keilförmigen Außenrisse zurückzuführen ist (s. Abb. 26). Mit abnehmendem Radius durchlaufen die Kurven ein Minimum, um zum Zentralkanal hin wieder stetig anzusteigen: Das Außenrißvolumen mündet in das Abkühlungsrißvolumen im Bereich der Stengelkornzone ein.

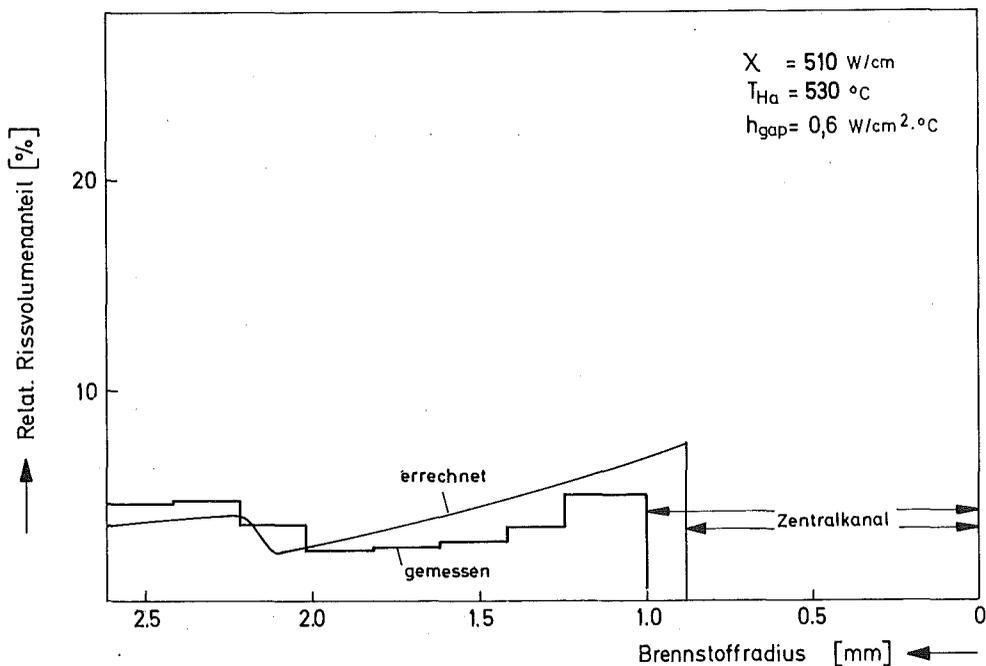
Zwischen den errechneten und gemessenen Verteilungen besteht in der Tendenz Übereinstimmung: Sowohl die Absolutwerte für die Außenrißvolumina als auch die Rißtiefen der äußeren keilförmigen Risse (Definition siehe unten) stimmen innerhalb der Meßgenauigkeit miteinander überein. Die Minima stimmen nicht überein und der weitere Anstieg zum Zentralkanal differiert in den Absolutwerten. Erwähnenswert ist, daß auch experimentell von außen nach innen ein kleiner Rißvolumenanstieg in der Außenzone ermittelt wurde, der zwar innerhalb der Meßgenauigkeit liegt, dessen Tendenz aber offensichtlich vorhanden ist.

In Abb. 30 wurde die Differenz zwischen Brennstoffaußenradius und Rißtiefe ($r_a - R$) als Funktion der Stableistung aufgetragen. Die errechneten Werte wurden als Tangentschnittpunkte der Kurvenäste gewonnen. Als experimenteller Vergleichswert wurde der Wendepunkt, der durch die Treppenkurve hindurchgelegten Ersatzkurve herangezogen; hierdurch war eine optimale Übereinstimmung gewährleistet. Für die aufgetragenen Radien

ergibt sich ein linearer Zusammenhang mit der Stableistung. Die thermische Analyse (siehe Kap. 6.4) liefert für diesen Ausheilradius, der mit dem Radius der Stengelkornzone identisch ist, eine Temperatur am Ende der Bestrahlungszeit von ca. 1750°C.

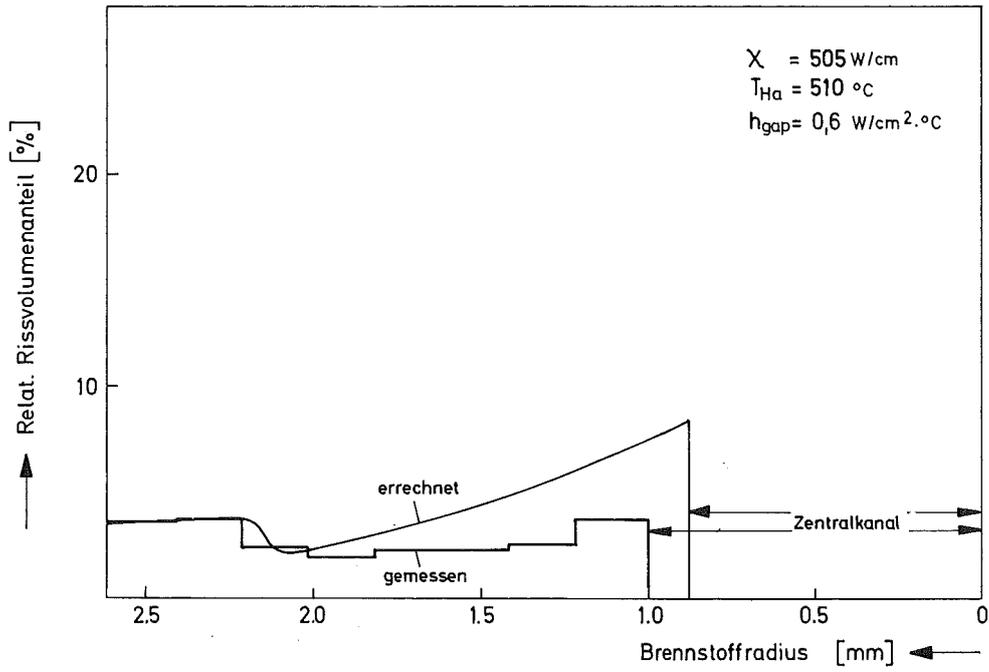


a) Prüflingsabschnitt Mol-7A-1-5

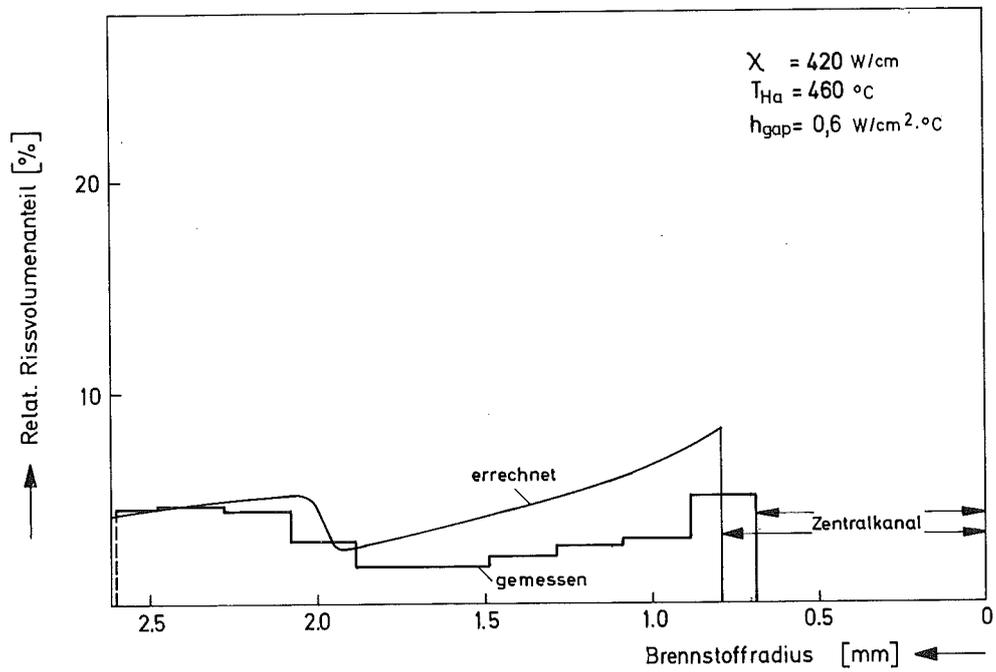


b) Prüflingsabschnitt Mol-7A-1-8

Abb. 27 Radiale Rißvolumenverteilung der Prüflingsabschnitte Mol-7A-1-5 (a) und Mol-7A-1-8 (b)

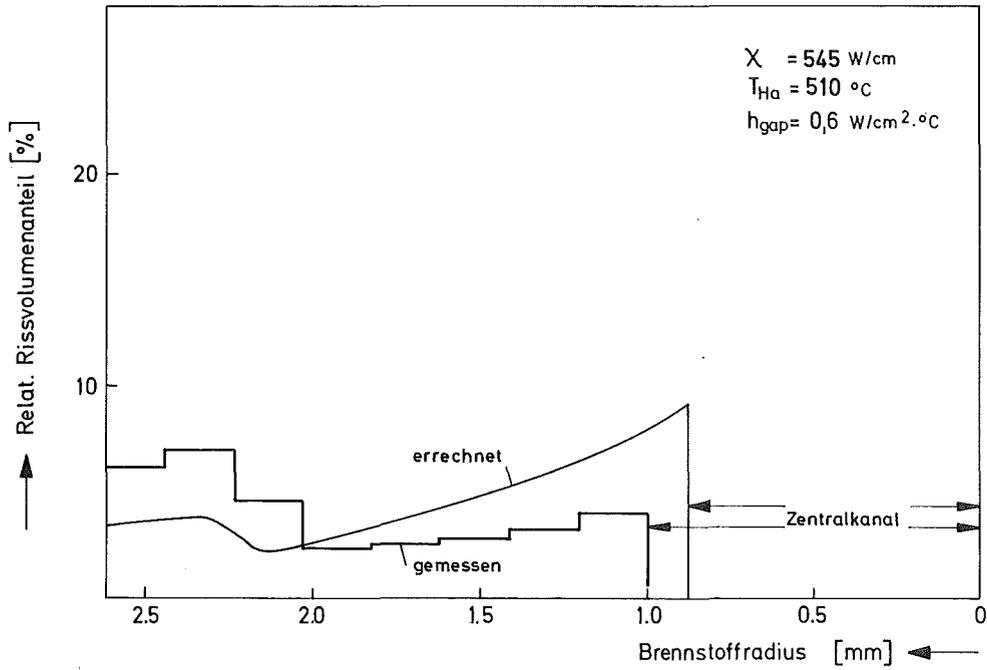


a) Prüflingsabschnitt Mol-7A-1-10

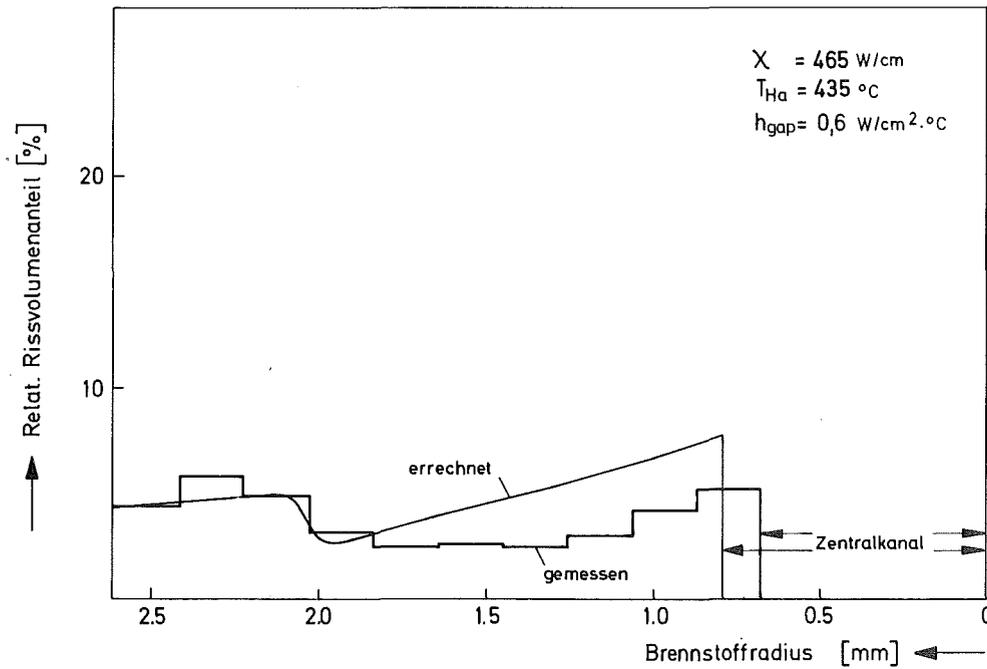


b) Prüflingsabschnitt Mol-7A-1-11

Abb. 28 Radiale Rißvolumenverteilung der Prüflingsabschnitte Mol-7A-1-10 (a) und Mol-7A-1-11 (b)



a) Prüflingsabschnitt Mol-7A-3-9



b) Prüflingsabschnitt Mol-7A-3-13

Abb. 29 Radiale Rißvolumenverteilung der Prüflingsabschnitte Mol7A-3-9 (a) und Mol-7A-3-13 (b)

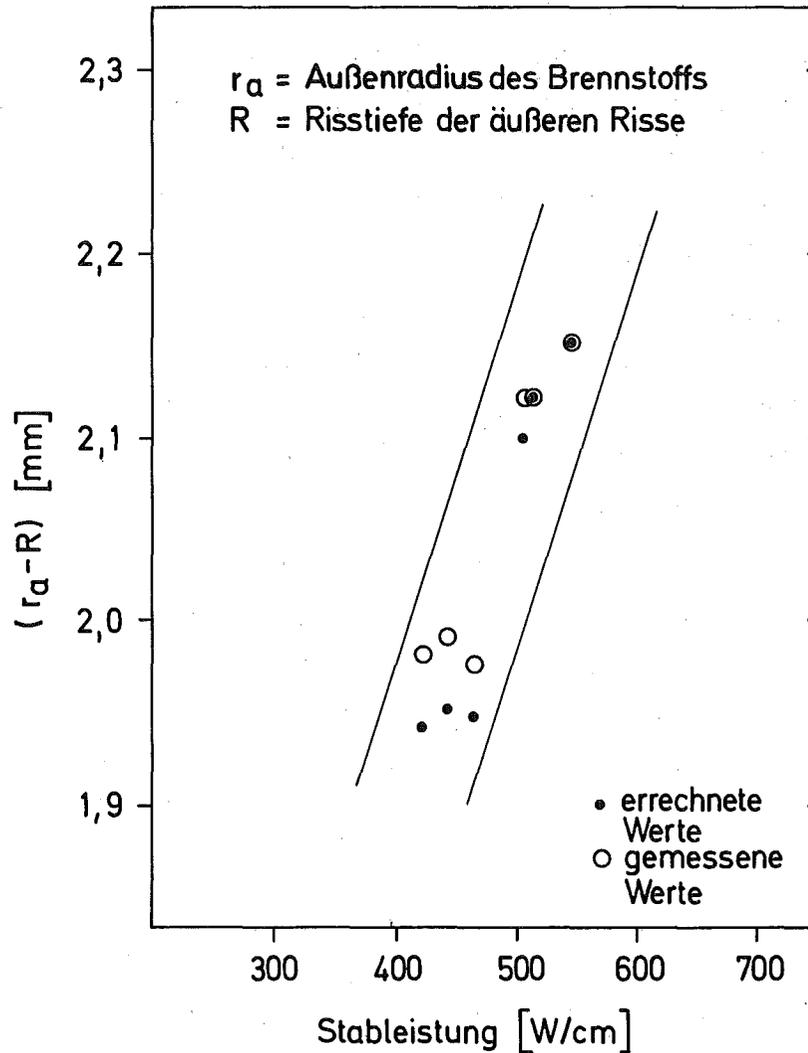


Abb. 30 $(r_a - R)$ als Funktion der Stableistung

Für das Außenrißvolumen wird für $R \ll 2r_a$ ebenfalls ein linearer Zusammenhang mit der Stableistung erwartet. Dieser Sachverhalt wird nur durch die rechnerischen Werte bestätigt; die experimentellen Werte sind durch zu große Schwankungen (statistische Fehler plus Ausbrüche) gekennzeichnet.

Für die Zentralkanalausbildung wurde Porenwanderung und Gasschwellung des Brennstoffes angenommen. Gegenüber der reinen Porenwanderung wurde der Zentralkanalradius größer errechnet (siehe Abb. 27 a), da das radiale Spaltvolumen zusätzlich über die Gasschwellung (siehe Kap. 3.4) zum Zentralkanal transportiert wurde. Die Diskrepanz zwischen den errechneten und gemessenen Zentralkanalradien wird

dadurch nicht aufgehoben, sie kann nur durch axiale Materialtransporte im Bereich des Zentralkanals gedeutet werden (siehe hierzu Kap.6.2). Durch die Verlagerung des Brennstoffes nach außen nahmen die Absolutwerte des Außenrißvolumens gegenüber denen bei reiner Porenwanderung um bis zu 25 % zu. Dieser Geometrieeffekt kam zum Stillstand, als der Brennstoff die Hülle erreichte.

In Abb. 27a ist zusätzlich (gestrichelte Kurve) eine Rißvolumenverteilung bei reiner Porenwanderung aufgetragen. Die errechneten Kurven stimmen in der Tendenz miteinander überein; sie differieren bezüglich der Zentralkanalradien und der Größe der Restspalte sowie in den Absolutwerten der Außenrißvolumina.

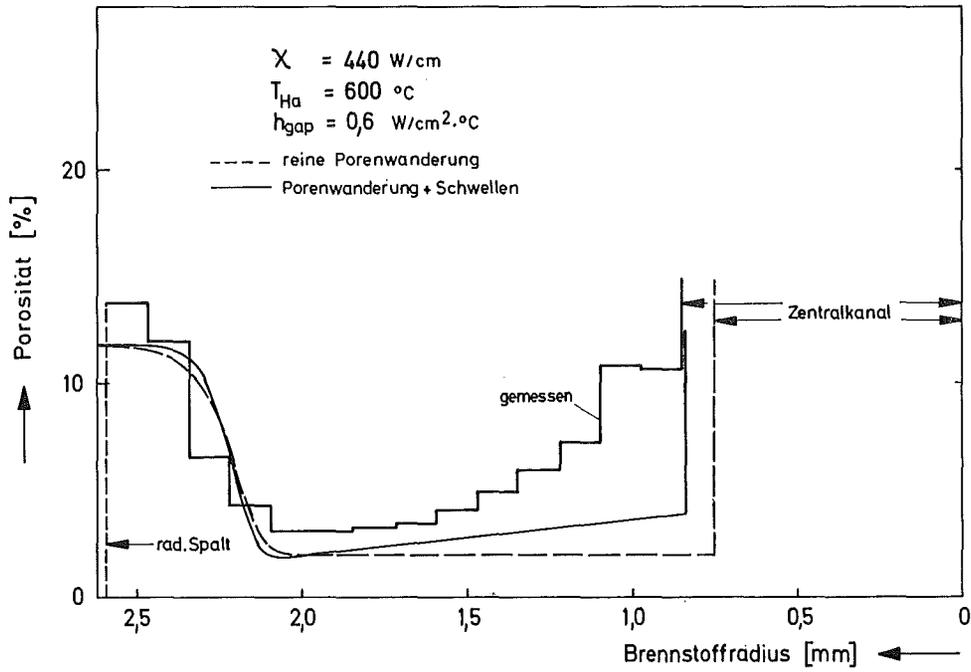
Testrechnungen ergaben, daß der Einfluß der zyklischen Bestrahlungsgeschichte auf die Rißvolumenverteilung von untergeordneter Bedeutung war. Solange der radiale Spalt noch nicht geschlossen war, wuchsen die Absolutwerte der Außenrißvolumina infolge fortschreitender Gasschwellung und zunehmender Zyklenzahl stetig an, da der Brennstoff immer weiter zur Hülle geschoben wurde. Bei Erreichen der Hülle änderte sich das Rißvolumen nicht mehr, auch nicht bei weiterer Zyklisierung. Das Rißvolumen erwies sich somit als von der Zyklenzahl unabhängig.

Das Gesamtrißvolumen nach der Bestrahlung ist stets kleiner als das radiale Spaltvolumen vor der Bestrahlung; Rißausheilung und Spaltgasschwellung sind die Gründe dafür. Das Zentralkanalvolumen enthält außer dem transportierten Porenvolumen das restliche Spaltvolumen ($V_{Sp} - V_{Riss}$).

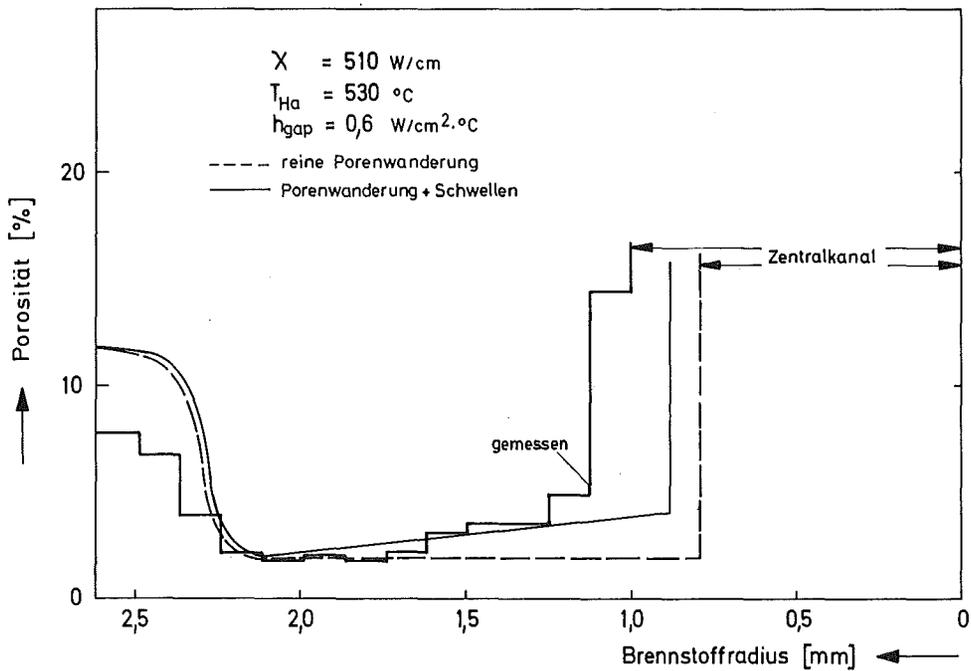
Das Rißvolumen der keilförmigen Außenrisse läßt sich nicht allein über Temperaturänderungen, die über Rißspannungen zu zusätzlichem Rißvolumen führen, errechnen. Die Spaltgasschwellung im Bereich der Stengelkornzone steuert einen maßgeblichen Anteil bei (durch die Verlagerung des Brennstoffes).

6.2 Radiale Porositätsverteilung

In den Abb. 31 bis 33 sind den experimentellen Porenverteilungen die errechneten gegenübergestellt. Die gestrichelten Kurven wurden unter der Annahme reiner Porenwanderung errechnet. Nach dieser Darstellung ist die Porosität im Bereich der Stengelkornzone auf eine vorgegebene

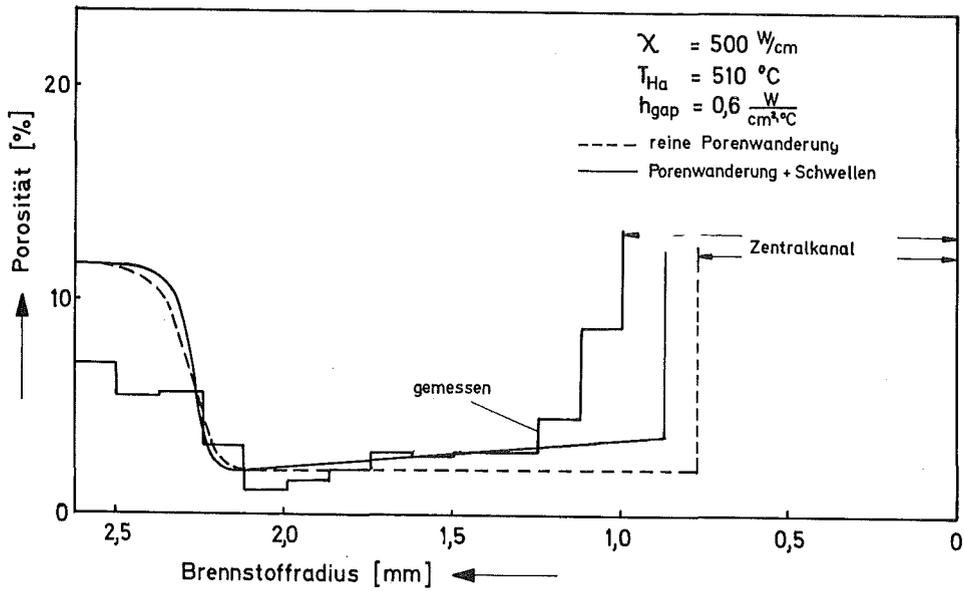


a) Prüflingsabschnitt Mol-7A-1-5

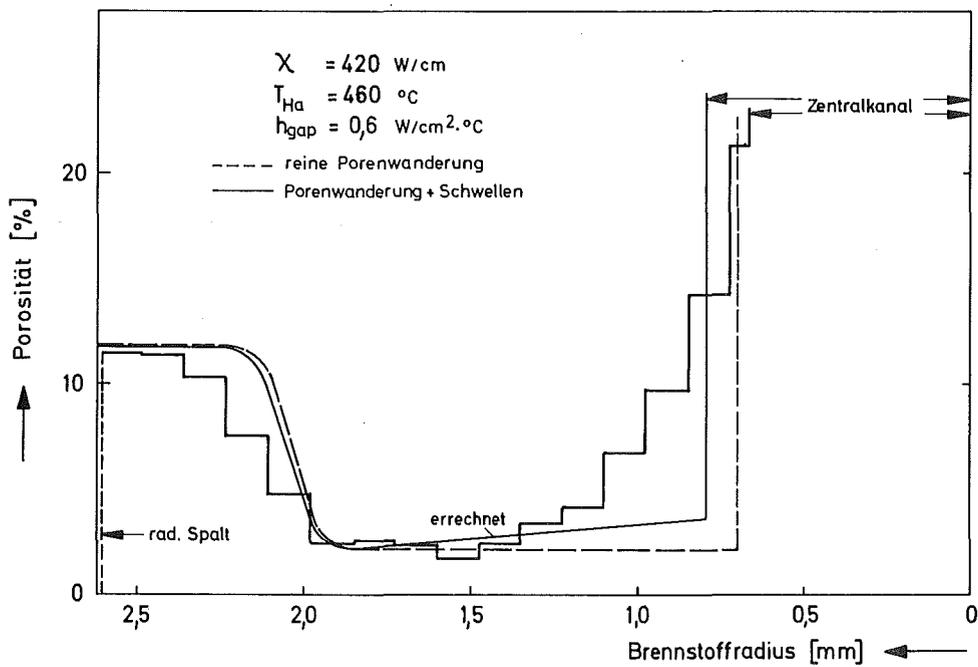


b) Prüflingsabschnitt Mol-7A-1-8

Abb. 31 Radiale Porositätsverteilung der Prüflingsabschnitte Mol-7A-1-5 (a) und Mol-7A-1-8 (b)

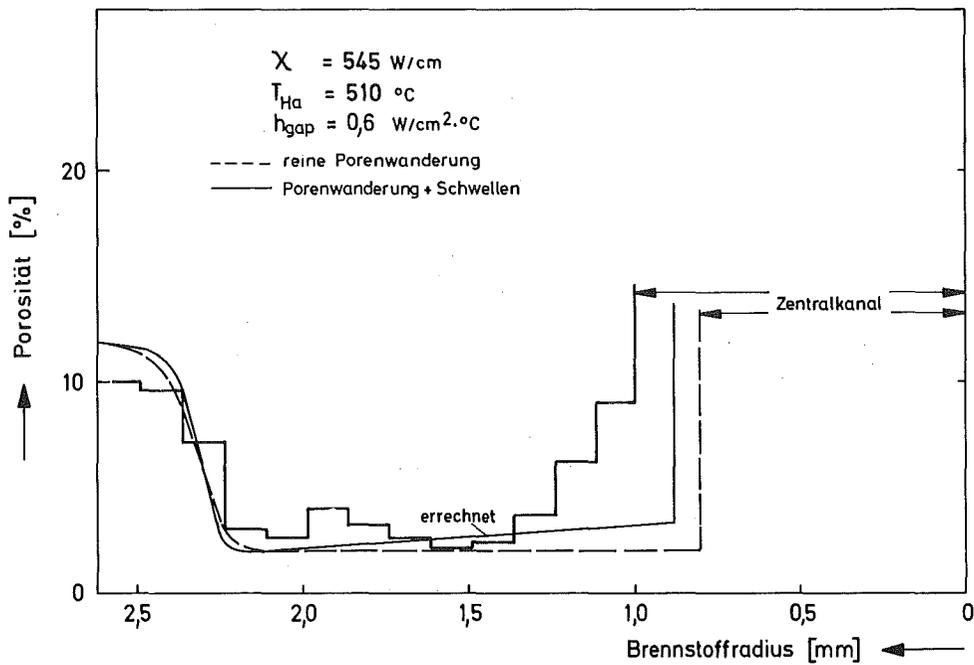


a) Prüflingsabschnitt Mol-7A-1-10

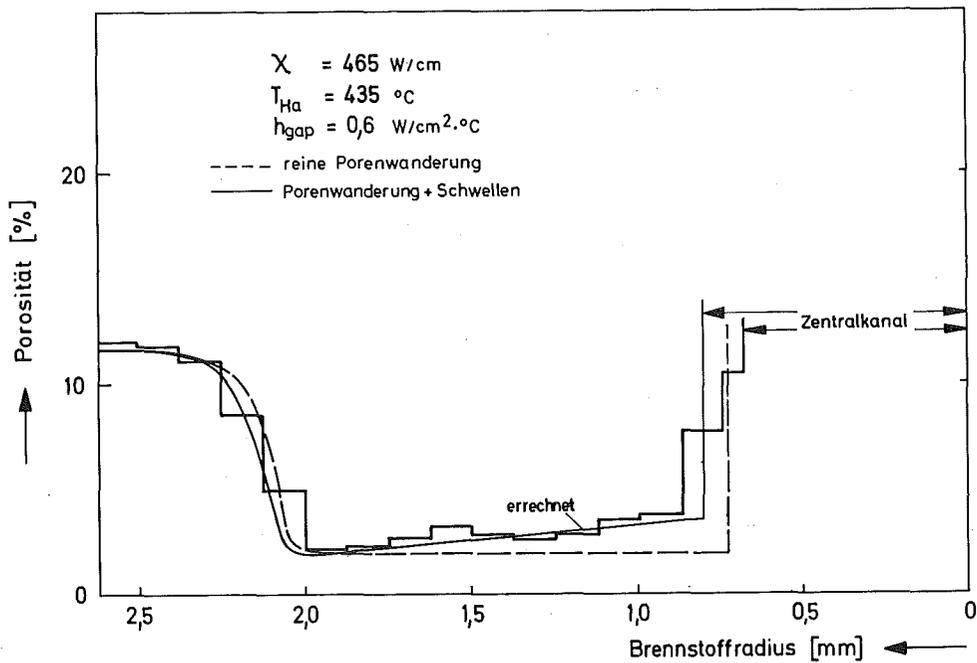


b) Prüflingsabschnitt Mol-7A-1-11

Abb. 32 Radiale Porositätsverteilung der Prüflingsabschnitte Mol-7A-1-10 (a) und Mol-7A-1-11 (b)



a) Prüflingsabschnitt Mol-7A-3-9



b) Prüflingsabschnitt Mol-7A-3-13

Abb. 33 Radiale Porositätsverteilung der Prüflingsabschnitte Mol-7A-3-9 (a) und Mol-7A-3-13 (b)

Minimalporosität von 2 % abgesunken. Dies steht offensichtlich im Gegensatz zum experimentellen Befund, welcher einen Porositätsanstieg zum Zentralkanal wiedergibt. Für die Deutung dieses Anstieges können folgende physikalischen Vorgänge eine Rolle spielen:

- Die Fertigungsporen nehmen auf ihrem Wege Spaltgase und Spaltgasblasen auf, so daß der Druck innerhalb der Pore ansteigt und diese unbeweglicher macht.
- Die Bildung von Spaltgasblasen und deren Wanderung zum Zentralkanal (Gasschwellen).

Die ausgezogenen Kurven wurden unter Berücksichtigung der Spaltgasschwellung der inneren Brennstoffzone ($T > 1700^{\circ}\text{C}$) errechnet: Sie führen zu einem Porositätsanstieg im Bereich der Stengelkornzone. Die zwischen experimenteller und der über reine Porenwanderung errechneten Verteilung bestehende Diskrepanz wird hier teilweise aufgehoben. Die Berücksichtigung einer vom Spaltgasdruck abhängigen Wanderungsgleichung sollte letzte Abweichungen ausräumen. Unter Berücksichtigung der Gasschwellung verschwindet der radiale Spalt in Übereinstimmung zum Experiment. Bei reiner Porenwanderung wurden Restspalte von 25 bis 37 μm errechnet, die der Übersichtlichkeit wegen nicht eingezeichnet wurden. Durch die Verlagerung des Brennstoffes nach außen wurde der Zentralkanalradius größer errechnet als über reine Porenwanderung.

Die errechneten Zentralkanalradien, auch bei Berücksichtigung der Spaltgasschwellung, stimmen nicht mit den gemessenen überein. Diese Diskrepanz kann nur über axiale Materialtransporte im Bereich des Zentralkanals gedeutet werden. Die Leervolumenbilanz (siehe Kap. 6.3) scheint diese Annahme zu bestätigen.

In den Abb. 31b und 32a ist sogar das Porenvolumen in der Außenzone teilweise abgetragen. Zur Abschätzung, inwieweit dieser Vorgang durch reine Porenwanderung zu erklären ist, wurden Testrechnungen mit maximalen Eingabedaten durchgeführt: $T_{\text{Ha}}' = T_{\text{Ha}} \cdot 1,20$; $\chi' = \chi \cdot 1,1$. Die Porenverteilungen ergaben auch für diese Eingabedaten ausgeprägte Randzonen mit Ursprungsporosität. Die Diskrepanz zum Experiment deutet daraufhin, daß die Randporosität durch einen von der Porenwanderung verschiedenen Prozess abgetragen wurde. Als mögliche Prozesse kommen in Frage:

- Strahlungsinduziertes Nachsintern des Brennstoffes.
- Kriechen des schwellenden Brennstoffes in die Randporosität (Heißpressen).

Ohne Separation in Einzelprozesse kann die Diskrepanz durch eine negative Schwellrate von 0,6 - 0,9 %/% Abbrand gedeutet werden (siehe Tab. 7). Die Schwellrate wurde aus der Porositätsverminderung, bezogen auf die gesamte "kalte" Brennstoffaußenzone, berechnet.

Tabelle 7 Abgeschätzte negative Schwellraten

Querschnitt	Abbrand (%)	Negativer Schwellbetr. betroffenes kalte Volumen Außenzone		Negative Schwellrate betroffenes kalte Volumen Außenzone	
		(%)	(%)	(%/% Abbrand)	(%/% Abbrand)
Mol-7A-1-8	4,4	3,7	2,7	0,84	0,62
Mol-7A-1-10	4,35	5,3	3,9	1,22	0,9

Die Wärmeübergangszahl zwischen Brennstoff und Hülle wurde so gewählt, daß die errechneten und gemessenen Verteilungen in der Außenzone übereinstimmen. Für alle Brennstababschnitte wurde mit $h_{\text{gap}} = 0,6 \text{ W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$ die beste Übereinstimmung erzielt.

Testrechnungen ergaben, daß die Porositätsverteilungen von der Zahl der Zyklen unabhängig waren.

6.3 Leervolumenbilanz

Die gemessene Leervolumina vor und nach der Bestrahlung für die 7 Brennstababschnitte sind in Tabelle 8 zusammengestellt. Das Zentralkanalvolumen steigt systematisch mit der Stableistung an (siehe Abb. 34). Als Fehlerbreiten wurden $\pm 5 \%$ für die Stableistungen und $\pm 3 \%$ für das Zentralkanalvolumen angenommen. In Abb. 35 wurden die Leervolumina vor und nach der Bestrahlung über der Brennstoffsäulenlänge aufgetragen (horizontal und konvex gekrümmtes Streuband). Zusätzlich sind die

Tabelle 8 Leervolumenbilanz gültig für Prüflingsproben von 10 mm Höhe (V in mm³)

P r o b e	v o r h e r				n a c h h e r			
	diametrales Spaltvolumen	Poren- Volumen	Zentralkanal- Volumen	Gesamt- Volumen	diametrales Spaltvolumen	Zentralkanal- Volumen	Poren- und Riß- Volumen	Gesamt- Volumen
Mol-7A-1-5	17,72	23,34	--	41,06	4,50	22,15	21,15	47,80
-1-8	18,51	23,25	--	41,76	--	31,40	14,73	46,13
-1-10	18,11	24,68	--	42,79	--	31,40	12,89	44,29
-1-11	19,30	22,96	--	42,26	2,30	17,27	19,60	39,17
-3-5	18,51	22,07	--	40,58	4,91	18,13	20,98	44,02
-3-9	18,51	22,07	--	40,58	--	31,40	19,39	50,79
-3-13	20,07	22,67	--	42,74	2,30	14,52	20,25	37,07

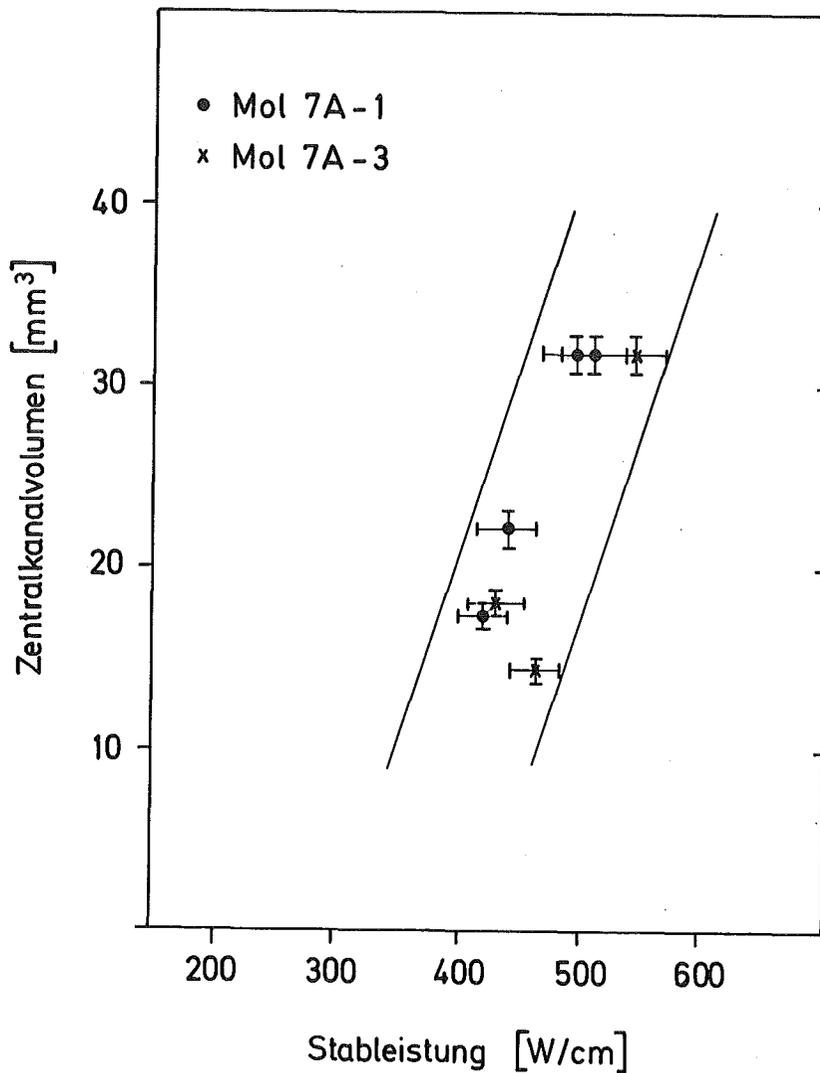


Abb. 34 Zentralkanalvolumen als Funktion der Stabileistung

Stabileistungen, die Hüllaußentemperaturen und die mit diesen Werten errechneten Zentraltemperaturen (s. Kap. 6.6) aufgetragen. Letztere gelten für die über die Porenwanderung errechneten Zentralkanalradien, die nicht mit den gemessenen übereinstimmen. Sie spiegeln die Temperaturverteilung im Zentralkanal wieder, bevor sich dessen Rand entlang einer Isothermen ausgebildet hat. Die Leervolumenueverteilung scheint eine Funktion dieser Zentraltemperatur zu sein, welches wiederum auf den Verdampfungs-Kondensations-Mechanismus im Bereich des Zentralkanals hinweist.

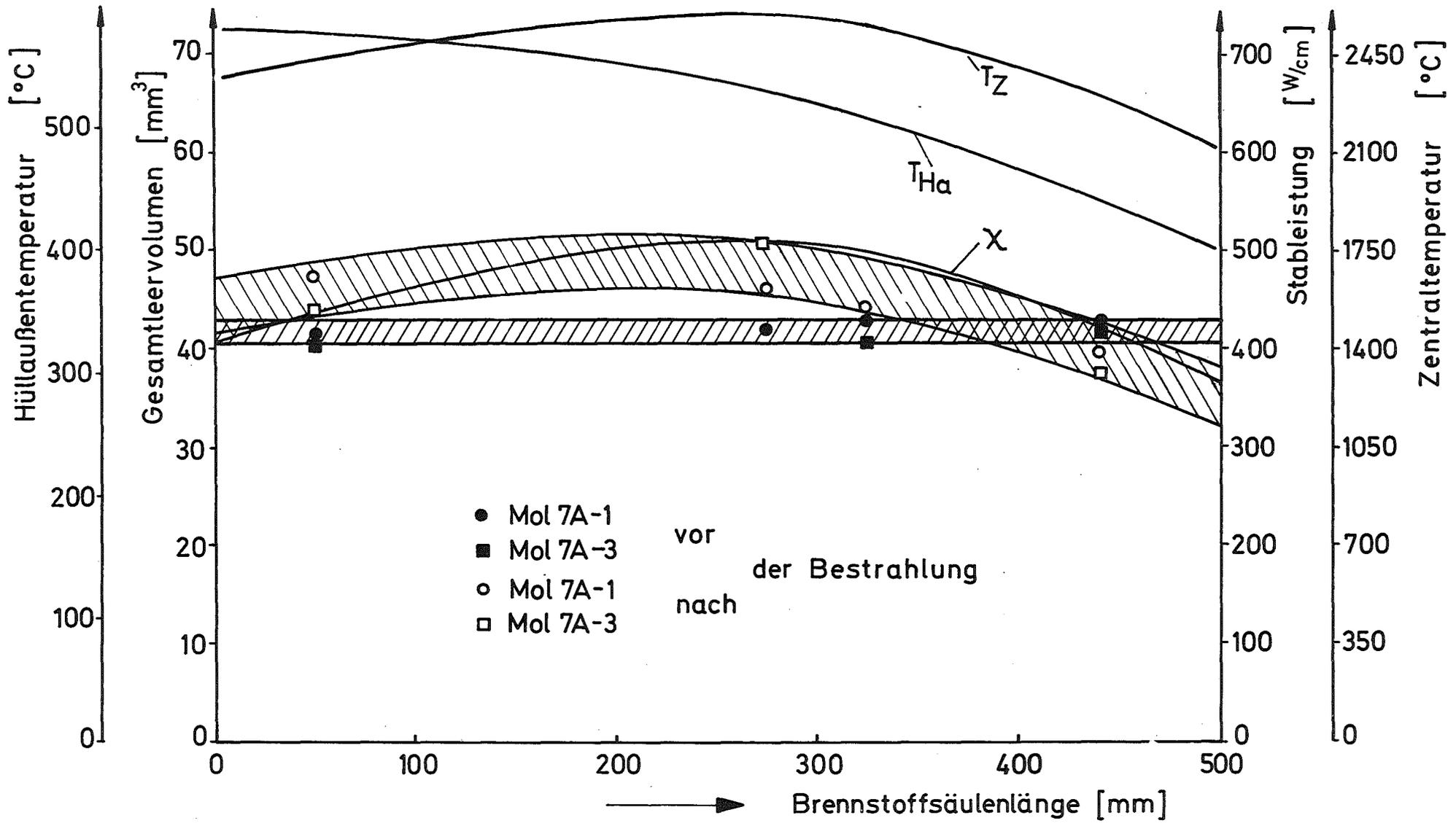


Abb. 35 Gesamtleervolumen vor und nach der Bestrahlung für Prüflingsproben von 10 mm Höhe

Das Leervolumen nimmt im Mittel für Stableistungen $> ca. 420 \text{ W/cm}$ zu und für Werte $< 420 \text{ W/cm}$ ab. Eine Verdichtung im unteren Brennstabbereich, hervorgerufen durch das Gewicht der Brennstoffsäule, dürfte hier keine Rolle spielen. Das Gewicht verursacht bei freistehendem Brennstoff einen Druck von $ca. 0,42 \text{ kp/cm}^2$; merkliche Kriechgeschwindigkeiten treten erst im Bereich von 1 kp/mm^2 auf.

Aus der Leervolumenbilanz kann man auf eine Verlängerung der Brennstoffsäulen schließen. Extrapolationen liefern für beide Stäbe eine Verlängerung von $ca. 6,25 \text{ mm}$. Gemessen wurde für Stab Nr. 1 eine Verlängerung von $1,69 \text{ mm}$ und für Stab Nr. 3 eine von $ca. 4,94 \text{ mm}$ [59]. Aus dieser Diskrepanz kann man evtl. Rückschlüsse auf die Genauigkeit des angewandten Verfahrens ziehen: Die Abweichungen betragen maximal $0,9 \%$ bezogen auf die Gesamtbrennstoffsäulenlänge von 500 mm und maximal 5% bezogen auf das Gesamtleervolumen im 10 mm hohen Brennstababschnitt. Eine Verlängerung, hervorgerufen durch Spaltproduktschwellen, sollte außerhalb dieser Unsicherheit sein. Die Schwellrate, verursacht durch "kondensierte" Spaltprodukte (feste Spaltprodukte plus Spaltgase in sehr kleinen Blasen), wurde experimentell zu $0,8 \text{ Vol-\% pro \% Abbrand}$ [61] und rechnerisch zu $0,87 \text{ \%/\% Abbrand}$ [62, 63] gewonnen. Im Bereich der Stengelkornzone reduziert sich diese Schwellrate auf den Anteil, der durch feste Spaltprodukte hervorgerufen wird ($0,5 \text{ Vol-\%/\% Abbrand}$ [64]). Berücksichtigt man diese Rate für den gesamten Brennstoff so ergibt sich bei $ca. 4 \%$ Abbrand eine axiale Verlängerung der Brennstoffsäule von $ca. 10 \text{ mm}$. (Es wurde, da Abb. 35 im Mittel eine Brennstoffabnahme für den Stabquerschnitt anzeigt, $\Delta \ell / \ell = \Delta V / V$ gesetzt). Das Fehlen dieser Verlängerung kann entweder durch eine um den Faktor 10 niedrigere Schwellrate erklärt werden, was unwahrscheinlich ist, bzw. durch Verdampfen von Brennstoff und Spaltprodukten aus dem Bereich der Brennstoffsäule. Anreicherungen von Cs-134 im Bereich der Brutstoffzone und im Sinterstahlfilter sowie Cs-137-Anreicherungen im radialen Spalt der oberen und unteren Brennstoffsäule (diese gehen bei der Schliﬀpräparation verloren und täuschen dadurch Leervolumen vor) scheinen dies zu bestätigen. Brennstoff-Kondensation im Bereich der Brutstoffzone wurde nicht festgestellt.

6.4 Thermische Analyse

In Abb. 36 sind die Temperaturprofile am Bestrahlungsende für die untersuchten Prüflinge zusammengestellt. Man erkennt recht hohe Brennstoff-Randtemperaturen und es stellt sich die Frage: Sind diese Temperaturen realistisch, wenn der Brennstoff an der Hülle anliegt? Mikrosondenuntersuchungen [65] haben gezeigt, daß ein beträchtlicher Korngrenzenangriff stattgefunden hat und daß der Restspalt z.T. mit Spaltprodukten aufgefüllt war. Oft lassen sich Restspalt und Reaktionszone räumlich nicht trennen. Der Gesamtbereich (häufig bis 200 µm dick) zeigt Schichtstruktur und könnte in seiner Gesamtheit als Wärmetransportbarriere aufgetreten sein. Die Schichtstruktur könnte die relativ niedrige Wärmeübergangszahl von $0,6 \text{ W/cm}^2\text{sec}$ rechtfertigen.

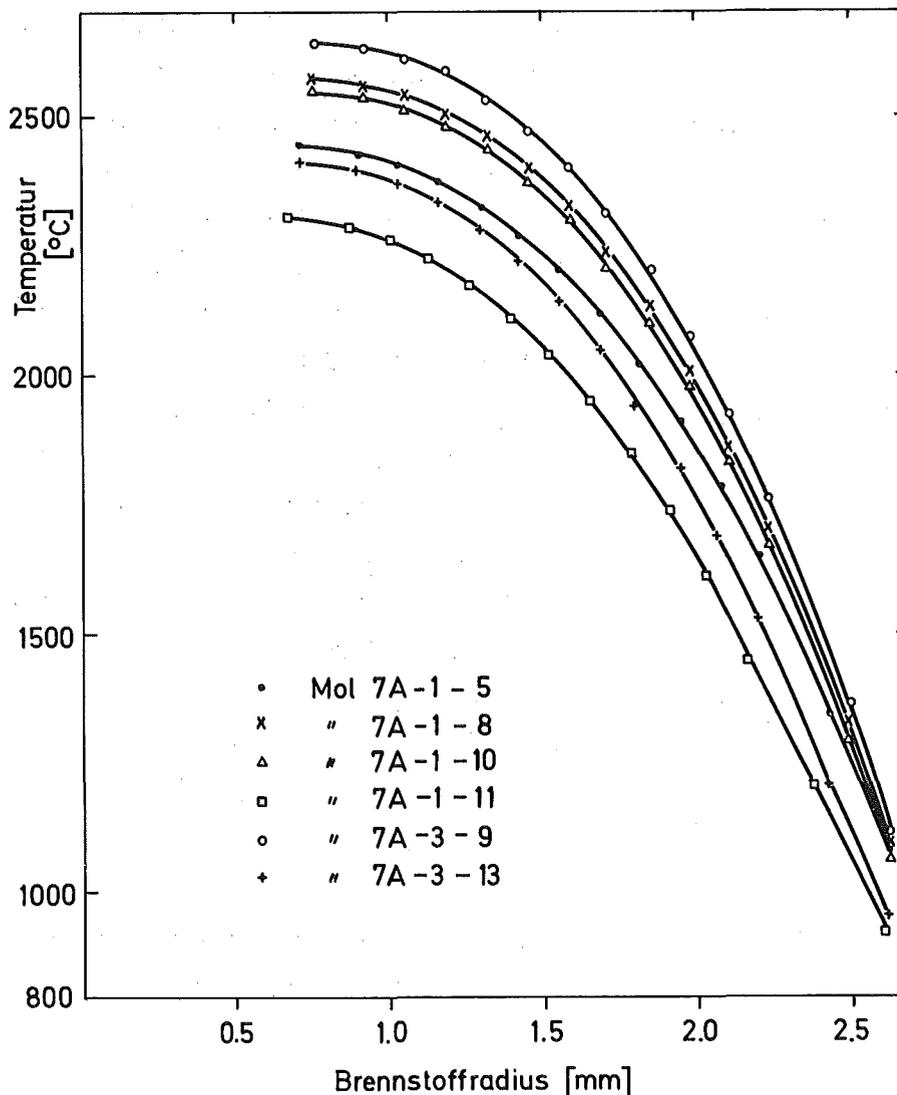


Abb. 36 Temperaturprofile der Brennstababschnitte am Ende der Bestrahlung

Die Radien ($r_a - R$) sind mit den Radien der Stengelkornzone identisch. Sie sind mit den entsprechenden Temperaturen (siehe Abb. 36) in Tabelle 9 zusammengestellt. Als Mittelwert für den Radius der Rißausheilung, bzw. der Stengelkornzone, ergibt sich 1810°C . Dieser Wert liegt oberhalb der in Kap. 5.3 angegebenen Streubreite von $1750 \pm 50^{\circ}\text{C}$.

Tabelle 9 Radien der Stengelkornzone

	Radius (mm) der Stengelkornzone	Temperatur ($^{\circ}\text{C}$)	Stableistung (W/cm)
Mol-7A-1-5	1,99	1850	440
-1-8	2,12	1850	510
-1-10	2,12	1810	505
-1-11	1,98	1670	420
-3-9	2,15	1860	545
-3-13	1,98	1780	465
korrigierter Mittelwert		1750	

Die Temperaturprofile gehören zu den Porositätsprofilen, die über reine Porenwanderung errechnet wurden. Nach Kap. 6.2 stimmen die errechneten Zentralkanalradien nicht mit den gemessenen überein. Nach Kap. 6.5 findet im Bereich des Zentralkanals ein Materialtransport und, mit diesem verknüpft, ein Temperatúrausgleich statt. Den gemessenen Zentralkanalradien entspricht somit eine mittlere Temperatur von ca. 2420°C (Stab 1) und 2520°C (Stab 3). Dies bedeutet, daß alle Kurven in Abb. 36 bezüglich der Zentralkanalradien und Absolutwerte zu korrigieren sind. Die mittlere Temperatur für den Stengelkornradius erniedrigt sich damit auf ca. 1750°C .

6.5 Materialverdampfung im Bereich des Zentralkanals

Abb. 35 läßt erkennen, daß in Stababschnitten maximaler Stabileistung während der Bestrahlung Leervolumen zusätzlich gebildet wurde. Die Abb. 31a, 31b und 32a lassen deutlich erkennen, daß dieses Leervolumen im Bereich des Zentralkanals auftritt. Der gemessene Zentralkanalradius erweist sich als größer als es über die Porenwanderung vertretbar ist. In den unteren Stababschnitten ist der errechnete Zentralkanalradius größer als der gemessene. Diese Diskrepanzen lassen sich durch das Auftreten von Verdampfungs- und Kondensationsströmen im Zentralkanal deuten: Es wird angenommen, daß ein Materialstrom über die Gasphase von der heißesten Stelle (Stabmitte) zur kalten (Stabende) hin auftritt. Im vorliegenden Fall ist das untere Stabende infolge geringerer Hüllaußentemperatur das kältere Ende.

Die Materialströme führen zu einer Vergrößerung des Zentralkanals in Stabmitte und zu einer Verkleinerung am unteren Stabende. Hierdurch findet ein Temperatenausgleich statt, der in 1. Näherung beendet ist, wenn sich die Zentralkanaloberfläche entlang einer Isothermen ausgebildet hat. Nachfolgend wird versucht, die hierzu benötigten Zeiten abzuschätzen.

Es werden folgende Näherungen und Annahmen getroffen:

- 1.) Der Zentralkanal wird als ein geschlossenes System angesehen, in dem keine Konvektion auftritt.
- 2.) Die Dampfdrücke sind nach Ohse und Olson [66] und Battles et al. [67] nur schwach vom Pu-Gehalt abhängig. Aus diesem Grunde wurden die von Ohse gemessenen Dampfdrücke und molaren Verdampfungsenthalpien für $(U_{0,85}Pu_{0,15})O_{1,969}$ zugrundegelegt, obwohl der Mol-7A-Brennstoff ursprünglich 20 % PuO_2 enthielt ($O/M = 1,98$). Für die Extrapolationen zu den verschiedensten O/M-Verhältnissen wurden auch die errechneten Dampfdrücke von Rand und Markin [68] herangezogen ($T = 2000^\circ K$; $Pu/(U+Pu) = 15$ Gew.-%).

Die Dampfdrücke und molaren Verdampfungsenthalpien der verdampfenden Spezies UO_2 , UO_3 , PuO_2 und PuO sind nach [66]:

$$\begin{aligned}
 \log p_{\text{UO}_3} \quad (\text{atm}) &= (5,215 \pm 0,40) - (25\,328 \pm 907)/T \\
 \log p_{\text{UO}_2} \quad (\text{atm}) &= (9,365 \pm 0,23) - (32\,436 \pm 491)/T \\
 \log p_{\text{PuO}_2} \quad (\text{atm}) &= (7,460 \pm 0,49) - (31\,034 \pm 1090)/T \\
 \log p_{\text{PuO}} \quad (\text{atm}) &= (6,042 \pm 0,13) - (27\,212 \pm 279)/T
 \end{aligned}
 \tag{46}$$

$$\Delta H (\text{UO}_3) = 115,8 \text{ kcal/Mol} \quad \Delta H (\text{UO}_2) = 148,4 \text{ kcal/Mol}$$

$$\Delta H (\text{PuO}_2) = 141,9 \text{ kcal/mol} \quad \Delta H (\text{PuO}) = 124,5 \text{ kcal/Mol}$$

Ausgehend vom Fickschen Gesetz der Diffusion läßt sich der Teilchenstrom der verdampfenden Moleküle wie folgt darstellen:

$$J_n = -D \cdot \nabla n = -D \cdot \nabla \left(\frac{p}{kT} \right) \tag{47}$$

wobei D der Diffusionskoeffizient (siehe unten) und n die Teilchendichte ist. Mit dem Dampfdruck $p = p_0 \cdot \exp(-\Delta H/RT)$ wird Gl. (47):

$$J_n = -D \frac{L}{RT^2} \cdot p \left(\frac{\Delta H}{RT} - 1 \right) \cdot \nabla T \tag{48}$$

Da für Brennstoffe $\Delta H/RT \gg 1$ [69] ist, vereinfacht sich diese Relation zu:

$$J_n = -D \cdot \frac{L}{R^2 T^3} \cdot p \cdot \Delta H \cdot \nabla T \tag{49}$$

Den Diffusionskoeffizienten erhält man aus der kinetischen Gastheorie [70,31]; dieser wurde auch der Porenwanderungsgleichung (Gl.(19)) zugrundegelegt:

$$D_{12} = \frac{3}{8} \frac{1}{n \cdot \sigma_{12}^2} \sqrt{\frac{M_1 + M_2}{M_1 \cdot M_2} \cdot \frac{RT}{2\pi}} \tag{50}$$

wobei n = Gesamteilchendichte der Dampfmoleküle ($\text{UO}_2, \text{UO}_3 \dots$) und Gasatome (He, Kr, Xe)

r_1, r_2	=	Molekül- bzw. Atomradius der Dampf- und Gasspezies
σ_{12}	=	Stoßquerschnitt = $r_1 + r_2$
M_1	=	Molmasse der diffundierenden Dampf- moleküle
M_2	=	Molmasse der Gasatome

Der Berechnung des Diffusionskoeffizienten liegen folgende Daten zugrunde: Die Teilchendichte n läßt sich in der Form p^*/kT ansetzen, wobei p^* der Gesamtdruck ist und sich aus Dampfdruck (z.B. p_{UO_2}) und Gasdruck (z.B. p_{He}) zusammensetzt. Der Dampfdruck kann aber gegenüber dem Gasdruck (zu Bestrahlungsbeginn 3 at) vernachlässigt werden. Die Molekülradien der verdampfenden Spezies UO_2 , UO_3 , PuO , PuO_2 sind unbekannt, sie werden zu $1,7 \cdot 10^{-8}$ cm angenommen [71, 72]. Der gaskinetische Atomradius von He ist $1,2 \cdot 10^{-8}$ cm [73]. Die ursprünglich bestehende Maximaltemperatur im Zentralkanal wurde nach Kap. 6.4 zu $2550^\circ C$ angenommen. Mit diesen Daten errechnet sich der Diffusionskoeffizient zu $D_{12} = 5,4 \text{ cm}^2/\text{sec}$.

Das ursprünglich bestehende Temperaturgefälle im Zentralkanal von $dT/d\ell = 250^\circ K/25 \text{ cm} = 10^\circ K/\text{cm}$ wird durch den Materialtransport sukzessive verringert. Es wird angenommen, daß sich die Zentraltemperatur in Stabmitte von $2550^\circ C$ auf $2420^\circ C$ (= Mittelwert aus maximaler und minimaler Zentralkanaltemperatur) linear mit der Zentralkanalvergrößerung (von 0,8 auf 1,0 mm) verringert und am unteren Stabende auf den gleichen Wert erhöht. Ist diese Mitteltemperatur erreicht, so kommt der Dampftransport ($dT/d\ell = 0^\circ K/\text{cm}$) zum Erliegen. In Tab. 10 sind die molaren Teilchenströme $J_M = J_n \cdot 1/L$ (L = Loschmidt-Zahl) in Stabmitte als Funktion des O/M-Verhältnisses und der dort herrschenden Zentraltemperatur angegeben. Die Werte gelten streng genommen nur für konstantes O/M- und Pu/U-Verhältnis.

Tabelle 10 zeigt nur für das O/M-Verhältnis von 1,94 eine quasi-kongruente Verdampfung. Dies bedeutet, daß sich die Ausgangsstöchiometrie (1,99) in Zentralkanalnähe stetig erniedrigt, bis eine quasi-kongruente Verdampfung stattfindet. Da die Gesamtverdampfungsströme im unterstöchiometrischen Bereich vom O/M-Verhältnis nahezu unabhängig sind, werden für die nachfolgende Abschätzung die Dampfströme der Ausgangsstöchiometrie zugrundegelegt. Diese werden wie folgt addiert:

$J = \sum J_i$, wobei $J_i = J_M^i \cdot M_i$ und J_M^i der Molstrom der Dampfkomponente i ist. Der Verdampfungsstrom J_V durch die Zentralkanaloberfläche F_V wird in vereinfachender Weise durch den axialen Dampfstrom J durch den Zentralkanalquerschnitt F dargestellt: $J_V \cdot F_V = J \cdot F$ und in Abb. 37 aufgetragen. Es wurde eine verdampfte Materialmenge von 196 mg/cm^2 (Stab Nr. 1) zugrundegelegt. Der Gesamtmaterialstrom wird mit verschwindendem Temperaturgradient Null und die Verdampfungszeit geht gegen ∞ . Eine einfache Integration liefert in grober Abschätzung die Zeit, die notwendig ist, bis sich der Zentralkanal entlang einer Isothermen ausgebildet hat: Läßt man, von der höchsten Temperatur beginnend, jeweils $1/10$ der Materialmenge ($= 19,6 \text{ mg/cm}^2$) verdampfen, so gelangt man schrittweise zu größeren Zentralkanalradien und damit verbunden zu immer größer werdenden Verdampfungszeiten (siehe Treppenkurve). Die Gesamtzeit läßt sich somit zu:

$$t = 131,3 \text{ h} \approx 5,5 \text{ d}$$

abschätzen.

Tabelle 10 Molarer axialer Teilchenstrom an der heißesten Stelle des Zentralkanals als Funktion der dort herrschenden Temperatur und des O/M-Verhältnisses

$(O/M)_{\text{fest}}$	Gasphase	$J_M \cdot 10^9 \text{ Mol/cm}^2 \text{ sec}$					
		2820°K	2795°K	2770°K	2745°K	2720°K	2695°K
1,94	UO ₂	13,5	8,8	5,5	3,0	1,2	0
	PuO ₂	1,9	1,2	0,8	0,4	0,2	0
1,969	UO ₂	15,9	10,0	6,1	3,3	1,3	0
	UO ₃	0,3	0,2	0,1	0,1	0	0
	PuO	0,5	0,3	0,2	0,1	0,05	0
1,99	UO ₂	16,3	10,8	6,7	3,6	1,4	0
	UO ₃	1,2	0,8	0,5	0,3	0,1	0
	PuO ₂	1,2	0,8	0,5	0,3	0,1	0
2,01	UO ₂	16,3	10,8	6,7	3,6	1,4	0
	UO ₃	720,	500,	315,	180,	70,	0

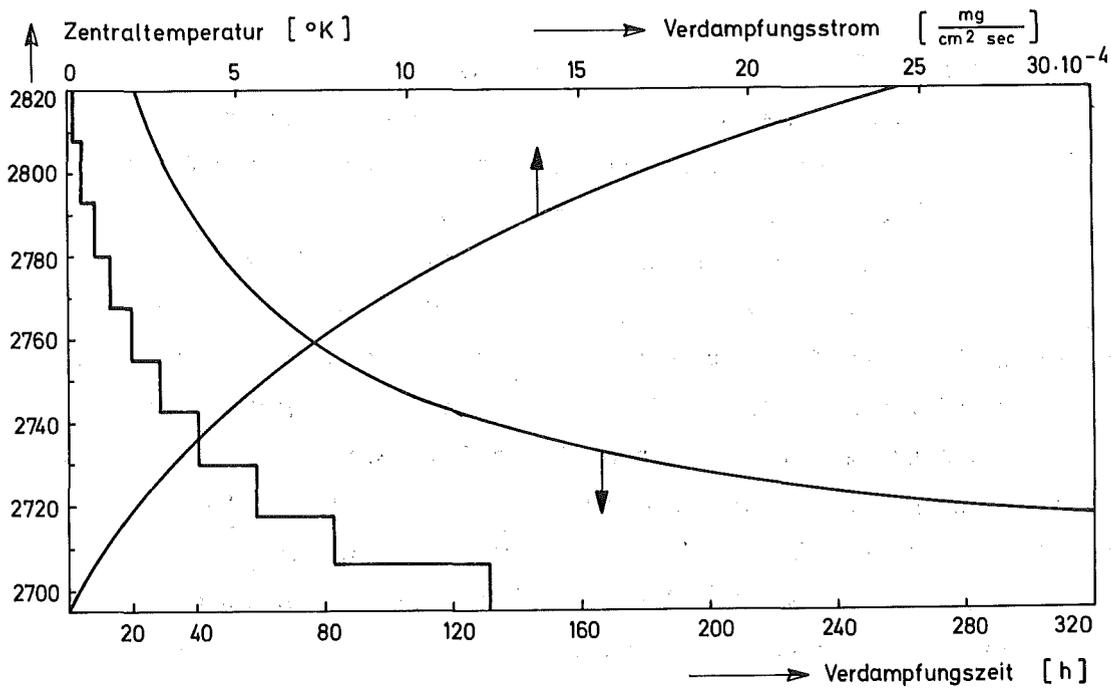


Abb. 37 Verdampfungsstrom- und -zeit als Funktion der Zentraltemperatur

Diese Ergebnisse können mit den Verdampfungsexperimenten von Bober et al. [74] verglichen werden. In diesen Versuchen wurden $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ -Proben unterschiedlicher Ausgangsstöchiometrie über 1 h bei einem axialen Temperaturgradienten von $2000 \text{ }^\circ\text{C/cm}$ geglüht (max. Temperatur $2400 \text{ }^\circ\text{C}$). Während der Glühung wurde ein vorgebohrtes Sackloch definierter Größe in den Proben durch Verdampfung und Kondensation von Brennstoff teilweise bzw. vollständig aufgefüllt. Die transportierten Materialmengen sind von gleicher Größenordnung wie die hier gemessenen. Berücksichtigt man die unterschiedlichen Temperaturgradienten und die anderen geringfügig verschiedenen Eingabegrößen, so bestätigen diese out-of-pile-Verdampfungen im unterstöchiometrischen Bereich die hier getroffenen Abschätzungen.

Die Zeit, die der Zentralkanal benötigt, um sich entlang einer Isothermen auszubilden, ist von gleicher Größenordnung wie die Zeit der Zentralkanalausbildung durch Porenwanderung. Verdampfung und Kondensation von Brennstoff im Bereich des Zentralkanals und Porenwanderung zum Brennstoffzentrum sind für die Ausbildung des zentralen Hohlraumes konkurrierende Vorgänge. Der Zentralkanal hat sich in seiner endgültigen Form schon nach wenigen Tagen (je nach Stableistung) ausgebildet. Kleinere Radiusvergrößerungen infolge längerdauernder Bestrahlungszeit sind möglich.

Die Zentraltemperatur wird für den Stab Nr. 1 über die gesamte Längsachse zu $2420\text{ }^{\circ}\text{C}$ angenommen. Der obere Stababschnitt bestätigt dies (siehe Abb. 31a und 36). Mittels Testrechnungen konnte dies auch für die mittleren Abschnitte bestätigt werden. Hierzu wurden 2 Rechnungen durchgeführt: In der ersten wurde mit den Eingaben $r_{\text{ZK}} = 0,76\text{ mm}$ und $\bar{P} = 0,06$ die maximale Zentraltemperatur und in der zweiten mit $r_{\text{ZK}} = 1,0\text{ mm}$ und $\bar{P} = 0,06$ (dies entspricht einer Brennstoffverringerng von 6 %) die Zentraltemperatur $T_{\text{ZK}} = 2420\text{ }^{\circ}\text{C}$ verifiziert. Für den unteren Stababschnitt konnte diese Zentraltemperatur nicht errechnet werden. Läßt man jedoch infolge der Materialzunahme (siehe Abb. 35) eine Stableistungserhöhung zu, so kann man auch für diesen Stababschnitt $2420\text{ }^{\circ}\text{C}$ als Zentraltemperatur annehmen.

6.6 Porositätsverminderung in der Randzone

Für die Porositätsverminderung in der Randzone kommen 2 Phänomene in Betracht: (1) Strahlungsinduziertes Nachsintern und (2) Kriechen des schwellenden Brennstoffes in die Randporen hinein. Ein Wichten der beiden Prozesse ist nicht möglich, da einmal die Nachbestrahlungsuntersuchungen zu widersprüchlichen Interpretationen führen und zum zweiten die theoretischen Ansätze z.T. nur ein Anpassen an das Experiment erlauben.

Stab Nr. 1 zeigt mit zunehmender Hülltemperatur eine nahezu stetige Zunahme der Hüllaußendurchmesser (max. 0,1 %). Da ein Hüllrohrschwellen wegen der zu kleinen Neutronendosen $\left[(\phi_f \cdot t)_{\text{max}} = 2,54 \cdot 10^{21} \text{ ncm}^{-2} \right]$ ausgeschlossen werden kann, läßt sich die Durchmesserervergrößerung nur als Kriechaufweitung der Hülle durch den Brennstoffschwelldruck erklären.⁺ Stab Nr. 1 deutet auf einen konstanten Schwelldruck entlang der Achse, der mit zunehmender Hülltemperatur zu größeren Hüllaufweitungen führt. Stab Nr. 3 zeigt in Stabmitte maximale Durchmesserzunahme. Das Auftreten höherer Brennstoffschwelldrücke im Bereich größerer Stableistung steht im Gegensatz zu den theoretischen Erwartungen (bei höheren Temperaturen sollte ein evtl. Schwelldruck durch die größeren Kriechgeschwindigkeiten schneller abgebaut werden) $\left[38 \right]$.

6.6.1 Kriechen des Brennstoffes in die Randporosität (Heißpreßeffekt):

Will man die Porositätserniedrigung in der Randzone der mittleren Stababschnitte durch einen Heißpreßeffekt erklären, so gelingt dies nur, wenn der Brennstoffschwelldruck dort höher ist als in den Abschnitten der Stabenden. Stab Nr. 3 läßt diese Interpretation zu, nicht aber Stab Nr. 1.

Es gilt noch zu zeigen, daß der Heißpreßeffekt überhaupt zu einer Porositätserniedrigung führt: Nach Mc Clelland [75] läßt sich eine solche Verdichtung, (wenn $\sigma \gg \tau_i$ und $\sigma \gg 2\gamma/r_p$ ist) wie folgt darstellen:

$$\ln P/P_0 = - \frac{3 \sigma}{4 \eta} \cdot t \quad (51)$$

- wobei P, P_0 = bestehende, ursprüngliche Porosität
 σ = äußerer Druck
 η = Viskosität
 τ_i = kritische Scherspannung
 r_p = Porenradius
 γ = Oberflächenenergie

Kennt man den äußeren Druck und die Viskosität des Brennstoffes, so läßt sich für eine bestimmte Bestrahlungszeit ($t = 3335$ h) die Endporosität errechnen. Dem Zahlenbeispiel wird $\sigma = 1$ kp/mm² und $\eta = 6,5 \cdot 10^{14}$ Poise zugrundegelegt. Letzterer Wert wurde aus Kriechexperimenten von Brucklacher et al. [76] gewonnen: Für eine Brennstoffrandtemperatur von 1000 °C und eine Spaltungsrate von $1 \cdot 10^{-8}$ Spaltungen/(Atome U und Pu · sec) gibt [76] für $U_{0,85}Pu_{0,15}O_{1,985}$ (86 % th.D.) einen Wert $\eta^{-1} = 2 \cdot 10^{-4}$ mm/kp h an; auf die maximale Spaltungsrate ($\dot{A} = 2,8 \cdot 10^{-9} \frac{Sp}{sec \cdot \text{Atome U u. Pu}}$) des Experimentes Mol-7A umgerechnet, ergibt sich obiger Wert. Für Drücke von 1 kp/mm² läßt sich eine Porositätsabnahme von 11,8 % auf 10,3 % berechnen.

6.6.2 Strahlungsinduziertes Nachsintern:

Auflösung von Spaltgasblasen und Sinterporen während der Bestrahlung wurde von mehreren Autoren festgestellt [17,18,77,78]. Den Verdichtungsmodellen liegen folgende Annahmen zugrunde: Wird eine Pore von einem Spaltfragment getroffen, so wird diese total oder teilweise aufgelöst. Der Porenhalt wird in Form von Gitterdefekten und Überschußleerstellen im Gitter dispergiert. Gleichzeitig können sich solche Gitterdefekte und Überschußleerstellen zu neuen Poren ausscheiden bzw. an schon vorhandene anlagern. Bei fehlender Verdichtung steht Porenbildung mit Porenauflösung im Gleichgewicht. Eine Verdichtung ist möglich, wenn dispergierte Defekte an Korngrenzenflächen aufgefangen werden und aus der Matrix herauswandern. Aßmann und Stehle [79] haben für große Poren ($r \geq 10^{-4}$ cm) folgende Verdichtungsrelation hergeleitet:

$$P = P_0 \left(1 - \frac{\eta \cdot \omega \cdot \lambda \cdot F}{3 r_a} \cdot t \right)^3 \quad (52)$$

- wobei
- η = Bruchteil der zur Verdichtung beitragenden Leerstellen
 - ω = Bruchteil des Porenvolumens welches pro Treffer dispergiert wird
 - λ = Länge der Spaltfragmentbahn
 - F = Spaltrate
 - r_0 = mittlerer Porenradius
 - t = Bestrahlungszeit

Obige Gleichung gilt nur für geschlossene Poren und fehlende Gasfüllung. Für das Zahlenbeispiel wird $\lambda = 5 \cdot 10^{-4}$ cm, $r_0 = 5 \cdot 10^{-4}$ cm, $t = 3335$ h, $F = 7,8 \cdot 10^{13}$ Sp/cm³sec, $\omega = 5 \cdot 10^{-20}$ cm³ [77, 78], $\eta = 0,01$ gesetzt: Hieraus ergibt sich $P = P_0 \cdot 0,6$, d.h. nach 3335 h Bestrahlungszeit ist die Randzone um 40 % nachverdichtet.

Faßt man in Gl. (52) die Spaltungsrate als einzigen Parameter auf, so kann man mit einer axialen Änderung derselben von nur 20 % den unterschiedlichen Porositätsgehalt in der Außenzone der Brennstababschnitte nicht erklären. Erst wenn η entsprechend der errechneten Dicke der Außenzone variiert wird, läßt sich die gemessene Verdichtung durch obige Gleichung anpassen (z.B. $\eta = 0,01$ bzw. $0,001$). Mit abnehmender Dicke der Außenzone geraten anteilmäßig mehr diffundierende Defektstellen in den Einzugsbereich der Porenwanderung; dies führt bei kleiner Zonendicke zur gemessenen Verdichtung.

7. Beeinflussung der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes durch Form, Verteilung und Orientierung der Poren

Die elektrische und Wärmeleitfähigkeit zweiphasiger und poröser einphasiger (die Porosität wird als zweite Phase aufgefaßt) Materialien hängt von folgenden Parametern ab:

- Wärmeleitfähigkeit der reinen Phasen, hier also des Brennstoffes und des Gases in den Hohlräumen
- Konzentration und Struktur (Einlagerungs- bzw. Durchdringungsstruktur) der Phasen
- Gestalt, Orientierung und Verteilung (stereometrische Faktoren) der Phasen.

Für die Berechnung der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes als Funktion der Porosität wird diese als Dispergent in rotations-ellipsoider

Form, d.h. in Einlagerungsstruktur vorliegend, angenommen. Für statistische Verteilung der Poren läßt sich nach [80, 81, 82] die Wärmeleitfähigkeit als Funktion des Porengehaltes und der stereometrischen Einflußfaktoren wie folgt darstellen:

$$\int_0^{P_0} \frac{dP}{1-P} = \int_{\lambda_M}^{\lambda_K} \frac{d\lambda}{\lambda(\lambda_P - \lambda) \left[\frac{\cos^2 \alpha_x + \cos^2 \alpha_y}{\lambda + (\lambda_P - \lambda) F} + \frac{\cos^2 \alpha_z}{\lambda + (\lambda_P - \lambda)(1-2F)} \right]} \quad (53)$$

P = Porosität

λ_M = Wärmeleitfähigkeit der Matrix (UO_2)

λ_P = Wärmeleitfähigkeit des Dispergenten (Pore)

λ_K = Wärmeleitfähigkeit der porösen Keramik
($UO_2 + P$)

$$F = \frac{x^2 \cdot z}{2} \int_0^{\infty} \frac{dw}{(z^2 + w)(x^2 + w) \sqrt{z^2 + w}} =$$

Formfaktor, dessen Lösung nur das Achsenverhältnis Z/X der ellipsoiden Dispergenten enthält

$\cos \alpha_x, \cos \alpha_y, \cos \alpha_z$ = Richtungskosinusse der Ellipsoidachsen mit der Feldrichtung des Wärmeflusses

Mit Hilfe dieser Relation wird nun abgeschätzt, wie die Gestalt und Orientierung der Hohlräume die Wärmeleitfähigkeit der porösen Keramik beeinflussen. Hierzu werden folgende Hohlraumformen betrachtet:

unendlich dünne Scheibe ($F = 0$)

Kugel ($F = 0,33$)

unendlich langer Stab ($F = 0,5$)

Der Grenzwert unendlich dünne Scheibe liegt im Brennstoff nicht vor, ein radialer bzw. tangentialer Riß läßt sich als unendlich langer Stab interpretieren; die Poren besitzen in 1. Näherung Kugelgestalt. Das Verhältnis λ_P/λ_M wird zu 10^{-3} gewählt. Abb. 38 gibt die Abhängigkeit

der Wärmeleitfähigkeit von der Porosität bei statistischer Orientierung der Rotationsachsen (z-Achse) der Hohlräume zur Richtung des Wärmeflusses ($\cos^2 \alpha_x = \cos^2 \alpha_y = \cos^2 \alpha_z = 1/3$) wieder; die Hohlraumform wurde als Parameter gewählt. Der Übergang Pore-Riß ruft keine gravierenden Änderungen in den Absolutwerten hervor. Dies ändert sich merklich, wenn man die Orientierung der z-Achse zur Richtung des Wärmeflusses als Parameter zuläßt. In Abb. 39 ist die Wärmeleitfähigkeit als Funktion des Rißvolumenanteils dargestellt. Bei // Ausrichtung der z-Achse zur Feldrichtung des Wärmeflusses wird $\cos^2 \alpha_z = 1$, $\cos^2 \alpha_x = \cos^2 \alpha_y = 0$ und bei / Ausrichtung $\cos^2 \alpha_z = 0$, $\cos^2 \alpha_x = \cos^2 \alpha_y = 1/2$. Die Orientierung der Risse / zur Feldrichtung verursacht eine Abnahme der Wärmeleitfähigkeit nicht nur gegenüber Rissen mit statistischer Orientierung zur z-Achse, sondern auch gegenüber Porosität in Kugelgestalt. Bedeutender ist die Abweichung für die // Ausrichtung zum Feld. Auf einen konkreten Fall mit ca. 5 % Außenrißvolumen angewandt, bedeutet die radiale Ausrichtung der Risse eine Zunahme der Wärmeleitfähigkeit von ca. 7,5 % gegenüber einer statistischen Orientierung.

Will man die Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit vom Porenvolumen studieren, so gilt es, den Formfaktor der unterschiedlichen Porenformen zu bestimmen. Hierzu wurden 2 Brennstababschnitte mit verschiedenen aber typischen Porenverteilungen und Porenformen ausgewählt: L6-1 mit Linsenporen und 3-29-AG3 mit zigarrenförmig verlängerten Poren (siehe Abb. 40 a und b). Mit dem Gefügebildanalysator wurde das Verhältnis der Porendurchmesser in radialer zu dem in tangentialer Richtung gemessen und ebenfalls aufgetragen. Dieses Durchmesser Verhältnis ist identisch mit dem Achsenverhältnis z/x. L6-1 zeigt im Bereich der Randzone Werte geringfügig < 1 , im Bereich der beginnenden Porenwanderung (zigarrenförmige Poren) deutlich Werte > 1 und für die Linsenporen Werte um 0,5. 3-29-AG-3 zeigt in der Randzone ebenfalls Werte um 1 und in der Stengelkornzone (zigarrenförmige Blasen) Werte um 2,0. In der Randzone bedeutet das Verhältnis 1 nur, daß die Poren regellos verteilt sind, sagt aber nichts über die Gestalt der Poren aus. Unter Ausnutzung der Orientierung der Poren im zentralen Bereich des Querschnitts 3-29-AG-3 bedeutet das Verhältnis 2, daß die Poren in Form von Ellipsoiden der Hauptachsenverhältnisse 2:1 (z:x) vorliegen. Nicht quantitativ ausgewertete Axialschliffe bestätigen die Orientierung in radialer Richtung: Die Poren liegen in Form von Rotationsellipsoiden der Achsenverhältnisse n:1:1 (z:y:x) mit

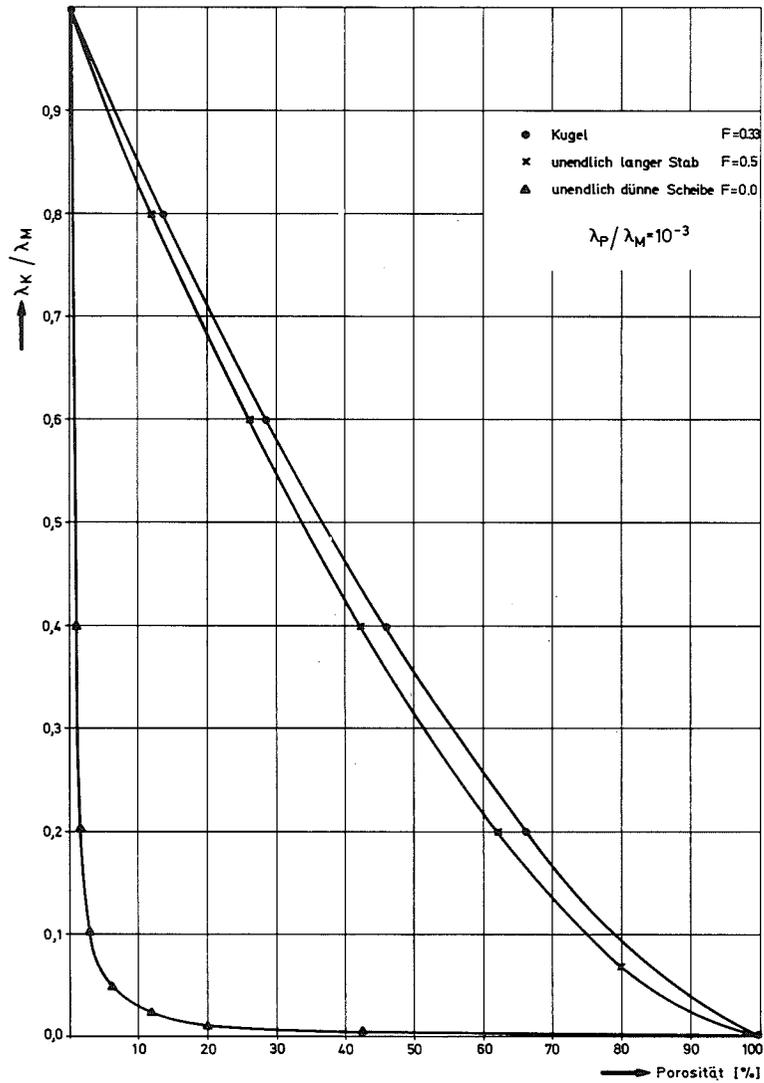


Abb. 38 Die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes als Funktion der Porosität mit der Hohlraumform als Parameter (statistische Orientierung der Rotations-Achse)

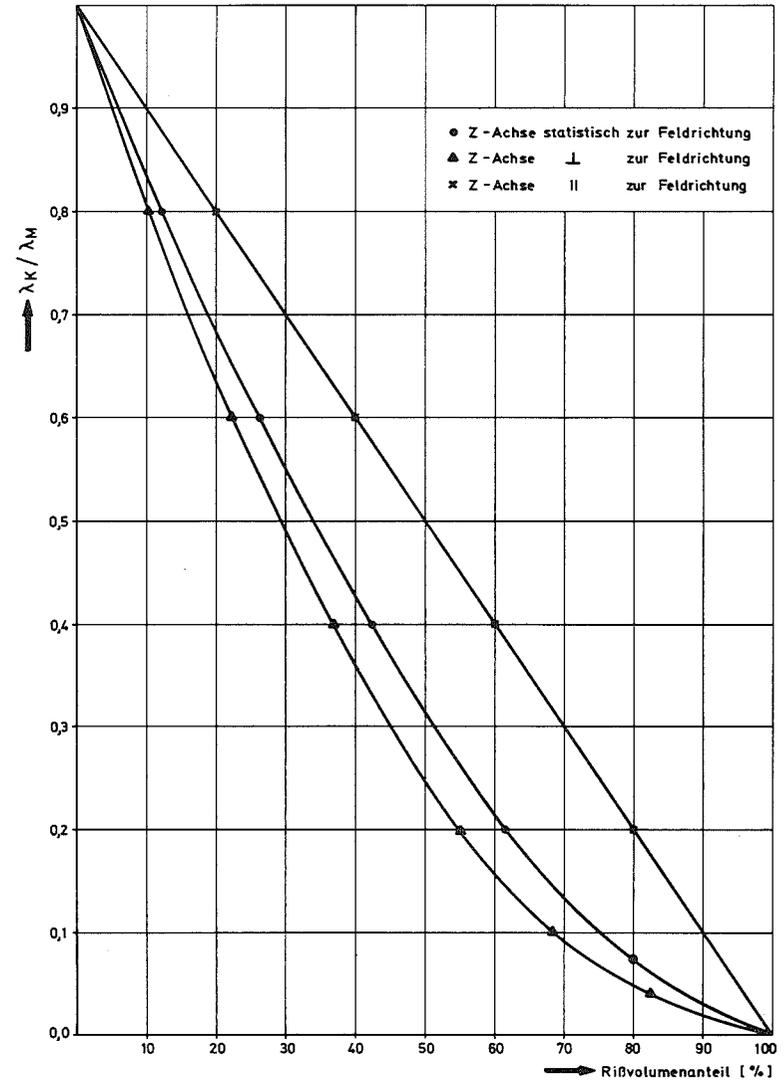
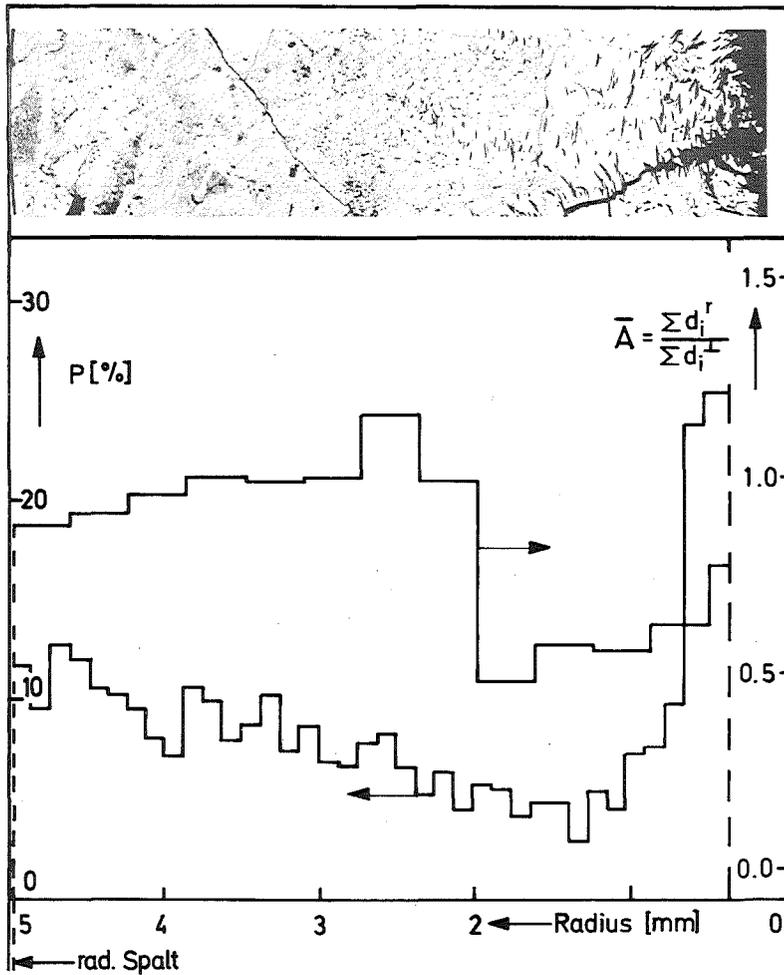
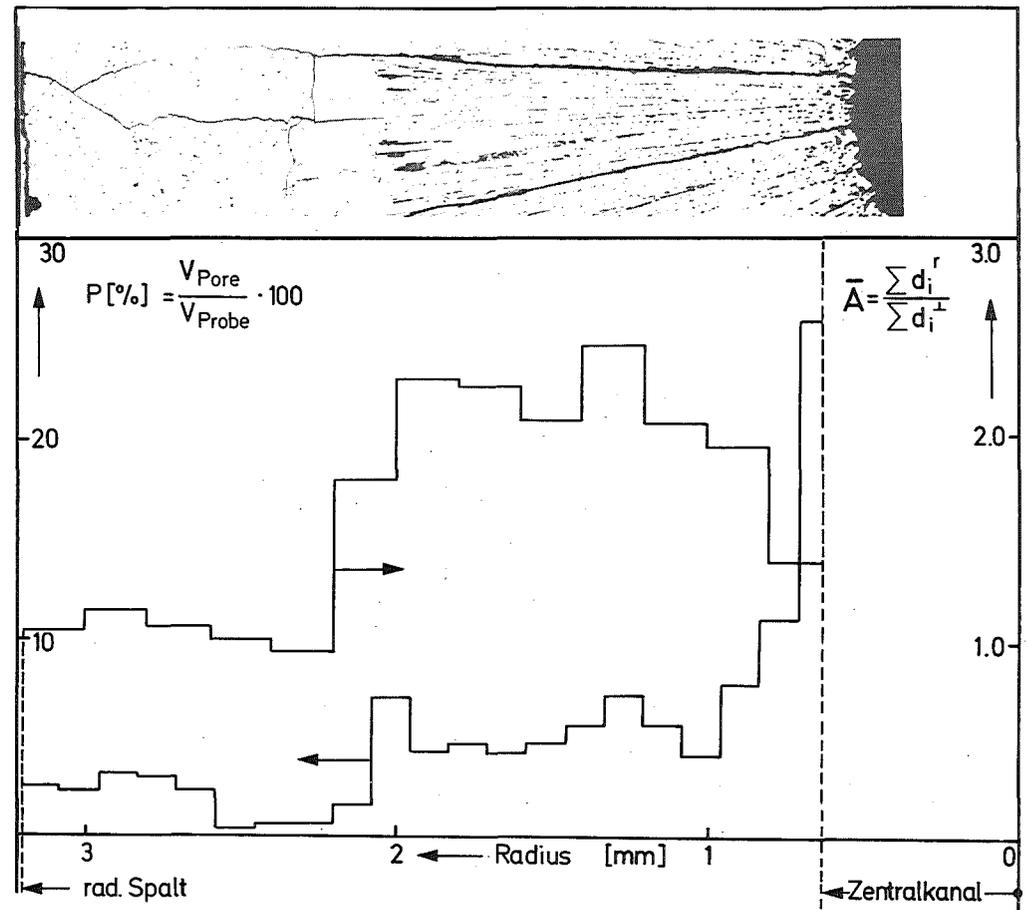


Abb. 39 Die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes als Funktion des Rißvolumenanteils mit der Orientierung der Risse als Parameter



a) Prüflingsabschnitt L6-1



b) Prüflingsabschnitt 3-29-AG-3

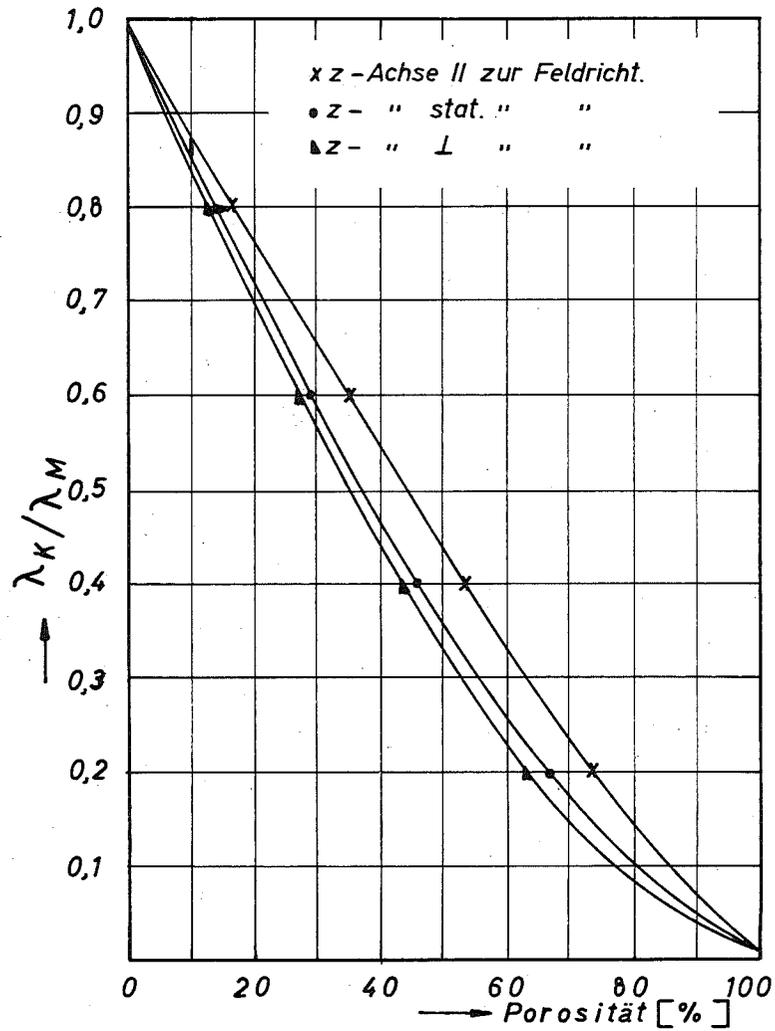
Abb. 40 Radiale Verteilung und mittleres Achsenverhältnis der Poren (Linsen- (a) und zigarrenförmige (b) Poren)

$n > 1$ vor. Die Linsporen in L6-1 werden als Rotationsellipsoide der Hauptachsenverhältnisse $1:m:m$ ($z:y:x$) mit $m > 1$ angenommen. Die Achsenverhältnisse $z/x \approx 0,5$ (Linsporen; $m = 2$) und $z/x \approx 2$ (zigarrenförmige Blasen; $n = 2$) ergeben Formfaktoren der Größe $F_{0,5} = 0,25$ und $F_{2,0} = 0,4$, die von denen der Grenzfälle ($F = 0,0$ und $F = 0,5$) deutlich verschieden sind. Berücksichtigt man die Wärmeleitfähigkeit des gasförmigen He in den Linsporen und der gasförmigen Spaltprodukte (15 % Kr und 85 % Xe) in den zigarrenförmigen Blasen, so werden die neuen Eingabedaten:

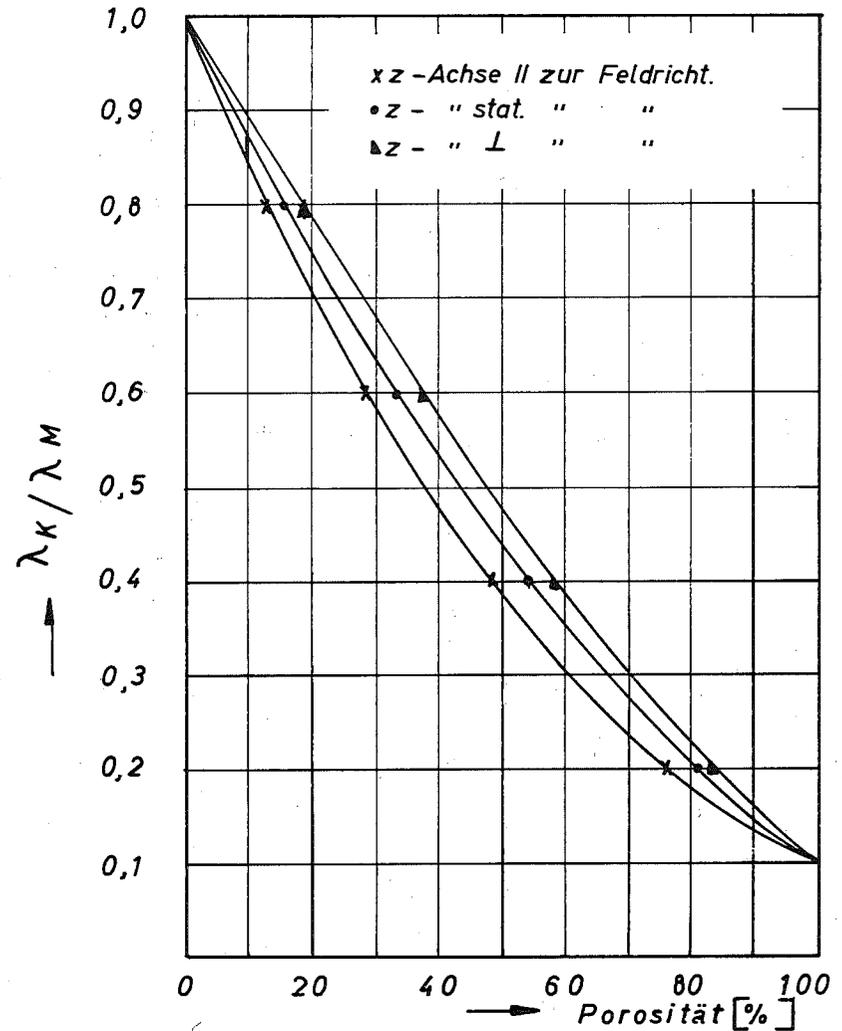
Linsporen:	$F = 0,25$	$\lambda_P/\lambda_M = 10^{-1}$
zigarrenförmige Poren :	$F = 0,4$	$\lambda_P/\lambda_M = 10^{-2}$

Mit diesen Werten wurden die Kurven in den Abb. 41 a) und b) errechnet. In beiden Darstellungen wurde der Kurvenverlauf für kugelige Poren weggelassen, da er nahezu mit dem entsprechenden der Linsporen und zigarrenförmigen Poren (bei statistischer Orientierung der z-Achse) übereinstimmte. Für den jeweils betrachteten Fall ist die Formabhängigkeit vernachlässigbar. Die Formabhängigkeit ist jedoch beim Übergang He-gefüllte Linspore zur spaltgasgefüllten "Zigarrenpore" nicht mehr vernachlässigbar. Bei den Nachbestrahlungsuntersuchungen interessiert der Porositätsbereich $P < 0,2$; hierdurch wird eine Gestaltsabhängigkeit merklich eingeengt: Für $P = 0,1$ beträgt sie nur noch 2 bis 3 %.

Die // Ausrichtung der z-Achsen liefert deutliche Abweichungen der Wärmeleitfähigkeitswerte von denen der statistischen Orientierung: Für $P = 0,1$ betragen diese für Linsporen 4 bis 5 % und für Zigarrenporen 3 bis 4 % (siehe Balken in Abb. 41). Die Berücksichtigung der Orientierung führt also bei Linsporen zu einer Abnahme und bei den Zigarrenporen zu einer Zunahme der Wärmeleitfähigkeitswerte. Der Übergang He-gefüllte \perp zur Feldrichtung orientierte Linspore (d.h. z-Achse // orientiert) zur spaltgasgefüllten // zur Feldrichtung orientierten Pore ergibt eine Wärmeleitfähigkeitserhöhung von ca. 6 % bei $P = 0,1$. Werden die theoretischen Abschätzungen experimentell bestätigt, so sollten die stereometrischen Einflußfaktoren bei der thermischen Analyse berücksichtigt werden.



a, Zigarrenförmige Poren
 ($F=0,4; \lambda_K/\lambda_M=0,01$)



b, Linsenporen
 ($F=0,25; \lambda_P/\lambda_M=0,1$)

Abb. 41 Die Wärmeleitfähigkeit als Funktion der Porosität mit der Orientierung der Poren als Parameter

8. Zusammenfassung und Schlußfolgerung

In dieser Arbeit konnte gezeigt werden, daß der radiale Leervolumengehalt in einer bestrahlten Brennstoff-Tablette durch quantitatives Auswerten von fotografischen Aufnahmen bestimmt werden kann. So wurde die Porositätsverteilung durch elektronische Auswertung von Detailaufnahmen mit einem Gefügebildanalysator und die Rißvolumenverteilung durch Vermessen von Querschnittsaufnahmen gewonnen. Die Fehler, bezogen auf den Meßwert, liegen in der Größenordnung von $\pm 10\%$. Die Genauigkeit reicht aus, um die gemessenen Porositätsprofile mit errechneten zu vergleichen und um physikalische Vorgänge separieren und quantitativ beschreiben zu können.

Der Vergleich mit modellmäßigen Rechnungen, hier durchgeführt mit dem Rechenprogramm SATURN-1a, brachte folgende Ergebnisse:

- Während der Bestrahlung wechselwirken eine Vielzahl verschiedener Prozesse, die Leervolumen verlagern. Die nachfolgenden Prozesse konnten separiert und quantitativ behandelt werden:
 - a) Wanderung von Poren und Blasen im Temperaturgradienten
 - b) Rißbildung, d.h. Umwandlung von Spalt- in Rißvolumen
 - c) Rißausheilung durch Bildung von Linsenporen
 - d) Radialer Transport des Spaltvolumens zum Zentralkanal
 - durch Rißbildung und Rißausheilung
 - durch Spaltgasschwellung
 - e) Strahlungsinduziertes Nachsintern bzw. Kriechen des schwellenden Brennstoffes in die Poren
 - f) Axialer Materialtransport im Bereich des Zentralkanals

- Sowohl die Restrukturierung (Stengelkornbildung) als auch die Verdichtung des Brennstoffes in den ersten Bestrahlungsstunden bzw. Tagen war an das Auftreten von Linsenporen gebunden. Es konnte gezeigt werden, daß die Wanderung der Linsenporen zum Brennstoff-Zentrum mit nachfolgender Zentralkanalbildung über den sog. Verdampfungs-Kondensations-Mechanismus erfolgt.

- Für die Bildung des Zentralkanals sind nicht nur radiale Leervolumenverlagerungen verantwortlich. Durch die Verdampfung des Brennstoffes an den heißesten und Kondensation an den kältesten Teilen des Zentral-

kanals stellt sich dessen Oberfläche entlang einer Isothermen ein. Porenwanderung in radialer Richtung und Verdampfung-Kondensation im Bereich des Zentralkanals sind für dessen Ausbildung konkurrierende Prozesse. Zeitlich gesehen sind sie von gleicher Größenordnung und führen, z.B. bei mittlerer Stableistung ($\sim 500 \text{ W/cm}$), schon nach wenigen Tagen zur endgültigen Form des Zentralkanals. Kleinere Radienvergrößerungen infolge längerdauernder Bestrahlung sind jedoch möglich.

- Mit zunehmendem Abbrand lassen sich die gemessenen Porositätsverteilungen nicht mehr über die Wanderung reiner Sinterporosität errechnen. Diskrepanzen im Bereich der Stengelkornzone können durch die Bildung von Spaltgasblasen und deren Wanderung zum thermischen Zentrum gedeutet werden.
- Die Stabquerschnitte maximaler Stableistung der Prüflinge Mol-7A zeigen in den Randzonen Porositätserniedrigungen, die durch eine negative Schwellrate von 0,6 bis 0,9 Vol-% / % Abbrand beschrieben werden können. Die Verdichtung konnte nicht eindeutig einem einzelnen Prozeß zugeschrieben werden: Sowohl ein strahlungsinduziertes Nachsintern als auch ein Kriechen des schwellenden Brennstoffes in die Poren hinein vermag den Effekt zu erklären.
- Infolge thermischer Zyklierung reißt der Brennstoff beim Überschreiten von Reißspannungen auf. Mit zunehmender Bestrahlungszeit können die Risse, z. B. durch Bildung von Linsenporen ausheilen. Die Spaltgasschwellung der inneren Brennstoffzone ($T > 1700^\circ\text{C}$) trägt zum Außenrißvolumen einen zusätzlichen Anteil bei. Die gemessenen Rißvolumenverteilungen lassen sich mit Einschränkung verifizieren. Zwischen der Rißtiefe der äußeren keilförmigen Risse und der Stableistung besteht ein linearer Zusammenhang. Die Rißausheiltemperatur wurde zu $\geq 1750^\circ\text{C}$ ermittelt.
- Ein Einfluß auf die Riß- und Porenvolumenverteilung durch zyklischen Bestrahlungsablauf wurde nicht festgestellt.
- Bestrahlungen im schnellen Fluß, verglichen mit solchen im thermischen Fluß, führen nicht zu systematischen Unterschieden bezüglich der Porenwanderung und Rißbildung. Infolge der konstanten Leistungsdichteverteilung über den Brennstoffradius wird lediglich die Zentraltemperatur erhöht, welches zu einem schnelleren Ablauf der Leervolumenverteilung führt.

- Erfolgt die Bestrahlung eines Brennstabes mit einem axialen Stableistungsprofil, so scheint die Leervolumenverteilung nach der Bestrahlung eine Funktion der vor dem Temperatúrausgleich herrschenden Zentraltemperatur zu sein. Der Zentralkanalradius läßt sich dann nur unter Berücksichtigung axialer Materialtransporte errechnen.
- Aus Leervolumenbilanzen lassen sich Verlängerungen der Brennstoffsäule berechnen.

Der Vergleich mit den modellmäßigen Rechnungen liefert auch für den Anwendungsbereich des Rechenprogrammes SATURN-la einige Aussagen:

- Für kurze Bestrahlungszeiten kann das Programm, da sowohl die gemessene Riß- als auch die Porenvolumenverteilungen verifiziert werden konnten, ohne Bedenken benutzt werden.
- Für lange Bestrahlungszeiten ist das Programm SATURN-la in der jetzigen Version nur bedingt verwendbar, da es keine Ansätze für das strahlungsinduzierte Nachsintern bzw. für das Heißpressen enthält. Auch ist SATURN-la für eine Brennstoffscheibe ausgelegt, so daß sich keine axialen Materialtransporte berechnen lassen.

Da die Programmeingabedaten bis jetzt noch mit verhältnismäßig großen Fehlern behaftet sind, läuft ein Vergleich mit der Theorie immer auf ein Anpassen an das Experiment hinaus. Dieser Zustand kann nur durch vorzüglich instrumentierte Bestrahlungsexperimente überwunden werden. Zu den unsicheren Eingabedaten gehören vor allem die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes und die Wärmeübergangszahl zwischen Brennstoff und Hülle. Mit den hier benützten Eingabedaten ergab die Wärmeübergangszahl $h = 0,6 \text{ W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$ für den Brennstoff $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ die beste Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie.

Für eine Auslegung von Schnell-Brüter-Brennstäben können folgende Feststellungen getroffen werden:

- a) Der radiale Spalt braucht nur die thermische Ausdehnung des Brennstoffes aufzunehmen. Ein weiterer Anteil wird über die Spaltgasswellung in den Zentralkanal verlagert.

- b) Die Ausbildung des Zentralkanals durch die Porenwanderung ist für die Brennstäbe nicht lebensdauerbegrenzend. Sie ist im Gegenteil von Vorteil, da nach der Ausbildung, die mit einer Zentraltemperaturabsenkung verbunden ist, die Stabileistung erhöht werden kann.

- c) Daß die Verlagerung des Brennstoffes zur Hülle letztthin ein lebensdauerbegrenzender Vorgang ist, kann nach den Ergebnissen dieser Arbeit nicht endgültig verneint werden. Hier muß die Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle, insbesondere der korrosive Angriff der Hülle sowie Ratcheting-Effekte und der Druckaufbau miteinbezogen werden. Dies zu klären bedarf es einer Verformungs-Spannungs-Analyse und gezielter Bestrahlungsexperimente.

Literatur

- [1] R.S. Barnes, D.J. Mazey
The migration and coalescence of inert gas bubbles in metals
Proc. Roy. Soc. A 275 (1963) 47
- [2] R.S. Barnes, D.J. Mazey
Report AERE-R 4223 (1963)
- [3] R.M. Cornell, G.K. Williamson
The Behaviour of Fission Product Gases in Uranium Dioxide
J. Nucl. Mat. 17 (1965) 200
- [4] S.C. Weaver
He Gas Bubble Migration in UN in a Temp. Gradient
ORNL-TM-2016 (1967)
- [5] E.G. Selleck, M.A. Decrescente
Fission Gas Migration Studies in Uranium Carbide
FWAC-476 (1965)
- [6] P.G. Shewmon
The Movement of Small Inclusions in Solids by a Temp. Gradient
Trans. Met. Soc. AIME 230 II (1964) 1134
- [7] G.W. Greenwood, M.V. Speight
An Analysis of the Diffusion of Fission Gas Bubbles and Its
Effect on the Behaviour of Reactor Fuels
J. Nucl. Mat. 10 (1963) 140-144
- [8] R.S. Barnes, R.S. Nelson
"Theories of Swelling and Gas Retention in Reactor Materials"
in "Radiation Effects"
Symp. held in Asheville, North Carolina, Sept. 1965, W.F. Sheely,
Ed. p. 225 - 267
Metallurgical Society Conferences Volume 37, Gordon and Breach,
Science Publishers, Inc., New York, 1967
- [9] M.V. Speight
The Migration of Gas Bubbles in Material Subject to a Temperature
Gradient
J. Nucl. Mat. 13, 2 (1964) 207 - 209
- [10] J. Biersack
Über die Spaltgasabgabe zylindrischer UO_2 -Sinterkörper
HMI-B49
- [11] J. Biersack
Blasenwanderung und Spaltgasabgabe aus UO_2
Nukleonik 8, 8 (1966) 439 - 442
- [12] E.E. Gruber
On the Theory of Migration and Coalescence of Bubbles in Solids
ANL-7079 (1965)

- [13] E.E. Gruber
Calculated Size Distributions of Gas Bubble Migration and
Coalescence in Solids
J. Appl. Phys. 38, 1 (1967) 243 - 250
- [14] F.A. Nichols
Behaviour of Gaseous Fission Products in Oxide Fuel Elements
WAPD-TM-570
- [15] F.A. Nichols
Movement of Pores in Solids
J. Metals 21 (1969) 19 - 27
- [16] H. R. Warner, F. A. Nichols
A Statistical Fuel Swelling and Fission Gas Release Model
WAPD-T-2226 und Nucl. Appl. Techn. 9 (1970) 148 - 166
- [17] A.D. Wapham
Electron Microscope Observation of the Fission Gas Bubble
Distribution in UO_2
Nucl. Appl. 2 (1966) 123 - 130
- [18] A. M. Ross
Irradiation Behaviour of Fission Gas Bubbles and Sintering Pores
in UO_2
J. Nucl. Mat. 30 (1969) 134
- [19] R.M. Cornell, M.V. Speight, B.C. Masters
The Role of Bubbles in Fission Gas Release From UO_2
J. Nucl. Mat 30 (1969) 170 - 178
- [20] D.J. Clough, J.R. Findlay, R.S. Nelson, J.B. Rich, J.B. Sayers,
A.D. Wapham
Symp. Rad. Damage in Reactor Materials, Wien 2 (1969) 313
- [21] M. Coquerelle, L. Koch, C. Ronchi
Study of the Fission Gas Behaviour by Gas Analysis and Electron
Microscopy
ANS-Meeting, Fast Reactor Fuel and Fuel Elements, p. 411,
Karlsruhe 1970
- [22] R.S. Nelson
The Stability of Gas Bubbles in an Irradiation Environment
J. Nucl. Mater. 31 (1969) 153 - 161
- [23] C.C. Dollins, H. Ocken
A Fission Gas Swelling Model Incorporating Re-Solution Effects
Nucl. Appl. and Techn. 9, (1970) 141 - 147
- [24] H.J. Matzke, C. Ronchi
Spaltgasverhalten in theoretisch dichtem Brennstoff
Beitrag in KFK 1400 (1971), S. 127
- [25] P.G. Shewmon
Diffusion in Solids
Mc Graw-Hill Book Comp., Inc., New York (1963)

- [26] H.S. Carslaw, J. C. Jaeger
Conduction of Heat in Solids,
2nd. Ed., S. 426, Oxford University Press, London 1959
- [27] F.A. Nichols
Kinetics of Diffusional Motion of Pores in Solids
J. Nucl. Mat. 30 (1969) 143 - 165
- [28] H. Hoffmann
Wanderung der Herstellungsporen
Beitrag in KFK 1400 (1971), S. 161 - 176
- [29] W.M. Robertson
Surface Diffusion of Oxides
J. Nucl. Mat. 30 (1969) 36 - 49
- [30] R. Lindner, F. Schmitz
Diffusion von U-233 in Urandioxid
Zeitschr. f. Naturf. 16a (1961) 1373
- [31] E.H. Kennard
"Kinetic Theory of Gases"
Mc Graw-Hill Book Co., Inc. New York, 1938, S. 194
- [32] C.A. Alexander, J.S. Ogden, G.W. Cunningham
Thermal Stability of Zirkonia - and Thoria - Base Fuels
BMI-1789 (1967)
- [33] M. Bober, C. Sari, G. Schumacher
Redistribution of Plutonium and Uranium in Mixed (U,Pu) Oxide
Fuel Materials in a Thermal Gradient
J. Nucl. Mat. 39 (1971) 265 - 284
- [34] F.A. Nichols
Pore Migration in Ceramic Fuel Elements
J. Nucl. Mat. 27 (1968) 137-146
- [35] F. A. Nichols
Theory of Columnar Grain Growth and Central Void Formation in
Oxide Fuel Rods
J. Nucl. Mat. 22 (1967) 214 - 222
- [36] D.R. De Halas
The Shape of Migrating Voids
J. Nucl. Mat. 23 (1967) 118 - 120
- [37] P.F. Sens
The Kinetics of Pore Movement in UO₂ Fuel Rods
J. Nucl. Mat. 43 (1972)
- [38] H. Kämpf, H. Elbel, F. Depisch
Die Behandlung des mechanischen und thermischen Verhaltens von
Brennstäben in SATURN-1
KFK 1477 (1971)
- [39] H. Kämpf, H. Elbel, F. Depisch
Das SATURN-1a-Rechenprogramm für Brennstäbe
KFK 1575 (1972)

- [40] Brennstabmodelltheorie - Modelle und Materialdaten
zusammengestellt von H. Kämpf, H. Elbel, K. Kummerer
KFK 1400 (1971)
- [41] H. Beißwenger
Die Auslegung und Durchführung von Brennelement-Bestrahlungs-
experimenten
Beitrag in KFK 700 (1967) XI 1 - 28
- [42] H. Kämpf
Einfluß der inneren Geometrie auf die radiale Temperatur-
verteilung von Schnellbrüter-Brennelementen
KFK 751 (1968)
- [43] H. Kämpf
"Allgemeine Spaltgleichung" für den Wärmedurchgang Brennstoff-
Hülle in Kernbrennelementen mit Tablettenbrennstoff
KFK 604 (1967)
- [44] H. Kämpf, G. Karsten
The SATURN Code
A Theoretical Analysis of Fuel Pin Behaviour and Fuel Void
Dynamics
KFK 1088 (1969)
- [45] H.E. Schmidt
Die Wärmeleitfähigkeit unbestrahlter keramischer Kernbrennstoffe
Beitrag in KFK 1400 (1971) S. 227 - 245
- [46] G. Sari, V. Tebaldi, K. Pithan:
Keramografie von Uran-Plutonium-Oxiden
Prakt. Metallographie 6 (1969) 556 - 564
- [47] H. Hoffmann, W. Hellriegel, K. Spieler
Radiale Porenverteilung im bestrahlten Brennstoff
Tagungsbericht "Reaktortagung Bonn" S. 574 - 577 (1971)
- [48] M. Delesse
Annales des Mines 13 (1848) 379
- [49] D. Freund, W. Schikarski
Der elektrisch geheizte UO_2 -Brennstab
KFK-Bericht 1031 (1970)
- [50] H. Hoffmann, A. Gerken, D. Geithoff
Kurzzeitbestrahlung oxidischer Brennstab-Prüflinge der FR 2-
He-Loop-Versuchsgruppe 2
Auslegung - Herstellung - Bestrahlung - Nachuntersuchung - Auswertung
KFK 1521 (1973)
- [51] G. Engelhardt, H. Hoffmann
Mechanische Eigenschaften von UO_2
KFK 729 (1968)
- [52] H.E. Schmidt
Experimentelle Befunde zum Wärmeübergang zwischen Brennstoff
und Hülle
Beitrag in KFK 1400 (1971) S. 199 - 218
- [53] H. Hoffmann, W. Hellriegel
Radiale Porenverteilung kurzzeitig bestrahlter Brennstab-
Prüflinge
Atomwirtschaft-Atomtechnik 6 (1972) S. 317 - 318

- [54] J.-C. Janvier, B. de Bernardy de Sigoyer, R. Delmas
CEA-R 3358
- [55] H. Hausner, R.C. Nelson
Correlation of UO_2 Microstructures from In-Pile and Out-of-
Pile Experiments
GEAP-4535 (1964)
- [56] V.B. Lawson, J.R. Mc Ewan
AECL-994
- [57] A.R. Jeffs
Oxygen: Metal Ratio Effects in $(U,Pu)O_2$ Fuels
AECL-3690 (1970)
- [58] J.R. Askew, F.J. Fayers, P.B. Kemshell
J. Brit. Nucl. Energy Soc. 5 (1966) 564
- [59] K. Kummerer, D. Geithoff, P. Weimar
Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung des UO_2 - PuO_2 -Brenn-
stab-Bündels Mol-7A
KFK 1522 (1972)
- [60] W. Chubb, R.F. Hilbert, V.W. Storhok, D.L. Keller
Fission Gas Swelling of Refractory Nuclear Fuels
Mat. Sci. Eng. 9 (1972) 293
- [61] D. Brucklacher, W. Dienst, F. Thümmel
Proc. Int. Meeting Fast Reactor Fuel and Fuel Elements, GfK
Karlsruhe 1970, S. 343
- [62] E. Wait, Beitrag in
Some Limiting Aspects of UO_2 Performance
TRG 1937 (S), 1970, J.B. Ainscough (ed.)
- [63] W.K. Barney, W. E. Seymour
in "Uranium Dioxide", J. Belle (ed.), S. 547; 1961
- [64] B.R.T. Frost, E. Wait
Irradiation Experiments of Plutonium Fuels for Fast Reactors
Symp. on Plutonium as a Reactor Fuel, Brüssel 1967
- [65] H. Kleykamp, H.-D. Gottschalg, G. Halm
Nachbestrahlungsuntersuchungen mit der Mikrosonde am Bestrahlungs-
experiment Mol-7A
unveröffentlicht, KFK demnächst
- [66] R.W. Ohse, W.M. Olson
Evaporation Behaviour of Substoichiometric $(U,Pu)O_2$
Eur 4633 e
und 4. th. Int. Conf. on Plutonium and Other Actinides
Oct. 5-9, 1970, Santa Fe, New Mexico, USA
- [67] J.E. Battles, W.A. Shinn, P.E. Blackburn, R.K. Edwards
A Mass Spectrometric Investigation of the Volatilization Behaviour
of $(U_{0,8}Pu_{0,2})O_{2-x}$
Proc. 4 th. Int. Conf. on Plutonium and Other Actinides
Santa Fe, New Mexico, Oct. 5-9, 1970

- [68] M.H. Rand, T. L. Markin
Thermodynamics of Nucl. Materials
Proc. IAEA Symp. Wien (1967) 637
- [69] M. Bober, G. Schumacher
Advances in Nucl. Science Technology
Vol. 7, Chapt. II, Academic Press New York 1970
- [70] S. Chapman, T.G. Cowling
The Mathematical Theory of Non-Uniform Gases
Cambridge, At the University Press 1953, p. 245
- [71] CRC Handbook of Chemistry and Physics
F-116, E-147, 46 Ed. 1965-1966
- [72] G. Schumacher
Entmischung von Uran und Plutonium in oxidischen Kernbrennstoffen unter Einwirkung eines Temperaturgradienten
Ext. Bericht INR-4170-27 (1970)
- [73] J.D'Ans, E.Lax
Taschenbuch für Chemiker und Physiker
Springer 1967
- [74] M. Bober, C. Sari, G. Schumacher
Redistribution of Uranium and Plutonium During Evaporation Processes in Mixed Oxide Fuel
J. Nucl. Mat. 40 (1971) 341-345
- [75] J.D. Mc Clelland
in Powder Metallurgy (ed. W. Leszynski)
1961 New York and London, p. 157
- [76] D. Brucklacher, I. Alecu
In-Pile-Kriechversuche an porösem UO_2 - PuO_2 -Brennstoff
KFK 1272/3 (1972)
- [77] J.A. Turnbull, R.M. Cornell
J. Nucl. Mat. 37 (1970) 355
- [78] J.A. Turnbull, R.M. Cornell
J. Nucl. Mat. 41 (1971) 156
- [79] H. Aßmann, H. Stehle
Verdichtungseffekte in gesintertem UO_2
Reaktortagung Karlsruhe 1973
- [80] G. Ondracek, B. Schulz, F. Thümmeler
The Conductivity of Cermets
KFK 1282 (1970)
- [81] S. Nazare, G. Ondracek, F. Thümmeler
Relations between Stereometric Microstructure and Properties of Cermets and Porous Materials
KFK 1236 (1970)
- [82] G. Ondracek, B. Schulz
Zur Wärmeleitfähigkeit von Cermets und anderen mehrphasigen Werkstoffen (Teil I und II)
Ber. Dt. Keram. Ges. 48 (1971) S. 427 und S. 525