

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

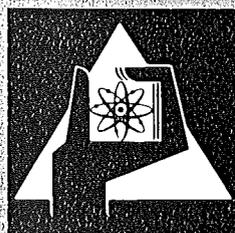
Juni 1977

KFK 2467

Institut für Material- und Festkörperforschung

**Untersuchungen zum Schwellen und  
Spaltgasverhalten in oxidischem Kernbrennstoff  
unter Neutronenbestrahlung**

H. Zimmermann



**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 2467

Institut für Material- und Festkörperforschung

Untersuchungen zum Schwellen und Spaltgasverhalten in  
oxidischem Kernbrennstoff unter Neutronenbestrahlung<sup>+</sup>

von

H. Zimmermann

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

<sup>+</sup>) Von der Fakultät für Maschinenbau der Universität  
Karlsruhe genehmigte Dissertation



## Kurzfassung

Urandioxid, das unter nahezu isothermen Bedingungen im Reaktor bestrahlt worden war, und U-Pu-Mischoxid aus Brennelementen mit hohen Temperaturgradienten wurden bezüglich der Schwellung durch die Einlagerung von Spaltprodukten in den Brennstoff und des Spaltgasverhaltens untersucht. Das  $UO_2$  wurde bei Temperaturen zwischen 1300 und 2000 K in zwei Kapseltypen bestrahlt, in einer druckfreien Kapsel zur Bestimmung der freien Schwellung und in einer Druckstempelkapsel. Der Schwellbetrag wurde aus den Volumenänderungen des Brennstoffes während der Bestrahlung und aus Dichtemessungen vor und nach Bestrahlung ermittelt. Die Spaltgas Mengen wurden in drei Stufen als freigesetztes Spaltgas, als in Blasen und Poren zurückgehaltenes Spaltgas und als in sehr kleinen intragranularen Blasen und im Kristallgitter zurückgehaltenes Spaltgas bestimmt.

Das zurückgehaltene Spaltgas erreicht in Brennstoffbereichen mit Temperaturen bis zu 1250 K Konzentrationen von 1,2 bis  $1,6 \cdot 10^{-2}$  Gasatomen pro U- und Pu-Atom. Mit steigender Temperatur nimmt diese Konzentration ab. Bei Temperaturen über 1900 K betrug die Konzentration des Spaltgases ca.  $2,5 \cdot 10^{-3}$  in  $UO_2$  nach isothermer Bestrahlung und ca.  $2 \cdot 10^{-4}$  Gasatome pro Metallatom in Mischoxid mit einem hohen Temperaturgradienten. Theoretische Abschätzungen der Spaltgasrückhaltung stimmen mit den gemessenen Konzentrationen überein.

Die Schwellung des oxidischen Brennstoffes wird wesentlich vom Verhalten des zurückgehaltenen Spaltgases bestimmt. Bei hohen Temperaturen ist die Spaltgasschwellung sehr hoch, erreicht jedoch auch schnell einen Sättigungswert. Bedingt wird dieses Verhalten durch die schnelle Ausscheidung des Spaltgases in Korngrenzenblasen und gegenseitige Berührung derselben. Dadurch kommt es zu einer raschen Spaltgasfreisetzung. Die maximale Spaltgasschwellung bei 2000 K beträgt ca. 20 Vol.-% für den Fall, daß keine merkliche Blasenwanderung auftritt. Bei 1250 K beträgt sie ca. 5%. Nach Erreichen des Sättigungswertes der Spaltgasschwellung wird die weitere Abbrandabhängigkeit der

Schwellung nur noch von den festen Spaltprodukten verursacht. Für niedrige Temperaturen wurde die Schwellrate durch feste Spaltprodukte zu ca. 0,65% pro % Abbrand abgeleitet. Mit steigender Temperatur und zunehmendem Abbrand nimmt sie wegen der Freisetzung flüchtiger Spaltprodukte bis auf einen Minimalwert von 0,3% pro % Abbrand ab. Unter Druckbelastung wird die Schwellung herabgesetzt. Ursache hierfür ist in erster Linie eine beschleunigte Spaltgasfreisetzung von den Korngrenzen infolge von Verformungen des Brennstoffes. Unter diesen Bedingungen wird die maximale Spaltgasschwellung auch bei hohen Temperaturen auf einen Wert von ca. 7% begrenzt.

## Abstract

### Investigations on Swelling and Fission Gas Behaviour in Oxide Fuel under Neutron Irradiation

Uranium dioxide irradiated under nearly isothermal conditions and U-Pu mixed oxide irradiated in fuel pins with high temperature gradients were investigated with respect to fission gas behaviour and fuel swelling. The irradiations of the  $\text{UO}_2$  were carried out in two types of capsules, without any restraint in the first type and with strong radial restraint and axial loading in the other. The swelling was evaluated by measuring the volume changes of the fuel and by immersion density measurements before and after irradiation.

The amount of fission gas was measured in three steps as released fission gas, fission gas retained in bubbles and pores, and fission gas retained in the fuel matrix. This was done by the puncturing of the fuel rods or the capsules, by the grinding of the fuel, and by the chemical solution of the powdered fuel, respectively. The retained fission gas reaches concentrations of  $1.2$  to  $1.6 \cdot 10^{-2}$  gas atoms per uranium and plutonium atom in fuel regions with temperatures up to  $1250$  K. The concentration decreases with increasing temperatures. At temperatures above  $1900$  K the concentration of the retained gas is about  $2.5 \cdot 10^{-3}$  in  $\text{UO}_2$  under isothermal conditions and about  $2 \cdot 10^{-4}$  in mixed oxide with a high temperature gradient. Theoretical predictions of the fission gas retention are in agreement with the measured concentrations.

The behaviour of the retained fission gas determines primarily the swelling of oxide fuel. At high temperatures there is a high free swelling reaching very soon a saturation level due to the fast precipitation of fission gas into grain boundary bubbles, interlinking of these, and providing free paths for gas release. The maximum fission gas swelling without extensive bubble migration

is about 20% at 2000 K. It diminishes to about 5% at 1250 K. After reaching the peak value of fission gas swelling the burnup dependence of swelling is caused only by solid fission products. The swelling rate due to solid fission products was evaluated to 0.65% per % burnup at low temperatures. It decreases with increasing temperature to a minimum value of 0.3% per % burnup by release of volatile fission products. There is a decrease in swelling under restraint primarily caused by enhanced fission gas release from grain boundaries due to deformations of the fuel. Under restraint the maximum fission gas swelling is limited to about 7% even at high temperatures.

## Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung und Aufgabenstellung	1
2. Literaturübersicht	2
2.1 Spaltgase im Brennstoff	2
2.2 Feste Spaltprodukte im Brennstoff	6
2.3 Experimentelle Ergebnisse zur Schwellung	9
2.4 Experimentelle Ergebnisse zur Spaltgasfreisetzung und -rückhaltung	14
3. Versuche zum Schwellverhalten des $UO_2$	16
3.1 Probenmaterial	16
3.2 Bestrahlungskapseln	18
3.2.1 Kapsel zur Bestimmung der freien Schwellung	18
3.2.2 Druckstempelkapsel	21
3.3 Bestrahlungsbedingungen	25
3.4 Untersuchungsmethoden	25
3.4.1 Allgemeiner Überblick	25
3.4.2 Bestimmung der Brennstoffdichte	29
3.5 Untersuchungsergebnisse	35
4. Ergebnisse aus anderen Bestrahlungsexperimenten	38
4.1 $UO_2$ - $PuO_2$ -Mischoxidbrennstab-Bestrahlungen	38
4.2 $UO_2$ -Brennstab-Bestrahlungen	46
4.3 $UO_2$ -Cermet-Bestrahlungen	46
4.4 $UO_2$ - $PuO_2$ -Kriechproben-Bestrahlungen	48
5. Auswertung und Diskussion	49
5.1 Nachverdichtung des porösen Brennstoffes	49
5.1.1 Nachsinterung	49
5.1.2 Heißpressen	56
5.2 Spaltgasverhalten im Brennstoff	58
5.2.1 Gitterspaltgas	58
5.2.2 Porenspaltgas	64
5.2.3 Spaltgasfreisetzung	71
5.3 Cäsiumfreisetzung	77

5.4 Brennstoffschwellung	79
5.4.1 Schwellung in Abhängigkeit von Abbrand, Temperatur und Druck	79
5.4.2 Schwellung durch feste Spaltprodukte	82
5.4.3 Schwellung durch Spaltgase	88
6. Zusammenfassung und Schlußfolgerungen	91
Literatur	94

## 1. Einleitung und Aufgabenstellung

Die optimale Auslegung von Brennelementen für Kernreaktoren erfordert die genaue Kenntnis des Materialverhaltens aller Komponenten unter Neutronenbestrahlung. Die Lebensdauer eines Brennelementes wird begrenzt durch den Verlust der Dichtigkeit oder durch zu starke Verformung seiner Hülle infolge mechanischer oder chemischer Beanspruchung durch Brennstoff, Spaltprodukte und Kühlmittel bei gleichzeitiger Änderung der Hüllmaterialeigenschaften unter Bestrahlung und Temperatureinfluß. Wesentliche Ursachen der mechanischen Beanspruchung der Hülle während des Reaktoreinsatzes sind das Schwellen des Brennstoffes und der Aufbau eines Spaltgasdruckes im Brennelement.

Schwellen ist die Volumenzunahme eines Kernbrennstoffes unter Neutronenbestrahlung infolge der Einlagerung der bei der Kernspaltung entstehenden Spaltprodukte in den Brennstoff. Neben dem Schwellen können in den Brennstäben je nach Materialeigenschaften und Betriebsbedingungen noch andere das äußere Brennstoffvolumen verändernde Vorgänge ablaufen. So können Nachsinterung und Kriechen in die Herstellungsporosität unter dem Einfluß eines äußeren Druckes als volumenvermindernde Vorgänge auftreten. Als volumenvergrößernde Vorgänge kommen in Betracht: Riß-Rast-Mechanismen, Brennstoffverlagerung infolge Porenwanderung sowie örtliche Anhäufungen freigesetzter flüchtiger Spaltprodukte. Zur Abgrenzung von diesen Vorgängen wird die Schwellung definiert als die Volumenzunahme des 100% dichten Ausgangsmaterials. Die Schwellrate ist die auf die Einheit des Abbrandes bezogene Schwellung.

Die bisher vorliegenden experimentellen Ergebnisse zum Schwell- und Spaltgasverhalten oxidischer Kernbrennstoffe stammen überwiegend aus integralen Messungen an Brennstäben, in denen der Brennstoff hohen Temperaturgradienten ausgesetzt war und oft in festem Kontakt mit der Brennstabhülle stand. Mit dieser Arbeit wurde versucht, an hochdichtem  $UO_2$  Schwellungen und Spaltgasrückhaltungs- bzw. -freigabewerte auch unter fast isothermen Bedingungen und ohne Hüllwiderstand ("freie Schwellung") in Abhängigkeit von der Temperatur und vom Abbrand zu messen.

Die Versuchseinrichtungen wurden speziell für hohe Bestrahlungstemperaturen ausgelegt, um den Zusammenhang der Schwellung mit dem Spaltgasverhalten erfassen zu können, der durch die Bildung von Spaltgasblasen bestimmt wird und daher stark von der Temperatur abhängt. Bei einem Teil der Versuche wurde der Einfluß eines äußeren Druckes auf die Schwellung untersucht.

Zur Bestimmung der Schwellung aus den gemessenen Volumenänderungen muß die Nachverdichtung des porösen Brennstoffes durch bestrahlungsbedingte Nachsinterung und durch Heißpressen bei unter Druck stehenden Proben bekannt sein. Der Einfluß dieser Vorgänge wird theoretisch abgeschätzt. Die Analyse der Schwellraten erfordert die Kenntnis der Verteilung des Spaltgases im Brennstoff. Diese Verteilung des Gases auf Gitterplätzen und in sehr kleinen Blasen sowie in größeren Blasen, insbesondere an Korngrenzen, wird sowohl experimentell bestimmt als auch theoretisch abgeschätzt. Dabei wird auch die Spaltgasfreisetzung behandelt.

Die Diskussion des Schwellverhaltens erfolgt im Hinblick auf die Anteile der festen Spaltprodukte, des intragranularen Spaltgasgehaltes und der Spaltgasblasen an Korngrenzen. Dabei wird auch auf Ergebnisse aus Brennstabbestrahlungen Bezug genommen.

## 2. Literaturübersicht

### 2.1 Spaltgase im Brennstoff

Das Verhalten der Spaltgase in oxidischen Kernbrennstoffen wird seit Ende der fünfziger Jahre untersucht, wobei anfangs lediglich die Spaltgasfreisetzung interessierte, die als Diffusion einzelner Gasatome zu freien Brennstoffoberflächen gedeutet wurde /1/. Die Abbrandabhängigkeit der gefundenen Diffusionskoeffizienten führte zu der Erkenntnis, daß Wechselwirkungen zwischen Spaltgasatomen und Gitterdefekten bestehen ("defect trap model"). Das Auftreten von Spaltgasblasen im Brennstoff und die Beobachtung der Wanderung von Heliumblasen in Kupferfolien unter dem Einfluß eines Temperaturgradienten durch Barnes und Mazey /2/ hatte umfangreiche Untersuchungen zum Verhalten von Spaltgas-

blasen in Kernbrennstoffen zur Folge. In diesem Zusammenhang seien die grundlegenden Arbeiten von Greenwood und Speight /3/, Gruber /4/, Shewmon /5/, Barnes /6/ sowie Nichols /7/ genannt.

Nach den erwähnten Arbeiten läßt sich das Verhalten des Spaltgases im Brennstoff folgendermaßen beschreiben. Mit wachsender Spaltgaskonzentration werden Begegnungen diffundierender Gasatome immer wahrscheinlicher. Es wird angenommen, daß mindestens zwei Gasatome einen Blasenkeim bilden, der durch Aufnahme weiterer Gasatome zu einer Blase wächst, deren Innendruck  $p$  mit der Oberflächenspannung  $\gamma$  und einem eventuell vorhandenem äußeren Druck  $\sigma$  im Gleichgewicht steht. Es gilt

$$p = \frac{2\gamma}{r} + \sigma \quad (1)$$

$r$  Blasenradius

Die entstandenen Blasen haben eine Beweglichkeit

$$B = \frac{D_B}{kT} \quad (2)$$

$D_B$  Blasendiffusionskoeffizient

$k$  Boltzmann Konstante

$T$  absolute Temperatur

Diese Beweglichkeit befähigt sie zu einer ungerichteten thermischen Bewegung oder, unter dem Einfluß eines Energiegradienten, zu einer gerichteten Bewegung. Technisch am wichtigsten ist die Wanderung in einem Temperaturgradienten. Die beim Vorhandensein eines Temperaturgradienten auf eine Blase wirkende Antriebskraft ist gegeben durch

$$K_B = \frac{4\pi r^3}{3\Omega} K_A \quad (3)$$

Dabei sind  $\Omega$  das Volumen und  $K_A$  die Antriebskraft eines Matrixatoms. Für diese gilt nach Nichols

$$K_A = \frac{Q^*}{T} \left( \frac{dT}{dx} \right)_B \quad (4)$$

$Q^*$  Transportwärme

$\left( \frac{dT}{dx} \right)_B$  Temperaturgradient in der Blase

Die Blasenwanderungsgeschwindigkeit ist

$$v_B = B K_B. \quad (5)$$

Der Transport der Matrixatome zur kälteren Blasenseite führt zu einer Bewegung der Blase entgegen dem Temperaturgefälle. Als Transportmechanismen kommen Volumendiffusion, Oberflächendiffusion und Verdampfung-Kondensation in Betracht. Blasendiffusionskoeffizient und Transportwärme sind vom Bewegungsmechanismus abhängig. Für die Ableitung dieser Größen und die Formeln der Blasenwanderungsgeschwindigkeiten sei auf /8,9/, auf die anfangs erwähnte Literatur sowie auf /10-13/ verwiesen.

In Abb. 1 sind die Blasenwanderungsgeschwindigkeiten bei den drei Transportmechanismen in Abhängigkeit vom Radius für eine Temperatur von 2000 K und einen Temperaturgradienten von  $5 \cdot 10^3$  K/cm nach /8/ dargestellt. Bei Temperaturen unter 1600 K sind die Blasenwanderungsgeschwindigkeiten so klein, daß sie für die technisch wichtigen Vorgänge der Spaltgasfreisetzung und des Spaltgasschwellens nur eine untergeordnete Rolle spielen.

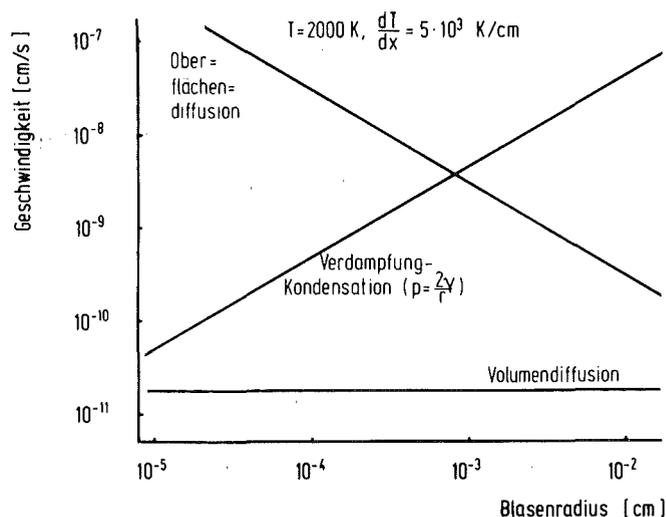


Abb. 1: Blasenwanderungsgeschwindigkeiten nach den drei Transportmechanismen als Funktion des Blasenradius nach /8/

Die Blasen werden bei ihrer Wanderung im Temperaturgradienten durch Versetzungen und Korngrenzen behindert. Erst wenn die Antriebskräfte die Rückhaltekräfte der Versetzungslinien oder der Korngrenzen überschreiten, können sich die Blasen von ihren Hindernissen losreißen. Die maximale Rückhaltekraft einer Versetzungslinie ist

$$K_{RV} = \mu b^2 \quad (6)$$

und die einer Korngrenze ist

$$K_{RK} = \pi r \gamma_K \quad (7)$$

$\mu$  Schermodul

$b$  Burgers-Vektor

$\gamma_K$  Korngrenzenenergie

Die Wiederauflösung von Spaltgasblasen unter Bestrahlung wurde erstmals von Whapham und Sheldon beobachtet /14/. Sie unterwarfen  $UO_2$ , das nach Bestrahlung und einer darauffolgenden Glühbehandlung Spaltgasblasen mit Durchmessern von 100 bis 300 Å enthielt, einer erneuten Bestrahlung bei tiefer Temperatur und stellten anschließend fest, daß die Blasen verschwunden waren. Die Wiederauflösung erfolgt durch Kollisionen energiereicher Teilchen, hauptsächlich Spaltfragmente, mit Spaltgasatomen in der Blase /15,16,17/. Erhalten die gestoßenen Gasatome dabei eine hinreichend hohe Energie, um in das Brennstoffgitter eindringen zu können, so bewirkt das die Auflösung oder eine Verkleinerung der Blasen und hat zur Folge, daß sich ein Teil des Spaltgases in bestrahlungsbedingter Lösung befindet. Die ständige Wiederholung dieses Auflösungsprozesses bei gleichzeitiger Neuaufnahme von Spaltgasatomen durch die Blasen führt zu einer Gleichgewichtsgröße der intragranularen Blasen, die abhängig ist von der Spaltungsrate und vom Gasatomdiffusionskoeffizienten und damit von der Bestrahlungstemperatur. Theoretische Betrachtungen zur Wiederauflösung ergaben Blasengrößen unter 40 Å Durchmesser und Blasendichten in der Größenordnung von  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$  /18,19,20/. Diese Werte sind in guter Übereinstimmung mit experimentellen Befunden /21-24/. Zwischen Blasenradius  $r$  /cm/ und Blasenkonzentration  $C_B$  / $\text{cm}^{-3}$ / fand Turnbull /22/ den Zusammenhang  $C_B r^2 \approx 2,5 \cdot 10^3$ .

Eine Folge der Blasenbewegungen ist das Zusammentreffen und Koalieren von Blasen. Dieser Vorgang ist mit einer Vergrößerung des Blasenvolumens verbunden. Bei zwei gleichgroßen Blasen, deren Gasinnendruck mit der Oberflächenspannung im Gleichgewicht steht, beträgt die prozentuale Zunahme des Blasenvolumens nach dem Koalieren und dem Einstellen des Gleichgewichtsdruckes 41%.

Bevorzugte Orte für die Ansammlung des Spaltgases sind Korngrenz-  
enzwickel, an denen sich bei hinreichend hohem Gasgehalt die Blasen zu durchgehenden Tunneln vereinigen können, die, wenn sie mit freien Oberflächen in Verbindung kommen, zur schnellen Spaltgasfreisetzung beitragen. Beere und Reynolds /25/ sagten auf Grund von Energiebetrachtungen an einem geometrisch vereinfachten Modell des Brennstoffgefüges eine Schwellung von 8 bis 27% durch Tunnelbildung voraus. Bei diesem Modell steht der Gasdruck in den Tunneln mit der Oberflächenspannung im Gleichgewicht. Nach der Gasfreisetzung brechen die Tunnel wieder zusammen und bauen sich dann erneut auf. Demgegenüber zeigten Turnbull und Tucker /26/, daß bei einem hinreichend schnellen Gaszustrom zu den Tunneln kein vollständiges Zusammenbrechen dieser offenen Porosität erfolgt. Turnbull und Tucker errechneten für einen äußeren Druck von 1,5 MPa eine Schwellung von 15% infolge Tunnelbildung. Oberhalb dieses Druckes bildet sich keine offene Porosität mehr.

## 2.2 Feste Spaltprodukte im Brennstoff

Die festen Spaltprodukte kann man auf Grund ihres Zustandes, der bestimmt wird von der Stabilität ihrer Oxide, und ihrem Verhalten im  $UO_2$  und im  $(U,Pu)O_2$  in Anlehnung an /27/ folgendermaßen einteilen:

- Spaltprodukte, die sich vorwiegend als Oxide im Brennstoff lösen: Sr, Zr, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd.
- Spaltprodukte, deren Oxide nichtmetallische Einschlüsse bilden. Es sind das Ba und zum Teil Sr, die als Zirkonate auftreten, und, je nach Sauerstoffpotential des Brennstoffes, Mo.
- Spaltprodukte, die in elementarer Form vorliegen und metallische Einschlüsse bilden: Ru, Rh, Pd und teilweise Mo.

- Flüchtige Spaltprodukte: Br, J, Rb, Cs, Se, Te.

Die Seltenen Erden oxydieren normalerweise zum Sesquioxid. Diese Oxide sind thermodynamisch sehr stabil und bilden mit  $UO_2$  feste Lösungen. Bei Mikrosondenuntersuchungen wurden die Seltenen Erden, mit Ausnahme des Ce, homogen in der Matrix verteilt gefunden /28/. Ce tritt häufig in Ba-reichen Einschlüssen auf, vermutlich bedingt durch den Ba-Vorgänger des Ce-140 /29/.

Ein Teil des Zr liegt als  $ZrO_2$  vor, das ebenfalls im Brennstoffgitter löslich ist. Es wurde bei Mikrosondenuntersuchungen auch an fast jeder Stelle entdeckt /28/. Ferner wurde es gefunden in Ba-haltigen oxidischen Einschlüssen /28,30/, die hauptsächlich in der Kornwachstumszone und Säulenkristallzone auftreten und im wesentlichen aus Ba mit Zusätzen von Ce, Sr und Zr bestehen. Diese Elemente liegen hier als Oxide oder Zirkonate vor. Wait, zitiert in /31/, nahm an, daß nur Ba als Zirkonat auftritt. Nach /27/ treten dagegen sowohl Ba als auch Sr als Zirkonate auf. Auch Bramman et al. /32/ vermuten, daß Ba, Sr und Zr als Oxide kombinieren und stabilere Zirkonate bilden.

Die Elemente Mo, Ru, Tc, Rh und Pd bilden metallische Ausscheidungen. Je nach den Betriebsbedingungen des Brennstoffes erreichen diese Einschlüsse Größen bis zu  $10\ \mu\text{m}$  oder sogar darüber. In Brennstäben, in denen zentrales Schmelzen auftrat, wurden metallische Spaltprodukteinschlüsse bis zu einem Durchmesser von 1 mm beobachtet /32/. Die Zusammensetzung dieser Ausscheidungen variiert mit der Zusammensetzung des Brennstoffes, d.h. mit der Spaltproduktausbeute und dem O/M-Verhältnis; denn Mo oxydiert zu  $MoO_2$ , bevor der Brennstoff wesentlich überstöchiometrisch wird. Die Dichte metallischer Ingots aus hochabgebranntem Brennstoff ergab sich zu  $11,3\ \text{g/cm}^3$  in  $UO_2$  und  $12,2\ \text{g/cm}^3$  in Mischoxid /33/. Der Wert  $12,2\ \text{g/cm}^3$  ist unsicher, da der untersuchte Einschluß sehr klein war, wegen der höheren Ausbeute an Ru, Rh und Pd bei Pu-Spaltung ist jedoch auch ein höherer Wert bei Mischoxid zu erwarten. Der Schmelzpunkt von Legierungen, deren Zusammensetzungen denen der weißen Einschlüsse entspricht, liegt zwischen 2070 und 2170 K /32/. Die metallischen Ausscheidungen sollten also im Zentrum eines Brennstabes unter Betriebsbedingungen flüssig sein.

Die flüchtigen Spaltprodukte sind die Elemente, deren Siedepunkte unter den während des Reaktorbetriebs auftretenden Brennstofftemperaturen liegen. Sie verdampfen aus den wärmeren Brennstoffzonen und kondensieren in den kälteren Außenzonen, vornehmlich an der Hüllwand eines Brennelementes, wo sie teilweise mit Hüllrohrkomponenten oder anderen Spaltprodukten reagieren. Die Alkalimetalle Cs und Rb können Jodide bilden; diese scheinen sich jedoch leicht zu zersetzen /31,34,35/. In kälteren Brennstoffzonen wird Cs häufig in oxidischen Phasen gefunden /30,36/. Die Bildung von Cäsiumuranat, die in Mischoxidbrennstäben häufig am Beginn der Brutstoffzone eintritt und eine Folge axialer Cäsium- und Sauerstoffwanderung ist, kann zu örtlichen Volumen zunahmen führen /38,39/, die wesentlich größer sind als durch die örtliche Schwellrate bedingt. Eine weitere oxidische Phase ist Cäsiummolybdat, das in Mischoxidbrennstäben vorwiegend in der Porositätszone und im Spalt beobachtet wurde /30/. Te wird vorwiegend in Rissen im äußeren Brennstoffbereich und an der Innenseite der Hülle angetroffen /40/, vereinzelt auch in metallischen Einschlüssen /28,40/. Jod wurde bei Mikrosondenuntersuchungen an Mischoxid hauptsächlich im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle als Bariumjodid gefunden /41/.

Von verschiedenen Autoren wurden Abschätzungen und Berechnungen zur Schwellrate durch die festen Spaltprodukte durchgeführt. Voraussetzungen für derartige Berechnungen sind Kenntnisse bzw. Annahmen über die Ausbeute der einzelnen Spaltprodukte, ihren Zustand, in dem sie im Brennstoff vorliegen, und ihren dadurch bedingten Volumenbedarf.

Wait, dessen Ergebnisse in /31/ zitiert werden, berechnete für  $UO_2$  eine Schwellrate von 0,52%/ Abbrand durch die festen Spaltprodukte, wobei er die Bildung von CsJ und CsBr sowie von  $MoO_2$  annahm. Barney und Seymour /42/ ermittelten eine Schwellrate von 0,86%/ Abbrand. Sie setzten voraus, daß Mo und Cs größtenteils in metallischer Form vorliegen und etwas  $MoO_2$  sowie CsJ und CsBr auftreten, wobei Br vollständig als CsBr, J nur teilweise als CsJ gebunden ist. Frost und Wait /43/ bestimmten die Schwellrate fester Spaltprodukte im Oxidbrennstoff zu ca. 0,4%/ Abbrand, wenn Mo als Metall auftritt, und zu 0,5%/ Abbrand,

wenn Mo als  $\text{MoO}_2$  vorliegt. Anselin /44/ berechnete für  $\text{UO}_2$  und  $(\text{U}_{0,8}\text{Pu}_{0,2})\text{O}_2$  eine mittlere Schwellrate von 0,85%/Abbrand und eine minimale Schwellrate von 0,32%/Abbrand. Findley /45/ gibt, je nach dem Zustand des Mo, Schwellraten von 0,65 bis 0,75%/Abbrand an. Ewart /46/ errechnete die Schwellung des  $\text{UO}_2$  durch feste Spaltprodukte in thermischen Reaktoren je nach Spaltungsrate und Neutronenspektrum zu 0,6 bis 0,74% pro % Abbrand.

### 2.3 Experimentelle Ergebnisse zur Schwellung

Die ersten systematischen Untersuchungen zur Schwellung von  $\text{UO}_2$  stammen von Bleiberg et al. /47,48/. Sie bestimmten an plattenförmigen Brennelementen mittlere äußere Volumenzunahmeraten des  $\text{UO}_2$  von 0,4%/Abbrand zu Beginn der Bestrahlung bis 1,7%/Abbrand nach Abbränden über 7% bei Temperaturen zwischen 1000 K an der Brennstoffoberfläche und maximal 2370 K in der Brennstoffmitte. Der höchste gemessene Einzelwert der Volumenzunahme lag bei 1,2% nach 0,4% Abbrand bei Temperaturen von 1530 bis 2030 K. Das entspricht einer Volumenzunahmerate von 3%/Abbrand. Die niedrigen Volumenzunahmegeschwindigkeiten bei Bestrahlungsbeginn und ihr Anstieg mit zunehmendem Abbrand lassen sich nach dem heutigen Kenntnisstand durch Inanspruchnahme des Leervolumens in den Brennelementen durch den schwellenden Brennstoff und der Erschöpfung dieses zur Verfügung stehenden Leervolumens erklären. Bei diesen Versuchen wurde nachgewiesen, daß eine dickere Hülle bei sonst gleichen Bestrahlungsbedingungen zu einer verminderten Volumenzunahme führt.

Aus Bestrahlungsexperimenten mit Cermets aus  $\text{UO}_2$  und rostfreiem Stahl /49-53/ ergaben sich im Temperaturbereich von 770 bis 1270 K  $\text{UO}_2$ -Volumenzunahmegeschwindigkeiten von 0,5 bis 2%/Abbrand. Diese Werte wurden bei Abbränden über 5% gefunden, bei denen die Nachverdichtungsvorgänge beendet sein sollten, so daß die Geschwindigkeit der Volumenzunahme nahezu gleich der Schwellrate sein dürfte.

Bei Dimensionsmessungen an  $\text{UO}_2$ -Pellets mit W-Re-Umhüllung, die bis zu niedrigen Abbränden, meist unter 1%, bestrahlt worden waren, beobachteten Chubb et al. /54,55,56/ bei Temperaturen

über 1500 K einen starken Anstieg der Volumenzunahme mit der Temperatur. Bei 1970 K wurden nach 0,5% Abbrand Volumenzunahmen von maximal 20% gemessen. Diese starken Volumenzunahmen wurden jedoch nicht allein durch Schwellung, sondern auch durch Brennstoffverlagerungen nach außen infolge der Bildung von Spaltgasblasen und deren Wanderung zum Zentrum bewirkt.

Bellamy und Rich /57/ stellten an kleinen  $UO_2$ -Brennstäben mit Edeldstahlhülle bei maximalen Zentraltemperaturen unter 1600 K und Abbränden über 2% Durchmesserzunahmeraten von 0,4%/Abbrand fest. Isotrope Volumenzunahme vorausgesetzt, entspricht das einer Volumenzunahmerate von 1,2%/Abbrand. Bis 2% Abbrand schwankten die Durchmesseränderungen um null.

Brucklacher und Dienst /38/ sowie Clough /58/ ermittelten aus Kriechexperimenten im Spannungsbereich zwischen 8 und 42  $MN/m^2$  durch Extrapolation der spannungsabhängigen Verformungsgeschwindigkeiten auf die Spannung null die  $UO_2$ -Schwellraten, die bei den gegebenen Bestrahlungsbedingungen auftraten. Brucklacher und Dienst erhielten bei Temperaturen unter 1270 K eine Geschwindigkeit der Volumenzunahme von 0,8%/U-Abbrand. Clough fand bei Temperaturen zwischen 1130 und 1500 K einen Wert von 1%/U-Abbrand.

Turnbull /59/ bestrahlte nahezu 100% dichte  $UO_2$ -Proben unterschiedlicher Korngröße (7 und 40  $\mu m$ ) bei einer Temperatur von 2020 K und einer Spaltungsrate von  $6,5 \cdot 10^{12}$  Spaltungen/ $cm^3 \cdot s$  bis zu 0,4% Abbrand. Bei dem feinkörnigen Material fand er eine Schwellung von ca. 12% und bei dem grobkörnigen Material eine von ca. 7,5%. In beiden Fällen verlangsamte sich die Schwellrate im Laufe des Abbrandes.

Rose et al. /60/ entnahmen einem 14,5 mm dicken  $UO_2$ -Brennstab, der bis zu einem Abbrand von 0,9% bestrahlt worden war, kleine Brennstoffproben über den Querschnitt und bestimmten deren Dichte. Aus diesen Werten und dem berechneten Temperaturprofil im Brennstab läßt sich die Volumenänderungsrate in Abhängigkeit von der Temperatur bestimmen. Es treten Werte von -0,6%/Abbrand in der Brennstoffbrandzone bei Temperaturen unter 1320 K

bis +13,3%/ Abbrand im Zentrum bei Temperaturen um 2070 K auf. Über ein ähnliches Experiment an einem Brennstab mit 0,6% Abbrand berichten Hastings et al. /61/. Sie fanden die höchsten Volumenzunahmen bei Temperaturen um 1500 K. Sie betragen 3 bis 5%. Unter der Voraussetzung, daß die Hälfte der Ausgangsporosität des 97,35% dichten Ausgangsmaterials einer Nachverdichtung zugänglich war, entspricht das einer Schwellrate von 4,3 bis 6,4%/ Abbrand. In der Brennstoffaußenzone bei Temperaturen zwischen 950 und 1200 K wurden praktisch keine Volumenänderungen gefunden, d.h. Schwellung und Nachverdichtung kompensierten sich. Bei Temperaturen über 1900 K lagen die gemessenen Volumenänderungen um 2%. In diesen Brennstoffzonen wurde die Schwellung durch die Wanderung der Spaltgasblasen zum Zentralkanal begrenzt.

Banks /62/ führte Dichtebestimmungen an  $UO_2$ -Pellets durch, die im thermischen Neutronenfluß bei niedriger Leistungsdichte ( $\leq 51$  W/g) bis zu Abbränden von  $\leq 2,4\%$  bestrahlt worden waren. Bei Berücksichtigung der Nachverdichtung während des Betriebs lassen sich aus diesen Experimenten Schwellraten von 1 bis 2%/ Abbrand bei Zentraltemperaturen unter 1540 K ableiten. Mit zunehmender Temperatur steigt die Schwellrate an auf Werte zwischen 2 und 4%/ Abbrand bei Vollpellets und 3 bis 5%/ Abbrand bei Ringpellets. Dieser Unterschied zwischen Ring- und Vollpellets ist vermutlich darauf zurückzuführen, daß bei den Ringpellets der Brennstoff an der Bohrung frei nach innen schwellen kann.

Killeen /63/ fand an  $UO_2$  mit 7  $\mu m$  Korngröße nach einer Bestrahlung bei einer Temperatur von 1770 K bis zu einem Abbrand von 0,1% eine Schwellung von 1,4%. Das entspricht einer anfänglichen Schwellrate von 14%/ Abbrand.

An nicht umhüllten U-Pu-Mischoxidproben mit einer Ausgangsdichte über 90% TD ermittelten Grando et al. /64/ bei Temperaturen von 1640 und 1850 K bei einem Abbrand von ca. 2% freie Volumenzunahmeraten von 3,6 bzw. 6,3%/ Abbrand. Für eine Temperatur von 1070 K gaben Combette und Milet /65/ Volumenzunahmeraten bei Mischoxid von 1,1 bzw. 1,3%/ Abbrand an, die aus Kriechexperimenten bei Belastungen von 10 bis 25 MPa bis zu 3,6% Abbrand abgeleitet wurden. Nelson und Zebroski /66/ maßen an

UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstoffsäulen, die durch dickwandige verformungs= freie Hüllen an radialer Ausdehnung gehindert wurden, die axia= len Volumenzunahmen. Sie geben folgende relativen Schwellraten als Funktion der Brennstoffzentraltemperatur an:

Zentraltemperatur, K	rel. Schwellrate
1670	1
2070	3,3
2470	1,7

Diese relativen Schwellraten können nur für niedrige Abbrände zutreffen. An anderer Stelle /67/ wurden über das gleiche Ex= periment folgende Angaben über die Bestrahlungsbedingungen, Ab= brand und Brennstoffzentraltemperaturen zu Bestrahlungsbeginn und -ende, sowie über die tatsächliche Schwellung bzw. mittlere Schwellrate gemacht:

Abbrand %	Zentraltemp., K Beginn/Ende	Schwellung, % $\Delta V_{100}/V_{100}$	mittl. Schwellrate %/ % Abbrand
14,74	2690/1330	6,67	0,453
25,20	2720/720	8,35	0,331
21,64	1960/770	7,06	0,326
33,53	geschmolz./810	14,56	0,434

Diese Schwellwerte erscheinen sehr niedrig, bes. auch im Hin= blick auf die relativ geringen Spaltgasfreisetzungen von 70,8 bis 89,5% (s. Kap. 2.4). Dieselben Autoren ermittelten an Misch= oxidbrennstäben, die im schnellen Neutronenfluß des EBR-II be= strahlt worden waren, nach 11,75% Abbrand Schwellungen von 8,0 bis 13,7% unter der Annahme, daß die gesamte Ausgangsporosität verbraucht wurde. Ähnliche Schwellwerte von 10,6 bis 14,3% fan= den sie bei Bestrahlungen im thermischen Fluß nach Abbränden zwischen 12,3 und 15,7%. Sowohl im schnellen wie im thermischen Neutronenfluß betrug damit die Schwellrate des Mischoxids in Brennstäben mit maximalen Zentraltemperaturen von  $2770 \pm 250$  K  $0,93 \pm 0,25$ %/ % Abbrand.

In Abb. 2 sind die aus Literaturdaten abgeleiteten Volumenzu= nahmeraten in Abhängigkeit von der Bestrahlungstemperatur dar=

gestellt. Da die meisten Werte aus Bestrahlungen bis zu niedrigen Abbränden gewonnen wurden, treffen die aufgeführten Volumenzunahmeraten auch nur für niedrige Abbrände bis maximal 1% zu. Das gilt insbesondere für die hohen Zunahmeraten bei hohen Temperaturen. Die starke Streuung der Werte bei diesen Temperaturen ist im wesentlichen auf unterschiedliche Betriebsbedingungen der untersuchten Proben zurückzuführen. So wird z.B. eine Probe aus einem Brennstab, die bei 2000 K und einem hohen Temperaturgradienten bestrahlt wurde, wegen der stattgefundenen Blasenwanderung eine merkliche geringere Volumenzunahme zeigen als eine Probe, die bei 2000 K keinem nennenswerten Temperaturgradienten ausgesetzt war. Die negativen Werte der Volumenzunahmerate bei tiefen Temperaturen sind auf das Überwiegen der Nach-

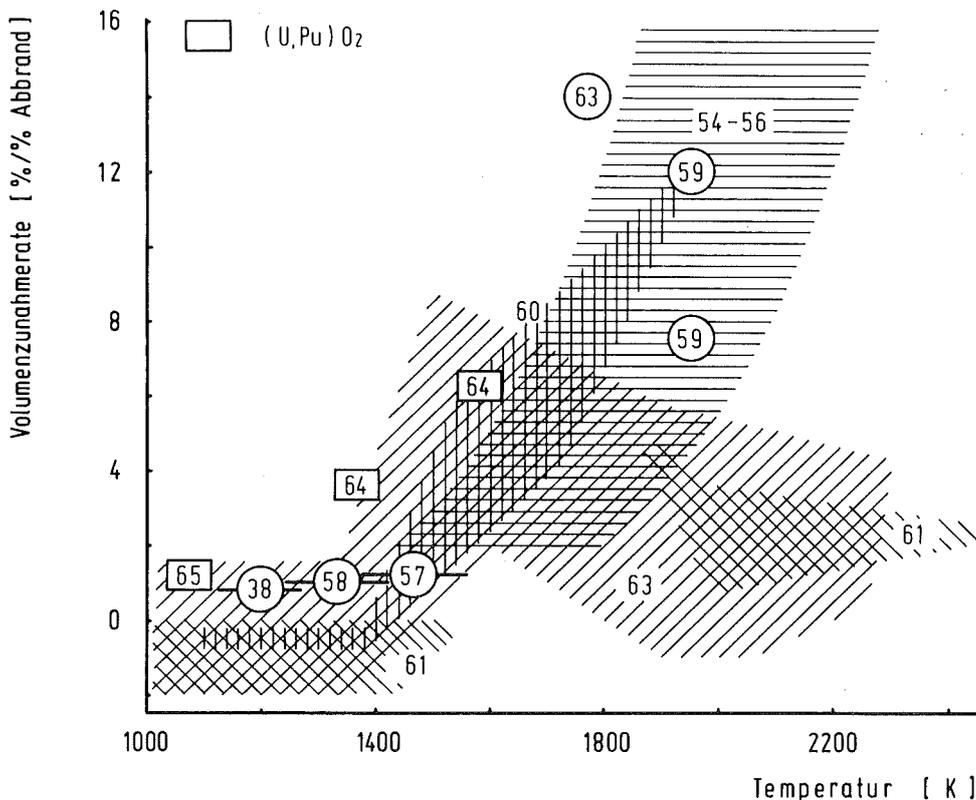


Abb. 2: Volumenzunahmeraten des UO<sub>2</sub> bzw. (U,Pu)O<sub>2</sub> in Abhängigkeit von der Brennstofftemperatur bei niedrigen Abbränden (Literaturdaten)

verdichtungsvorgänge bei niedrigen Abbränden zurückzuführen. Die Schwellrate dürfte je nach Brennstoffporosität und Bestrahlungsbedingungen um 0 bis 3% über der Volumenzunahmerate liegen.

#### 2.4 Experimentelle Ergebnisse zur Spaltgasfreisetzung und -rückhaltung

Zur Spaltgasfreisetzung aus oxidischen Brennstoffen liegt in der Literatur eine Vielzahl von Meßergebnissen aus Brennstabbestrahlungen vor, auf die hier im einzelnen nicht eingegangen werden soll. Betrachtet werden nur Ergebnisse, die auf Grund der Versuchsbedingungen und einer hinreichend genauen Charakterisierung derselben zur Klärung offener Fragen des Spaltgasverhaltens im Sinne dieser Arbeit beitragen können. Das sind insbesondere Ergebnisse zum Spaltgasspeichervermögen des Brennstoffes als Funktion der Temperatur und des Abbrandes.

Bellamy und Rich /57/ fanden bei ihren Bestrahlungsversuchen an kleinen  $UO_2$ -Brennstäben bei Zentraltemperaturen unter 1570 K Spaltgasfreisetzungsraten unter 0,1%/Abbrand bis zu Abbränden von maximal 2,2%. Mit zunehmendem Abbrand stieg die Spaltgasfreisetzung an. Sie betrug nach ungefähr 5% Abbrand ca. 8%. Das entspricht einer Konzentration des zurückgehaltenen Spaltgases von maximal  $14 \cdot 10^{-3}$  Gasatomen/U-Atom. Der Anstieg der Spaltgasfreisetzung mit dem Abbrand schien bei Abbränden über 4% sehr steil zu werden. Offenbar wurde in diesem Abbrandbereich bei den gegebenen Bestrahlungsbedingungen der sog. break-away-Mechanismus wirksam, d.h. es fand ein Aufreißen der dicht mit Spaltgasblasen belegten Korngrenzen infolge gegenseitiger Blasenberührung statt. Nach Frost /68/ tritt dieser Mechanismus bei Temperaturen unter 1320 K bei 6% Abbrand, im Temperaturbereich von 1320 bis 1770 K bei 4% und bei Temperaturen zwischen 1770 und 2020 K bei 2% Abbrand ein.

Katz /69/ stellte auf Grund elektronenmikroskopischer Untersuchungen an  $UO_2$ -Proben, die bei 1140 K bis zu einem Abbrand von maximal 10,2% bestrahlt worden waren, folgende Spaltgasbilanz auf:

	1,6	Abbrand, % 5,6	10,25
Gas in Lösung, Atome/U-Atom	$3,74 \cdot 10^{-3}$	$10,58 \cdot 10^{-3}$	$11,07 \cdot 10^{-3}$
Gas in Blasen, Poren und Subkorn Grenzen, Atome/U-Atom	$1,06 \cdot 10^{-3}$	$5,54 \cdot 10^{-3}$	$15,81 \cdot 10^{-3}$
Freigesetztes Spaltgas, %	-	4	12,6

Turnbull /59/ bestrahlte kleine zylindrische Proben nahezu theoretischer Dichte aber unterschiedlicher Korngröße, 7 und 40  $\mu\text{m}$ , bei 2020 K bis zu Abbränden von ca. 0,4% und bestimmte die Kr-85-Freisetzung. Die feinkörnigen Proben zeigten eine Freisetzung von ca. 60%, die grobkörnige Probe hatte nur ungefähr 36% freigesetzt.

An Mischoxidbrennstäben mit vibrationsverdichtetem Material und Tablettenbrennstoff stellten Bagley und Donaldson /70/ bei maximalen Bestrahlungstemperaturen von 1770 K Spaltgasfreisetzungen über 25% bei beiden Brennstoffsorten nach mehr als 1% Abbrand fest. Nach 6% Abbrand betrug die Freisetzung bei dem vibrierten Brennstoff ca. 80%. Das zurückgehaltene Spaltgas erreichte bei diesem Material einen Sättigungswert von  $3,6 \cdot 10^{-3}$  Gasatomen/(U+Pu)-Atom nach einem Abbrand von 3 bis 4%.

Nach Abbränden von 21,6 bis 33,5% fanden Duncan et al. /67/ an Mischoxidbrennstäben, in denen im Laufe des Abbrandes die Zentraltemperaturen auf Werte unter 815 K abgefallen waren, Spaltgasfreisetzungen von 70,8 bis 89,5%. Daraus lassen sich Konzentrationen des gebundenen Spaltgases von  $11,3 \cdot 10^{-3}$  bis  $20 \cdot 10^{-3}$  Gasatome/(U+Pu)-Atom ableiten. Der niedrige Wert gehört zu der Probe mit dem höchsten Abbrand, die auch stets die höchste Temperatur hatte.

Johnson et al. /71/ bestimmte an einem Querschliff eines Mischoxidbrennstabes, der bei einer Stableistung von fast 500 W/cm bis zu einem Abbrand von 6,5% bestrahlt worden war, mittels Laserstrahlverdampfung kleiner Brennstoffmengen die Kr-85-Aktivität über den Querschnitt. Sie fanden ein Minimum der Gaskonzentration in der Mitte der Stengelkristallzone, sowohl in Richtung höherer als auch niedrigerer Temperatur stieg die Gas-

konzentration steil an und erreichte am Rand des Zentralkanals und am Brennstoffaußenrand ungefähr fünfmal so hohe Konzentrationen, wobei die Konzentrationen in der nichtrestrukturierten Zone allerdings sehr stark schwankten.

Der Befund, daß die Gaskonzentration zum Zentrum wieder zunimmt, konnte bei einer späteren Untersuchung, die von Stahl und Patri-  
cian /72/ ebenfalls in Argonne nach dem gleichen Verfahren durchgeführt wurde, nicht bestätigt werden. In einem Mischoxidbrennstab, der bis zu einem Abbrand von 3,2% bei einer Stabileistung von max. 360 W/cm bestrahlt worden war, fanden sie durch Rückrechnung der gefundenen Kr-85-Werte auf die gesamte Spaltgaskonzentration folgende mittlere Konzentrationen in den einzelnen Strukturzonen:

nichtrestrukturierte Zone:	$6,2 \cdot 10^{-3}$	Atome/(U+Pu)-Atom
Kornwachstumszone:	$3,1 \cdot 10^{-3}$	Atome/(U+Pu)-Atom
Stengelkristallzone:	$0,4 \cdot 10^{-3}$	Atome/(U+Pu)-Atom

Das entspricht einer integralen Spaltgasrückhaltung von 42,2%. Das Maximum der Konzentration des gebundenen Spaltgases lag am Anfang der Kornwachstumszone. Noch innerhalb der Kornwachstumszone fiel die Konzentration steil ab und sank dann innerhalb der Stengelkristallzone bis zum Zentralkanal nur noch leicht ab. In der nichtrestrukturierten Zone wurde zum Außenrand ebenfalls ein Abfall der Konzentration festgestellt.

### 3. Versuche zum Schwellverhalten des UO<sub>2</sub>

#### 3.1 Probenmaterial

Für die Bestrahlungsexperimente wurde hochdichtes UO<sub>2</sub> benötigt. Es standen zwei Brennstoffsorten zur Verfügung: flache, in Matrizen gepreßte Pellets, die mit einer Zentralbohrung versehen wurden, und stranggepreßte Pellets. Die Materialdaten sind in der Tab. 1 aufgeführt.

Die Abbildungen 3 und 4 zeigen die Porengrößenverteilung der Brennstoffsorten. In beiden Fällen haben ca. 75% aller Poren Durchmesser bis zu 1 µm. Die restlichen 25% der Poren beschrän-

Tab. 1: Daten der UO<sub>2</sub>- Brennstoffproben

	Ringpellets	Vollpellets
Pelletdurchmesser, mm	5,15 ± 0,07	3,003 ± 0,002
Bohrungsdurchmesser, mm	2,25 ± 0,05	0
Pellethöhe, mm	1,02 ± 0,04	5,73 ± 0,01
Dichte, % TD	98,2 ± 0,7	96,7 ± 0,7
U-235-Anreicherung, %	15,0	20,0
Mittlere Korngröße, µm	10	7

ken sich bei den Ringpellets im wesentlichen auf Poren mit Durchmessern bis zu ca. 4,5 µm, bei den Vollpellets dagegen verteilen sie sich auf Durchmesser bis zu ca. 8 µm. Das führt zu sehr unterschiedlichen Anteilen der einzelnen Porengrößenklassen an den Gesamtporenvolumina beider Brennstoffsorten. Während bei den Ringpellets Poren mit Durchmessern bis zu 4,5 µm 70% des Gesamtporenvolumens bilden, stellen sie bei den Vollpellets nur 15% des Gesamtporenvolumens.

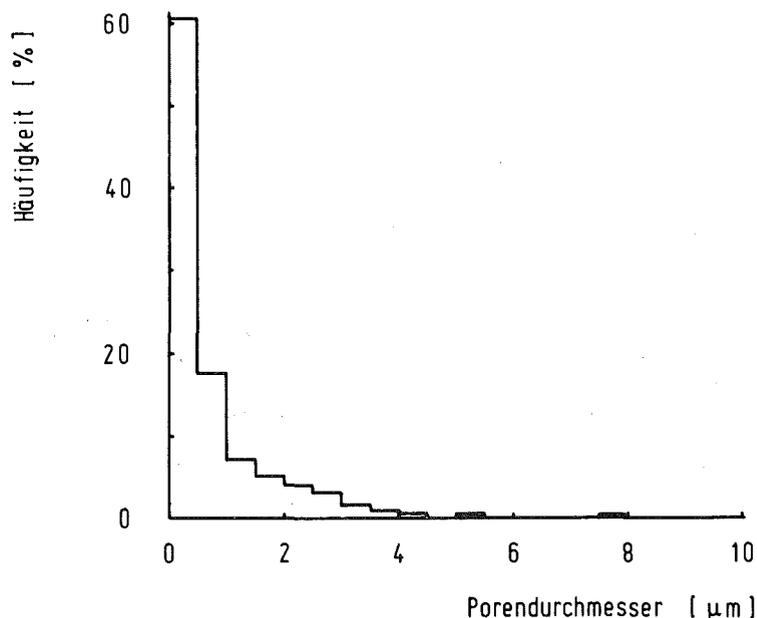


Abb. 3: Porengrößenverteilung der UO<sub>2</sub>-Ringpellets

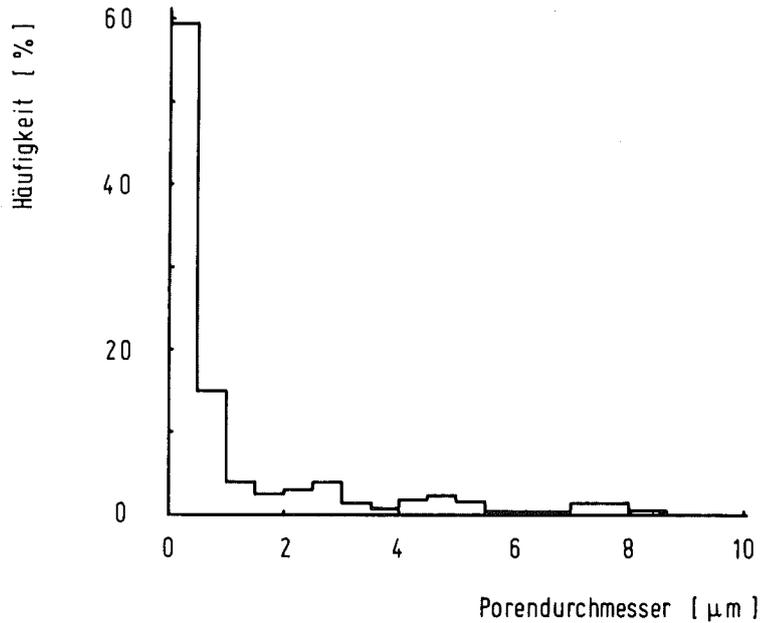


Abb. 4: Porengrößenverteilung der  $UO_2$ -Vollpellets

### 3.2 Bestrahlungskapseln

#### 3.2.1 Kapsel zur Bestimmung der freien Schwellung

Bereits vorhanden einfache mit Helium gefüllte Bestrahlungskapseln wurden zur Bestimmung der freien, d.h. nicht durch einen äußeren Druck beeinflussten Schwellung bei Temperaturen unter 1350 K benutzt. Dieser Kapseltyp ist in der Abb. 5 dargestellt.

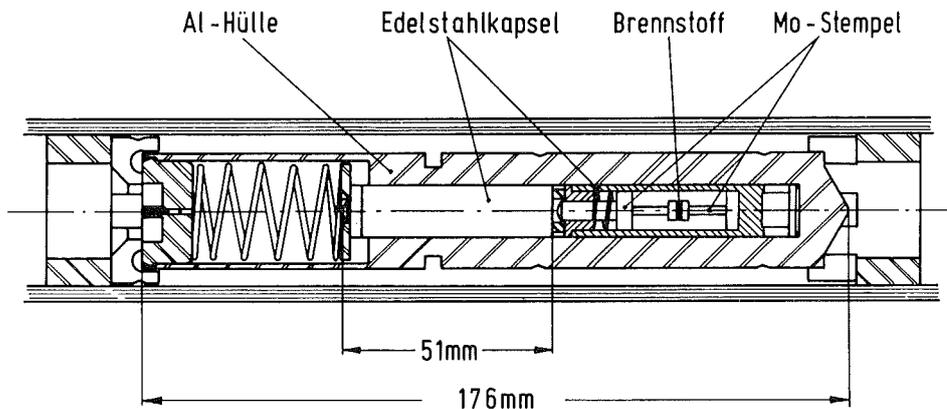


Abb. 5: Einfache Bestrahlungskapsel (schematisch)

Zur Bestimmung der freien Schwellung bei Temperaturen bis zu 2100 K wurde eine Bestrahlungskapsel entwickelt, die die Forderung nach einer möglichst geringen Temperaturdifferenz im Brennstoff erfüllt. Die Bestrahlungsprobe ist ein Stapel von sieben Brennstoffringpellets mit 2 mm dicken Molybdän-Ringscheiben zwischen den einzelnen Pellets. Der Stapel wird auch an beiden Enden durch Mo-Scheiben begrenzt. Die Brennstoffpellets sind zur Vermeidung eines hohen axialen Temperaturgradienten nur von 1 mm Höhe. Sie führen ihre Spaltungswärme überwiegend über die Stirnflächen an die Mo-Scheiben ab, deren Außendurchmesser größer ist als der der Brennstoffpellets. Die radiale Wärmeab-  
leitung erfolgt dann über die Mantelflächen dieser Scheiben an die Innenwand eines Mo-Rohres. Die gewünschte Brennstofftemperatur wird durch die Breite des heliumgefüllten Spaltes zwischen den Mo-Scheiben und dem Mo-Rohr eingestellt. Die Temperaturmessung erfolgt mit einem Thermoelement in der Zentralbohrung der Bestrahlungsproben.

Die Probenkapsel (Abb. 6) besteht aus einem mit Rippen versehenen Edelstahl-Hüllrohr, das an beiden Enden durch Abschluß-Stopfen gasdicht verschlossen ist. An die Abschluß-Stopfen schließen sich zwei Isolierkörper aus Ergon an, die ein dickwandiges Mo-Rohr zentrieren. Der Spalt zwischen Mo-Rohr und Probenkapsel dient zur Erhöhung der Mo-Rohrtemperatur und damit zur Erhöhung der Proben-  
temperatur. In dem Mo-Rohr befindet sich die Bestrahlungsprobe, die durch das Tauchrohr des Zentralthermoelementes zentriert wird. Die Bestrahlungsprobe wird an beiden Enden durch Isolierpellets aus Zirkonoxid begrenzt. Eine schwache Feder fixiert die Bestrahlungsprobe während der Montage und des Transports zum Reaktor in ihrer axialen Lage. Zur Bestimmung der Brennstoff-  
temperatur dient das Zentralthermoelement, das bei Auslegungstemperaturen über 1400 K ein W5Re/W26Re-Thermoelement und bei Temperaturen unter 1400 K ein Chromel/Alumel-Thermoelement ist. Ein weiteres Chromel/Alumel-Thermoelement befindet sich im Mo-Rohr.

Bei der wärmetechnischen Auslegung der Kapsel wurden die Temperaturdifferenzen in Hüllwänden und Gasspalten ausgehend von der Kühlwassertemperatur von außen nach innen unter Berücksichtigung

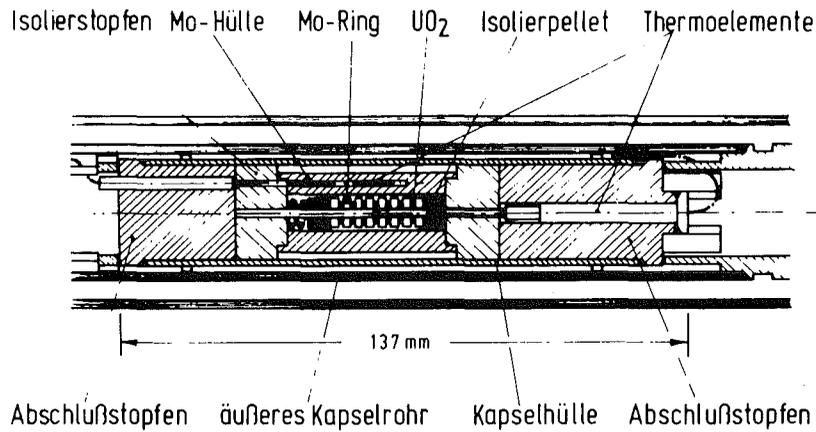


Abb. 6: Bestrahlungskapsel zur Bestimmung der freien Schwellung

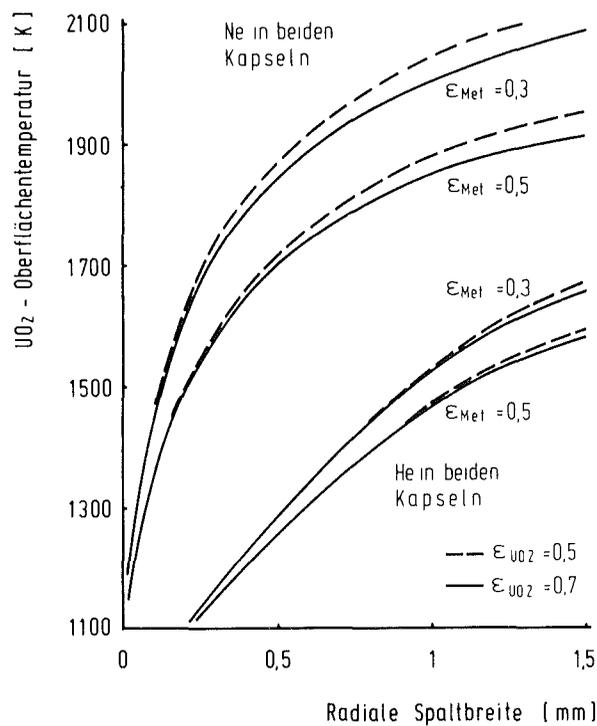


Abb. 7: UO<sub>2</sub>-Oberflächentemperatur als Funktion der Breite des inneren Gasspaltes in der druckfreien Schwellkapsel bei einer Wärmezeugung von 25 W/Pellet

der Wärmeleitung und -strahlung berechnet. Abb. 7 zeigt die Abhängigkeit der berechneten  $\text{UO}_2$ -Oberflächentemperatur bei einer Wärmeerzeugung von 25 W pro Pellet von der radialen Spaltbreite zwischen Mo-Zwischenplättchen und Mo-Rohr sowie vom verwendeten Schutzgas und von den Emissionsverhältnissen. Nach /73/ sinkt das Emissionsverhältnis des  $\text{UO}_2$  von 0,8 bei Temperaturen um 1300 K auf 0,5 bei ca. 1800 K. Für polierte Molybdän- und Edelstahloberflächen ist nach /74/ bei den auftretenden Hülltemperaturen mit Werten  $\epsilon \approx 0,2$  zu rechnen. An Edelstählen verschiedenen Bearbeitungszustandes wurde ein Anstieg des Emissionsverhältnisses mit dem Sauerstoffgehalt der Glühatmosphäre und der Temperatur festgestellt /75/. An nahtlos gezogenen Edelstahlrohren (Werkstoff 1.4961, silbrig matt glänzend) wurde unter Argon mit  $\leq 160$  ppm Sauerstoff bei 973 K ein Wert  $\epsilon \approx 0,4$  gemessen.

Die in Abb. 7 dargestellten Ergebnisse, die auf Grund der getroffenen Annahmen für die Mitte des Probenstapels gelten, wurden bei einer späteren Berechnung der Temperaturverteilung in der Kapsel unter Berücksichtigung der genauen Probengeometrie und axialer Wärmeableitung, die von H. Seitz /76/ mit dem Rechenprogramm RELAX durchgeführt wurde, bestätigt. Bei einem Temperaturgradienten von ca. 100 K im Pellet ergab sich nach den RELAX-Rechnungen, daß die mittlere Temperatur des Zentralpellets um ca. 60 K über der Thermoelementanzeige liegt. Die mittlere Temperatur des unteren, kälteren Endpellets ist je nach Leistungsdichte und Axialspalt um 100 bis 250 K niedriger als die des Zentralpellets.

Vier Brennstoffkapseln der oben beschriebenen Art werden, durch Distanzstücke voneinander getrennt, in einem Kapselversuchseintritt übereinander angeordnet. Die benutzten Kapselversuchseinträge entsprechen in ihrem Aufbau den üblicherweise im Karlsruher Forschungsreaktor FR 2 verwendeten.

### 3.2.2 Druckstempelkapsel

Dieser Kapseltyp zur Bestimmung der Schwellung bei verschiedenen Drücken und Temperaturen wurde in zwei Versionen gebaut und eingesetzt. Bei der einfacheren Ausführung /77/ wird der Schwellbe-

trag unter anderem durch Längenmessung vor und nach der Bestrahlung bestimmt. Die weiterentwickelte Ausführung /78/ wurde mit einem induktiven Verlagerungsaufnehmer (Differentialtransformator) ausgerüstet, der zusätzlich die kontinuierliche Messung der Längenänderung während der Bestrahlung ermöglicht. Die Bestrahlungsprobe ist eine 40 mm lange Brennstoffsäule (Durchmesser 3 mm), die sich in einem dickwandigen Rohr (Außendurchmesser 23 mm) aus der Molybdänlegierung TZM befindet und oben einen axial beweglichen Stempel trägt (Abb. 8). Das Mo-Rohr verhindert eine Ausdehnung des Brennstoffes in radiale Richtung. Auf Grund der Tatsache, daß die Kriechgeschwindigkeit des  $UO_2$  im untersuchten Temperaturbereich stets größer ist als die Schwellgeschwindigkeit, erfolgt die gesamte Volumenzunahme durch Schwellung in axialer Richtung und macht sich durch Verschieben des oberen Stempels bemerkbar. Nach unten ist das Mo-Rohr durch einen eingeschweißten Stempel, ebenfalls aus TZM, verschlossen. Das Mo-Rohr sitzt, über Distanznocken zentriert, in einer Kapsel aus Edelstahl, deren unterer Abschlußstopfen den unbeweglichen Verschlusstopfen aufnimmt. Der bewegliche obere Stempel steckt in einem Stempelhalter, der in einer mit dem Edelstahlrohr verschweißten Führungshülse gelagert ist. Der obere Teil des Stempelhalters ist mit der Führungshülse gasdicht durch einen Faltenbalg verbunden, der mit seiner Federkraft über den Stempelhalter den Stempel auf die Brennstoffsäule drückt. Die Endstücke des Stempelhalters und des unteren Abschlußstopfens sind als Meßbolzen ausgebildet.

Bei der Kapselausführung mit induktivem Verlagerungsaufnehmer (Abb. 9) enthält der Stempelhalter ein zentrales Gewindeloch, in das eine Einstellstange mit dem Wegaufnehmerkern eingeschraubt ist. Bei Änderungen der Brennstoffsäulenlänge verschiebt sich der Kern im Differentialtransformator, der aus einer Primärspule und zwei Sekundärspulen besteht. Die an die Primärspule angelegte Spannung induziert in den Sekundärspulen Spannungen, deren Summe konstant ist, deren Verhältnis zueinander aber von der Stellung des magnetischen Kerns abhängt. Die durch Gegeneinanderschalten der beiden Sekundärspulen erhaltene Meßspannung steht in einer linearen Beziehung zum Abstand des Kerns vom Nullpunkt. Jeder Verlagerungsaufnehmer wurde vor dem Einbau

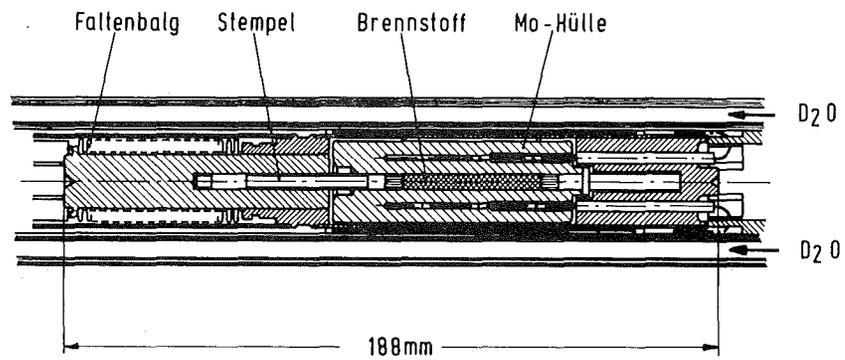


Abb. 8: Druckstempelkapsel (schematisch)

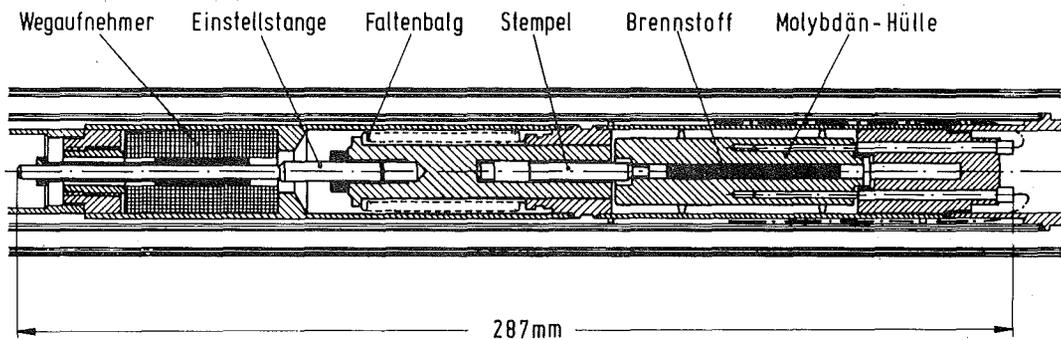


Abb. 9: Druckstempelkapsel mit induktivem Wegaufnehmer

einer genauen Prüfung in Bezug auf die Abhängigkeit der Spannungsanzeige von der Weglänge bei verschiedenen Temperaturen und Frequenzen unterzogen. Die so gewonnenen Meßkurven wurden der Auswertung zugrunde gelegt. Die Genauigkeit des Meßsystems beträgt  $\pm 3$   $\mu\text{m}$ . Ausführlichere Beschreibungen dieses Systems finden sich in /79,80/.

Die Probenkapseln - drei bei der einfachen Ausführung, zwei bei der Ausführung mit Verlagerungsaufnehmer - befinden sich, über Nocken zentriert und durch Distanzrohre voneinander getrennt, übereinander in einer äußeren Druckkapsel aus Edelstahl. Die Druckbelastung der Proben erfolgt durch einen Gasdruck in dieser Druckkapsel. Der Gasdruck wirkt auf den Stempelhalter und übt über den Stempel einen Druck auf den Brennstoff aus, der dem Verhältnis der wirksamen Stempelhalter-Stirnfläche zur Stempel-fläche multipliziert mit der Differenz der Gasdrücke in Druck- und Probenkapsel entspricht.

Die Temperatureinstellung erfolgt durch unterschiedliche Breite der Gasspalte und durch die Wahl des Schutzgases. Die eigentliche (innere) Probenkapsel ist jedoch stets mit Helium gefüllt, um durch Verschlechterung der Wärmeleitfähigkeit des Heliums infolge zunehmender Spaltgasbeimengung dem Temperaturabfall der Probe durch die abnehmende Spaltungsrate entgegenzuwirken. Die Temperaturmessung erfolgt mit drei Thermoelementen in um  $120^{\circ}$  versetzten achsparallelen Bohrungen in dem Mo-Rohr. Angesichts des geringen diametralen Kaltspaltes von 10 bis 30  $\mu\text{m}$  ist unter Betriebsbedingungen wegen der Ausdehnungsdifferenzen zwischen Brennstoff und Hülle und wegen des einsetzenden Schwellens mit einer Wärmeübergangszahl von  $1,5 \text{ W/cm}^2 \cdot \text{K}$  zu rechnen /81/. Mit Stableistungen zwischen 100 und 150  $\text{W/cm}$ , wie sie sich bei den gegebenen Bedingungen nach /82/ abschätzen lassen, ergeben sich dann mittlere Brennstofftemperaturen, die je nach Stableistung und Temperaturniveau 200 bis 300 K über der angezeigten Mo-Rohrtemperatur liegen. Die maximalen Temperaturdifferenzen zwischen Brennstoffoberfläche und -zentrum betragen  $350 \pm 90$  K.

### 3.3 Bestrahlungsbedingungen

Die Bestrahlungen erfolgten im Karlsruher Forschungsreaktor FR 2 auf Isotopenkanal-Positionen bei thermischen Neutronenflüssen zwischen  $4$  und  $8 \cdot 10^{13}$  Neutronen/cm<sup>2</sup>·s. Die wichtigsten Bestrahlungsdaten sind in der Tab. 2 aufgeführt.

Die Abbrandangaben basieren auf den radiochemischen Abbrandbestimmungen, die an je einer Probe eines Kapselversuchseinsatzes ausgeführt wurden. Der Abbrand der anderen Proben des gleichen KVE wurde entsprechend dem Verhältnis der mittleren Neutronenflüsse an der jeweiligen Probenposition und der Abbrandprobe-Position aus dem radiochemisch bestimmten Wert berechnet. Aus den radiochemisch bestimmten Abbrandwerten und den dazugehörigen Neutronenflüssen und Bestrahlungszeiten ließen sich für die beiden Kapseltypen und Brennstoffkonfigurationen Schwächungsfaktoren ermitteln, mit denen der ungestörte mittlere Neutronenfluß bei der Abbrandberechnung zu multiplizieren ist. Die Schwächungsfaktoren wurden zu  $0,40 \pm 0,03$  bei der druckfreien Schwellkapsel und zu  $0,31 \pm 0,04$  bei den Druckstempelkapseln bestimmt.

Die Brennstofftemperaturen sind die über das Brennstoffvolumen gemittelten Temperaturen  $T_V$ , deren maximale und zeitlich gemittelte Werte angegeben sind. Die im Laufe des Abbrandes teilweise abnehmenden Temperaturen wurden durch Umsetzen der KVE's auf Bestrahlungspositionen mit höheren Neutronenflüssen wieder auf den Ausgangswert angehoben.

Bei einigen thermisch hochbelasteten Druckschwellproben kam es im Laufe des Abbrandes zu Undichtigkeiten der inneren Probekapsel. Das führte zu einem Druckausgleich zwischen innerer und äußerer Kapsel und damit zum Rückgang der Probenbelastung auf ca. 2 MPa. Dieser Wert resultiert aus der Federkraft des Faltenbalges.

### 3.4 Untersuchungsmethoden

#### 3.4.1 Allgemeiner Überblick

Die Nachbestrahlungsuntersuchungen der Brennstoffproben erfolg=

Tab. 2: Bestrahlungsdaten der UO<sub>2</sub>-Schwellproben

Kapseltyp	Probe	Zeit d	Mittlere		Abbrd. %	Brennstoff= temperatur, K		Probenbelastung MPa
			Spaltrate cm <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup>			mittl.	max.	
Einfache Kapsel	1	51	1,4	E 14	2,8	1350	1450	-
	2	177	1,1	E 14	7,2	1350	1450	-
	3	310	7,3	E 13	8,0	1350	1450	-
	4	365	6,5	E 13	8,4	1350	1450	-
	5	365	8,5	E 13	11,0	1350	1450	-
	6	513	6,9	E 13	12,6	1350	1450	-
Druckfreie Schwell= kapsel	7	20	5,6	E 13	0,4	1300	1310	-
	8	44	4,8	E 13	0,8	1300	1320	-
	9	44	5,0	E 13	0,9	1320	1340	-
	10	38	5,0	E 13	0,8	1390	1430	-
	11	44	5,7	E 13	1,0	1780	1840	-
	12	183	4,3	E 13	2,9	1420	1490	-
	13	183	5,1	E 13	3,4	1490	1550	-
	14	183	5,6	E 13	3,8	1680	1800	-
	15	183	6,1	E 13	4,0	1950	2130	-
	16	274	3,9	E 13	3,8	1700	1750	-
	17	274	4,6	E 13	4,5	1780	1820	-
	18	274	5,1	E 13	5,0	1820	1910	-
	19	274	5,5	E 13	5,3	1940	2050	-
	20	351	3,1	E 13	3,9	1300	1410	-
	21	351	3,7	E 13	4,6	1420	1460	-
22	351	4,0	E 13	5,0	2020	2140	-	
23	351	4,3	E 13	5,4	1690	1820	-	
Druck= stempel= kapsel	24	93	6,0	E 13	2,0	1800	1830	25
	25	93	6,4	E 13	2,1	1830	1930	25(68d)/ 2(25d)
	26	136	6,0	E 13	2,9	1290	1350	2
	27	136	6,3	E 13	3,1	1600	1780	2
	28	141	5,7	E 13	2,9	1530	1560	50
	29	141	6,0	E 13	3,0	1880	1960	50(16d)/ 2(91d)
	30	141	6,3	E 13	3,1	1920	1990	50(16d)/ 2(91d)
	31	259	5,1	E 13	4,7	1620	1690	50
	32	259	5,4	E 13	5,0	1830	1950	50
	33	293	5,0	E 13	5,2	1490	1530	2
	34	293	5,3	E 13	5,5	1840	1940	2
	35	293	5,5	E 13	5,7	1900	1990	2
	36	387	4,9	E 13	6,8	1460	1490	30
	37	387	5,2	E 13	7,1	1620	1710	30(70d)/ 2(317d)
	38	387	5,4	E 13	7,4	1920	2060	30(37d)/ 2(350d)
	39	570	4,9	E 13	9,8	1450	1580	40(28d)/ 2(542d)
	40	570	4,7	E 13	9,4	1470	1570	40
	41	570	4,5	E 13	8,9	1490	1550	40

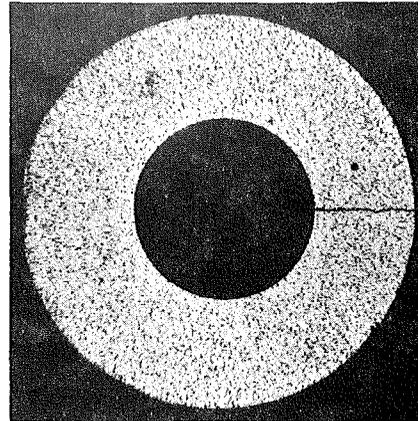
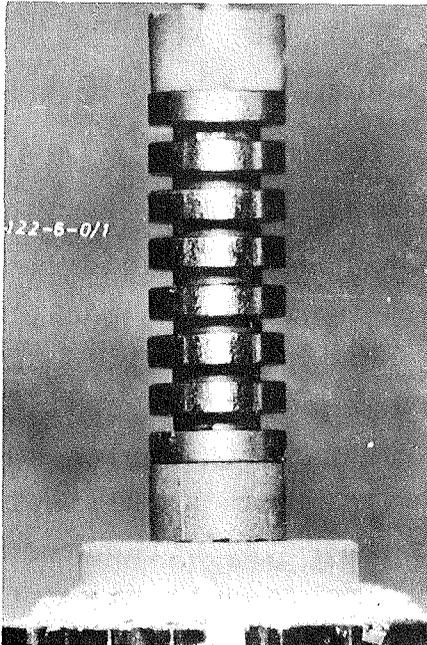
ten in den Heißen Zellen des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Folgende Untersuchungen wurden bei beiden Kapseltypen durchgeführt:

- Bestimmung der Brennstoffdichte (Abschnitt 3.4.2.),
- Keramographische Untersuchungen,
- Bestimmung der gebundenen Spaltgase. Zu diesem Zweck wurden die Brennstoffproben nach Abschluß der anderen Untersuchungen in einer Kugelmühle gemahlen und das während des Mahlprozesses freigesetzte Spaltgas bestimmt. Dieses Spaltgas wird im folgenden kurz als Porensplattgas P bezeichnet, denn es stammt zum überwiegenden Teil aus Poren und Blasen. Beim Mahlen wurde der Brennstoff bis auf Teilchengrößen unter  $1 \mu\text{m}$  zerkleinert. Dadurch dürfte sämtliches Spaltgas freigesetzt worden sein, das sich in intragranularen Blasen mit Durchmessern bis unterhalb  $0,5 \mu\text{m}$  oder in Blasen und Poren an Korngrenzen und Subkorn-grenzen befand. Die gemahlten Proben wurden anschließend in Salpetersäure aufgelöst, wobei das restliche Spaltgas freige-setzt wurde, das sich im Brennstoff in bestrahlungsbedingter Lösung oder in sehr kleinen Blasen innerhalb der Körner befand (Gittersplattgas G). Die Spaltgasmengen wurden gaschromatogra-phisch bestimmt.
- Radiochemische Abbrandbestimmung mit Ce-144 und Nd-148 als Ab-brandindikatoren. Für diese Untersuchung, die an je einer Pro-be eines Kapselversuchseinsatzes im Institut für Radiochemie durchgeführt wurde, wurde die Brennstofflösung benutzt, die bei der Bestimmung der gebundenen Spaltgase anfiel. Zusätzlich wurde der Cs-137-Gehalt ermittelt, um Aussagen über das Frei-setzungsverhalten des Cs zu gewinnen.

Abb. 10 zeigt als Beispiel einen Probenstapel einer druckfreien Schwellkapsel.

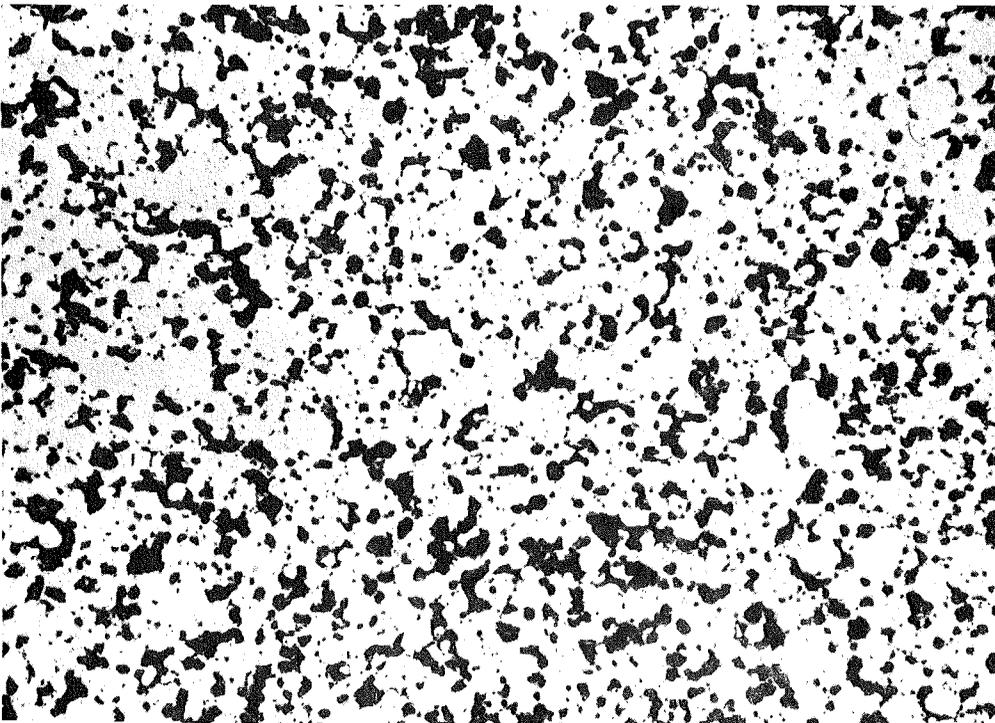
Bevor die oben genannten Untersuchungen am Brennstoff der Druck-stempelkapseln stattfinden, wurden die Bestrahlungskapseln die-ses Typs folgenden Prüfungen unterworfen:

- Bestimmung der freien Gase im Kapselversuchseinsatz zur Kon-trolle des Einfülldruckes und Prüfung der Dichtheit der Pro-benkapseln.



Querschliff 10:1

Probenstapel, ca 2:1



200:1

Abb. 10: Probenstapel und Gefüge der druckfreien Schwellprobe Nr. 17

- Röntgenprüfung der einzelnen Probenkapsel zur Kontrolle der inneren Homogenität der Brennstoffsäule. Die Durchstrahlung wurde mit einem Betatron vorgenommen, das eine harte Röntgenstrahlung von maximal 18 MeV aussendet. Bei dieser hohen Energie war es möglich, die weichere  $\gamma$ -Eigenstrahlung des Prüflings durch Eisen weitgehend gegen den Aufnahmefilm abzuschirmen, ohne die Intensität der Betatron-Strahlung wesentlich zu schwächen. Die Aufnahmen zeigten in fast allen Fällen eine gleichmäßige Dichte über die Brennstofflänge. Lediglich bei den unbelasteten Proben waren vereinzelt Tablettenstoßstellen erkennbar.
- Gamma-Scanning zur Charakterisierung der Brennstoffsäule bezüglich der axialen Spaltproduktverteilung. Hierzu wurde die  $\gamma$ -Aktivität im Energiebereich von 400 bis 1700 keV entlang der Brennstoffsäule gemessen. Sie wies bei allen Proben einen annähernd gleichmäßigen Verlauf über die Brennstofflänge auf.
- Längenmessung zur Bestimmung der Längenänderung der Brennstoffsäule.
- Bestimmung des freigesetzten Spaltgases durch Anbohren der Kapsel und Absaugen des gesamten Gasinhaltes.
- Durchmesserkontrolle des Mo-Druckrohres. Es trat in keinem Fall eine Aufweitung des dickwandigen Rohres auf.

Abb. 11 zeigt ein Beispiel einer Druckstempelkapsel und einige Untersuchungsergebnisse.

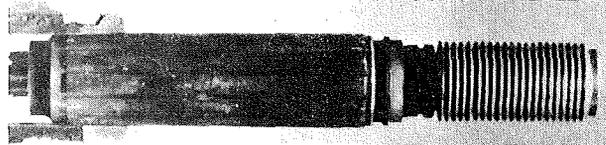
### 3.4.2 Bestimmung der Brennstoffdichte

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

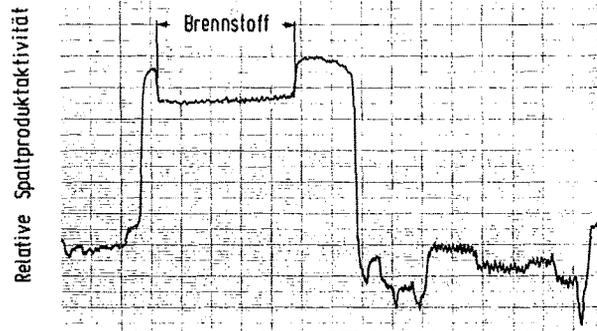
$$\frac{\Delta V}{V_0} = 100 \left( \frac{\rho_0}{\rho_1} - 1 \right). \quad (8)$$

- $V_0$  Probenvolumen vor Bestrahlung
- $\rho_0$  Brennstoffdichte vor Bestrahlung
- $\rho_1$  Brennstoffdichte nach Bestrahlung

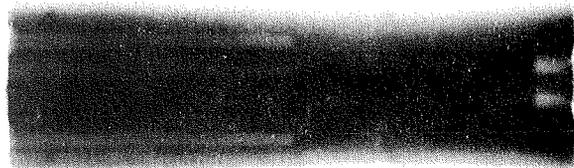
Probenkapsel nach Bestrahlung



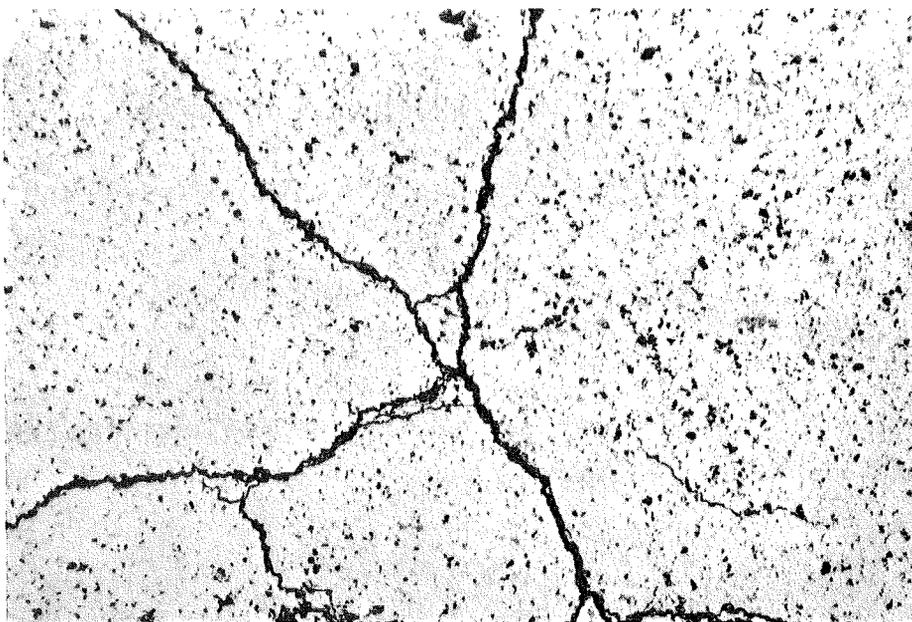
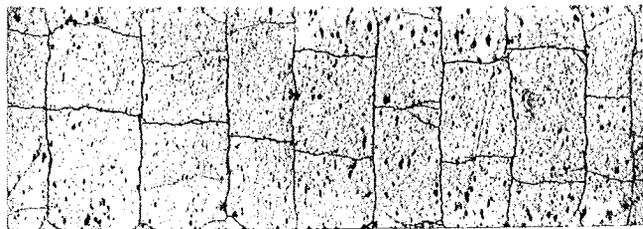
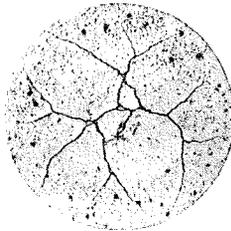
$\gamma$ -Scan



Betatronaufnahme der Kapsel ohne Faltenbalg



Quer- u. Längs=  
schliff 10:1



Querschliff, 200:1

Abb. 11: Druckstempelkapsel mit  $\gamma$ -Scan, Betatronaufnahme und Gefüge

### Dichtebestimmung nach dem Auftriebsverfahren

Die Wägungen wurden vor Bestrahlung mit einer Analysenwaage Mettler B 5 (Ablesbarkeit  $10^{-4}$  g) und nach Bestrahlung mit einer Mettler M 5 (Ablesbarkeit  $10^{-6}$  g) durchgeführt. Als Auftriebsmedium wurde Tetrachlorkohlenstoff benutzt, dessen Temperatur mit Hilfe eines Thermostaten auf  $\pm 0,1$  K konstant gehalten wurde.

Zur Ableitung der Arbeitsformel werden neben dem Gewicht G und dem Volumen V folgende Indizes benutzt:

- P Probe
- H Probenhalter
- Fl Auftriebsflüssigkeit
- F in Flüssigkeit
- HL an Luft befindlicher Teil des Halters bei teilweise eingetauchtem Zustand
- HF in Auftriebsflüssigkeit befindlicher Teil des Halters
- ges Probe + Probenhalter

Die Probendichte ist

$$\varrho_P = \frac{G_P}{V_P} \quad (9)$$

Mit

$$V_P = \frac{G_P - G_{P,F}}{\varrho_{Fl}} \quad (10)$$

ist

$$\varrho_P = \frac{G_P}{G_P - G_{P,F}} \varrho_{Fl} \quad (11)$$

Durch Wägungen werden bestimmt:  $G_H$ ,  $G_{ges}$  und  $G_{ges,F}$ , wobei zu beachten ist, daß der Probenhalter nicht vollständig in die Auftriebsflüssigkeit eintaucht, d.h. es gilt

$$G_{ges,F} = G_{P,F} + G_{HF,F} + G_{HL} \quad (12)$$

Mit

$$G_P = G_{ges} - G_H \quad (13)$$

ergibt sich dann

$$\rho_P = \frac{G_{ges} - G_H}{G_{ges} - G_H - G_{ges,F} + G_{HF,F} + G_{HL}} \rho_{FL} \cdot \quad (14)$$

Der Probenhalter besteht aus einem Korb, einem Haken und einem relativ langen Verbindungsstück aus dünnem Draht. Das Volumen des Probenhalters ist bekannt. Durch Messen der Eintauchtiefe kann das eingetauchte Volumen des Probenhalters bestimmt werden. Es gilt folgende Beziehung:

$$G_H - V_{HF}\rho_{FL} = G_{HL} + G_{HF,F} \cdot \quad (15)$$

Beim Eintauchen eines Drahtes in eine benetzende Flüssigkeit wird der Draht mit einer Kraft  $K$  in die Flüssigkeit hineingezogen. Um diese Kraft verringert sich der Auftrieb. Unter Berücksichtigung dieser Kraft, die experimentell bestimmt werden muß, ergibt sich die Formel für die Probendichte durch Einsetzen von (15) in (14) zu

$$\rho_P = \frac{G_{ges} - G_H}{G_{ges} - G_{ges,F} - V_{HF}\rho_{FL} + K} \rho_{FL} \cdot \quad (16)$$

Die Standardabweichung der Mittelwerte von Meßreihen zu je zehn Messungen, die zu verschiedenen Zeiten durchgeführt wurden, ist  $\leq 0,2\%$ . Dieser Wert kann als Genauigkeit der Dichtebestimmung unter den gegebenen Versuchsbedingungen betrachtet werden.

### Volumenbestimmung

Alternativ zur Wägung in einem Auftriebsmedium wurde für gerisenen und zerbröckelten Brennstoff eine Volumenmeßmethode entwickelt. Die Brennstoffdichte erhält man dann aus der Gewichts- und der Volumenbestimmung.

Das Verfahren beruht auf der Messung zweier verschiedener Luftdrücke, die sich durch Verbinden eines evakuierten Probenbehälters, einmal mit und einmal ohne Probe, mit einem bekannten Volumen mit bekanntem Luftdruck einstellen. Aus der Differenz der beiden Drücke läßt sich das unbekannte Probenvolumen berechnen. Die Apparatur (Abb. 12) besteht aus einem Vorratsbehälter für

die Manometerflüssigkeit, einem Steigrohr, einem Verbindungsteil, einem Dreiwegehahn, einem Probenbehälter und einer Vakuumpumpe.

Der Meßvorgang beginnt mit dem Verbinden des evakuierten Probenbehälters mit dem gleichzeitig von der Außenatmosphäre abgeschlossenen Manometermeßrohr. Dadurch wird die Flüssigkeit im Meßrohr hochgesaugt. Für den hochgesaugten Zustand gilt die Beziehung

$$p_0 = p_1 + h \varrho \left(1 + \frac{F}{F_0}\right). \quad (17)$$

- $p_0$  Außendruck
- $p_1$  Druck im Meßrohr
- $h$  Steighöhe der Flüssigkeit
- $\varrho$  Dichte der Flüssigkeit

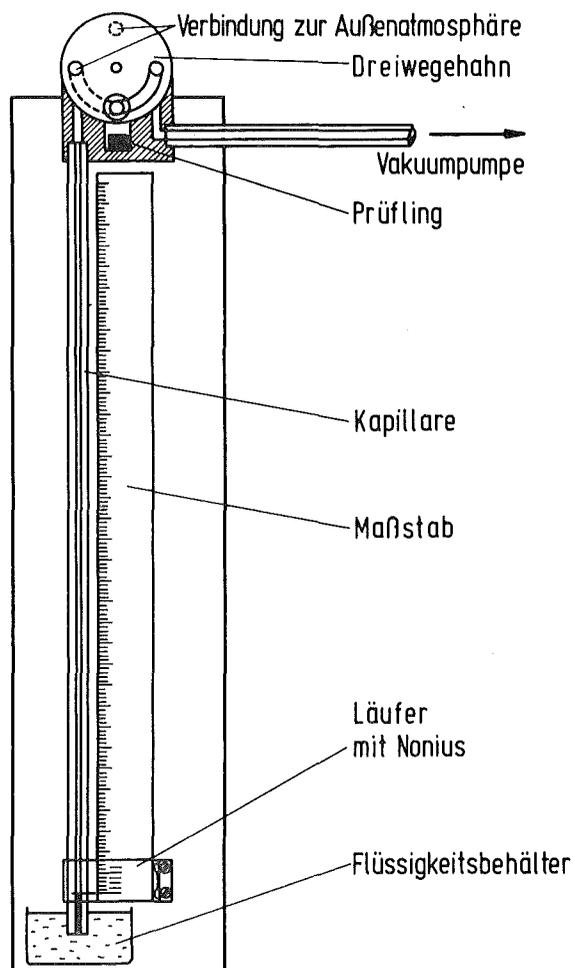


Abb. 12: Apparatur zur Volumenbestimmung

F Querschnittsfläche der Meßrohrkapillare

F<sub>0</sub> freie Querschnittsfläche des Vorratsbehälters

Für den Druck p<sub>1</sub> gilt

$$p_1 = \frac{(FH + V_1) p_0}{F(H - h) + V_1 + V_2 - V_P} \quad (18)$$

H maximal zulässige Steighöhe

V<sub>1</sub> Volumen des Verbindungsteiles zum Probenbehälter

V<sub>2</sub> Volumen des Probenbehälters

V<sub>P</sub> Probenvolumen

Aus (17) und (18) ergibt sich das Probenvolumen zu

$$V_P = V_2 - Fh - \frac{h \varrho \left(1 + \frac{F}{F_0}\right) (V_1 + FH)}{p_0 - h \varrho \left(1 + \frac{F}{F_0}\right)} \quad (19)$$

Änderungen von V<sub>P</sub> sollen größtmögliche Änderungen von h zur Folge haben. Die Empfindlichkeit der Apparatur läßt sich also durch dh/dV<sub>x</sub> beschreiben, wobei V<sub>x</sub> = V<sub>2</sub> - V<sub>P</sub> ist. Durch Auflösen der Gleichungen (17) und (18) nach h und Differenzieren nach V<sub>x</sub> erhält man die Empfindlichkeit

$$\frac{dh}{dV_x} = \frac{1}{2F} \left[ 1 + \frac{\frac{p_0}{2\varrho(1+F/F_0)} - \frac{V_x + V_1}{2F} - \frac{H}{2}}{\sqrt{\frac{V_1 + V_x + FH + Fp_0 / (1+F/F_0)\varrho}{2F}} - \frac{p_0 V_x}{(1+F/F_0)\varrho F}} \right] \quad (20)$$

Wie man aus Gleichung (20) ersieht, steigt die Empfindlichkeit, wenn eine möglichst feine Kapillare, eine Flüssigkeit mit möglichst niedriger Dichte, das kleinstmögliche Totvolumen und eine geringe maximal zulässige Steighöhe verwendet werden.

Da die Volumenbestimmungen im vorliegenden Fall stets an Pellets nahezu gleicher Abmessungen bzw. an Bruchstücken davon durchgeführt wurden, konnte der Probenbehälter weitgehend an die Proben angepaßt werden. Bei den Ringpellets wurde ein Probengefäß mit einem Volumen V<sub>2</sub> = 37 mm<sup>3</sup> benutzt. Mit einem Kapillardurchmesser des Steigrohrs von 0,3 mm, einem Totvolumen V<sub>1</sub> = 21 mm<sup>3</sup> sowie einer Dichte von 0,76 g/cm<sup>3</sup> des als Manometerflüssigkeit

verwendeten Öles (Shell Spindelöl S 49-19 eingefärbt mit Sudan III) ergab sich die maximale Steighöhe zu 500 mm und die Empfindlichkeit zu  $13,3 \text{ mm/mm}^3$ . Die Ablesung der Steighöhe erfolgte an einer Skala mit Nonius. Die Standardabweichung des Volumens in einer Meßreihe war stets kleiner als  $0,02 \text{ mm}^3$ . Die nach diesem Verfahren in Verbindung mit einer Wägung ermittelten Dichtewerte haben damit mindestens die gleiche Genauigkeit wie die nach dem Auftriebsverfahren ermittelten.

### 3.5 Untersuchungsergebnisse

Die Ergebnisse der Nachbestrahlungsuntersuchungen sind in der Tab. 3 aufgeführt. Die Volumenänderung des Brennstoffes ist angegeben als prozentuale Volumenzunahme und als Schwellung. Unter Einbeziehung der offenen Porosität ist die prozentuale Volumenzunahme gegeben durch

$$\frac{\Delta V}{V} = \frac{V_1 - V_0}{V_0} 100, \quad (21)$$

und die Schwellung als prozentuale Volumenzunahme des 100% dichten Brennstoffs ist

$$S = \frac{V_1 - V_{100} - V_{PR}}{V_{100}} 100. \quad (22)$$

$V_1$  Äußeres Probenvolumen nach Bestrahlung

$V_0$  Probenvolumen vor Bestrahlung

$V_{PR}$  Volumen der restlichen Ausgangsporosität nach Bestrahlung

Die Probenvolumina ergeben sich aus den Dichte- und Volumenbestimmungen. Das Volumen der verbliebenen Restporosität wurde unter Zugrundelegung der Ausgangsporosität der jeweiligen Probe nach Abschnitt 5.1 berechnet.

In Abb. 13 sind die äußeren Volumenänderungen als Funktion des Abbrandes eingezeichnet. In der Anfangsphase der Bestrahlung tritt bei allen Proben eine Volumenabnahme ein, d.h. in dieser Phase laufen die Nachverdichtungsvorgänge mit einer höheren Geschwindigkeit ab als die Schwellung. In Bezug auf die Tempera-

Tab. 3: Volumenänderungen, Spaltgasdaten und Cs-137-Freisetzung der UO<sub>2</sub>-Schwellproben

Probe	Volumen=	Schwel=	Gebundenes Spaltgas			Gasfrei=	Cs-137
	zunahme	lung	10 <sup>-3</sup> Atome/U-Atom			setzung	Freisetz.
	%	%	P	G	P+G	%	%
1	2,13	3,52	-	-	-	-	-
2	6,77	8,52	-	-	-	-	-
3	8,15	9,89	-	-	-	-	-
4	8,33	10,28	-	-	-	-	-
5	9,59	12,23	-	-	-	-	-
6	9,94	13,77	-	-	-	-	-
7	-0,65	0,35	-	-	-	-	-
8	0	1,44	-	-	-	-	-
9	0,10	1,24	-	-	-	-	-
10	0,40	1,44	1,23	1,42	2,65	5,0	-
11	4,63	6,06	1,48	0,33	1,81	34,5	1,8
12	3,92	5,06	3,90	1,20	5,10	49,0	-
13	4,59	6,61	3,28	1,42	4,70	55,8	47,6
14	9,81	11,24	3,52	0,65	4,17	62,0	-
15	17,41	19,15	2,46	-	-	-	-
16	9,83	11,60	1,01	0,88	1,89	85,2	-
17	13,32	15,28	2,95	0,50	3,44	74,6	-
18	14,08	16,37	3,20	-	-	-	67,5
19	17,07	19,18	1,64	0,53	2,17	85,0	-
20	3,59	6,10	7,93	1,30	9,23	37,0	-
21	6,28	8,12	9,95	1,20	11,15	29,3	-
22	21,66	23,88	1,95	0,14	2,10	87,0	-
23	10,45	12,72	5,04	0,5	5,5	67,5	71,4
24	3,21	5,74	-	-	-	-	-
25	3,20	5,92	-	-	-	-	-
26	1,45	3,79	5,75	3,40	9,14	1,0	1,4
27	3,07	6,32	3,84	1,37	5,21	45,3	-
28	0,90	4,36	4,84	1,77	6,61	25,7	6,8
29	4,55	8,13	1,20	-	-	-	-
30	4,84	8,44	0,69	-	-	-	-
31	2,31	5,85	4,23	1,18	5,41	62,7	-
32	4,88	8,40	4,23	0,52	4,75	69,3	-
33	3,66	6,83	3,96	1,08	5,04	68,8	-
34	5,37	9,06	1,34	-	-	-	-
35	5,82	9,37	1,69	0,63	2,31	86,9	-
36	3,31	6,58	4,66	1,75	6,41	69,4	49,2
37	3,18	6,29	2,46	1,08	3,54	83,9	-
38	6,94	11,53	0,73	0,57	1,30	94,3	-
39	3,94	7,58	3,35	1,55	4,89	84,3	-
40	4,00	6,85	2,12	1,62	3,74	87,1	74,0
41	4,50	7,32	2,01	1,52	3,52	87,6	-

turabhängigkeit der Schwellung gibt es gravierende Unterschiede zwischen druckfreien und belasteten Schwellproben. Während bei den druckfreien Proben eine sehr starke Temperaturabhängigkeit existiert, die erst bei hohen Abbränden geringer zu werden scheint, zeigen die Proben in den Druckstempelkapseln einen weniger stark ausgeprägten Temperatureinfluß. Die Probenbelastung hat offenbar auch nur einen relativ geringen Einfluß auf die Volumenzunahme.

Bei den druckfreien Proben war wegen der geringen Brennstoffmenge eine genaue Bestimmung der freigesetzten Spaltgasmengen nicht möglich. Die prozentuale Spaltgasfreisetzung wurde deshalb aus der gemessenen Konzentration des gebundenen Spaltgases und der theoretisch entstandenen Spaltgasmenge berechnet. Bei der Aufstellung der Spaltgasbilanz wurde dabei die Entste=

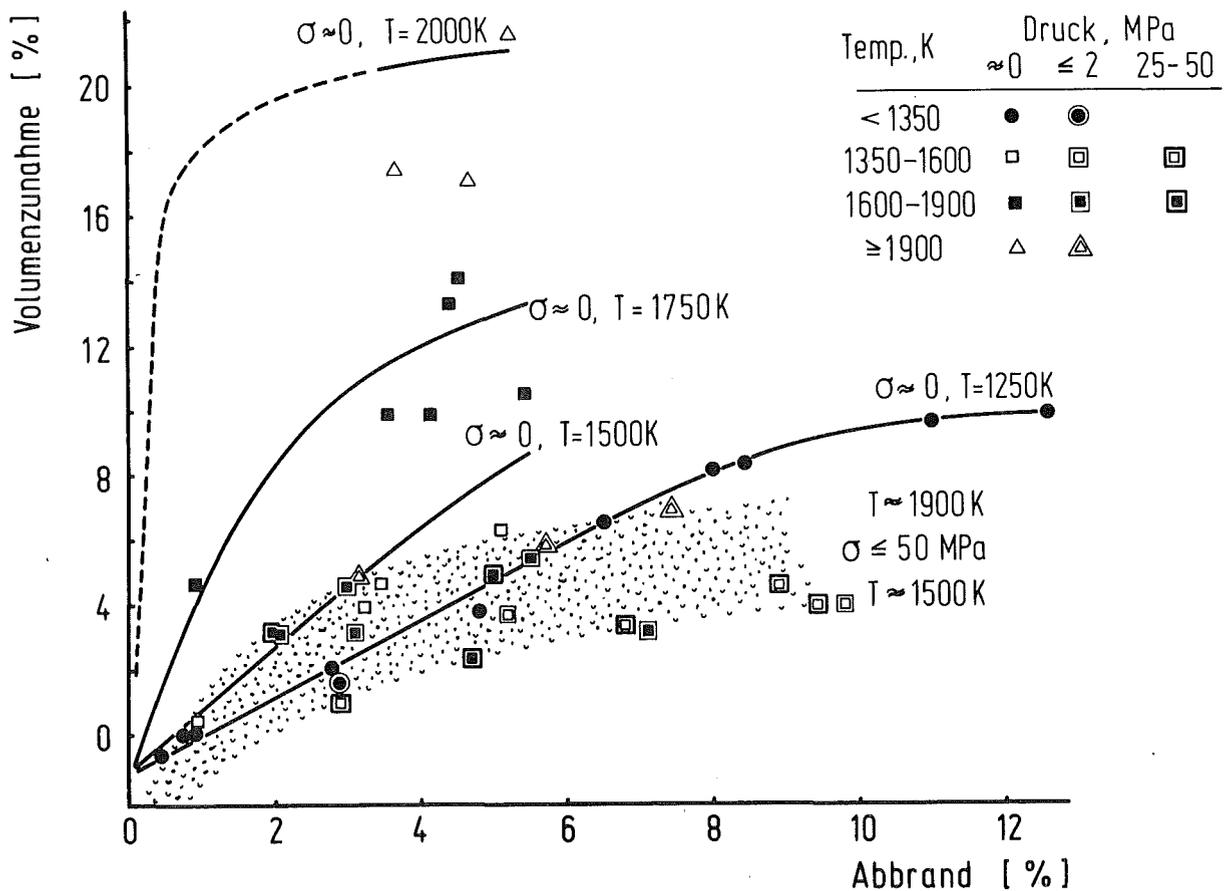


Abb. 13: Volumenzunahme von  $UO_2$  in Abhängigkeit vom Abbrand

hung von 0,31 Gasatomen/Spaltung vorausgesetzt. Bei der Spaltung von U-235 mit thermischen Neutronen entstehen nach neueren Literaturangaben /83,84,85/ 0,24 bis 0,25 stabile Xe- und Kr-Atome pro Spaltung (Isobaren-Ausbeute). Das Xe/Kr-Verhältnis beträgt nach diesen Literaturangaben ca. 5,5 bei U-235- und ca. 13,7 bei Pu-239-Spaltung. Der Wert von 0,25 Gasatomen pro Spaltung ist jedoch zu niedrig, um die tatsächlich entstandenen Spaltgasmengen zu erklären. Bei einer Rückrechnung auf Grund der bei den FR-2-Versuchsgruppen ermittelten Spaltgasmengen und der bekannten Brennstoff- und Abbranddaten ergibt sich, daß pro Spaltung 0,3 bis 0,32 Gasatome entstanden sein müssen. Dieser Wert läßt sich auch theoretisch ableiten, wenn man berücksichtigt, daß das instabile Xe-135 wegen seines hohen Einfangquerschnittes für thermische Neutronen von  $3,6 \cdot 10^6$  barn fast vollständig durch (n, $\gamma$ )-Reaktion in das stabile Xe-136 umgewandelt wird. Bei vollständiger Umwandlung ergibt sich dann nach /83,84,85/ ein Wert von 0,3 bis 0,32 Gasatomen pro Spaltung. Bei thermischen Neutronenflüssen von  $10^{13}$  bis  $10^{14}$  cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>, wie sie bei den FR 2-Bestrahlungen auftreten, ist die Abbaukonstante des Xe-135 durch (n, $\gamma$ )-Reaktion 40 bis 400 mal so groß wie die  $\beta$ -Zerfallskonstante, d.h. fast das gesamte Xe-135 wird in Xe-136 umgewandelt. Das bestätigen auch die gefundenen mittleren Xe/Kr-Verhältnisse von 7,4 bei allen UO<sub>2</sub>-Bestrahlungen im FR 2.

#### 4. Ergebnisse aus anderen Bestrahlungsexperimenten

In diesem Kapitel werden Ergebnisse zum Schwellen und Spaltgasverhalten behandelt, die aus anderen im Kernforschungszentrum Karlsruhe durchgeführten Bestrahlungsexperimenten gewonnen wurden.

##### 4.1 UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Mischoxidbrennstab-Bestrahlungen

Im Rahmen des Bestrahlungsprogrammes des Projektes Schneller Brüter wurde eine Vielzahl von Brennstäben unter simulierten Schnellbrüter-Bedingungen bestrahlt. Typisch für diese Brennstäbe (5,1 ± 1,15 mm Brennstoffdurchmesser) war ein hoher Temperaturgradient im Brennstoff. Die Bestrahlungen erfolgten in verschiedenen Reaktoren, anfangs im Karlsruher Forschungsreaktor FR 2 in einem

thermischen Neutronenfluß, später im belgischen Reaktor BR 2 in Mol in einem epithermischen Neutronenfluß, der durch eine Cd-Abschirmung erzeugt wurde, und schließlich in den schnellen Neutronenflüssen der Reaktoren DFR in Dounreay (Großbritannien) und Rapsodie (Frankreich). Die wichtigsten Brennstoff- und Bestrahlungsdaten sind in der Tab. 4 aufgeführt. Zur genaueren Information wird auf die für die einzelnen Bestrahlungsexperimente erschienenen KFK-Berichte verwiesen, die eine ausführliche Dokumentation aller Daten der Brennstoffherstellung, der Brennstäbe, der Bestrahlung und der Nachbestrahlungsuntersuchungen bieten bzw. sich mit der Auswertung der Experimente befassen.

Tab. 4: Brennstoff- und Bestrahlungsdaten der ausgewerteten  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstabbestrahlungsexperimente

Reaktor/ Experiment	Brennstoff	Abbrand %	Max. Stableist. W/cm	Max. Hülltemp. K	Literatur
FR 2/4a,4b 5b	$UO_2$ -(15-35)% $PuO_2$ U: <sup>235</sup> U 0,7% U-235 85-93% TD O/M 1,98-1,99	1,6-13,1	510-700	670-1040	/86-90/
BR2/Mol 7A 8B, 8C	$UO_2$ -20% $PuO_2$ U: <sup>235</sup> U 79-93% U-235 84-95% TD O/M 1,98-1,99	3,7-11,8	345-590	850-960	/91-96/
DFR/304 350,435	$UO_2$ -20% $PuO_2$ U: <sup>235</sup> U 86-93% U-235 89-90% TD O/M 1,98-1,997	5,2- 7,3	450-520	940-960	/97-103/
Rapsodie/ Monitor, Bündel 1,2	$UO_2$ -30% $PuO_2$ U: <sup>235</sup> U 83% U-235 87% TD O/M 1,965-2,000	5,9- 9,2	430-460	900-920	/104/

Ziele der Versuchsauswertung waren die Ermittlung der integralen Schwellung in  $UO_2$ - $PuO_2$ -Mischoxidbrennstäben und die Bestimmung der Spaltgasfreisetzung und der Verteilung des im Brennstoff zurückgehaltenen Spaltgases.

Die Gesamtschwellung des Brennstoffes in einem Brennstab ist gegeben durch

$$S = \frac{V_1^* - V_{PR} - V_{100}}{V_{100}} \quad (23)$$

mit

$$V_{100} = \frac{G}{\varrho_{100}} \quad (24)$$

und

$$V_1^* = V_{ges}^* - V_{Leer}^* \quad (25)$$

- $V_{100}$  Volumen des 100% dichten Brennstoffs
- $V_1^*$  Volumen des kompakten Brennstoffes nach Bestrahlung
- $V_{ges}^*$  äußeres Brennstoffvolumen nach Bestrahlung
- $V_{Leer}^*$  Leervolumen im Brennstoff nach Bestrahlung
- $V_{PR}$  Volumen der im Brennstoff verbliebenen restlichen Ausgangsporosität
- $G$  Brennstoffgewicht
- $\varrho_{100}$  theoretische Brennstoffdichte

Die einzelnen Größen wurden auf folgende Weise erhalten:

- Das Brennstoffgewicht  $G$  wurde den Herstellungsberichten entnommen.
- Das äußere Brennstoffvolumen  $V_{ges}^*$  ergab sich aus den geometrischen Daten der Brennstoffsäule nach Bestrahlung:

$$V_{ges}^* = \frac{\pi}{4} d^{*2} L^* \quad (26)$$

mit

$$d^* \approx d_{H10} + \Delta d^* - b^* \quad (27)$$

- $L^*$  Brennstoffsäulenlänge nach Bestrahlung
- $d^*$  Brennstoffsäulendurchmesser nach Bestrahlung
- $d_{H10}$  Hüllinnendurchmesser vor Bestrahlung
- $\Delta d^*$  Hülldurchmesseränderung
- $b^*$  diametrale Spaltbreite nach Bestrahlung

- Das Leervolumen  $V_{\text{Leer}}^*$  setzt sich zusammen aus dem Rißvolumen und dem Volumen des Zentralkanals. Es wurde durch Ausmessung der Schliffbilder gewonnen. Zur Bestimmung der Zentralkanalvolumen wurden auch die Betatronaufnahmen herangezogen. Teilweise konnte auf Messwerte anderer Autoren /105-109/ zurückgegriffen werden.
- Mangels Kenntnis genauer Werte der verbliebenen Restporosität wird  $V_{\text{PR}} = 0$  gesetzt, so daß man die Schwellung als Maximalwert  $S_{\text{max}}$  erhält.

Die experimentelle Bestimmung der verbliebenen Restporosität ist nach mittleren und hohen Abbränden nicht mehr möglich, und die Berechnung setzt die genaue Kenntnis aller Verdichtungs Vorgänge voraus, die zur Zeit noch nicht gegeben ist. Außerdem bietet die Unterscheidung zwischen Spaltgasblasen und spaltgasgefüllten Poren grundsätzliche Schwierigkeiten.

In der Stengelkristallzone, deren Volumenanteil bei den ausgewerteten Brennstäben im allgemeinen zwischen 40 und 70% lag, kann man in erster Näherung ein 100%iges Verschwinden der in dieser Zone ursprünglich vorhanden gewesenen Porosität infolge Porenwanderung voraussetzen. In den übrigen Brennstoffzonen ist nach Dienst /110/ mit einer Nachsinterung des verwendeten Brennstoffs auf ca. 7% Endporosität zu rechnen. Bei einem Volumenanteil der Stengelkristallzone von 40 bis 70% läßt sich damit eine verbleibende Sinterporosität von 4 bis 2% abschätzen.

Eine weitere Nachverdichtung sollte im Fall des Kontaktes zwischen Brennstoff und Hülle durch Schwellen und Kriechen in die Poren unter dem Einfluß des Hüllwiderstandes stattfinden; evtl. spielt hierbei auch Heißpressen eine Rolle.

Die ermittelten maximalen Schwellungen sind in Abb. 14 als Funktion des Abbrandes dargestellt. Eine ausführliche tabellarische Darstellung dieser Werte und der einzelnen Volumenanteile findet sich in /111/. Für Abbrände über 4% ergibt sich ein fast linearer Zusammenhang zwischen Schwellung und Abbrand. Für Leistungsdichten am Bestrahlungsende bis zu 200 W/g (FR 2-Ver=

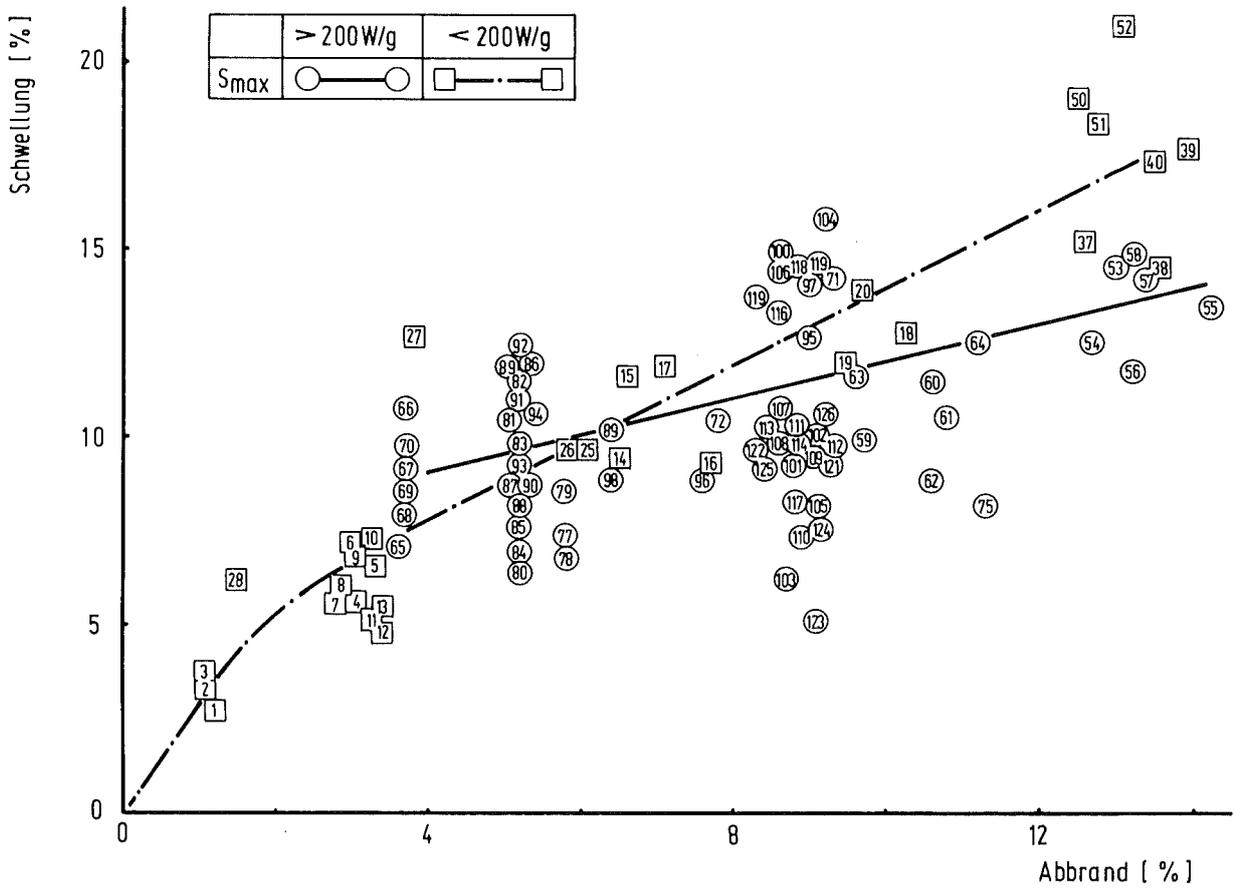


Abb. 14: Maximale Schwellung in  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Mischoxidbrennstäben in Abhängigkeit vom Abbrand (Die Zahlen bezeichnen die Probennummern in /111/)

suchsgruppen 4a und 4b) lautet die Regressionsgerade

$$S_{\max} = 3,7\% + A. \quad (28)$$

A Abbrand in %

Für Leistungsdichten über 200 W/g ergibt sich

$$S_{\max} = 6,9\% + 0,65 A. \quad (29)$$

Einem Brennstab des Experimentes Rapsodie I (Abbrand 8,9%) wurde in unmittelbarer Nähe des Stableistungsmaximums eine Probe zur Dichtebestimmung nach dem Auftriebsverfahren in Tetrachlorkohlenstoff entnommen. Die Dichte nach Bestrahlung wurde zu  $10,093 \text{ g/cm}^3$  ermittelt. Bei einer Ausgangsdichte von  $9,355 \text{ g/cm}^3$  entspricht das einer Dichtezunahme von 7,89% bzw. einer Volumenabnahme von 8,56%. Die maximale Schwellung beträgt 9,0%. Dieser Wert steht in relativ guter Übereinstimmung mit dem aus der Volumenbilanz für den gesamten Stab gefundenen Wert von 9,5%.

Abb. 15 zeigt die prozentualen Spaltgasfreisetzungswerte der untersuchten Brennstäbe in Abhängigkeit vom Abbrand. Parameter in dieser Abbildung ist die volumetrisch gemittelte Brennstofftemperatur am Bestrahlungsende. Die Meßwerte wurden drei Temperaturgruppen mit den mittleren Temperaturen 1250, 1500 und 1750 K zugeordnet. Die niedrigen mittleren Brennstofftemperaturen traten bei den FR 2-Experimenten 4a und 4b auf, bei denen Stableistung und Hülltemperatur im Laufe des Abbrandes teilweise stark abfielen.

Die Konzentration des gebundenen Spaltgases in Abhängigkeit vom Abbrand ist in der Abb. 16 für verschiedene mittlere Brennstofftemperaturen dargestellt. Die entsprechenden Darstellungen für das Gitter- und Porenspaltgas sind die Abb. 17 und 18. Für die tabellarische Darstellung der gemessenen Freisetzungswerte und Spaltgaskonzentrationen sei auf /112/ verwiesen.

Aus der Abhängigkeit der Konzentrationen der einzelnen Spaltgasanteile von der mittleren Brennstofftemperatur lassen sich die Konzentrationen in verschiedenen Temperaturbereichen des Brenn-

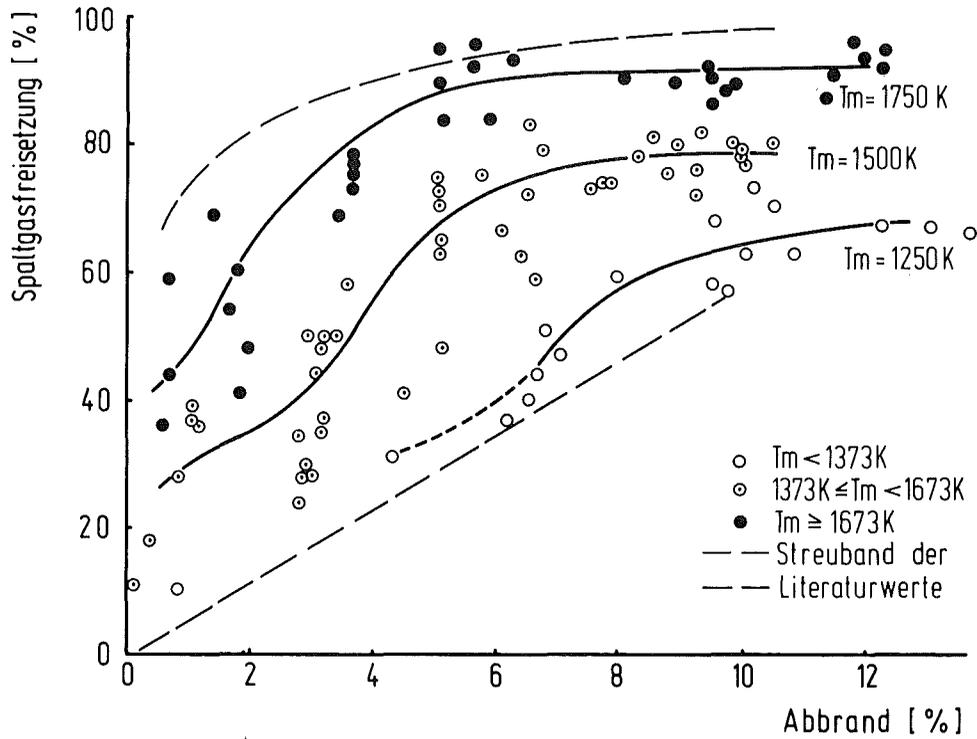


Abb. 15: Prozentuale Spaltgasfreisetzung in  $UO_2$ - $PuO_2$ -Mischoxidbrennstäben in Abhängigkeit vom Abbrand

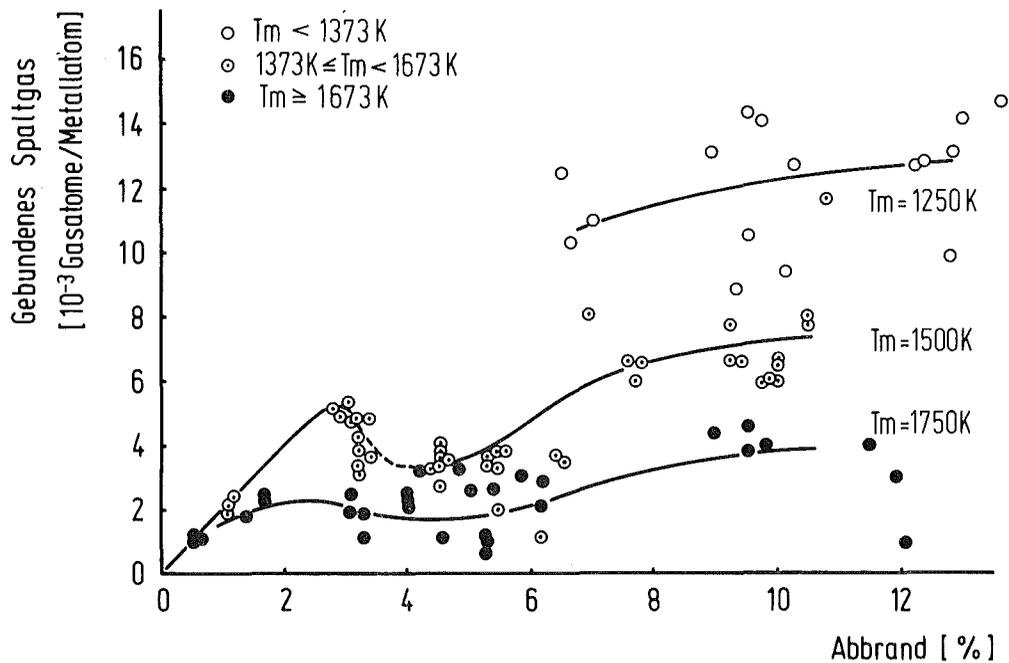


Abb. 16: Konzentration des zurückgehaltenen Spaltgases in  $UO_2$ - $PuO_2$ -Mischoxidbrennstäben in Abhängigkeit vom Abbrand

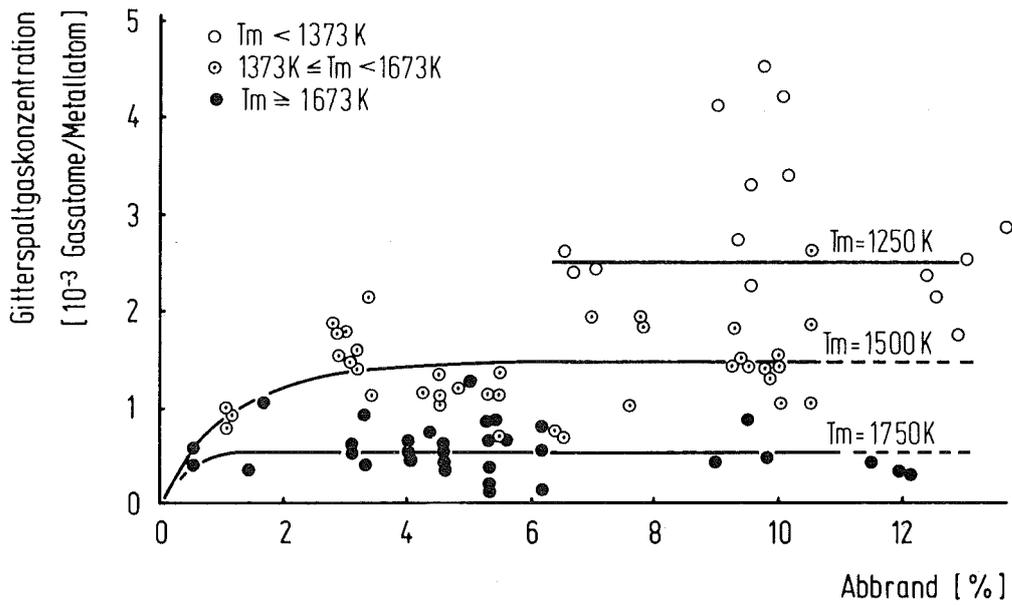


Abb. 17: Gitterspaltgaskonzentration in UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Mischoxidbrennstäben in Abhängigkeit vom Abbrand

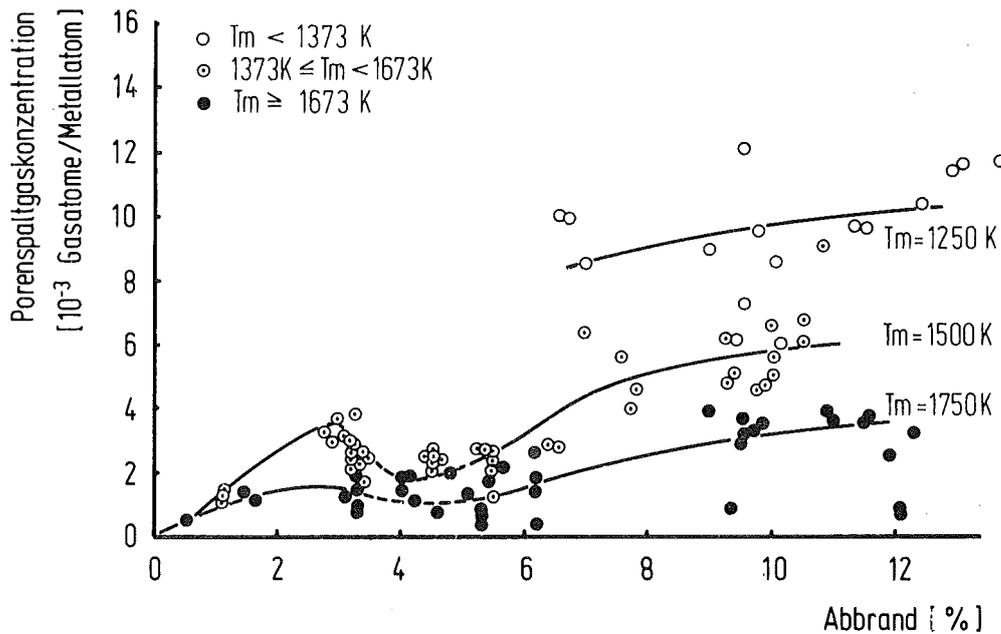


Abb. 18: Porenspaltgaskonzentration in UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Mischoxidbrennstäben in Abhängigkeit vom Abbrand

stoffes abschätzen. Man erhält dann für Abbrände um 8% die in der Tab. 5 angegebenen Spaltgaskonzentrationen.

Tab. 5 : Konzentrationen des gebundenen Spaltgases in  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstoff nach ca. 8% Abbrand

Temperatur= bereich K	Gaskonzentration, Atome/(U+Pu)-Atom		
	Gitter= spaltgas G	Poren= spaltgas P	Gebundenes Gas P + G
< 1370	$3,2 \cdot 10^{-3}$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	$1,4 \cdot 10^{-2}$
1370 - 1570	$1,5 \cdot 10^{-3}$	$7,0 \cdot 10^{-3}$	$8,5 \cdot 10^{-3}$
1570 - 1770	$5,0 \cdot 10^{-4}$	$1,7 \cdot 10^{-3}$	$2,2 \cdot 10^{-3}$
> 1770	$1,0 \cdot 10^{-4}$	$1,0 \cdot 10^{-4}$	$2,0 \cdot 10^{-4}$

#### 4.2 $UO_2$ -Brennstab-Bestrahlungen

In der Anfangsphase der PSB-Brennstab-Bestrahlungen waren unter anderem mehrere Kapselversuchseinsätze mit jeweils zwei bis vier Stäben mit  $UO_2$ -Tabletten bestrahlt worden. Die Spaltgasdaten dieser Stäbe, die in Tab. 6 zusammen mit den wichtigsten Bestrahlungsdaten aufgeführt sind, werden in die Auswertung des Spaltgasverhaltens im  $UO_2$  einbezogen. Zur genaueren Information bezüglich der Brennstoff- und Bestrahlungsdaten sei auch hier auf /112/ verwiesen.

#### 4.3 $UO_2$ -Cermet-Bestrahlungen

Ein mögliches Brennstabkonzept für gasgekühlte Reaktoren sind Oxid-Cermet-Brennstäbe. Im Rahmen der Untersuchung des Bestrahlungsverhaltens derartiger Brennstäbe wurden mehrere heißgepreßte Stäbe mit einem idealisierten Brennstoffgefüge aus metallbeschichteten  $UO_2$ -Mikrokugeln gleichmäßiger Größe (0,11 mm Durchmesser) im FR 2 bis zu Abbränden von maximal 10% bestrahlt /113/. Für die Proben mit hohen Abbränden wurden Spaltgasbilanzen aufgestellt, die in Tab. 7 zusammen mit den wichtigsten Brennstoff- und Bestrahlungsdaten wiedergegeben sind.

Tab. 6: Bestrahlungs- und Spaltgasdaten der untersuchten UO<sub>2</sub>-Brennstäbe

KVE	Abbrd. %	Mittlere Stableist.	Mittlere Hülltemp.	T <sub>m</sub> <sup>1)</sup> K	Gebundenes Spaltgas 10 <sup>-3</sup> Atome/U-Atom			Frei- setz. %
					P	G	P+G	
4	0,1	370	720	1470	0,04	0,12	0,15	2
5	0,8	370	720	1370	0,34	1,08	1,42	-
11	0,4	450	780	1470	0,26	0,40	0,66	17
13	0,8	450	780	1320	0,31	1,39	1,71	7
20	0,6	540	720	1880	0,43	0,63	1,07	46,3
21	1,7	530	710	1650	1,70	1,50	3,20	44,5
23	1,6	490	690	1770	0,93	1,04	1,97	56,9
24	6,1	285	560	850	14,30	3,54	17,84	31,6
25	4,6	470	720	1410	5,17	1,45	6,62	47,7
26	4,0	490	670	1410	3,39	2,07	5,46	35,7
27	5,4	380	605	870	10,71	5,04	15,75	37,0
28	6,0	305	570	870	10,36	3,22	13,56	60,1
29	2,7	510	700	1510	3,40	1,79	5,19	33,0

1) Über das Brennstoffvolumen gemittelte Temperatur am Bestrahlungsende

Tab. 7: Spaltgasdaten und Cs-137-Freisetzungswerte aus UO<sub>2</sub>-Cermet-Bestrahlungen

Probe	Vol.-% Metall	Abbrd. %	T <sub>m</sub> K	Gebundenes Spaltgas 10 <sup>-3</sup> Atome/U-Atom			Gasfrei- setzung %	Cs-137- Freisetz. %
				P	G	P+G		
D 1	20 Cr	6,3	1350	7,47	1,35	8,82	54,8	35,2
D 2	30 Cr	6,4	1150	8,14	3,72	11,86	40,2	3,5
D 3	20 Cr	6,1	1350	5,71	2,03	7,74	59,1	16,0
D 4	30 Cr	6,4	1150	7,56	1,96	9,52	52,0	5,8
E 1	20 Cr	8,9	1350	6,86	2,47	9,33	66,2	9,4
E 2	30 Cr	9,9	1200	6,53	1,03	7,56	75,4	25,7
E 3	20 Cr	10,1	1350	7,78	8,55	16,33	47,8	-
E 4	30 Cr	9,4	1150	18,32	5,42	23,74	18,5	-
F 1	20 V	5,8	1450	-	-	-	-	53,9
F 3	20 V	5,7	1450	-	-	-	-	56,6

Die integrale  $UO_2$ -Schwellrate in den  $UO_2$ -Cr-Cermets unter dem Widerstand der Cr-Matrix und der Hülle wurde aus Volumenbilanzen zu ca. 2 %/% Abbrand ermittelt. Messungen der  $UO_2$ -Partikeldurchmesser und Bestimmungen der Porositäts- und Gefügeanteile in den Randzonen (900-1100 K) und Zentren (1250-1450 K) der Proben mit 30 Vol.-% Cr und 9 bis 10% Abbrand ergaben eine um 50 bis 60% höhere Schwellung im Probenzentrum.

#### 4.4 $UO_2$ - und $UO_2$ - $PuO_2$ -Kriechproben-Bestrahlungen

Im Institut für Material- und Festkörperforschung des Kernforschungszentrums Karlsruhe wurden umfangreiche Untersuchungen zum Kriechverhalten keramischer Kernbrennstoffe unter Neutronenbestrahlung durchgeführt /79,114,115/. Die Bestrahlungsproben waren Stapel aus dünnen Brennstoffringpellets und Molybdän-Zwischenringen, die axial belastet wurden. Ein Teil dieser Proben (Bestrahlungstemperatur <1300 K) wurde in Bezug auf das Spaltgasverhalten und die Cs-137-Freisetzung untersucht. Die Ergebnisse sind in der Tab. 8 aufgeführt.

Tab. 8: Spaltgasdaten und Cs-137-Freisetzungswerte aus Kriechprobenbestrahlungen

Probe	Brennstoff	Abbrd. %	Gebundenes Spaltgas			Gasfrei- setzung %	Cs-137- Freisetz. %
			$10^{-3}$ Atome/U	Pu-Atom	P+G		
			P	G	P+G		
70-E 8	$UO_2$	1,9	-	-	-	-	4,9
78-E10	$UO_2$	1,1	-	-	-	-	4,6
78-E11	$UO_2$	1,1	-	-	-	-	1,3
85-E12	$UO_2$	4,7	-	-	-	-	20,0
85-E13	$UO_2$	4,4	-	-	-	-	9,3
95-E16	$UO_2$	3,0	-	-	-	-	15,6
95-E17	$UO_2$	2,8	3,19	2,33	5,52	36	-
107-EEA	$UO_2$	0,5	1,07	0,46	1,53	1	-
98-E20	$UO_2$ - $PuO_2$	0,5	-	-	-	-	34,8
101-E27	$UO_2$ - $PuO_2$	0,9	1,29	0,71	2,00	28	-
113-E30	$UO_2$ - $PuO_2$	1,9	1,14	0,80	1,94	66	-
113-E31	$UO_2$ - $PuO_2$	1,9	1,45	1,01	2,46	58	-

## 5. Auswertung und Diskussion

### 5.1 Nachverdichtung des porösen Brennstoffes

Zur Ermittlung der Schwellung aus den gemessenen Volumen- bzw. Dichteänderungen des porösen Brennstoffes muß eine Volumenbilanz aufgestellt werden, die die Verdichtungseffekte, wie Nachsinterung und Heißpressen bei unter Druck stehenden Proben, berücksichtigt.

#### 5.1.1 Nachsinterung

Die Auflösung von Sinterporen unter Bestrahlung ist bereits seit längerer Zeit bekannt /14,116,117/. Wegen seiner technischen Bedeutung, besonders für Leichtwasserreaktor-Brennelemente, wurde dieser Effekt Gegenstand vieler Untersuchungen, sowohl experimenteller /118-136/, die im wesentlichen auf der Auswertung von Brennstabbestrahlungen basieren, als auch theoretischer. Marlowe /137/ berechnet die bestrahlungsbedingte Nachsinterung bei tiefen Temperaturen durch Einführung eines bestrahlungsbedingten Diffusionskoeffizienten. MacEwen und Hastings /138/ erklären die Nachsinterung bei diesen Bedingungen durch einen Strom von Zwischengitteratomen zu den Poren in der Zeit, in der die Konzentration der Leerstellen- und der Zwischengitteratome noch nicht ihre Gleichgewichtswerte erreicht haben. Nach Speight /139/ ist dieser Vorgang für die Nachverdichtung jedoch zu vernachlässigen. Stehle und Abmann /140/ erhalten durch Gleichsetzen von bestrahlungsbedingter Leerstellenerzeugung an der Porenoberfläche und Abtransport dieser Leerstellen zu den Korngrenzen bei Temperaturen oberhalb 1000 bis 1100 K eine temperaturunabhängige lineare Abnahme des Porenradius mit der Zeit. Dieses Modell wurde im Hinblick auf die Nachsinterung von  $UO_2$  in Leichtwasserreaktorbrennelementen entwickelt. Eigene Bestrahlungsversuche wurden jedoch teilweise bei höheren Temperaturen durchgeführt, bei denen bereits ein Einfluß thermischer Sinterung zu erwarten war. Das Ziel der folgenden Betrachtung ist deshalb eine geschlossene formelmäßige Darstellung der Nachverdichtung für den Fall der Überlagerung beider Sintermechanismen. Die Verknüpfung erfolgt durch Summierung der Leerstellenkonzentrationsdifferenzen, die durch Bestrahlungseffekte bzw. thermische Aktivierung bedingt sind.

Für die Volumenabnahme einer sphärischen Pore infolge des Leerstellenflusses an eine sie umgebende, ebenfalls als sphärisch angenommene Korngrenze als Senke gilt

$$\frac{dV}{dt} = -4\pi D_L \Delta C \frac{R_S r}{R_S - r} \quad (30)$$

$D_L$  Leerstellendiffusionskoeffizient  
 $\Delta C$  Differenz der Leerstellenkonzentrationen an der Porenoberfläche und im "ungestörten" Material  
 $r$  Porenradius  
 $R_S$  Senkenradius

Die Differenz der Leerstellenkonzentration ohne Bestrahlung ist nach /141/

$$\Delta C_r = \frac{2C_o \gamma V_{mol}}{RTr} \quad (31)$$

$C_o$  Gleichgewichtsleerstellenkonzentration  
 $\gamma$  Oberflächenenergie  
 $V_{mol}$  Molvolumen  
 $R$  Gaskonstante

Unter Bestrahlung entsteht eine zusätzliche Leerstellenkonzentrationsdifferenz. Beim Durchgang eines Spaltfragments durch eine Pore oder beim Tangieren einer Pore durch eine Spaltfragmentbahn werden Matrixatome verdampft, die anschließend wieder an der Porenoberfläche kondensieren. In den aufgedampften Bereichen ist mit einer momentanen Leerstellenkonzentration  $C_{LM} \approx 10^{-3}$  ähnlich der am Schmelzpunkt zu rechnen. Die mittlere Leerstellenerzeugungsrate  $\dot{L}$  in dieser Oberflächenschicht mit der Tiefe  $S$  ergibt sich aus der Zahl der die Porenoberfläche pro Sekunde passierenden Spaltfragmente  $Z_1$  multipliziert mit der Zahl der pro Passage erzeugten Leerstellen  $Z_2$ , die auf die Zahl der Uranatome in der Oberflächenschicht bezogen ist, wobei  $S \ll r$  vorausgesetzt wird.

$$\dot{L} = Z_1 Z_2 \quad (32)$$

dabei sind

$$Z_1 = 2\pi \lambda \dot{F} (r_{tr} + r)^2 \quad (33)$$

und

$$Z_2 = \frac{2 S F_{tr} C_{LM}}{4\pi r^2 S} . \quad (34)$$

$\lambda$  Länge einer Spaltfragmentbahn,  $\lambda = 8 \cdot 10^{-4}$  cm

$\dot{F}$  Spaltungsrate

$r_{tr}$  Radius einer Spaltfragmentbahn

$F_{tr}$  Querschnittsfläche einer Spaltfragmentbahn,  $F_{tr} = 10^{-12}$  cm<sup>2</sup>

Mit  $r_{tr} \ll r$  ergibt sich

$$\dot{L} = \lambda F_{tr} C_{LM} \dot{F} . \quad (35)$$

Sind die Bedingungen  $r_{tr} \ll r$  und  $S \ll r$  nicht erfüllt - das ist bei Poren mit Radien unter  $10^{-5}$  cm der Fall - so ist die nach Formel (35) berechnete Leerstellenerzeugungsrate zu klein, und die Nachsintergeschwindigkeit dieser Feinporosität, die nur einen geringen Anteil an der Gesamtporosität hat, wird unterschätzt. Für die technisch interessierenden Porengrößen im Bereich um  $10^{-4}$  cm sind die genannten Bedingungen jedoch erfüllt.

Die erzeugten Leerstellen heilen bei Temperaturen um 1000 K nach Dienst /142/ bevorzugt an den in großer Anzahl vorliegenden Versetzungen aus. Die Ausheilgeschwindigkeit ist nach /142/

$$\dot{W} = \frac{1}{6} \alpha_V d^2 \nu_L C_L \quad (36)$$

mit

$$\frac{1}{6} d^2 \nu_L = D_L . \quad (37)$$

$\alpha_V$  Versetzungsdichte

$d$  Sprungabstand zur benachbarten Gitterposition

$\nu_L$  Sprungfrequenz der Leerstellen

$C_L$  Leerstellenkonzentration

Die durch Spaltfragmente erzeugte Leerstellenkonzentration  $C_L$  an der Porenoberfläche kann im betrachteten Temperaturbereich von 1200 bis 2100 K in erster Näherung der bestrahlungsbedingten Leerstellenkonzentrationsdifferenz  $\Delta C^*$  gleichgesetzt werden. Aus der Gleichgewichtsbedingung  $\dot{L} = \dot{W}$  ergibt sich dann

$$\Delta C^* \approx C_L = \frac{\lambda F_{tr} C_{LM} \dot{F}}{\alpha_V D_L} . \quad (38)$$

Mit steigender Temperatur und damit zunehmender Leerstellenbeweglichkeit und verstärkter Ausheilung der Versetzungen wird die Porenoberfläche selbst als Senke ungefähr gleicher Stärke dominierend.

Die Gesamtdifferenz der Leerstellenkonzentration ist

$$\Delta C = \Delta C_r + \Delta C^* . \quad (39)$$

Für den Fall, daß die bestrahlungsbedingte Nachsinterung dominiert,  $\Delta C^* \gg \Delta C_r$ , erhält man durch Einsetzen von Gleichung (38) in (30) und Integration unter Verwendung der Beziehung

$$dV = 4\pi r^2 dr \quad (40)$$

$$t = \frac{\alpha}{\lambda F_{tr} C_{LM} \dot{F}} \left( \frac{r_o^2 - r^2}{2} - \frac{r_o^3 - r^3}{3 R_S} \right) . \quad (41)$$

$r_o$  Porenradius zum Zeitpunkt  $t = 0$

Für die rein thermische Sinterung ergibt sich

$$t = \frac{R T}{2 C_o \gamma V_{mol} D_L} \left( \frac{r_o^3 - r^3}{3} - \frac{r_o^4 - r^4}{4 R_S} \right) . \quad (42)$$

Bei Berücksichtigung beider Vorgänge besteht folgender Zusammenhang zwischen Bestrahlungszeit und Porenradius

$$t = \frac{1}{D_L \Delta C^*} \left\{ \left( 1 + \frac{A}{R_S \Delta C^*} \right) \left[ \frac{r_o^2 - r^2}{2} - \frac{A(r_o - r)}{\Delta C^*} + \left( \frac{A}{\Delta C^*} \right)^2 \ln \frac{\Delta C^* r_o + A}{\Delta C^* r + A} \right] - \frac{r_o^3 - r^3}{3 R_S} \right\} \quad (43)$$

mit

$$A = \frac{2 C_o \gamma V_{mol}}{R T} . \quad (44)$$

In der Abb. 19 sind die nach den Formeln (41) und (43) berechneten Restvolumina verschieden großer Poren in  $UO_2$  mit mittleren Korngrößen von 10 bzw. 7  $\mu m$  bei einer Spaltungsrate von  $5 \cdot 10^{13}$  Spaltungen/ $cm^3 \cdot s$  bei verschiedenen Temperaturen als Funktion der Bestrahlungszeit dargestellt. Als Senkenradius wurde bei Porengrößen bis zur halben mittleren Korngröße der Kornradius verwendet. Bei größeren Poren wurde in Anlehnung an /140/ der mittlere Senkenradius zu  $r_o + R_o$  ( $R_o$  Ausgangskornradius) definiert. Ferner wurde eine Versetzungsdichte von  $2 \cdot 10^{10} cm^{-2}$  als ungefährender Mittelwert der in der Literatur /138,142/ angegebenen Versetzungsdichten in bestrahltem  $UO_2$  bei Temperaturen unter  $0,5 T_m$  ( $T_m$  Schmelztemperatur) angenommen. Die übrigen zur Rechnung benutzten Materialdaten sind in der Tab. 9 aufgeführt. Die Ergebnisse der Rechnung zeigen, wie hier nicht näher aufgeführt, daß bei einer Spaltungsrate von  $5 \cdot 10^{13}$  Spaltungen/ $cm^3 \cdot s$  bei Temperaturen unterhalb 1900 K nur der bestrahlungsbedingte Anteil der Nachsinterung berücksichtigt werden muß.

Abb. 20 zeigt die für die in den Abbildungen 3 und 4 dargestellten Porositätsverteilungen der beiden verwendeten Brennstoffsorten ermittelten Dichtezunahmen durch Nachsinterung in Abhängigkeit vom Abbrand, die der Versuchsauswertung zugrunde gelegt werden. Zum Vergleich sind in Abb. 21 experimentell gefundene oder nach Formeln anderer Autoren berechnete Dichtezunahmen dargestellt.

Tab. 9: Zur Berechnung der Nachsinterung benutzte Materialdaten

$$\text{Molvolumen des } UO_2 \quad V_{\text{mol}} = 24,635 \text{ cm}^3$$

$$\text{Oberflächenenergie } \gamma = 1,585 \cdot 10^{-4} - 4 \cdot 10^{-8} T, \text{ J/cm}^2 \text{ /143/}$$

$$\text{Gleichgewichtsl Leerstellenkonzentration } C_o = \exp(-U/kT)$$

$$\text{Bildungsenergie } U = 2,3 \text{ eV} \text{ /138/}$$

$$\text{Leerstellendiffusionskoeffizient } D_L = 0,25 \exp(-Q/RT), \text{ cm}^2/\text{s}$$

$$\text{Aktivierungsenergie } Q = 2,219 \cdot 10^5, \text{ J/mol} \text{ /142/}$$

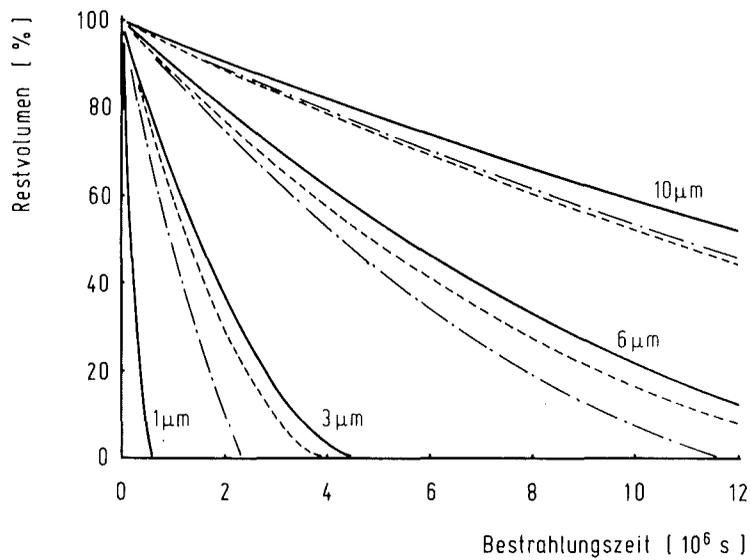


Abb. 19: Restvolumina von Poren verschiedener Durchmesser in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei einer Spaltungsrate  $\dot{F} = 5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$

— Ausgangskorngröße  $10 \mu\text{m}$ ,  $1300 \text{ K} < T < 1900 \text{ K}$   
 - - - - - Ausgangskorngröße  $7 \mu\text{m}$ ,  $1300 \text{ K} < T < 1900 \text{ K}$   
 - · - · - Ausgangskorngröße  $10 \mu\text{m}$ ,  $T = 2000 \text{ K}$

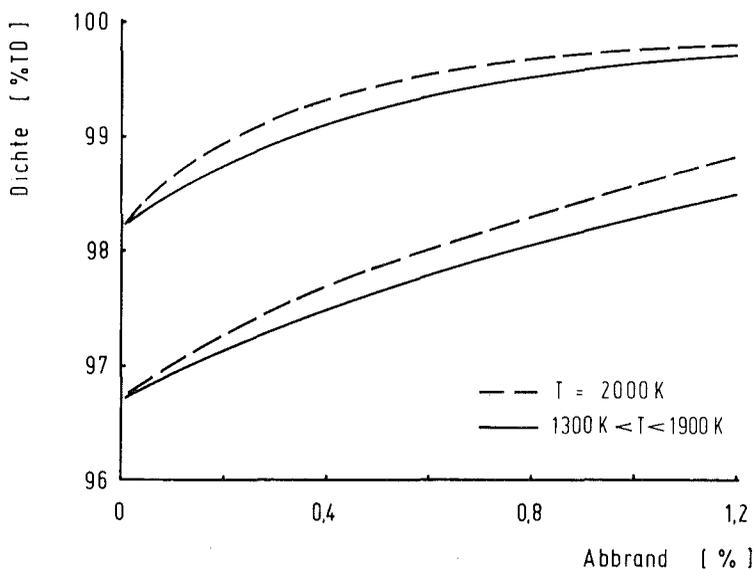


Abb. 20: Änderung der Sinterdichte der  $\text{UO}_2$ -Schwellproben als Funktion des Abbrandes bei einer Spaltungsrate  $\dot{F} = 5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$

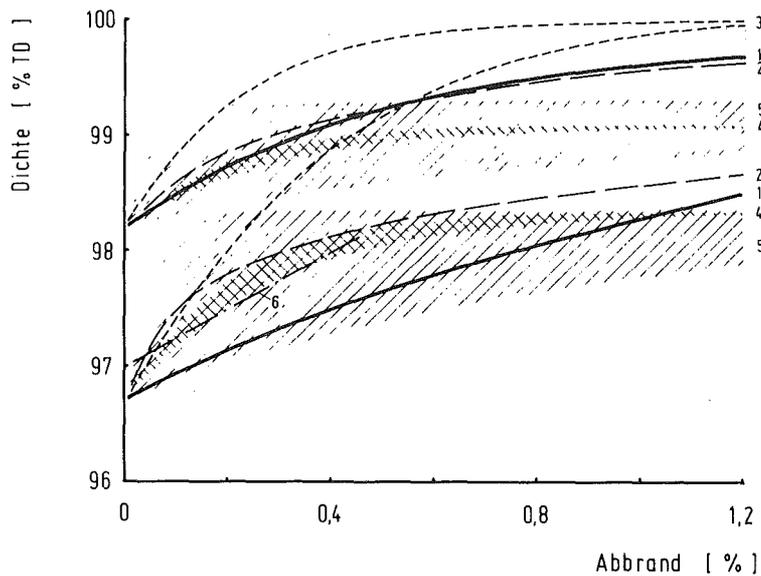


Abb. 21: Änderung der Sinterdichte von  $UO_2$  als Funktion des Abbrandes - Vergleich eigener Berechnungen mit Daten aus der Literatur

- 1 Eigenes Modell
- 2 Berechnet nach Marlowe /137/
- 3 Berechnet nach Stehle und Abmann /140/
- 4 Berechnet nach Formel von Dienst /132/  
 $P = 0,5 P_0 [1 + \exp(-A/A_0)]$ , A Abbrand in %,  $A_0 = 0,2 - 0,3\%$
- 5 Berechnet nach Formel von Collins und Hargreaves /125/  
 $P = C_1 P_0 \exp(-C_2 A) + (1 - C_1) P_0$ , A Abbrand in MWd/tU  
 $C_1 = 0,5 - 0,6$ ,  $C_2 = 2 \cdot 10^{-3}$  für WAGR-Brennstoff  
 $C_2 = 10^{-4}$  für SGHWR-Brennstoff /122/
- 6 Von Banks /62/ experimentell ermittelt

In Abb. 22 sind die Längenänderungen der beiden ca. 97% dichten Proben, die in einer Druckstempelkapsel ohne Probenbelastung bestrahlt wurden, in Abhängigkeit vom Abbrand dargestellt. Zum Vergleich ist die mit der Porengrößenverteilung der Abb. 4 berechnete Nachsinterkurve eingezeichnet, wobei vorausgesetzt wurde, daß die Nachsinterung isotrop ist. Die gemessenen Kurven resultieren aus der Überlagerung von Nachsinterung und Schwellung, wobei offenbar unter dem Einfluß der geringen Stem-

pelbelastung von maximal 2 MPa ein in die Poren oder andere Hohlräume (Spalte) gerichtetes Schwellen begünstigt wird.

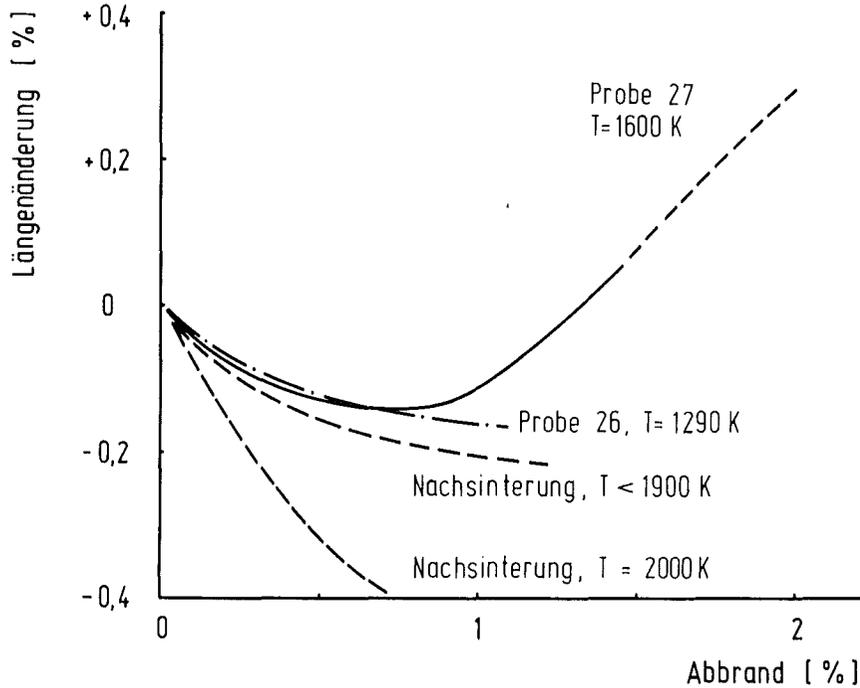


Abb. 22: Prozentuale Längenänderung von ca. 97% dichtem  $UO_2$  durch Nachsinterung und Schwellung in Abhängigkeit vom Abbrand

### 5.1.2 Heipressen

Bei den druckbelasteten Proben tritt Heipressen als Verdichtungsvorgang auf. Zur Berechnung des zeitlichen Ablaufs wird die Formel von Kovalchenko und Samsonow /144/ herangezogen:

$$t = \frac{4r}{\sigma} \ln \frac{(3 - P_0)^{5/3} P_0^{1/3}}{(3 - P)^{5/3} P^{1/3}} \quad (45)$$

P Porosität

$P_0$  Ausgangsporosität

Die Zähigkeit  $\eta$  steht mit der diffusionsgesteuerten Kriechgeschwindigkeit  $\dot{\epsilon}$  nach Nabarro-Herring in folgendem Zusammenhang

$$\eta = \frac{\delta}{\dot{\epsilon}} \quad (46)$$

Die Kriechgeschwindigkeit unter Bestrahlung wird nach der empirischen Formel von Solomon et al. /145/ berechnet. Es zeigt sich, daß bei den angewandten Drücken die auf diese Weise berechnete Heißpreßgeschwindigkeit erst bei Temperaturen oberhalb 1500 K der geschwindigkeitsbestimmende Verdichtungs Vorgang wird. Abb. 23 zeigt die Dichtezunahme der zylindrischen Vollpellets durch Heißpressen bei 1500 bis 1700 K, einem Druck von 50 MPa und einer Spaltungsrate von  $5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ .

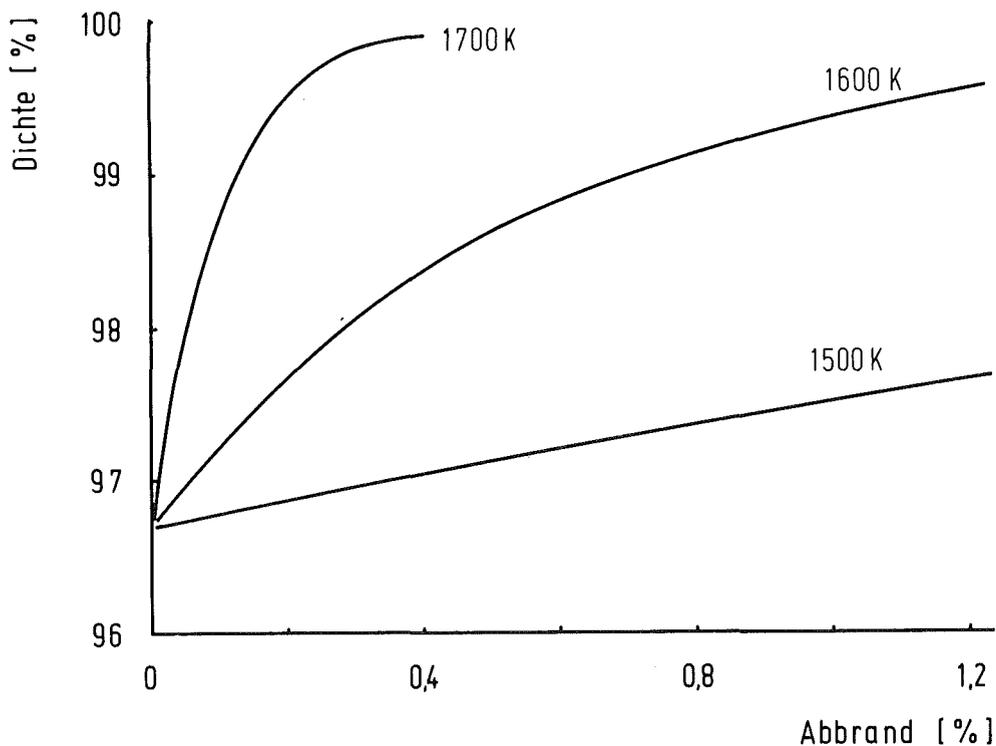


Abb. 23: Dichteänderung von  $\text{UO}_2$  als Funktion des Abbrandes beim Heißpressen bei verschiedenen Temperaturen unter einem Druck von 50 MPa bei einer Spaltungsrate von  $5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$

## 5.2 Spaltgasverhalten im Brennstoff

Die als Spaltprodukte entstehenden Edelgase Xenon und Krypton werden zum Teil im Brennstoff zurückgehalten, zum anderen Teil freigesetzt. Das Verhältnis der Anteile des zurückgehaltenen und des freigesetzten Gases ist abhängig von den Betriebsbedingungen, in erster Linie von der Temperatur und vom Abbrand. Das zurückgehaltene Spaltgas liegt in bestrahlungsbedingter Lösung oder ausgeschieden in Blasen im Brennstoff vor und trägt zur Schwellung bei. Die Kenntnis der Konzentration dieses Gases und seiner Verteilung im Brennstoff ist wichtig für das Verständnis und die Vorhersage des Brennstoffverhaltens bei Leistungstransienten und bei Störungen der Wärmeabfuhr aus dem Brennstab; denn in derartigen Fällen kann das gebundene Spaltgas durch plötzliches Entweichen oder momentanes Schwellen infolge Bildung größerer Spaltgasblasen Ursache eines Brennstabversagens sein.

Die Konzentrationen des gebundenen Spaltgases sind in der Abb. 24 als Funktion der Brennstofftemperatur und in der Abb. 25 als Funktion des Abbrandes dargestellt. Auffallend ist die starke Temperaturabhängigkeit der Freisetzung. Bei Temperaturen bis zu 1150 K ist die Spaltgasrückhaltung sehr hoch. Bis zu Abbränden von ca. 10% wird der größte Teil des erzeugten Spaltgases bei diesen niedrigen Temperaturen im Brennstoff zurückgehalten. Dementsprechend niedrig ist die prozentuale Spaltgasfreisetzung. Das Speichervermögen des Brennstoffes für Spaltgase nimmt mit steigender Temperatur ab und erreicht bei höheren Temperaturen schon bei niedrigen Abbränden einen Sättigungswert. Aufschluß über die Verteilung des im Brennstoff zurückgehaltenen Spaltgases geben die Ergebnisse für die Gitter- und Porenspaltgaskonzentrationen.

### 5.2.1 Gitterspaltgas

Abb. 26 zeigt die Konzentration des Gitterspaltgases in  $\text{UO}_2$  in Abhängigkeit von der Brennstofftemperatur. Eingezeichnet in diese Abbildung wurden alle Meßwerte mit Abbränden über 3%. Ein Einfluß des tatsächlichen Abbrandes auf die Lage eines Meßpunktes in dem Streuband ist bei diesen Abbränden nicht mehr er-

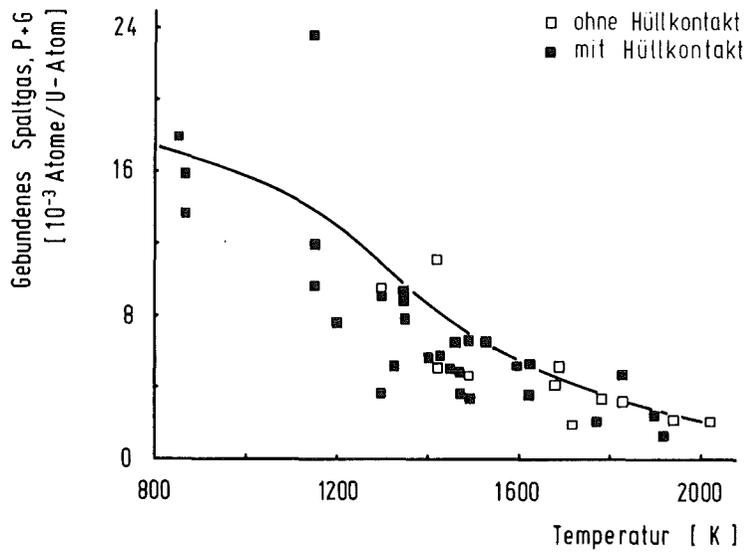


Abb. 24: Konzentration des zurückgehaltenen Spaltgases in  $UO_2$  in Abhängigkeit von der Temperatur bei Abbränden über 3%

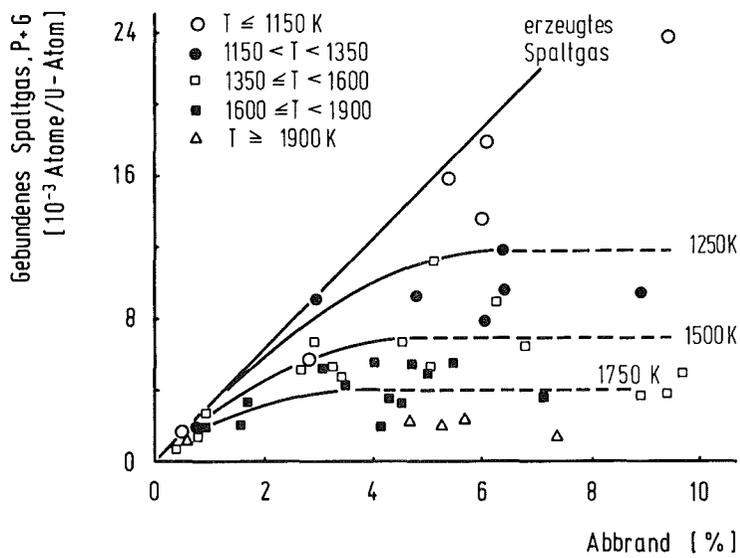


Abb. 25: Konzentration des zurückgehaltenen Spaltgases in  $UO_2$  in Abhängigkeit vom Abbrand

kennbar. Das bedeutet, daß bei 3% Abbrand die Konzentration des Gitterspaltgases bereits einen Sättigungswert erreicht hat. Dieser Sättigungswert ist für eine Spaltungsrate von  $5 \cdot 10^{13}$  Spaltungen/cm<sup>3</sup>·s in etwa mit der oberen Grenze des Streubandes der Meßwerte in Abb. 26 identisch. Er fällt von Werten um  $4,5 \cdot 10^{-3}$  Gasatomen/U-Atom bei Temperaturen um 1000 K auf Werte unter  $5 \cdot 10^{-4}$  bei Temperaturen über 1800 K. Ein Einfluß des Hüllkontaktes oder eines äußeren Druckes auf die Gitterspaltgaskonzentration ist im untersuchten Druckbereich nicht eindeutig erkennbar. Im Mittel liegen die Konzentrationen der druckfreien Proben bei mittleren Temperaturen etwas niedriger. Die Zahl der Meßwerte ist aber zu gering, um diese Aussage zu erhärten.

Abb. 27 zeigt die Gitterspaltgaskonzentration als Funktion des Abbrandes für verschiedene Brennstofftemperaturen. Zu Beginn der Bestrahlung steigt die Konzentration praktisch linear mit dem Abbrand an, um dann jedoch relativ rasch einem Sättigungswert zuzustreben, der um so niedriger liegt und um so schneller erreicht wird, je höher die Brennstofftemperatur ist.

Die im UO<sub>2</sub> gefundenen Sättigungskonzentrationen des Gitterspaltgases liegen geringfügig höher als die in Mischoxidbrennstäben beobachteten Konzentrationen (Kap. 4.1). Der Vergleich läßt jedoch keine direkten Rückschlüsse auf unterschiedliches Spaltgasverhalten in UO<sub>2</sub> und Pu-haltigem Brennstoff zu, da es sich bei dem verwendeten Mischoxid um UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> mit mikroskopisch inhomogener Pu-Verteilung handelte, und man deshalb mit unvollständiger Sättigung der UO<sub>2</sub>-Matrix rechnen muß. Die niedrigen Konzentrationen im UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> aus Brennstäben im oberen Temperaturbereich sind eine Folge der Blasenwanderung im hohen Temperaturgradienten.

Im folgenden soll versucht werden, die gefundenen Gitterspaltgaskonzentrationen zu interpretieren. Das Gitterspaltgas besteht im wesentlichen aus zwei Anteilen: dem Gas in bestrahlungsbedingter Lösung und dem Gas in kleinen intragranularen Blasen. Nach Erreichen der Sättigungskonzentration muß die Zahl der von den Blasen aufgenommenen Gasatome gleich der Zahl der aus den Blasen durch Spaltfragmente herausgeschlagenen Gas-

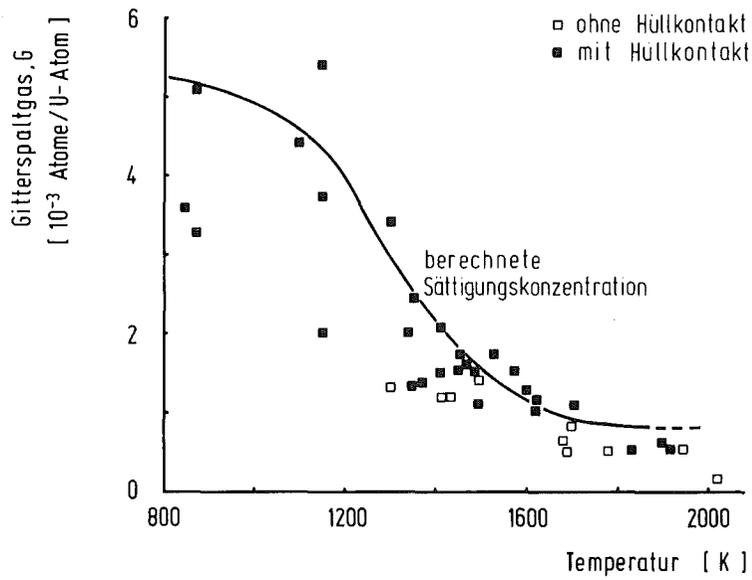


Abb. 26: Konzentration des Gitterspaltgases in  $\text{UO}_2$  in Abhängigkeit von der Temperatur bei Abbränden über 3%

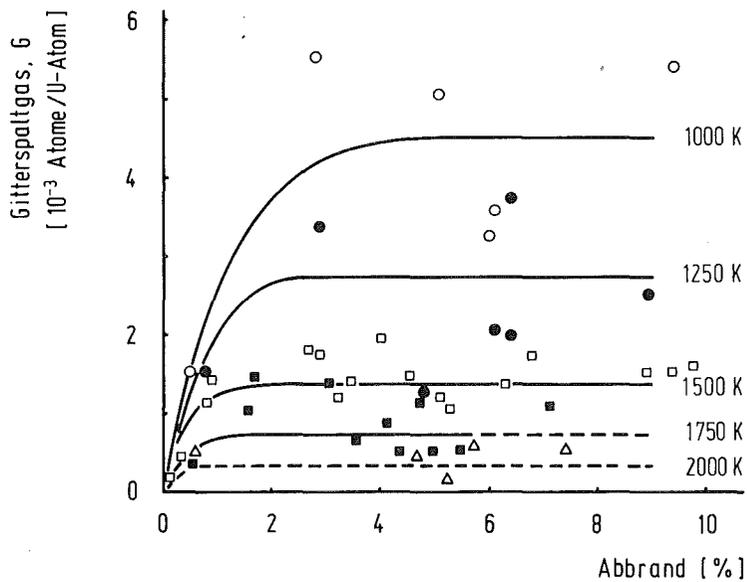


Abb. 27: Konzentration des Gitterspaltgases in  $\text{UO}_2$  in Abhängigkeit vom Abbrand (Zeichenerklärung wie Abb. 25)

atome sein. Für die Aufnahme rate von Gasatomen durch Blasen infolge Gasatomdiffusion gilt nach Ham /146/ pro Einheitsvolumen

$$\frac{dm}{dt} = 4\pi C_B C D r. \quad (48)$$

- $C_B$  Blasenkonzentration
- $C$  Konzentration der gelösten Gasatome
- $D$  Gasatomdiffusionskoeffizient
- $r$  Blasenradius

Die Wiederauflösungsrate ist

$$\frac{dm}{dt} = w C_B n. \quad (49)$$

- $w$  Wahrscheinlichkeit, daß ein Gasatom aus einer Blase herausgestoßen wird
- $n$  Zahl der Gasatome pro Blase

Die vereinfachte Van der Waals-Gleichung für Gase lautet

$$p (V - nb) = n k T. \quad (50)$$

- $b$  Van der Waals-Konstante,  $b = 8,5 \cdot 10^{-23} \text{ cm}^3$  für Xenon

Mit

$$p = \frac{2y}{r} \quad (51)$$

und

$$V = \frac{4\pi}{3} r^3 \quad (52)$$

ergibt sich die Zahl der Gasatome pro Blase

$$n = \frac{8\pi y r^2}{3(kT + \frac{2y b}{r})}. \quad (53)$$

Gleichsetzen von (48) und (49), Einsetzen von  $n$  und Auflösen nach  $C$  führt zu

$$C = \frac{2 y r w}{3 D (kT + \frac{2 y b}{r})}. \quad (54)$$

Die Gesamtkonzentration des Gitterspaltgases ist

$$G = C + C_B n . \quad (55)$$

Unter Verwendung von Gleichung (53) erhält man

$$G = \frac{2 v r w}{3 D (kT + \frac{2 \gamma b}{r})} \left( 1 + \frac{4 \pi D (C_B r^2)}{w r} \right) . \quad (56)$$

Der numerischen Auswertung werden folgende Werte zugrunde gelegt:

- Der Wert  $C_B r^2$  wurde für Bestrahlungstemperaturen unter 1800 K aus elektronenmikroskopischen Durchstrahlungsaufnahmen von Turnbull und Cornell /22,23/ etwa konstant zu  $2,5 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-1}$  ermittelt.
- Der Blasenradius  $r$  wird der Arbeit von Cornell /23/ entnommen und seine Temperaturabhängigkeit durch

$$r = 6 \cdot 10^{-8} \exp\left(\frac{T-800}{800}\right) \text{ [cm]} \quad (57)$$

für Temperaturen über 800 K ausgedrückt.

- Als Diffusionskoeffizienten werden die in Abb. 28 markierten Werte verwendet. Diese Abbildung wurde der Arbeit von Ronchi und Matzke /147/ entnommen. Sie stellt eine Zusammenfassung aller als zuverlässig zu betrachtenden Literaturdaten dar. Für die Rechnung wurden ungefähr die mittleren Werte des Bereiches gewählt, der die Gasatomdiffusion bei vorübergehendem Einfang der Atome durch Defekte beschreibt.
- Für den Wiederauflösungsparameter  $w$ , der der Spaltungsrate proportional ist, werden in der Literatur Werte von  $10^{-5}$  bis  $10^{-3} \text{ s}^{-1}$  angegeben und für Modellrechnungen benutzt /147-150/. Für die Spaltungsrate von  $5 \cdot 10^{13} \text{ Spaltungen/cm}^3 \text{ s}$ , die bei den ausgewerteten Experimenten auftrat, erweist sich  $w = 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  als befriedigend zutreffend (Abb. 26)
- Oberflächenenergie  $\gamma$  nach Nikolopoulos /143/.

Die mit den obigen Annahmen berechnete Sättigungsgitterspalt=

gaskonzentration als Funktion der Bestrahlungstemperatur ist in die Abb. 26 eingezeichnet. Die berechnete Kurve liegt im allgemeinen etwas höher als die gemessenen Werte. Die Ursache dieser Diskrepanz dürfte in erster Linie darin zu suchen sein, daß beim Mahlen des Brennstoffes von intragranularen Bruchflächen Spaltgas freigesetzt wird, das eigentlich zum Gitterspaltgas gehört.

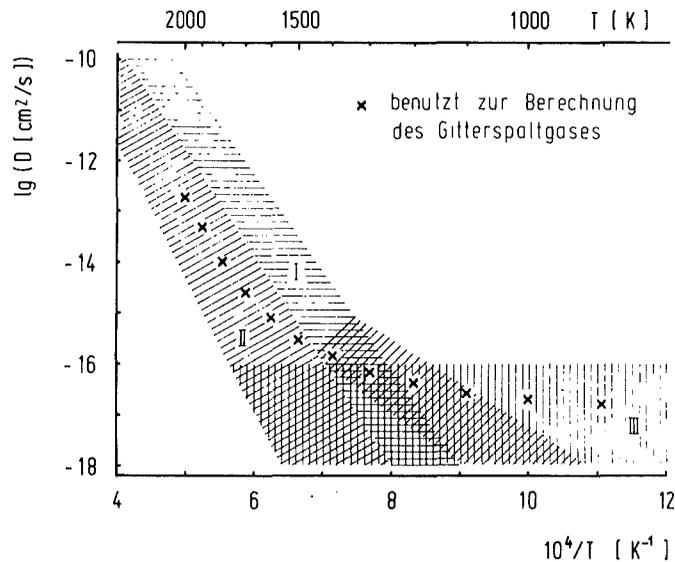


Abb. 28: Abhängigkeit des Spaltgasatomdiffusionskoeffizienten von der Temperatur /147/

Bereich I : ungestörte Diffusion einzelner Gasatome  
Bereich II : Diffusion bei Wechselwirkung mit Defekten  
Bereich III: bestrahlungsbedingte Diffusion

### 5.2.2 Porenspaltgas

Auf Grund der Bestimmungsmethode setzt sich dieser Anteil des zurückgehaltenen Spaltgases zusammen aus dem

- Gas an Korngrenzen, unabhängig davon, ob es dort in Blasen oder als Einzelatome auftritt, und
- Gas an den transkristallinen Bruchflächen, die beim Mahlen des Brennstoffes entstanden sind. Man kann voraussetzen, daß die Brüche vorwiegend an den durch größere Blasen, Poren

oder anderen Fehlstellen geschwächten Querschnitten oder längs Subkorngrenzen erfolgten.

In Abb. 29 ist die Konzentration des Porensplattgases als Funktion der Brennstofftemperatur wiedergegeben. Auch hier tritt eine ausgeprägte Temperaturabhängigkeit in der Weise auf, daß die Konzentration mit steigender Temperatur abnimmt. In Abb. 30 sind die Konzentrationen für verschiedene Temperaturgruppen über den Abbrand aufgetragen. Zu Beginn der Bestrahlung steigt die Konzentration nur langsam an, bedingt durch die Spaltgasrückhaltung im Korninnern. Mit zunehmender Sättigung der Gittersplattgaskonzentration nimmt die Konzentration des Porensplattgases stärker zu, um dann, je nach Temperatur früher oder später, ebenfalls einem Sättigungswert zuzustreben.

Ein Einfluß des Hüllkontaktes auf die Porensplattgaskonzentration ist im untersuchten Druckbereich nicht eindeutig festzustellen (Abb. 29). Es zeichnen sich jedoch Unterschiede zwischen den einzelnen Experimenten ab, die auf unterschiedliche Spannungszustände im Brennstoff zurückzuführen sind. So treten die höchsten Porensplattgaskonzentrationen in den Cermetbrennstäben auf, bei den in den metallbeschichteten  $UO_2$ -Kugeln ein Spannungszustand herrscht, der einem hydrostatischen vermutlich sehr nahe kommt. Die niedrigsten Konzentrationen treten in den axial belasteten Kriechproben auf. Durch die Verformung wird offenbar die Ausbildung der dem Abbrand und der Temperatur entsprechenden Spaltgaspopulationen an den Korngrenzen und den Subkorngrenzen verhindert.

Der Vergleich der Porensplattgaskonzentrationen, die aus  $UO_2$  und  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstabbestrahlungen gewonnen wurden, zeigt, daß bei niedrigen und mittleren Temperaturen keine bedeutenden Unterschiede zwischen den beiden Brennstoffsorten auftreten. Die höheren Konzentrationen im  $UO_2$  bei hohen Temperaturen sind durch die unterschiedlichen Betriebsbedingungen der Brennstoffe bedingt. Die bei Brennstabbestrahlungen mit hoher Stableistung auftretenden Temperaturgradienten haben Spaltgasblasenwanderung und damit geringere Gaskonzentrationen zur Folge.

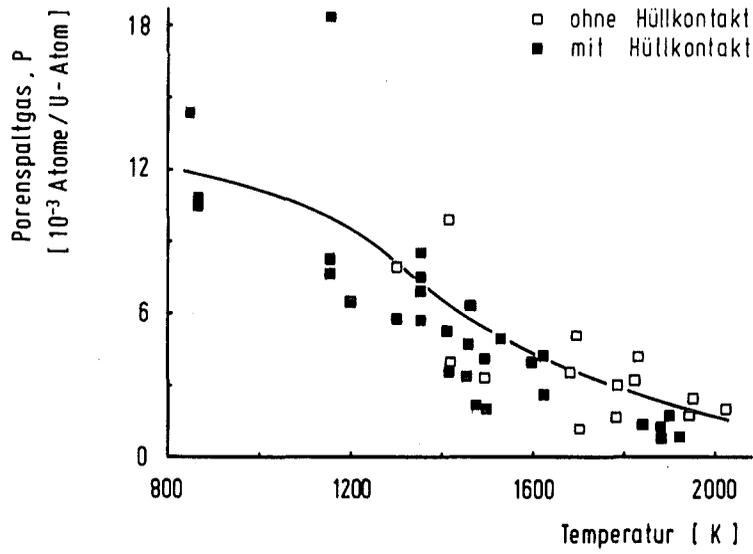


Abb. 29: Konzentration des Porensplattgases in  $\text{UO}_2$  in Abhängigkeit von der Temperatur bei Abbränden über 3%

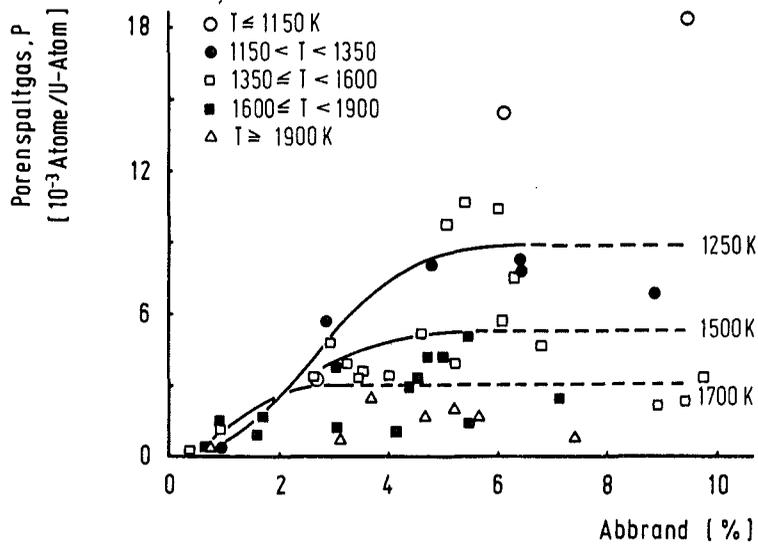


Abb. 30: Konzentration des Porensplattgases in  $\text{UO}_2$  in Abhängigkeit vom Abbrand

Auch für das Porensplattgas soll versucht werden, die gefundenen Konzentrationen mit Hilfe geeigneter Modellvorstellungen zu erklären. Zunächst wird die Konzentration des Gases an Korngrenzen  $P_K$  berechnet. Diese ist gegeben durch die Summe des Gases in Korngrenzenblasen  $P_{KB}$  und des atomar auftretenden Gases

$$P_K = P_{KB} + m_A f \quad (58)$$

mit

$$P_{KB} = n m f . \quad (59)$$

- n Zahl der Gasatome in einer Korngrenzenblase
- m Blasendichte in der Korngrenze
- $m_A$  Konzentration einzelner Gasatome in der Korngrenze
- f spezifische Korngrenzenfläche

Blasen an Korngrenzen haben linsenförmige Gestalt, die sich durch zwei aneinandergesetzte Kugelabschnitte beschreiben läßt (Abb. 31) und die durch die Beziehung

$$\frac{\gamma_K}{\gamma} = 2 \cos \theta \quad (60)$$

von der Oberflächenenergie  $\gamma$  und der Korngrenzenenergie  $\gamma_K$  bestimmt wird. Ferner gelten die Beziehungen

$$r_K = r \sin \theta \quad (61)$$

und

$$V_{BK} = g(\theta) r_K^3 \quad (62)$$

für das Volumen einer Korngrenzenblase. Dabei ist

$$g(\theta) = \frac{2(1 - \cos\theta)^2}{\sin^3 \theta} \left(1 - \frac{1 - \cos\theta}{3}\right) . \quad (63)$$

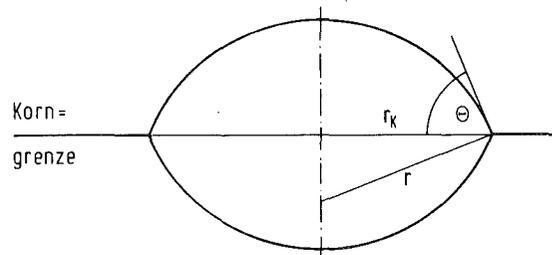


Abb. 31: Schnitt durch eine Linsenpore an einer Korngrenze

Andererseits ergibt sich das Blasenvolumen bei Anwendung des Gesetzes idealer Gase zu

$$V_{BK} = \frac{n k T}{\frac{2\gamma}{r_K} \sin\theta + \delta} \quad (64)$$

$\delta$  hydrostatischer Druck

Aus (62) und (64) erhält man die Zahl der Gasatome in einer Korngrenzenblase

$$n = \frac{\pi g(\theta) r_K^3}{k T} \left( \frac{2\gamma}{r_K} \sin\theta + \delta \right) \quad (65)$$

Es wird angenommen, daß eine Korngrenze aufreißt, wenn 50% ihrer Fläche mit Blasen bedeckt ist, d.h. wenn

$$m \pi r_{Kmax}^2 = 0,5 \quad (66)$$

Die Gleichungen (65) und (66) ergeben mit (59) dann die maximale Konzentration des Spaltgases in Korngrenzenblasen

$$P_{KBmax} = \frac{g(\theta) f}{k T} \left( \gamma \sin\theta + \frac{\delta r_{Kmax}}{2} \right) \quad (67)$$

Im folgenden müssen  $r_{Kmax}$  und  $m_A$  bestimmt werden. Man kann voraussetzen, daß bereits vor dem Zeitpunkt des Aufreißen der Korngrenzen die Blasenbildung abgeschlossen ist, d.h. neu an die Korngrenze ankommende Gasatome werden eher eine bestehende Blase erreichen als mit anderen Gasatomen neue Blasen bilden. Die mittlere freie Weglänge  $L_1$  zwischen zwei diffundierenden Gasatomen muß also mindestens gleich der mittleren freien Weglänge  $L_2$  eines Gasatoms bis zum Zusammentreffen mit einer als ruhend betrachteten Blase sein. Mit

$$L_1 = \frac{\pi}{16 m_A r_A} \quad (68)$$

und

$$L_2 = \frac{1}{2 m r_K} \quad (69)$$

ergibt sich in einer Grenzbetrachtung für  $L_1 = L_2$

$$m \pi r = 8 m_A r_A \cdot \quad (70)$$

$r_A$  Gasatomradius

$m_A$  Gasatomdichte in der Korngrenze

Andererseits muß bei Abschluß der Blasenbildung die Zahl der pro Sekunde und Flächeneinheit an der Korngrenze ankommenden Gasatome  $Z_1$  gleich der in der gleichen Zeit von den Blasen aufgenommenen Gasatome  $Z_2$  sein. Für  $m \pi r_K^2 \ll 1$  ist

$$Z_1 = \frac{y \dot{F}}{f} \quad (71)$$

$y$  Spaltgasatomausbeute

Für  $r_K \gg r_A$  ergibt sich aus der Anzahl der Zusammenstöße zweier Partikelsorten in der Ebene, wenn die eine Sorte, die Blasen, als ruhend betrachtet wird

$$Z_2 = 2 m_A m r_K \left(\frac{2D}{t}\right)^{1/2}, \quad (72)$$

wobei die Geschwindigkeit der Gasatome aus dem mittleren Verschiebungsquadrat berechnet wurde und  $t = 1$  s ist.

Aus den vorstehenden Beziehungen erhält man die Gasatomdichte in den Korngrenzen

$$m_A = \left(\frac{y \pi \dot{F}}{16 r_A f \sqrt{2D}}\right)^{1/2} \quad (73)$$

und die Blasendichte

$$m = \frac{8 y r_A \dot{F}}{f \sqrt{2D}} \quad (74)$$

und unter Verwendung von (66)

$$r_{Kmax} = \left(\frac{f \sqrt{2D}}{16 \pi y r_A \dot{F}}\right). \quad (75)$$

Da  $m_A \ll P_{KB}$  ist, wird die maximale Gaskonzentration in den Korngrenzen praktisch nur von dem Gas in Blasen bestimmt. Abb. 32 zeigt die für die beiden verwendeten Brennstoffsorten und für eine Spaltungsrate von  $5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$  berechneten maximalen Gaskonzentrationen an den Korngrenzen als Funktion der Brenn-

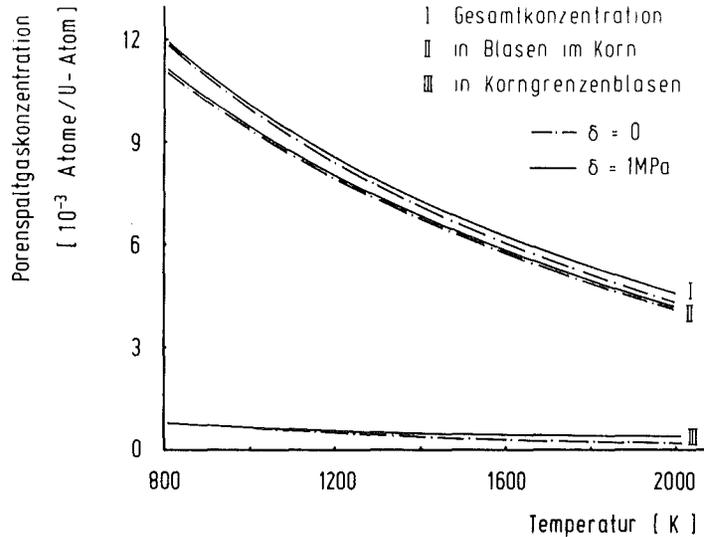


Abb. 32: Berechnete Porensplattgassättigungskonzentration als Funktion der Temperatur (Konzentration des Gases in intragranularen Blasen nach Daten in /155/ ermittelt)

stofftemperatur für verschiedene hydrostatische Drücke. Es wurden folgende Materialdaten der Rechnung zugrunde gelegt:

- Die spezifische Korngrenzenfläche  $f$  wurde nach der Beziehung

$$f = \frac{2}{D_m} \quad (76)$$

aus der unter Bestrahlung sich einstellenden temperaturabhängigen mittleren Endkorngröße  $D_m$  abgeleitet, die nach der Formel von Ainscough et al. /151/

$$D_m = \sqrt{2 B t + (2R_0)^2} \quad (77)$$

( $2R_0$  Ausgangskorngröße) mit der das Kornwachstum beschreibenden Größe

$$B = 1,456 \cdot 10^{-4} \exp(-2,67 \cdot 10^5 / RT) \quad [\text{cm}^2 \text{s}^{-1}] \quad (78)$$

berechnet wurde (Aktivierungsenergie in J/mol). Zur Anpassung an experimentelle Ergebnisse wurde angenommen, daß das Kornwachstum unter Bestrahlung bei einer Spaltungsrate von  $5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$  nach  $10^4 \text{ s}$  abgeschlossen ist.

- Mangels bekannter Werte des Spaltgasdiffusionskoeffizienten an  $\text{UO}_2$ -Korngrenzen mußte dieser geschätzt werden. Für die Aktivierungsenergie wurde nach Matzke /152/ der halbe Wert

der Aktivierungsenergie der Volumendiffusion angenommen. Das sind ca. 2,5 eV. Dieser Wert entspricht in etwa auch dem Wert von  $10 RT_m$  ( $T_m$  Schmelztemperatur), den Cottrell /153/ als Aktivierungsenergie für die Korngrenzendiffusion angibt.  $D_0$  wurde mit  $10^{-1}$  eingesetzt. Damit erhält man für  $T = 1733$  K einen Diffusionskoeffizienten von ca.  $5 \cdot 10^{-9}$  cm<sup>2</sup>/s, der größenordnungsmäßig mit den experimentell bestimmten Korngrenzendiffusionskoeffizienten des J-131 und des Te-132 in UO<sub>2</sub> von 1 bis  $3 \cdot 10^{-10}$  cm<sup>2</sup>/s bzw. 0,3 bis  $1 \cdot 10^{-8}$  cm<sup>2</sup>/s nach /154/ bei dieser Temperatur übereinstimmt.

Die Abschätzung zeigt, daß die Konzentration in den Korngrenzen allein die gemessene Porensplattgaskonzentration bei weitem nicht erklären kann. Ein großer Anteil des Porensplattgases befindet sich offenbar in Blasen, die in ihrer Größe zwischen den intragranularen Gleichgewichtsblasen und den Korngrenzenblasen liegen. Derartige Blasen können sich an ausgedehnten Gitterstörungen, wie Subkorngrenzen und Versetzungsstrukturen ausbilden. Es ist anzunehmen, daß diese Blasen beim Mahlen des Brennstoffes durch Risse in den gestörten Kristallbereichen mit geöffnet werden, so daß ihr Gasinhalt trotz relativ kleinen Blasendurchmessers mit zum Porensplattgas beiträgt.

### 5.2.3 Spaltgasfreisetzung

Die Spaltgasfreisetzung kann man als einen Zweistufenprozeß behandeln, wobei die erste Stufe der Transport des Spaltgases an die Korngrenzen ist und die zweite Stufe die Freisetzung von den Korngrenzen.

Für die Analyse des Spaltgastransportes an die Korngrenzen bieten sich die Formeln von Booth /1/ an, der die Diffusionsfreisetzung aus einer Kugel mit dem Radius  $r$  bei laufender Erzeugung der diffundierenden Atome berechnete. Die relative Freisetzung ist nach Booth

$$F_G = 4 \left( \frac{D't}{\pi} \right)^{1/2} - 1,5 D't \quad \text{für } F \leq 0,57 \quad (79)$$

bzw.

$$F_G = 1 - \frac{6}{90 D't} + \frac{6}{\pi^4 D't} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^4} \exp(-n^2 \pi^2 D't) \quad \text{für } F > 0,57 \quad (80)$$

wobei

$$D' = \frac{D}{r^2} \quad (81)$$

ist.

Mit den aus den Experimenten bekannten Freisetzungswerten  $F_G$  aus dem Gitter erhält man die für verschiedene Temperaturen in Abb. 33 dargestellten  $D'$ -Werte. Sie sind eine Funktion des Abbrandes. Nach einem Anstieg zu Beginn der Bestrahlung wird ein Endwert angestrebt, und zwar um so früher, je höher die Temperatur ist. Das bedeutet, daß zu Beginn der Bestrahlung der Gastransport zu den Korngrenzen verzögert wird. Erst nach Erreichen der Sättigungskonzentration des gelösten Gases und der Ausbildung der entsprechenden Blasenpopulation entspricht die pro Zeiteinheit an die Korngrenzen abtransportierte Gasmenge der Erzeugungsrate. Möglicherweise kommt im Laufe des Abbrandes auch Diffusion längs entstehender Subkorngrenzen hinzu und beschleunigt den Transport an die Korngrenzen.

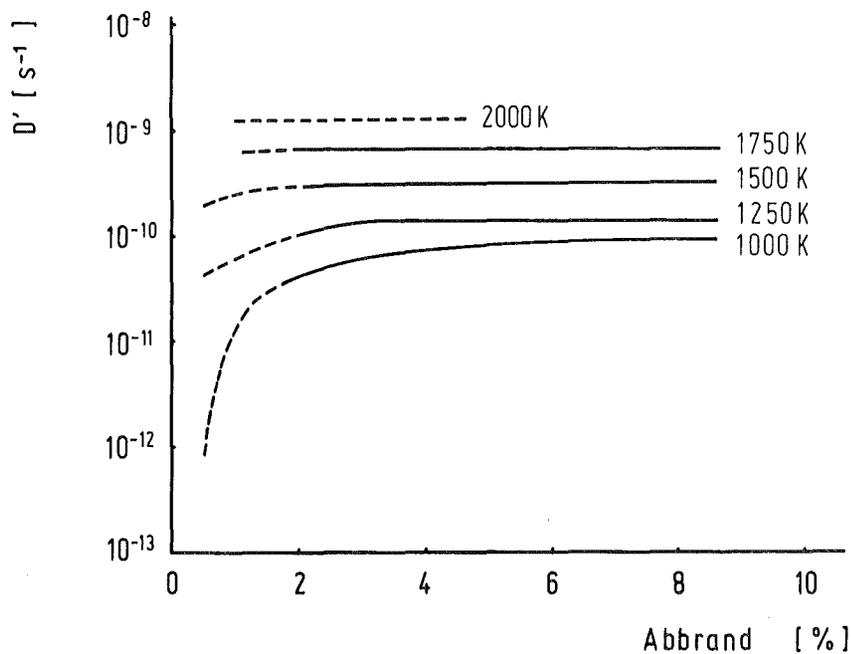


Abb. 33: Abhängigkeit des effektiven Gastransportkoeffizienten zu den Korngrenzen  $D'$  vom Abbrand bei einer Spaltungsrate von  $5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$

Bei niedrigen Temperaturen, bei denen bestrahlungsbedingte Diffusion dominiert, stimmen die nach der Gleichung (81) errechneten Diffusionskoeffizienten gut mit den in Abb. 28 dargestellten überein. Unter Benutzung eines mittleren Kornradius von  $5 \cdot 10^{-4}$  cm ergeben sich bei mittleren Abbränden folgende effektive Diffusionskoeffizienten:

$$D = 2 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2/\text{s} \text{ bei } T = 1000 \text{ K}$$

$$D = 4 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2/\text{s} \text{ bei } T = 1250 \text{ K}$$

Mit steigender Temperatur nähern sich jedoch die auf diese Weise zu ermittelnden "Diffusions"-Koeffizienten immer mehr der unteren Grenze des in Abb. 28 dargestellten Streubandes, auch unter Berücksichtigung des Kornwachstums. Wegen der schwer auseinanderzuhaltenden Einzelvorgänge beim Gastransport soll auf die Angabe eines Diffusionskoeffizienten verzichtet werden und für weitere Betrachtungen nur der effektive Transportkoeffizient  $D'$  verwendet werden. Er läßt sich durch die Beziehung

$$D' = 1,3 \cdot 10^{-7} e^{-78/RT} - 1,38 \cdot 10^{-24} \text{ s}^{-1} \quad (82)$$

darstellen, wobei die Aktivierungsenergie in kJ/mol eingesetzt wurde.

Die relative Freisetzung von den Korngrenzen wird durch den Ansatz

$$F_K = K (D_K t)^{1/2} P^n \quad (83)$$

beschrieben. Dabei ist die Konzentration des Porensplattgases gegeben durch

$$P = (y_A - G) (1 - F_K) \quad (84)$$

$D_K$  ist der effektive Transportkoeffizient des Spaltgases zu freien Oberflächen, und  $K$  ist ein Strukturfaktor, der der Länge der Diffusionswege umgekehrt proportional ist und damit von Probengeometrie und Rißbildung bestimmt wird. Bei der Auswertung wurde der obere Bereich des Streubandes in Abb. 29 verwendet. Da von diesem Bereich angenommen wird, daß hier instationäre Vorgänge bei der Freisetzung nur eine untergeordnete Rolle spielten. Der Strukturfaktor wird für diesen Bereich gleich eins

gesetzt. Die Lösung obiger Gleichungen muß numerisch erfolgen. Aus den Experimenten ergaben sich

$$n = 10^{-4} T \quad (85)$$

und

$$D_K = 9 \cdot 10^{-11} + 1,5 \cdot 10^{-6} \exp(-100/RT) \text{ [cm}^2/\text{s]}. \quad (86)$$

Die Aktivierungsenergie ist in kJ gegeben. Die obigen Werte gelten bis zum Erreichen der Sättigungskonzentration.

Die relative Gesamtfreisetzung ist das Produkt der relativen Freisetzungen aus dem Gitter  $F_G$  und von den Korngrenzen  $F_K$ ,

$$F = F_G F_K. \quad (87)$$

In Abb. 34 sind die unter Verwendung der Beziehungen (79) bzw. (80) und (83) sich ergebenden Freisetzungskurven sowie die aus den Schwellprobenbestrahlungen experimentell ermittelten Freisetzungswerte eingezeichnet. Bei mittleren Abbränden liegen die Meßpunkte meist etwas über den berechneten Kurven. Ursache dieser Abweichung ist die Verwendung eines konstanten Strukturfaktors  $K = 1$  bei der Berechnung der Freisetzung von den

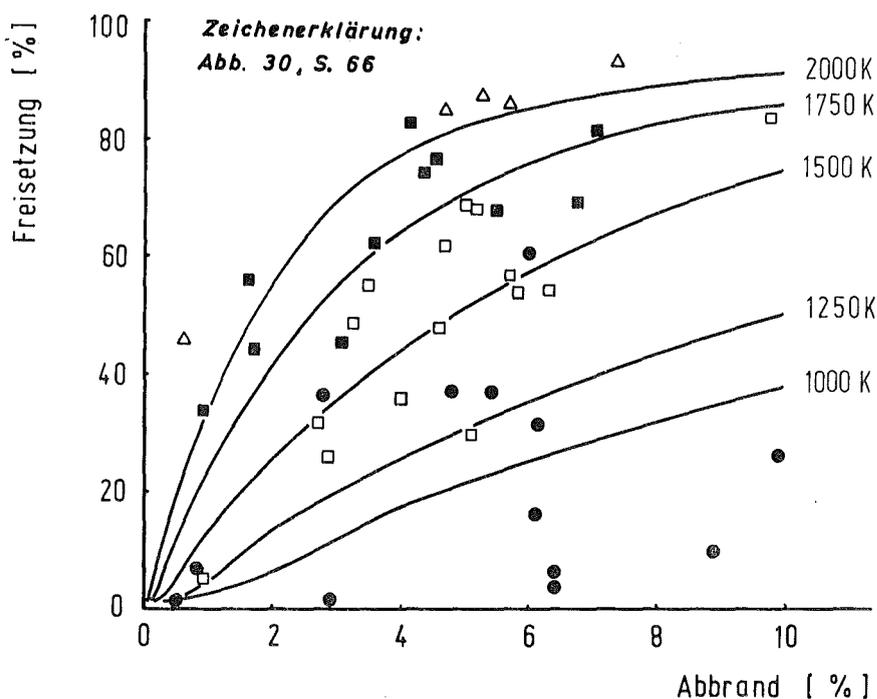


Abb. 34:  $UO_2$ -Spaltgasfreisetzung in Abhängigkeit vom Abbrand

Korngrenzen. Diese Voraussetzung gilt nicht über den gesamten Abbrandbereich. Zum Zeitpunkt des Aufreißen der dicht mit Spaltgasblasen belegten Korngrenzen (break-away-Mechanismus) nimmt der Strukturfaktor Werte über eins an. Eine Anpassung der berechneten Freisetzungswerte an die gemessenen gelingt mit K-Werten um 1,2. Mit zunehmendem Abbrand nimmt K wieder ab.

Der sog. break-away-Mechanismus spielt auch eine bedeutende Rolle bei der Spaltgasfreisetzung in Brennstäben. Er wird hier noch verstärkt durch Rißbildung im Brennstoff infolge thermischer Spannungen. Bei den Bestrahlungsexperimenten Mol 8B und 8C waren die Brennstäbe mit Druckaufnehmern zur kontinuierlichen Messung des Gasdruckes während des Betriebes ausgestattet. In Abb. 35 sind als Beispiel für Mischoxidbrennstäbe die Zyklusfreisetzungsraten - das sind die in den Bestrahlungszyklen freigesetzten Spaltgasmengen bezogen auf die in den jeweiligen Zyklen erzeugten - des Stabes Mol 8 C 5 über den Abbrand aufgetragen. Gleichzeitig wurde in diese Abbildung der Verlauf der über die Brennstofflänge gemittelten Stableistung einge-

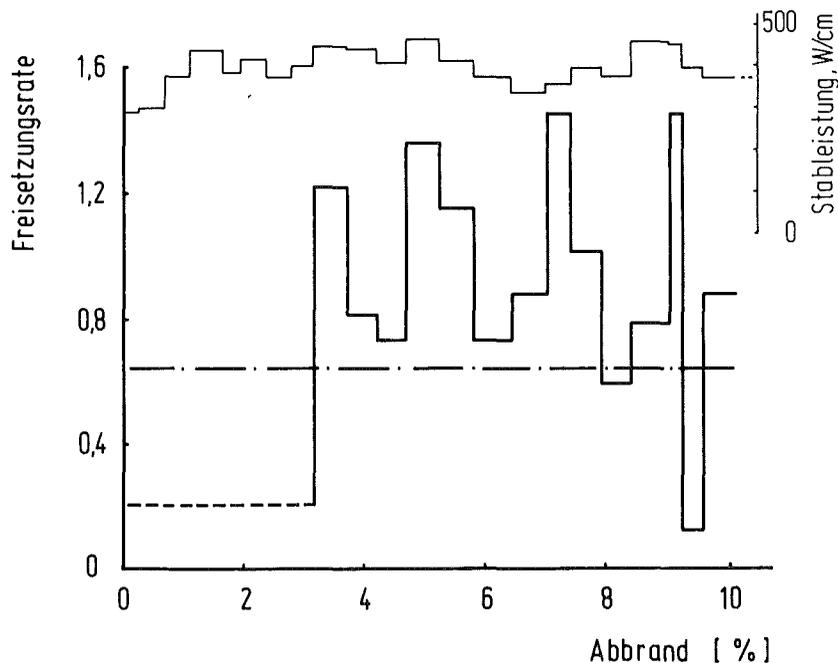


Abb. 35: Spaltgasfreisetzungsrate und Stableistung des  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Mischoxidbrennstabes Mol 8C 5 in Abhängigkeit vom Abbrand

zeichnet. Die Freisetzungsraten zu Beginn der Bestrahlung waren nicht zu ermitteln, da sie durch desorbierte Fremdgase verfälscht wurden. Bei einem Abbrand von 3% wird erstmals eine Freisetzungsrates über eins gefunden. In den darauffolgenden beiden Bestrahlungszyklen fällt die Freisetzungsrates auf Werte deutlich unter eins, um danach bei ca. 5% Abbrand ein erneutes Maximum zu erreichen. Derartige Maxima treten bei diesem Stab mehrfach auf. Teilweise werden sie offenbar von einem Anstieg der Stabileistung hervorgerufen. In jedem Fall folgen den Maxima Freisetzungsrates, die deutlich unter eins liegen. Das bedeutet, nach jeder break-away-Freisetzung baut sich die Porenspaltgaskonzentration erneut bis in die Nähe ihres Sättigungswertes auf.

Die Beschreibung der Freisetzung mit den Werten nach (82), (85) und (86), die aus nahezu isothermen Bestrahlungen gewonnen wurden, gilt nicht ohne weiteres für Brennstabbestrahlungen, bei denen hohe Temperaturgradienten im Brennstoff auftreten und Blasenwanderung bei höheren Temperaturen eine bedeutende Rolle bei der Spaltgasfreisetzung spielt. Die Vorgänge bei der Spaltgasfreigabe in hochbelasteten Oxidbrennstäben können folgendermaßen beschrieben werden: Zu Beginn der Bestrahlung, wenn sich durch schnelle Porenwanderung zum Zentrum der Zentralkanal bildet, ist die Spaltgasfreisetzungsrates relativ hoch; denn zu diesem Zeitpunkt ist die Temperatur des Brennstoffes am höchsten und die Zone rascher Porenwanderung am weitesten nach außen ausgedehnt. Die wandernden Poren nehmen das entstandene Spaltgas auf und setzen es am Zentralkanal frei. In dieser Anfangsphase der Bestrahlung dürfte das der entscheidende Freisetzungsmechanismus sein. Nach Auffassung vieler Autoren ist Poren- und Spaltgasblasenwanderung überhaupt der Hauptfreisetzungsmechanismus bei hoher Temperatur, nach Matzke und Ronchi /155/ ist jedoch auch in der Stengelkristallzone Gasdiffusion der wesentliche Freisetzungsmechanismus, während die Blasen- und Porenwanderung nur mit weniger als 25% an der Freisetzung beteiligt ist.

Nach der Ausbildung des Zentralkanals und dem Schließen des Spaltes zwischen Brennstoff und Hülle kommt es jeweils zu

einem Abfall der Brennstofftemperatur und zu einer Verkleinerung der Hochtemperaturzone. Dadurch nimmt die Spaltgasfreisetzungsrates zunächst nicht merklich zu oder sogar etwas ab, weil in den Zonen mittlerer und niedriger Temperatur das entstehende Spaltgas zum überwiegenden Teil noch gespeichert wird. Erst mit dem Einsetzen des break-away-Mechanismus und den damit verbundenen Freisetzungsrates über eins nimmt die prozentuale Freisetzung merklich zu. Das äußert sich in einer s-förmigen Abhängigkeit der prozentualen Freisetzung vom Abbrand, die in der Abb. 15 deutlich zum Ausdruck kommt. Der Zeitpunkt, zu dem der break-away-Mechanismus wirksam wird und wie stark er ausgeprägt ist, hängt neben der zeitlichen Änderung der thermischen Spannungen im Brennstoff infolge von Leistungsänderungen im wesentlichen von der Temperaturverteilung ab. Wie die Abb. 15 zeigt, verschiebt er sich mit abnehmender Brennstofftemperatur zu höheren Abbränden.

### 5.3 Cäsiumfreisetzung

Cäsium hat mit fast 60% den Hauptanteil an der Schwellung durch feste Spaltprodukte. Mit einem Siedepunkt von 958 K tritt es in großen Brennstoffbereichen in gasförmigem Zustand auf. Es ist deshalb mit einer hohen Freisetzung und demzufolge mit einer starken Erniedrigung der örtlichen Schwellung durch feste Spaltprodukte zu rechnen. In Mischoxidbrennstäben, die unter brüterähnlichen Bedingungen bestrahlt worden waren, fanden Langer et al. /156/ nahezu 40% des erzeugten Cs-137 im Blanket. Nach Findlay /157/ überschreitet in einigen Fällen bei hochdichtem Brennstoff die Cs-Freisetzung sogar die Gasfreisetzung.

In Abb. 36 sind die gefundenen prozentualen Cs-137-Freisetzungswerte für verschiedene Temperaturen über den Abbrand aufgetragen. In diese Abbildung wurden auch die Werte von Friskney und Simpson /158/ eingezeichnet, die sich in guter Übereinstimmung mit den eigenen befinden. Die gefundenen Freisetzungskurven ähneln in ihren Verläufen stark den Spaltgasfreisetzungskurven. Allerdings setzt die Cs-Freisetzung deutlich später ein als die Gasfreisetzung. Bei hohen Abbränden gibt es jedoch keinen merklichen Unterschied mehr in der prozentualen Freisetzung.

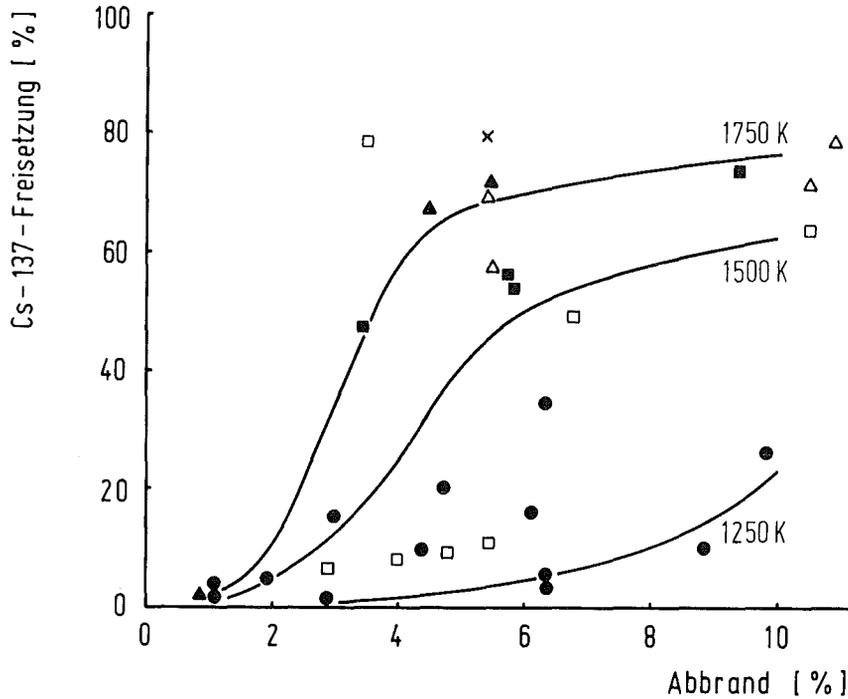


Abb. 36: Cs-137-Freisetzung aus  $UO_2$  in Abhängigkeit vom Abbrand

T, K	eigene Werte	Werte nach /158/
< 1400	●	
1400 - 1600	■	□
1600 - 1900	▲	△
> 1900		×

Die gemessenen Freisetzungswerte beziehen sich auf das Cs-137. Dieses bildet zusammen mit dem Cs-133 den Hauptanteil des Gesamtcaesiums. Das Cs-133 ist ein Tochternuklid des Xe-133, das eine Halbwertszeit von 5,29 d besitzt. Das Freisetzungsverhalten des Cs-133 wird folglich bei hohen Temperaturen weitgehend von dem des Xe-133 bestimmt. In geringerem Maße trifft das auch für das Cs-135 (Vorläufer: Xe-135 mit einer Halbwertszeit von 9,17 h) zu. Die gemessenen Cs-137-Freisetzungswerte dürften damit als Mindestwerte für das gesamte Cäsium repräsentativ sein, eventuell ist zu Beginn der Bestrahlung die auf das gesamte Cs bezogene Freisetzungsrate etwas höher.

## 5.4 Brennstoffschwellung

### 5.4.1 Schwellung in Abhängigkeit von Abbrand, Temperatur und Druck

Die freie Schwellung, die unter Berücksichtigung der Nachsintierung aus den Volumenänderungen ermittelt wurde, ist in Abb. 37 als Funktion des Abbrandes für verschiedene Brennstofftemperaturen dargestellt. Bei niedrigen Temperaturen ( $T \leq 1250$  K) nimmt die Schwellung bis zu einem Abbrand von ca. 8% nahezu linear mit dem Abbrand zu. Die mittlere Schwellgeschwindigkeit bei 1250 K beträgt ca. 1,2 %/% Abbrand. Bei höheren Abbränden nimmt die Schwellrate stetig ab. Im Prinzip den gleichen Verlauf mit dem Abbrand zeigt die Schwellung auch bei höheren Temperaturen; jedoch mit dem Unterschied, daß mit zunehmender Temperatur die Anfangsschwellrate immer größer wird und die Abnahme der Schwellrate sich zu niedrigeren Abbränden verschiebt. Im untersuchten Temperaturbereich von 1300 bis 2000 K ist bei annähernd isothermer Bestrahlung in jeder Abbrandstufe eine deutliche Zunahme der freien Schwellung mit der Temperatur

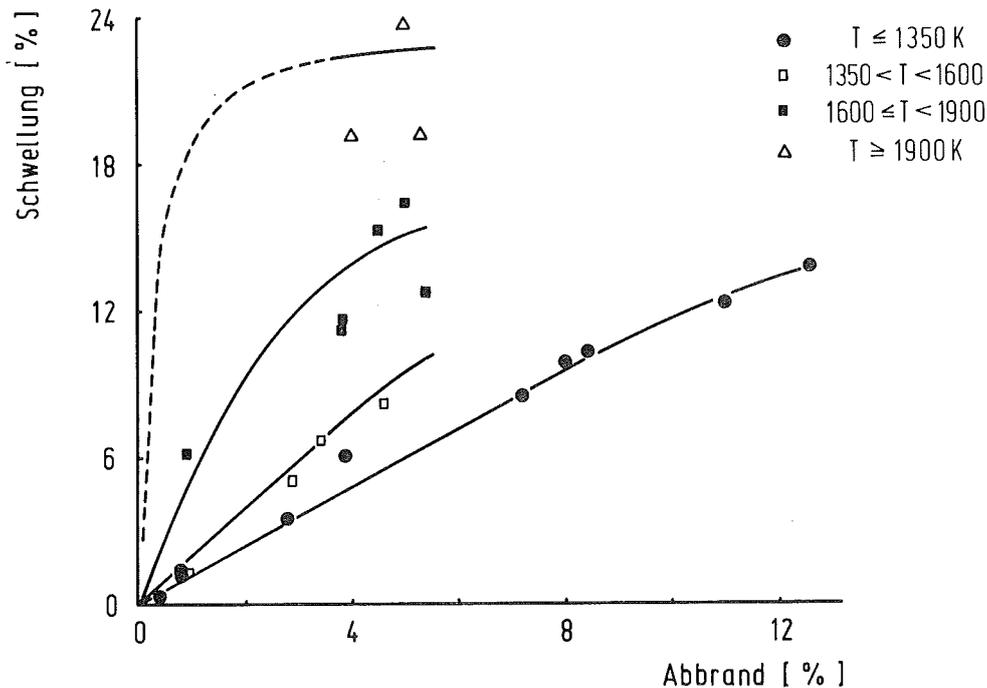


Abb. 37: Freie Schwellung des  $UO_2$  in Abhängigkeit vom Abbrand

zu beobachten. Mit steigendem Abbrand wird diese Abhängigkeit jedoch geringer.

Dieses Verhalten läßt sich qualitativ folgendermaßen erklären. Bei hoher Temperatur erreicht die Spaltgasschwellung sehr rasch einen Sättigungswert. Wegen der hohen Beweglichkeit der Gasatome werden diese schnell aus dem Korninnern an die Korngrenzen transportiert, die ihrerseits ebenfalls kein hohes Gasspeichervermögen besitzen. Infolge gegenseitiger Berührung der relativ großen Blasen an Korngrenzen und Korngrenzenzwickeln und der dadurch entstehenden offenen Porosität wird praktisch alles an die Korngrenzen ankommende Spaltgas schnell freigesetzt. Zur weiteren Schwellung tragen dann nur noch die festen Spaltprodukte bei. Dieser Beitrag ist jedoch relativ gering, da ein großer Teil der flüchtigen Spaltprodukte ebenfalls freigesetzt wird.

Bei niedrigen Temperaturen ist die Beweglichkeit der Gasatome sowohl im Korn als auch an den Korngrenzen um Größenordnungen niedriger. Die entstehenden Blasen sind daher kleiner und liegen in größerer Dichte vor. Das führt zu einem höheren Spaltgasspeichervermögen des Brennstoffes und zu einem erheblich geringeren spezifischen, d.h. auf ein  $\text{UO}_2$ -Molekül als Einheit bezogenen Volumenbedarf eines einzelnen Gasatoms. Mit zunehmender Blasengröße im Laufe des Abbrandes wächst auch der spezifische Volumenbedarf der gespeicherten Gasatome. Steigende Gasfreisetzung kompensiert jedoch diesen Effekt. Es konnte in keinem Fall eine mit dem Abbrand zunehmende Schwellrate beobachtet werden.

Abb. 38 zeigt die in Druckstempelkapseln ermittelten Schwellungen in Abhängigkeit vom Abbrand. Parameter in dieser Darstellung sind die Bestrahlungstemperatur und die Probenbelastung. Sämtliche Werte liegen in einem, verglichen mit den freien Schwellungen, relativ engen Streuband, das nach einem Anfangsanstieg von 1,2 bis 3 %/% Abbrand allmählich verflacht. Bei Abbränden über 4% beträgt die mittlere Schwellgeschwindigkeit nur noch 0,4 bis 0,6 %/% Abbrand. Die kleineren Werte sind jeweils der niedrigeren Temperatur (1300 bis 1500 K) zuzuordnen. Die höheren Werte gelten für Temperaturen bis zu

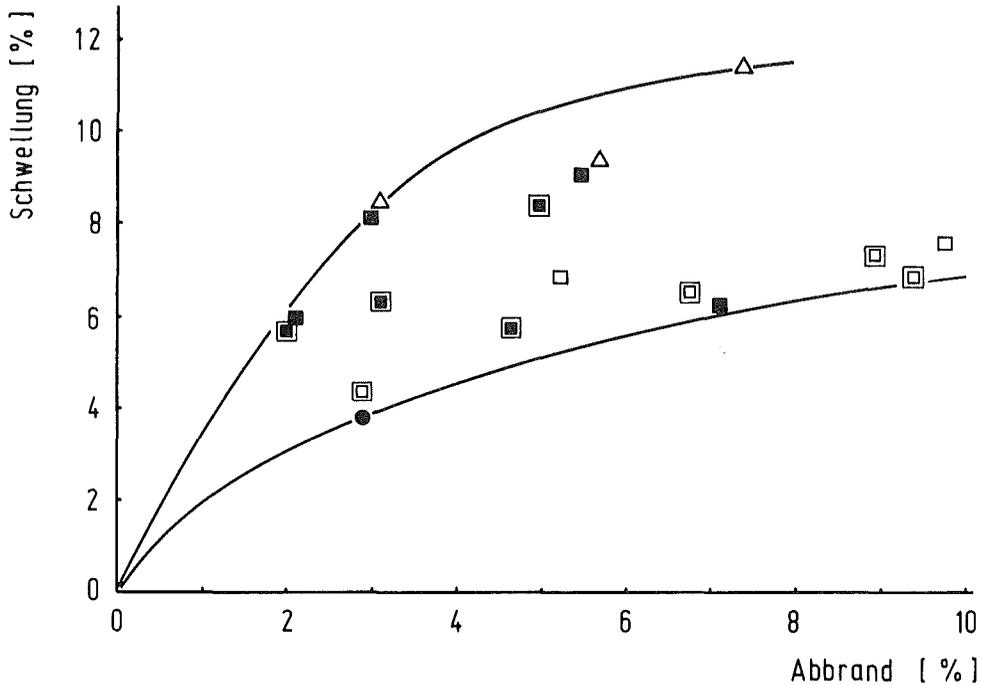


Abb. 38: Schwellung des  $UO_2$  in Druckstempelkapseln in Abhängigkeit vom Abbrand

T, K	$\sigma = 2$ MPa	$\sigma = 25 - 50$ MPa
< 1350	●	
1350 T 1600	□	◻
1600 T 1900	■	◼
> 1900	△	

1920 K. Ein Einfluß der äußeren Probenbelastung auf die Schwellung ist bis zu Temperaturen von ca. 1840 K im Druckbereich bis 50 MPa nicht eindeutig erkennbar. Entscheidend für die Größe des Schwellbetrages ist offenbar nicht der tatsächliche Druck, sondern die Tatsache, daß der Brennstoff unter dem Einfluß der Hülle gezwungen ist, sich einseitig zu verformen. Durch die Verformungsvorgänge wird die endgültige Ausbildung der entsprechenden schwellwirksamen Blasenpopulationen, vor allem in Korngrenzen, verhindert und das Spaltgas von diesen Stellen vorzeitig freigesetzt. Darauf deuten auch die etwas niedrigeren Porensplattgaskonzentrationen im Brennstoff der Druckstempelkapseln bei Temperaturen über 1500 K hin. Noch auffälliger sind die sehr niedrigen Porensplattgaskonzentrationen der Kriechproben. Abb. 38 zeigt, daß die Spaltgasschwellung unter Hüllwiderstand bei Temperaturen um 1900 K einen Sättigungswert bei ca. 7% besitzt.

Die beschriebenen Vorgänge laufen in ähnlicher Form auch in Brennelementen ab. Jedoch ist die Hülle hier nicht als vollständig starr zu betrachten. Unter diesem Gesichtspunkt bestätigt die in Mischoxidbrennstäben hoher Leistungsdichte (über 200 W/g Brennstoff) bei Abbränden über 4% gefundene abbrandunabhängige Schwellrate von 0,65 %/% Abbrand die Vorstellung von der schwellmindernden Wirkung einseitiger Verformung. Auch der Sättigungswert der Spaltgasschwellung in Mischoxidbrennstäben stimmt in etwa mit dem obigen Wert überein. Der bei niedrigen Abbränden vorhandene Einfluß der Ausgangskorngröße auf die Schwellung verringert sich im Laufe des Abbrandes.

Abb. 39 zeigt die durch eine Glühbehandlung von 50 h bei 2070 K vor Bestrahlung grobkörnig gemachte Probe 41 (mittlere Korngröße 40  $\mu\text{m}$ ). Zum Vergleich wird in Abb. 40 die unter fast gleichen Bedingungen bestrahlte ungeglühte Probe 40 (mittlere Ausgangskorngröße 7  $\mu\text{m}$ ) gezeigt. Deutlich ist zu erkennen, daß sich bei der geglühten Probe im Laufe des Abbrandes eine neue wesentlich feinere Subkornstruktur gebildet hat. Die Ausgangskorn Grenzen sind durch ihre dichte Belegung mit größeren, häufig ineinander verlaufenden Blasen noch erkennbar. Diese Korn Grenzen können praktisch als "offen" angesehen werden. Demgegenüber sind die Blasen an den Subkorn Grenzen kleiner und meist voneinander getrennt.

#### 5.4.2 Schwellung durch feste Spaltprodukte

Zur Abschätzung der Schwellung durch feste Spaltprodukte wird ein  $\text{UO}_2$ -Brennstoff mit 20 Atom-% U-235-Anreicherung und einem Ausgangs-O/U-Verhältnis von 2,000 nach 10% Abbrand bei einer Spaltungsrate von  $5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$  betrachtet. Tab. 10 zeigt die Volumenbilanz und die dafür erforderlichen Größen.

Als chemische Zustände der einzelnen Spaltprodukte werden die nach Abschnitt 2.2 sowie den Abbildungen 41 und 42 wahrscheinlichsten der Berechnung des Volumenbedarfs zugrunde gelegt. In Abb. 41 sind die freien Bildungsenthalpien der Spaltproduktoxide und in Abb. 42 die Sauerstoffpotentiale des  $\text{UO}_{2+x}$

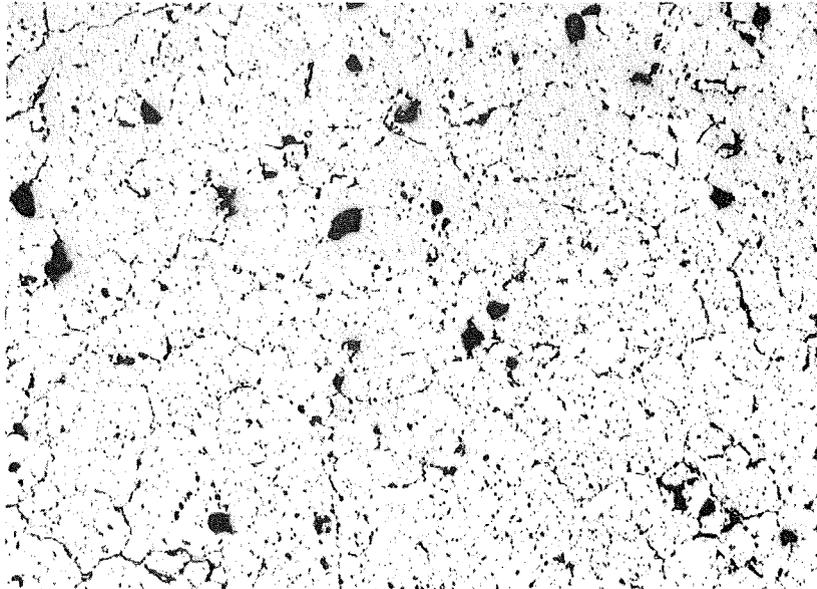


Abb. 39: Gefüge der grobkörnigen Probe 41 nach Bestrahlung bis zu 8,9% Abbrand, 100:1

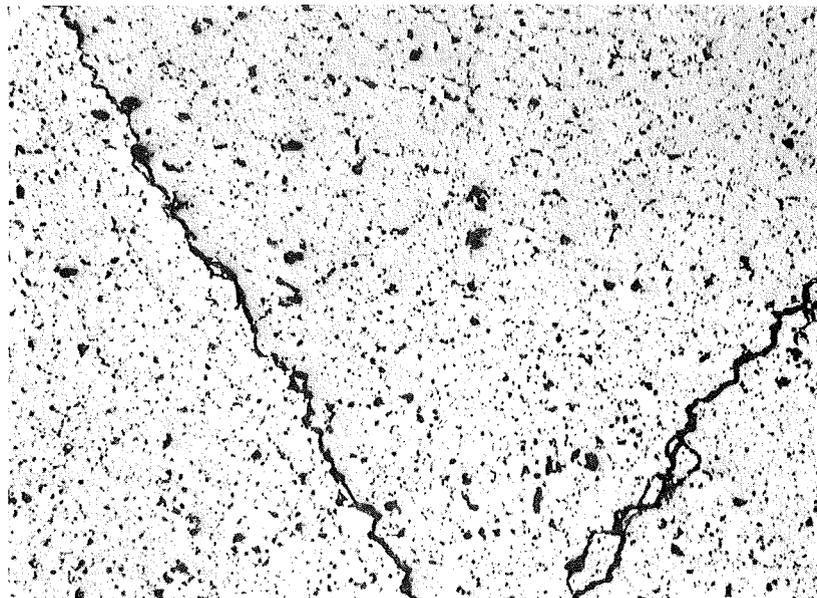


Abb. 40: Gefüge der "normalen" Probe 40 nach Bestrahlung bis zu 9,4% Abbrand, 100:1

Tab. 10: Volumenbilanz zur Ermittlung der Schwellung von  $UO_2$  durch feste Spaltprodukte nach 10% Abbrand

Brennstoff= komponente	Häufigkeit 1)	Zustand	Gebundener Sauerstoff	Volumenbedarf spezif. relativer		
Spaltstoff	U	0,9	$UO_2$ ,0005	1,8005	1	0,9
Lösliche Spaltprodukte	Zr	0,0145	$ZrO_2$	0,0290	0,849	0,0123
	Y	0,0050	$Y_2O_3$	0,0075	0,915	0,0046
	La	0,0065	$La_2O_3$	0,0098	1,016	0,0066
	Ce	0,0126	$CeO_2$	0,0252	0,957	0,0121
	Pr	0,0056	$Pr_2O_3$	0,0084	0,947	0,0053
	Nd	0,0227	$Nd_2O_3$	0,0341	0,943	0,0214
	Pm	0,0018	$Pm_2O_3$	0,0027	0,938	0,0017
	Sm	0,0022	$Sm_2O_3$	0,0033	0,848	0,0019
	Eu	0,0002	$Eu_2O_3$	0,0003	0,963	0,0002
Oxidische Einschlüsse	Sr	0,0099	$SrZrO_3$	0,0297	1,826	0,0181
	Zr	0,0099				
	Ba	0,0069	$BaZrO_3$	0,0207	1,793	0,0124
	Zr	0,0069				
	Nb	0,0005	NbO	0,0005	0,606	0,0003
	Mo	0,0142	$MoO_2$	0,0283	0,805	0,0114
Metallische Einschlüsse	Mo	0,0091	Metalli=		0,352	0,0109
	Tc	0,0061	sche			
	Ru	0,0113	Ein=			
	Rh	0,0029	schlüsse			
	Pd	0,0015				
Flüchtige Spaltprodukte	Br	0,0002	CsBr		1,945	0,0002
	Cs	0,0002				
	J	0,0007	J		1,044	0,0007
	Rb	0,0025	Rb		2,264	0,0057
	Cs	0,0134	Cs		2,880	0,0386
	Se	0,0004	Se		0,669	0,0003
	Te	0,0021	Te		0,829	0,0017
				Summe:		1,0664
1) nach /159/ unter Berücksichtigung von (n, $\gamma$ )-Reaktionen, Ausgangs-U-Atome = 1						

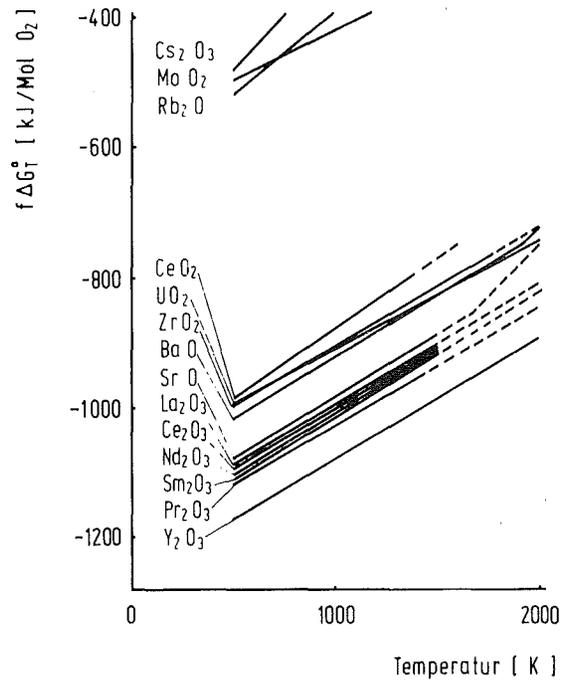


Abb. 41: Freie Bildungsenthalpien der Spaltproduktoxide /160/

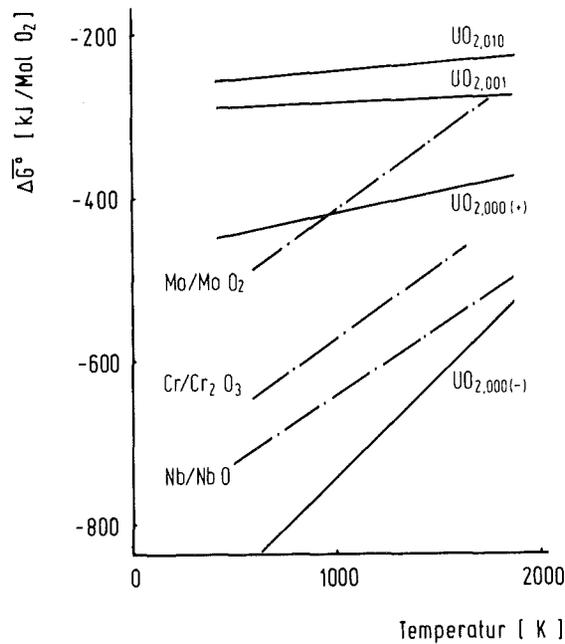


Abb. 42: Sauerstoffpotentiale von  $UO_{2+x}$  und von Metall-Metalloxid-Systemen /161/

und verschiedener Metall-Metalloxid-Systeme dargestellt. Danach werden zuerst die Seltenen Erden, Sr, Ba sowie Zr oxydiert und schließlich ein Teil des Mo. Bei den Seltenen Erden wird die Bildung der Sesquioxide vorausgesetzt, mit Ausnahme des Ce, das als  $\text{CeO}_2$  im Brennstoff vorliegen sollte.

Der spezifische Volumenbedarf ist das Volumen eines Spaltproduktatoms bzw., im Falle einer chemischen Verbindung, das Volumen des Moleküls mit einem Spaltproduktatom geteilt durch das Volumen eines  $\text{UO}_2$ -Moleküls. Durch Multiplikation mit der Häufigkeit des betreffenden Spaltproduktes erhält man dessen Beitrag zur Volumenänderung. Durch Summierung der Volumina aller Brennstoffkomponenten, mit Ausnahme der Spaltgase Xe und Kr, ergibt sich eine Volumenzunahme von 6,6% nach 10% Abbrand und damit eine Schwellrate von 0,66%/Abbrand, die durch feste Spaltprodukte, einschließlich der flüchtigen, verursacht wird. Dieser Wert steht in guter Übereinstimmung mit Ergebnissen von Ewart /46/, der die Schwellung des  $\text{UO}_2$  durch kondensierte Spaltprodukte in thermischen Reaktoren je nach Spaltungsrate und thermischen Neutronenspektrum zu 0,6 bis 0,74%/Abbrand errechnete. Die Schwellrate von 0,66%/Abbrand wird praktisch nicht davon beeinflusst, ob die Seltenen Erden im  $\text{UO}_2$  gelöst sind oder ob ein  $\text{UO}_2$ -(SE)-Oxid-Gemenge vorliegt. Von untergeordneter Bedeutung sind auch die Zustände des Sr und des Ba, d.h. ob sie als Oxide oder Zirkonate ausgeschieden sind, sowie der Zustand des J, d.h. ob es elementar oder als CsJ auftritt. Einen gewissen Einfluß auf die Schwellrate durch feste Spaltprodukte hat dagegen der Oxydationszustand der Seltenen Erden. Sollte der Hinweis nach /160/ zutreffen, daß bei der Aufstellung der Sauerstoffbilanz alle Seltenen Erden im  $\text{UO}_2$  als vierwertig betrachtet werden können, so würde das wegen der kleineren Menge  $\text{MoO}_2$  zu einer Verringerung der Schwellrate um 0,04%/Abbrand führen.

Die flüchtigen Spaltprodukte haben einen Anteil von ca. 70% an der Schwellung durch feste Spaltprodukte. Zu mehr als 80% wird dieser Anteil durch das Cs bestimmt. Die Freisetzung der flüchtigen Spaltprodukte, insbesondere die des Cs, hat also einen erheblichen Einfluß auf die örtliche Schwellung. Mit den in Ab=

schnitt 5.3 gewonnenen Freisetzungswerten für Cs, die in erster Näherung auch für die anderen flüchtigen Spaltprodukte gelten sollten, ist dann die Schwellung durch feste Spaltprodukte

$$S_f = [0,19 + 0,47 (1 - F_{CS})] A \quad (88)$$

wobei der Abbrand A in % einzusetzen ist. Die damit berechneten Schwellungen durch feste Spaltprodukte als Funktion des Abbrandes sind für verschiedene Temperaturen in der Abb. 43 dargestellt.

Man sieht, daß die Cs-Freisetzung einen ganz erheblichen Einfluß auf die Schwellung hat. Bei Temperaturen über 1500 K und Abbränden oberhalb 4% ist nur noch mit Schwellraten durch feste Spaltprodukte bis herab zu 0,3%/ % Abbrand zu rechnen. Das erklärt auch die beobachtete geringe Abbrandabhängigkeit der Gesamtschwellung im oberen Abbrandbereich, in dem die Spaltgas-schwellung bereits einen Sättigungswert erreicht hat.

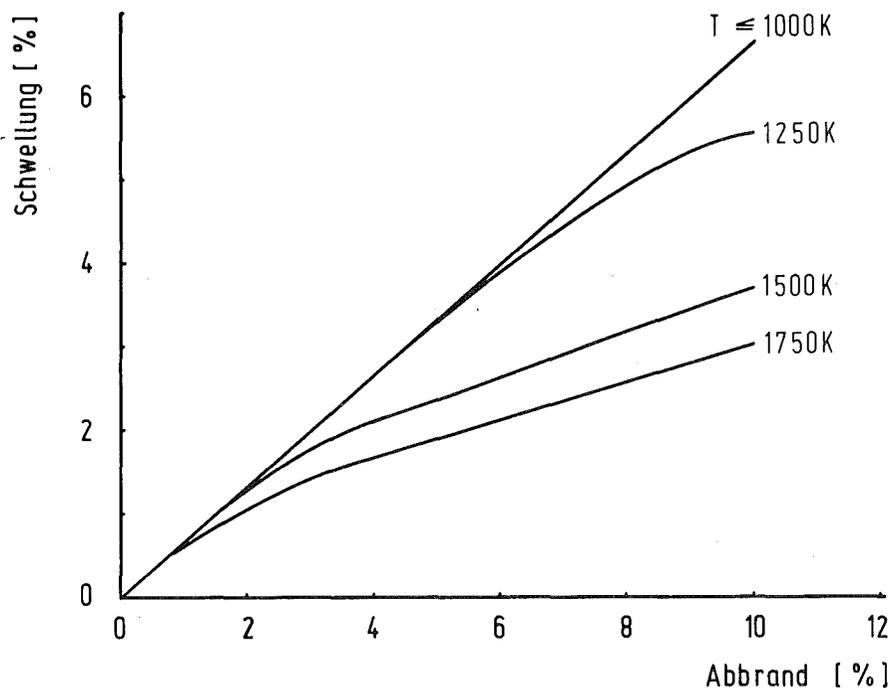


Abb. 43: Schwellung durch feste Spaltprodukte als Funktion des Abbrandes

### 5.4.3 Schwellung durch Spaltgase

Entsprechend den unterscheidbaren Anteilen des gebundenen Spaltgases kann man die Spaltgasschwellung aufteilen in:

- Schwellung durch Korngrenzenblasen,
- Schwellung durch größere Blasen im Korn,
- Schwellung durch das Gitterspaltgas.

Den größten Beitrag zur gesamten Spaltgasschwellung liefert die Schwellung durch Korngrenzenblasen  $S_K$ . Sie ist als relative Volumenzunahme gegeben durch

$$S_K = mf V_B \quad (89)$$

Die maximale Schwellung  $S_{K \max}$ , die zum Zeitpunkt des Aufreisens der Korngrenzen erreicht wird, ergibt sich mit Hilfe der Gleichungen (74) und (75) zu

$$S_{K \max} = \frac{g(\theta)}{8} \left( \frac{f^3 \sqrt{2D}}{\pi y r_A \dot{F}} \right)^{1/2}. \quad (90)$$

Sie ist in Abb. 44 als Funktion der Brennstofftemperatur für die beiden verwendeten Brennstoffsorten und für eine Spaltungsrate von  $5 \cdot 10^{13}$  Spaltungen/cm<sup>3</sup>·s dargestellt. Es ist ein erheblicher Einfluß der Korngröße auf die maximal mögliche Korngrenzenblasenschwellung in der Weise festzustellen, daß feinkörniges Material infolge seiner größeren spezifischen Korngrenzenfläche höhere Schwellungen zeigt. Dieser Befund steht in Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen bei niedrigen Abbränden /59/. Kornwachstum und damit Abnahme der spezifischen Korngrenzenfläche ist auch die Ursache des Abfalls der maximalen Schwellung bei sehr hohen Temperaturen.

Die Abschätzung der maximalen Schwellung durch größere Spaltgasblasen im Korninnern ergibt mit der von Ronchi und Matzke /155/ gefundenen Blasenpopulation einen Wert von maximal 3,3%.

Für die Bestimmung der Schwellung durch das Gitterspaltgas wird nach Blank /162/ angenommen, daß ein "gelöstes" Xe-Atom zwei

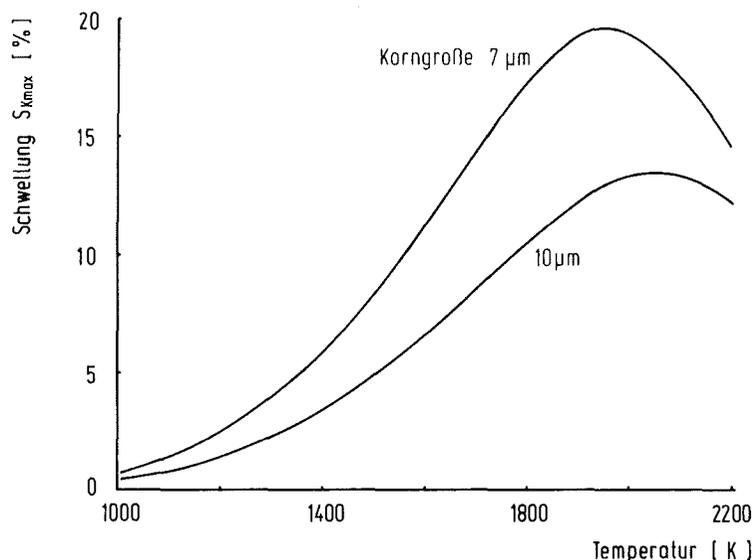


Abb. 44: Maximale Schwellung durch Korngrenzenblasen als Funktion der Temperatur

Urangitterlücken mit den dazugehörigen Sauerstoffgitterlücken beansprucht. Der relative Volumenbedarf der Gasatome in den kleinen intragranularen Blasen ist für alle technisch wichtigen Fälle wegen  $2\gamma/r \gg \delta$  praktisch unabhängig von einem äußeren Druck und ergibt sich zu

$$V_{Gr} = \frac{1}{\Omega_{UO_2}} \left( b + \frac{k T r}{2} \right) \quad (91)$$

$\Omega_{UO_2}$  Volumen eines  $UO_2$ -Moleküls

Zur Berechnung des mittleren Volumenbedarfs aller Atome des Gitterspaltgases werden die Anteile des Gases in Blasen und in bestrahlungsbedingter Lösung, die in Abschnitt 5.2.2 abgeleitet wurden, sowie die experimentell bestimmten Gitterspaltgaskonzentrationen verwendet. Der mittlere relative Volumenbedarf ist dann

$$\bar{V}_{Gr} = \frac{C_B}{G} V_{Gr} + \frac{G - C_B}{G} 2 \quad (92)$$

Er steigt von zwei bei 1000 K auf drei bei 2000 K.

Bei hohen Temperaturen ( $T \geq 1900 \text{ K}$ ) und beim Vorhandensein eines Temperaturgradienten wird die maximale Schwellung durch Blasenwanderung begrenzt. Für die Berechnung der Schwellung bei Blasenwanderung wird die in Abb. 45 schematisch dargestellte Modellvorstellung zugrunde gelegt. Die Blasen wachsen bis zur kritischen Größe, reißen sich von den Korngrenzen los und wandern in Richtung höherer Temperatur. Nach einer Zeit  $t$ , die gegeben ist durch

$$t = \frac{f m n}{y F} \quad (93)$$

( $n$  Zahl der Gasatome in einer Blase der kritischen Größe  $V_{Bk}$ ) hat sich eine neue Generation wanderungsfähiger Blasen in den Korngrenzen gebildet und die vorhergehende Generation ist um die Strecke

$$s = v_B t \quad (94)$$

( $v_B$  Blasenwanderungsgeschwindigkeit) gewandert. Die relative Schwellung bezogen auf das Einheitsvolumen beträgt dann

$$S = X f m V_{Bk} \frac{1}{s} \quad (95)$$

wobei  $l = 1 \text{ cm}$  und  $X$  der Anteil der Korngrenzenfläche ist, der annähernd senkrecht zum Temperaturgradienten liegt; im Falle von Stängelkristallen in Brennelementen ist  $X < 0,1$ . Für Spaltgas, das sich in Korngrenzen befindet, die parallel zum Tempe=

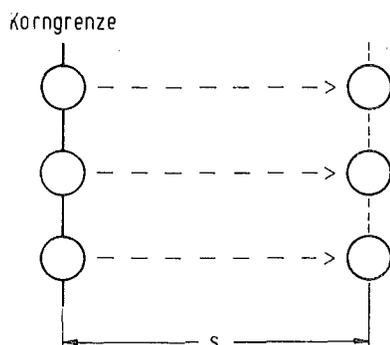


Abb. 45: Schematische Darstellung der Blasenwanderung

raturgradienten verlaufen, gelten die oben angestellten Überlegungen nicht. In diesen Fällen muß mit einer nahezu sofortigen Gasfreisetzung gerechnet werden. Einsetzen der oben entwickelten Beziehungen in (95) führt zu

$$S = \frac{y X \dot{F} k T}{\left(\frac{2Y}{r_{Bk}} + \delta\right) v_B}, \quad (96)$$

wobei sich die Blasenwanderungsgeschwindigkeit  $v_B$  nach /8/ aus den Einzelbeiträgen der drei verschiedenen Transportmechanismen zusammengesetzt, von denen bei den in Frage kommenden hohen Temperaturen allerdings nur Oberflächendiffusion und Verdampfung-Kondensation die entscheidenden Beiträge liefern.

Für eine Temperatur  $T = 2000$  K und einen Temperaturgradienten von  $5 \cdot 10^3$  K/cm ergibt sich ein kritischer Blasenradius von  $r_{Bk} = 2,1 \cdot 10^{-5}$  cm und nach /8/ eine Blasenwanderungsgeschwindigkeit von  $v_B = 1,4 \cdot 10^{-7}$  cm/s, wenn der Blaseninnendruck mit der Oberflächenspannung und einem hydrostatischen Druck von 0,5 MPa im Gleichgewicht steht. Bei einer Spaltungsrate von  $5 \cdot 10^{13}$  Spaltungen/cm<sup>3</sup>·s und einem X-Wert von 0,05 beträgt die maximale Spaltgasblasenschwellung dann 1,9%.

## 6. Zusammenfassung und Schlußfolgerungen

Das Spaltgasverhalten in oxidischen Brennstoff wird in erster Linie von der Bestrahlungstemperatur bestimmt. Bei Temperaturen, wie sie in den äußeren Zonen von Brennelementen auftreten, besitzt der Brennstoff ein relativ hohes Gasspeichervermögen; so wurden bei 1250 K Spaltgaskonzentrationen von  $1,2 \cdot 10^{-2}$  Gasatomen/U-Atom in UO<sub>2</sub> gefunden. Mit weiter abnehmender Temperatur nimmt diese Konzentration noch zu. Der größte Teil des gebundenen Spaltgases befindet sich in intragranularen Blasen an bevorzugten Stellen, wie Subkorngrenzen und Versetzungen, sowie zu einem geringeren Teil in Korngrenzenblasen.

Das hohe Spaltgasspeichervermögen des Brennstoffes bei niedrigen Temperaturen ist gleichbedeutend mit einer niedrigen Spaltgasfreisetzung, besonders bei niedrigen Abbränden. Mit steigender Temperatur sinken die Konzentrationen beider Anteile des

zurückgehaltenen Spaltgases. Bei Temperaturen über 1900 K wurden in  $\text{UO}_2$  nach nahezu isothermer Bestrahlung Sättigungskonzentrationen von  $2,5 \cdot 10^{-3}$  Gasatomen/U-Atom gefunden. In Oxidbrennstäben hoher Stabileistung ist in diesem Temperaturbereich die Spaltgaskonzentration um den Faktor 10 kleiner. Ursache hierfür ist in erster Linie die Blasenwanderung im steilen radialen Temperaturgradienten. Bei niedrigen Temperaturen sind die Unterschiede in den Spaltgaskonzentrationen der "isotherm" bestrahlten  $\text{UO}_2$ -Proben und des  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Mischoxids aus Brennstäben dagegen gering.

Die Schwellung des Oxidbrennstoffes wird bei niedrigen Abbränden und bei Temperaturen über 1250 K in erster Linie vom Verhalten des Spaltgases bestimmt. Den Hauptbeitrag zur freien Schwellung leisten die Entstehung und das Wachstum von Spaltgasblasen an Korngrenzen, obwohl diese nur einen geringen Teil des zurückgehaltenen Spaltgases enthalten. Mit steigender Temperatur nimmt der Blasendurchmesser zu und die Blasendichte ab. Das führt zu einer starken Abhängigkeit der Spaltgasschwellung von der Temperatur. Unter isothermen Bestrahlungsbedingungen steigt die maximale Spaltgasschwellung von ca. 5% bei Temperaturen um 1250 K auf Werte von ca. 20% bei 2000 K. Diese Werte wurden an  $\text{UO}_2$  mit Korngrößen von 7 bzw. 10  $\mu\text{m}$  und bei Spaltungsraten von ca.  $5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$  gefunden. Beim Auftreten eines hohen Temperaturgradienten werden bei Temperaturen über 1900 K die hohen Schwellungen durch Blasenwanderung vermindert. Die erwähnten Spaltgasschwellungen sind Sättigungswerte, die bei hohen Temperaturen schon nach niedrigen Abbränden erreicht werden. Das bedeutet, daß bei hohen Temperaturen sehr hohe Anfangsschwellraten auftreten. Abb. 46 zeigt die mittlere freie Schwellrate bis zu 1% Abbrand als Funktion der Temperatur.

Unter dem Einfluß eines Hüllwiderstandes wird die Spaltgasschwellung reduziert. Ursache hierfür ist weniger der Druck als solcher als vielmehr die Verformung des Brennstoffes, die zu einer beschleunigten Spaltgasfreisetzung von den Korngrenzen führt. Die Spaltgasschwellung scheint sich dann bei maximal 7% zu sättigen.

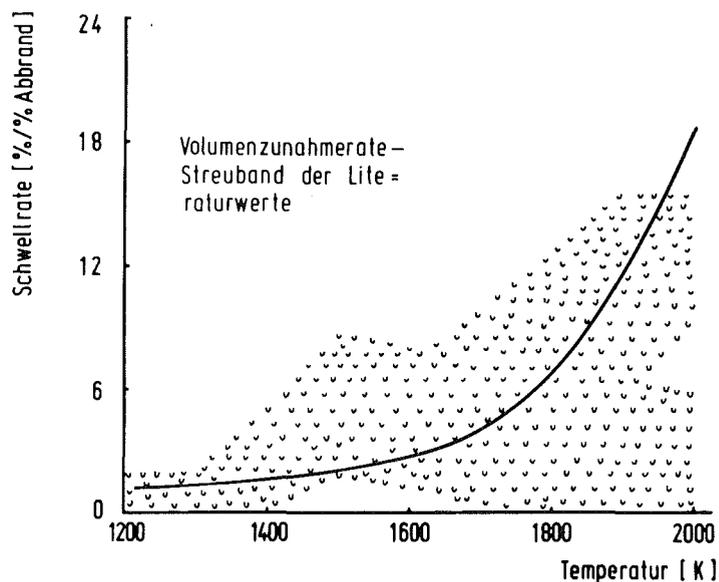


Abb. 46: Freie "isotherme"  $UO_2$ -Schwellrate bis zu 1% Abbrand in Abhängigkeit von der Temperatur

Im Gegensatz zur Spaltgasschwellung wirkt die Schwellung durch feste Spaltprodukte während der gesamten Bestrahlungszeit und unabhängig von einem Hüllwiderstand. Jedoch existiert auch hier wegen der Freisetzung flüchtiger Spaltprodukte eine Abbrand- und Temperaturabhängigkeit der Schwellrate in der Weise, daß sie mit zunehmender Temperatur und steigendem Abbrand abnimmt, jedoch einen Wert von 0,3 %/% Abbrand nicht unterschreitet.

Auf Grund der experimentellen Ergebnisse und der Diskussion des Spaltgasverhaltens kann für die Berücksichtigung des Schwellens bei der Auslegung von Oxidbrennelementen folgende Empfehlung gegeben werden:

Abbrand, %	Integrale Schwellrate, %/% Abbrand bei Leistungsdichte		
	≤50 W/g	150-200 W/g	>200 W/g
≲ 2	1	2,5	3,5
> 2	1	1	0,65

Für einen Zielabbrand von 10% bei Leistungsdichten über 150 W/g ist danach ein Leervolumen vom 12 bis 13% in der Brennstoffzone zur Verfügung zu stellen.

Literatur

- /1/ Booth, A.H.: A Method of Calculating Fission Gas Diffusion from  $UO_2$  Fuel and its Application to the X-2-f Loop Test. AECL-496 (1957)
- /2/ Barnes, R.S., Mazey, D.J.: The Migration and Coalescence of Inert Gas Bubbles in Metals. Proc. Roy. Soc. A 275 (1963) 47-57
- /3/ Greenwood, G.W., Speight, M.V.: 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
- /4/ Gruber, E.E.: Migration of Pores in Solids. ANL-6868 (1963) 399-408
- /5/ Shewmon, P.G.: The Movement of Small Inclusions in Solids by a Temperature Gradient. Trans. Met. Soc. AIME 230 (1964) 1134
- /6/ Barnes, R.S.: A Theory of Swelling and Gas Release for Reactor Materials. J. Nucl. Mat. 11 (1964) 135-148
- /7/ Nichols, F.A.: Behavior of Gaseous Fission Products in Oxide Fuel Elements. WAPD-TM-570 (1966)
- /8/ Hoffmann, H.: Analyse und Leervolumenverteilung in Oxid-Brennstäben hoher Stabileistung. KFK 1863 (1973)
- /9/ Hoffmann, H.: Crack Formation, Crack Healing and Porosity Distribution During Irradiation of  $UO_2$  and  $(U,Pu)O_2$ . J. Nucl. Mat. 54 (1974) 9-23
- /10/ Biersack, J.: Blasenwanderung und Spaltgasabgabe aus  $UO_2$ . Nukleonik 8 (1966) 439-442
- /11/ Barnes, R.S., Nelson, R.S.: Theories of Swelling and Gas Retention in Reactor Materials. Metallurgical Society Conferences, Vol. 37, New York, 1967, 225-267
- /12/ Gulden, M.E.: Migration of Gas Bubbles in Irradiated  $UO_2$ . J. Nucl. Mat. 23 (1967) 30-36
- /13/ Gruber, E.E.: Migration and Coalescence of Fission Gas Bubbles in Oxide Fuels by Surface Diffusion. Intern. Conf. on Physical Metallurgy of Reactor Fuel Elements, Berkeley, Sept. 1973
- /14/ Whapham, A.D., Sheldon, B.E.: Electron Microscope Observation of Fission-Gas Bubble Distribution in  $UO_2$ . AERE-R-4970 (1965)
- /15/ Nelson, R.S.: The Stability of Gas Bubbles in an Irradiation Environment. J. Nucl. Mat. 31 (1969) 153-161
- /16/ Manley, A.J.: The Behaviour of Fission Gases in Irradiated  $UO_2$ : A Re-Solution Process. TRG-1681 (1968)
- /17/ Turnbull, J.A.: A Comparison Between Mechanisms for Irradiation-Induced Re-Solution of Fission Gas from Bubbles in  $UO_2$ . RD/B/N 1112 (1968)
- /18/ Speight, M.V.: A Calculation on the Size Distribution of Intragranular Bubbles in Irradiated  $UO_2$ . J. Nucl. Mat. 38 (1971) 236-238

- /19/ Whapham, A.D.: Heterogeneous Nucleation of Fission Gas Bubbles and Gas Migration in Uranium Dioxide. Phil. Mag. 26 (1972) 399-407
- /20/ Monti, M.A.: On the Model Proposed by Cornell and Turnbull for the Nucleation and Evaluation of Fission Gas Bubbles in Uranium Dioxide. J. Nucl. Mat. 44 (1972) 102-106
- /21/ Cornell, R.M., Speight, M.V., Masters, B.C.: The Role of Bubbles in Fission Gas Release from  $UO_2$ . J. Nucl. Mat. 30 (1969) 170-178
- /22/ Turnbull, J.A.: The Distribution of Intragranular Fission Gas Bubbles in  $UO_2$  during Irradiation. J. Nucl. Mat. 38 (1971) 203-212
- /23/ Cornell, R.M.: An Electron Microscope Examination of Matrix Fission-Gas Bubbles in Irradiated Uranium Dioxide. J. Nucl. Mat. 38 (1971) 319-328
- /24/ Pati, S.R., Dapht, M.J., O'Boyle, D.R.: Resolution-Controlled Fission-Gas Behavior in  $UO_2$  Irradiated in a Fast Flux. J. Nucl. Mat. 50 (1974) 227-246
- /25/ Beere, W., Reynolds, G.L.: The Morphology and Growth Rate of Interlinked Porosity in Irradiated  $UO_2$ . J. Nucl. Mat. 47 (1973) 51-57
- /26/ Turnbull, J.A., Tucker, M.O.: Swelling in  $UO_2$  under Conditions of Gas Release. Phil. Mag. 30 (1974) 47-63
- /27/ Anselin, F., Baily, W.E.: The Role of Fission Products in the Swelling of Irradiated  $UO_2$  and  $(U,Pu)O_2$  Fuels. Trans. Am. Nucl. Soc. 10 (1967) 103
- /28/ Jeffery, B.M.: Microanalysis of Inclusions in Irradiated  $UO_2$ . J. Nucl. Mat. 22 (1967) 33-40
- /29/ O'Boyle, D.R., Brown, P.L., Sanecki, J.E.: Solid Fission Products Behavior in U-Pu Oxide Fuel Irradiated in a Fast Neutron Flux. J. Nucl. Mat. 29 (1969) 27-42
- /30/ Kleykamp, H.: Mikrosondenuntersuchungen (Auswertung Versuchsgruppe FR 2-4a). KFK 1727 (1973) 75-105
- /31/ Ainscough, J.B.: Some Limiting Aspects of  $UO_2$  Performance. TRG 1937 (s), 1970
- /32/ Bramman, J.I., Sharpe, R.M., Thom, D., Yates, G.: Metallic Fission-Product Inclusions in Irradiated Oxide Fuels. J. Nucl. Mat. 25 (1968) 201-215
- /33/ Davies, J.M., Boyle, R.F., Weidenbaum, B., Hanson, J.E.: On the Composition of Metallic Ingots Formed in High-Performance Ceramic Fuel Elements. Trans. Am. Nucl. Soc. 9 (1966) 63
- /34/ Collins, D.A. et al.: The Temperature-Gradient Tube Technique for Characterisation of Released Fission Products. TRG 1332 (w), 1967
- /35/ Castleman, A.W., Tang, I.N.: Vaporisation of Fission Products from Irradiated Uranium. J. Inorg. Nucl. Chem. 32 (1970) 1057-1064

- /36/ Kleykamp, H.: Mikrosondenuntersuchungen (Auswertung Mol 7A) KFK 1736 (1973) 84-101
- /37/ Johnson, C., Crouthamel, C., Chen, H., Blackburn, P.: Studies in Mixed-Oxide Irradiated Fuel: Transport of Cladding Components. Trans. Am. Nucl. Soc. 12 (1969) 565-566
- /38/ Brucklacher, D., Dienst, W.: Experimental Results on the Mechanical Interaction between Oxide Fuel and Cladding. Symp. on Fast Reactor Fuels and Fuel Elements, Brüssel, Juli 1973
- /39/ Lambert, J.D.B., Neimark, L.A., Strain, R.V.: A Failure Mechanism in Mixed-Oxide Fuel Elements. Trans. Am. Nucl. Soc. 17 (1973) 193
- /40/ Huber, H., Kleykamp, H.: Nachbestrahlungsuntersuchungen mit der Mikrosonde an  $UO_2$  und  $(U,Pu)O_2$ -Brennstäben der Versuchsgruppen 3 und 4a<sup>2</sup> der FR 2-Kapselbestrahlungen. KFK 1324 (1972)
- /41/ Kleykamp, H.: Mikrosondenuntersuchungen. KFK 1864 (1974) 43-69
- /42/ Barney, W.K., Seymour, W.E., zitiert in: J. Belle (Ed.): Uranium Dioxide. Washington: 1961, 547 - 550
- /43/ Frost, B.R.T., Wait, E.: Irradiation Experiments on Plutonium Fuels for Fast Reactors. Symp. on Plutonium as a Reactor Fuel, Brüssel, März 1967
- /44/ Anselin, F.: The Role of Fission Products in the Swelling of Irradiated  $UO_2$  and  $(U,Pu)O_2$  Fuel. GEAP-5583 (1969)
- /45/ Findlay, J.R.: The Behavior of Fission Products in Irradiated Ceramic Nuclear Fuel Materials. Intern. Conf. on Chemical Nuclear Data Measurements and Applications, Canterbury, September 1971
- /46/ Ewart, F.T., zitiert in /122/
- /47/ Bleiberg, M.L., Berman, R.M., Lustman, B.: Effects of High Burnup on Oxide Ceramic Fuel. WAPD-T-1455 (1962)
- /48/ Daniel, R.C., Bleiberg, M.L., Meieran, H.B., Yeniscavich, W.: Effects of High Burnup on Zircaloy-Clad, Bulk  $UO_2$ , Plate Fuel Elements Samples. WAPD-263 (1962)
- /49/ Lambert, J.D.B.: Irradiation Study of  $UO_2$ -Stainless Steel and  $(U,Pu)O_2$ -Stainless Steel Cermet Fuels in Rod and Plate Geometry. High Temperature Nuclear Fuels, Met. Soc. Conf. Vol. 42 (1968)
- /50/ Freas, D.G. et al.: Radiation Stability of Spherical and Hydrothermal  $UO_2$  Dispersed in Type 316 Stainless Steel. BMI-1529 (1961)
- /51/ Frost, B.R.T. et al.: Fabrication and Irradiation Studies of  $UO_2$ -Stainless Steel and  $(U,Pu)O_2$ -Stainless Steel Cermets. Proc. of the 3rd Intern. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Vol. 10 (1964) 170-177
- /52/ Lambert, J.D.B.: The Irradiation of  $UO_2$ -Stainless Steel Cermets between 550 and 700 °C. Nuclear Energy 8 (1967) 106-111

- /53/ Lambert, J.D.B.: Irradiation Behaviour of  $UO_2$  Particles in Cermets. Proc. Brit. Ceram. Soc. 7 (1967) 331-342
- /54/ Chubb, W.: Swelling of  $UO_2$  at 1700 °C. Trans. Am. Nucl. Soc. 12 (1969) 76
- /55/ Hilbert, R.F., Storhok, V.W., Chubb, W., Keller, D.L.: Swelling of  $UO_2$ - $PuO_2$  in the Equiaxed Grain Growth Region. Trans. Am. Nucl. Soc. 14 (1971) 582
- /56/ Chubb, W., Storhok, V.W., Keller, D.L.: Factors Affecting the Swelling of Nuclear Fuels at High Temperatures. Nuclear Technology 18 (1973) 231-256
- /57/ Bellamy, R.G., Rich, J.B.: Grain-Boundary Gas Release and Swelling in High Burn-up Uranium Dioxide. J. Nucl. Mat. 33 (1969) 64-76
- /58/ Clough, D.J.: Creep Properties of Oxide and Carbide Fuels under Irradiation. Intern. Colloquium on the Measurement of Irradiation Enhanced Creep in Nuclear Materials, Petten Mai 1976, Paper 34
- /59/ Turnbull, J.A.: The Effect of Grain Size on the Swelling and Gas Release Properties of  $UO_2$  during Irradiation. BNES Conf. Nuclear Fuel Performance, London, Okt. 1973
- /60/ Rose, K.S.B., Williams, J., Potts, G.: A Technique for Measuring the Density of Small Fragments of High-Density Materials both before and after Irradiation. J. Nucl. Mat. 51 (1974) 195-198
- /61/ Hastings, I.J., Rose, D.H., Schankula, M.H.: Volume Changes in Irradiated  $UO_2$  Fuel. J. Am. Ceram. Soc. 58 (1975) 74
- /62/ Banks, D.A.: Some Observations of Density and Porosity Changes in  $UO_2$  Fuel Irradiated in Water-Cooled Reactors. J. Nucl. Mat. 54 (1974) 97-107
- /63/ Killeen, J.C.: The Effect of Additives on the Irradiation Behaviour of  $UO_2$ . J. Nucl. Mat. 58 (1975) 39-46
- /64/ Grando, C., Montgomery, M., Strasser, A.: Unrestrained Swelling and Fission Gas Release of Fast Reactor Fuels. Conf. Fast Reactor Fuel Element Technology, New Orleans, April 1971
- /65/ Combette, P. Milet, C.: Etude du fluage en pile de l'oxyde mixte  $UPuO_2$ . Intern. Colloquium on the Measurement of Irradiation Enhanced Creep in Nuclear Materials, Petten, Mai 1976, Paper 35
- /66/ Nelson, R.C., Zebroski, E.L.: Irradiation Induced Swelling Rates of  $PuO_2$ - $UO_2$ -Fuel with Strong Radial Restraint. Trans. Am. Nucl. Soc. 9<sup>2</sup>(1966) 412-413
- /67/ Duncan, R.N. et al.: Fuel Swelling - Fast Reactor Mixed Oxide Fuels. Conf. on Fast Reactor Fuel Element Technology, New Orleans, April 1971
- /68/ Frost, B.R.T.: Studies of Irradiation Effects in Ceramic Fuels at Harwell. Intern. Symp. Ceramic Nuclear Fuels, Washington, Mai 1969
- /69/ Katz, O.M.: Fission Gas Bubbles in Fractured  $UO_2$  Chips. J. Nucl. Mat. 31 (1969) 323-326

- /70/ Bagley, K.G., Donaldson, D.M.: Fission Gas Release from Mixed Oxide Fuels. Proc. of the 3rd Intern. Conf. on Plutonium, London, Nov. 1965
- /71/ Johnson, C.E., Steidl, D.V., Crouthamel, C.E.: Distribution of Gaseous Fission Products in Irradiated Mixed-Oxide Fuels. Trans. Am. Nucl. Soc. 14 (1971) 27
- /72/ Stahl, D., Patrician, T.J.: Fission-Gas Retention by Laser Sampling (1973) unveröffentlicht
- /73/ Claudson, T.T., zitiert in: J. Belle (Ed.), Uranium Dioxide. Washington: 1961, 197
- /74/ Touloukian, Y.S.: Thermophysical Properties of High Temperature Solid Materials. New York, London:1967
- /75/ Krinninger, H.: Messung des Emissionsvermögens austenitischer Stähle für den Schnellen Natriumgekühlten Brutreaktor (SNR). Wärme- und Stoffübertragung 3 (1970) 139-145
- /76/ Seitz, H. Persönliche Mitteilung (1974)
- /77/ Häfner, H., Philipp, K.: FR 2-Bestrahlungskapseln zur Untersuchung des Brennstoffschwellens. KFK 1398 (1971)
- /78/ Häfner, H.E., Philipp, K.: Druckschwellkapsel mit kontinuierlicher Dehnungsmessung. KFK 1985 (1974) 63-66
- /79/ Brucklacher, D., Dienst, W.: Kontinuierliche Messung des Kriechens von  $UO_2$  unter Bestrahlung. J. Nucl. Mat. 36 (1970) 244-247
- /80/ Häfner, H.E., Will, H.: Instrumentierte Brennstoffkriechkapsel. Kerntechnik 10 (1971) 454-457
- /81/ Schmidt, H.E.: Experimentelle Befunde zum Wärmeübergang zwischen Brennstoff und Hülle. KFK 1400 (1971) 199-218
- /82/ Beißwenger, H.: Die Auslegung und Durchführung von Brennelement-Bestrahlungsexperimenten. KFK 700 (1967) XI/1-28
- /83/ Lammer, M., Eder, O.J.: Discussion of Fission Product Yield Evaluation Methods and a New Evaluation. IAEA Symp. on Nuclear Data in Science and Technology, Paris, 1973
- /84/ Crouch, E.A.C.: Fission Product Chain Yields from Experiments in Thermal Reactors. IAEA Symp. on Nuclear Data in Science and Technology, Paris, 1973
- /85/ Meek, M.E., Rider, B.F.: Compilation of Fission Product Yields. NEDO-12154 (1972)
- /86/ Freund, D. et al.: Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der  $UO_2/PuO_2$ -Brennstab-Bestrahlungsexperimente der FR 2-Kapsel-Versuchsgruppe 4a. KFK 1523 (1973)
- /87/ Dienst, W. et al.: Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten  $UO_2-PuO_2$ -Brennstäben der Versuchsgruppe FR 2-4a. KFK 1727 (1973)
- /88/ Weimar, P., Dippel, Th., Freund, D.: Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der  $UO_2/PuO_2$ -Brennstab-Bestrahlungsexperimente der FR 2-Kapsel-Versuchsgruppe 4b. KFK 1952 (1974)

- /89/ Vollath, D., Depisch, F., Dippel, Th.: Spezifikation und Herstellung von  $UO_2$ - $PuO_2$ -Stabprüflingen mit 4 mm Brennstoffdurchmesser -<sup>2</sup>FR 2-Kapselversuchsgruppe 5b. KFK-Externer Bericht 6/71-2 (1971)
- /90/ Weimar, P., Freund, D., Steiner, H.: FR 2-Kapselversuchsgruppe 5b - Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der  $UO_2$ / $PuO_2$ -Brennstabprüflinge. KFK 2222 (1976)
- /91/ Kummerer, K., Geithoff, D., Weimar, P.: Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung des  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstab-Bündels Mol-7A. KFK 1522 (1972)
- /92/ Dienst, W. et al.:  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstabbündel-Bestrahlung Mol 7A. Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben. KFK 1736 (1973)
- /93/ Weimar, P., Sebening, H.: Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung des  $UO_2$ / $PuO_2$ -Brennstab-Bestrahlungsexperimentes Mol 8B. KFK 2106 (1975)
- /94/ Zafar Ullah, M., Geithoff, D., Weimar, P.: The Specifications, Design, Irradiation and Post-Irradiation Examination of a Mixed Oxide Pin of the Mol-8C-Series (Pin No. 5) KFK 2221 (1975)
- /95/ Weimar, P., Steiner, H., van den Boorn, H.: BR 2-Kapselversuchsgruppe Mol 8C - Zerstörungsfreie Nachuntersuchung. KFK 2306 (1976)
- /96/ Dienst, W., Zimmermann, H.:  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstab-Kapselbestrahlungen der Versuchsgruppe Mol 8B und C. Auswertung von Meß- und Nachuntersuchungsergebnissen. KFK 2355 (1976)
- /97/ Kummerer, K., Geithoff, D.: Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstab-Prüflinge im Versuch DFR-304. KFK 1814 (1974)
- /98/ Ehrlich, K. et al.:  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstab-Bestrahlung im Trefoil-Einsatz DFR 304. Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben. KFK 1864 (1974)
- /99/ Geithoff, D., Kummerer, K.: Auslegung, Bestrahlung und zerstörungsfreie Nachuntersuchung des  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstab-Bündels DFR-350. KFK 1377 (1972)
- /100/ Geithoff, D.: Die Bestrahlungsnachuntersuchung von fünfzehn  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstäben aus dem Experiment DFR-350. KFK 1877 (1975)
- /101/ Ehrlich, K. et al.:  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstabbündel-Bestrahlung DFR-350. Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben. KFK 1960 (1974)
- /102/ Geithoff, D., Ernst, W.: Bestrahlungsablauf der GfK-Trefoils DFR-435 (1973) unveröffentlicht
- /103/ Dienst, W. et al.:  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstab-Bestrahlung DFR-435. Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben. KFK 2218 (1976)
- /104/ Haas, D.: Rapsodie two mixed oxide fuel subassemblies irradiation report (1974) unveröffentlicht
- /105/ Ondracek, G., Spieler, K.: Quantitative Messungen an bestrahlten  $UO_2$ - $PuO_2$ -Gefügen der Versuchsgruppe FR 2-4a (1972) unveröffentlicht

- /106/ Hoffmann, H.: Radiale Riß- und Porenverteilung bestrahlter Brennstab-Prüflinge der Na-Loop-Versuchsgruppe Mol 7A (1972) unveröffentlicht
- /107/ Ondracek, G., Schulz, B., Spieler, K.: Porenanalyse der Bündelbestrahlung DFR-350. KFK 1273/3 (1973) 112-124
- /108/ Schulz, B.: Persönliche Mitteilung, 1976
- /109/ Dienst, W.: Chemische Reaktion und mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle in den  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstäben des Bestrahlungsversuchs Rapsodie I<sup>2</sup> (1976) unveröffentlicht
- /110/ Dienst, W.: Folgerungen für die Brennstoff- und Brennstabauslegung. KFK 1999 (1974) 111-117
- /111/ Zimmermann, H.: Schwellung von Mischoxidbrennstoff in Brennelementen für Schnelle Brüter (1976) unveröffentlicht
- /112/ Zimmermann, H.: Spaltgasverhalten in Oxid-Brennelementen für Schnelle Brüter. KFK 2057 (1974)
- /113/ Weimar, P., Zimmermann, H.: Oxid-Cermet-Brennstäbe: Herstellung, Eigenschaften und Bestrahlungsverhalten. KFK 1839 (1973)
- /114/ Brucklacher, D., Dienst, W.: Creep Behavior of Ceramic Nuclear Fuels under Neutron Irradiation. J. Nucl. Mat. 42 (1972) 285-296
- /115/ Brucklacher, D.: Creep of Fissile Ceramic Materials under Neutron Irradiation. Intern. Conf. on Physical Metallurgy of Reactor Fuel Elements, Berkeley, Sept. 1973, Paper 52
- /116/ Whapham, A.D.: Electron Microscope Observation of the Fission Gas Bubble Distribution in  $UO_2$ . Nucl. Appl. 2 (1966) 123-130
- /117/ Ross, A.M.: Irradiation Behaviour of Fission-Gas Bubbles and Sintering Pores in  $UO_2$ . J. Nucl. Mat. 30 (1969) 134
- /118/ Technical Report on Densification of Light Water Reactor Fuels. USAEC, Regulatory Staff, 1972
- /119/ Holden, R.B., Fuhrmann, N., Raven, L.: In-Reactor Densification Experience with Gulf United Fuel. Trans. Am. Nucl. Soc. 17 (1973) 169-170
- /120/ Lambert, J.D.B., Neimark, L.A.: Short-Term Restructuring and Densification in Mixed-Oxide Fuel Elements. Trans. Am. Nucl. Soc. 17 (1973) 170-172
- /121/ Calza Bini, A. et al.: Fuel Stack Dimensional Variations in Fast Reactor Pins under Irradiation. Trans. Am. Nucl. Soc. 17 (1973) 172-173
- /122/ Nairn, J.S., Collins, D.A.: Properties of Oxide Fuel in WAGR. Intern. Conf. on Physical Metallurgy of Reactor Fuel Elements, Berkeley, Sept. 1973
- /123/ Brucklacher, D., Dienst, W.: Creep and Densification of  $UO_2$  under Irradiation. BNES Conf. on Nuclear Fuel Performance, London, Okt. 1973, Paper 60

- /124/ Heal, T.J., Littlechild, J.E., Watson, R.H.: Development of Stable Density  $UO_2$  Fuel. BNES Conf. on Nuclear Fuel Performance, London, Okt. 1973, Paper 52
- /125/ Collins, D.A., Hargreaves, R.: Performance-Limiting Phenomena in Irradiated  $UO_2$ . BNES Conf. on Nuclear Fuel Performance, London, Okt. 1973, Paper 50
- /126/ Ferrari, H.M., Roberts, E., Scott, J.: Fuel Densification Experience in Westinghouse Pressurized Water Reactors. BNES Conf. on Nuclear Fuel Performance, London, Okt. 1973 Paper 54
- /127/ Havenik, A., Arnesen, P., Knudsen, K.D.: In-Reactor Measurements of Fuel Stack Shortening. BNES Conf. on Nuclear Fuel Performance, London, Okt. 1973, Paper 89
- /128/ Skinner, J., Bradshaw, K.A., Stacey, R.D.: Dimensional Changes in WAGR Fuel Pins. BNES Conf. on Nuclear Fuel Performance, London, Okt. 1973, Paper 10
- /129/ Carlson, M.C.J.: Densification in Mixed Oxide Fuel during Fast Reactor Irradiation. Nucl. Technology 22 (1974) 335-359
- /130/ Yario, W.R. et al.: In-Pile Densification Characteristics of Uranium Dioxide. Trans. Am. Nucl. Soc. 18 (1974) 123
- /131/ Andrews, M.G. et al.: Evaluating the Solution to Fuel Densification. Trans. Am. Nucl. Soc. 19 (1974) 140-141
- /132/ Dienst, W.: Bestrahlungsbedingte Nachsinterung des Brennstoffes. KFK 1999 (1974) 63-64
- /133/ Chubb, W. et al.: The Influence of Fuel Microstructure on In-Pile Densification. Nucl. Technology 26 (1975) 486-495
- /134/ Chernok, W.P., Andrews, M.G., Harkness, S.D.: In-Pile Densification of Uranium Dioxide. Trans. Am. Nucl. Soc. 20 (1975) 215-216
- /135/ Contenson, G.D., Lestiboudois, G., Vignesoult, N.:  $UO_2$  Densification-Irradiation Results, Laws and Models. Trans. Am. Nucl. Soc. 20 (1975) 216-219
- /136/ Stora, J.P., Bruet, M.: In-Reactor Densification of  $UO_2$ . Trans. Am. Nucl. Soc. 22 (1975) 206-207
- /137/ Marlowe, M.O.: In-Reactor Densification Behavior of  $UO_2$ . NEDO-12440 (1973). Trans. Am. Nucl. Soc. 17 (1973) 166<sup>2</sup>
- /138/ MacEwen, S.R., Hastings, I.J.: A Model for In-Reactor Densification of  $UO_2$ . Phil. Mag. 31 (1975) 135-143
- /139/ Speight, M.V.: Point Defects and Irradiation-Enhanced Densification. Phil. Mag. 32 (1975) 1101-1105
- /140/ Stehle, H., Abmann, H.: The Dependence of In-Reactor Densification on Temperature and Microstructure. J. Nucl. Mat. 52 (1974) 303-308
- /141/ Coble, R.L.: Sintering Crystalline Solids. I. Intermediate and Final Stage Diffusion Models. J. Appl. Phys. 32 (1961) 787-793
- /142/ Dienst, W.: Erzeugung, Nachweis und Ausheilung von Kristallgitter-Punktdefekten durch Neutronenbestrahlung von keramischen Werkstoffen. KFK 1215 (1970)

- /143/ Nikolopoulos, P.: Bestimmung von Grenzflächenenergien für Oxid-Metall-Kombinationen. KFK 2038 (1974)
- /144/ Kovalchenko, M.S., Samsonow, G.V.: Application of the Theory of Viscous Flow to the Sintering of Powders by Hot-Pressing. Poroshkovaja Metallurgija 2 (1961) 3-13 Soviet Powder Met. 2 (1961) 3-13
- /145/ Solomon, A.A., Routbourt, J.L., Voglewede, J.C.: Fission-Induced Creep of  $UO_2$  and Its Significance to Fuel-Element Performance. ANL-7857 (1971)
- /146/ Ham, F.S.: Theory of Diffusion-Limited Precipitation. J. Phys. Chem. Solids 6 (1958) 335
- /147/ Ronchi, C., Matzke, H.J.: Calculations on the In-Pile Behaviour of Fission Gas in Oxide Fuels. EUR 4877 e (1972)
- /148/ Pati, S.R., Dapht, M.J., O'Boyle, D.R.: Re-Resolution-Controlled Fission-Gas Behavior in  $UO_2$  Irradiated in a Fast Flux. J. Nucl. Mat. 50 (1974) 227-246
- /149/ Turnbull, J.A., Cornell, R.M.: The Re-Resolution of Gas Atoms from Bubbles during the Irradiation of  $UO_2$ . J. Nucl. Mat. 36 (1970) 161-168
- /150/ Poeppel, R.B., Dias, J.W.: Effects of Bubble Size on Fission Gas-Resolution. Trans. Am. Nucl. Soc. 17 (1973) 182
- /151/ Ainscough, J.B., Oldfield, B.W., Ware, J.O.: Isothermal Grain Growth Kinetics in Sintered  $UO_2$  Pellets. J. Nucl. Mat. 49 (1973/74) 117-128
- /152/ Matzke, H.J.: Persönliche Mitteilung, 1976
- /153/ Cottrell, A.H.: An Introduction to Metallurgy. London 1967
- /154/ Turnbull, J.A., Friskney, C.A.: The Release of Fission Products from Nuclear Fuel during Irradiation by both Lattice and Grain Boundary Diffusion. J. Nucl. Mat. 58 (1975) 31-38
- /155/ Ronchi, C., Matzke, H.J.: Calculations and Estimates of the Contributions of Different Transport Mechanisms to the Fission Gas Behavior in Fast Breeder Oxide Fuel. IAEA Symp. Fuel and Fuel Elements for Fast Reactors, Brüssel, 1973
- /156/ Langer, S. et al.: The Behavior of Volatile Fission Products in GCFR Fast Flux Irradiations. Trans. Am. Nucl. Soc. 17 (1973) 219-220
- /157/ Findlay, J.R.: The Migration of Fission Products through Reactor Fuel Materials. Behaviour and Chemical State of Irradiated Ceramic Fuel, IAEA, Wien: 1974, 211-220
- /158/ Friskney, C.A., Simpson, K.A.: The Release of Caesium and Xenon from the Uranium Dioxide Kernels of Irradiated HTR Fuel Particles. J. Nucl. Mat. 57 (1975) 341-347
- /159/ Seelmann-Eggebert, W. et al.: Nuklidkarte. Karlsruhe 1974
- /160/ Holleck, H., Kleykamp, H.: Zur Stöchiometrieverschiebung in einem oxidischen Brennelement bei hohem Abbrand KFK 1181 (1970)
- /161/ Spear, K.E. et al.: Thermodynamic Applications to  $(U,Pu)O_{2-x}$  Systems. ORNL-TM-2494 (1969)
- /162/ Blank, H.: Transporterscheinungen im oxidischen Brennstoff KFK 700 (1967) VI/1-19