KfK 3012 Oktober 1980

Untersuchungen zur mechanischen Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hüllrohr in Brennstäben von Schnellen Brüter-Reaktoren

I. Müller-Lyda Institut für Material- und Festkörperforschung Projekt Schneller Brüter

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Material- und Festkörperforschung

Projekt Schneller Brüter

KfK 3012

Untersuchungen zur mechanischen Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hüllrohr in Brennstäben von Schnellen Brüter-Reaktoren

~

I. Müller-Lyda

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH., Karlsruhe

Von der Fakultät für Maschinenbau der Universität Karlsruhe genehmigte Dissertation

,

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

> Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH ISSN 0303-4003

Abstract

UNTERSUCHUNGEN ZUR MECHANISCHEN WECHSELWIRKUNG ZWISCHEN BRENNSTOFF UND HÜLLE IN BRENNSTÄBEN VON SCHNELLEN BRÜTER-REAKTOREN

zwischen der mechanischen Brennstoff/ Der Zusammenhang Hüllrohr- Wechselwirkung und plastischen Hüllaufweitungen von Schnellbrüterbrennstäben mit Oxid- bzw. Karbidbrennstoff experimentell und modelltheoretisch untersucht. Die wurde Bestrahlungsexperimenten und Modellrechnungen Analysen von Möglichkeit plastischer Hülldehnungen infolge ergaben die unterschiedlicher Schwellung von Brennstoff und Hülle unter stationären sowie durch thermische Differenzdehnung unter instationären Betriebsbedingungen.

Bei stationären Betriebsbedingungen wird in Oxidbrennstäben die mechanische Wechselwirkung durch eine bestrahlungsinduzierte Kriechverformung in innneres Leervolumen begrenzt, so daß der Brennstoffschwelldruck zu keiner nennenswerten Hülldehnung führt. In Karbidbrennstäben kann dagegen infolge der vergleichsweise geringen thermischen und bestrahlungsbedingten Plastifizierung des Brennstoffs das Hüllrohr auch unter stationären Bedingungen aufgeweitet werden.

Hülldehnungen von Oxidbrennstäben können durch thermische Differenzdehnung bei Leistungsänderungen auftreten. Das Ausmaß dieser Dehnungen hängt in erster Linie ab von der Geschwindigkeit der Größe Leistungserhöhung, den und Anfangsbedingungen und der Hüllrohrfestigkeit. Angegeben wird die Abhängigkeit der Hülldehnung von diesen Parametern sowie Grenzbedingungen, unter denen sich plastische Hülldehnungen bei Leistungsänderungen vermeiden lassen. Die Modellrechnungen werden mit einem speziellen Rechencode zur mechanischen Wechselwirkung durchgeführt, der in enger Anlehnung an Bestrahlungsexperimente erstellt wurde. Experimentell wurde nachgewiesen, daß bei Betrieb mit reduzierter Stableistung der Brennstoff bis zum Hüllkontakt Schwellrate mit vorübergehend stark erhöhter geometrischer schwillt.

Abstract

INVESTIGATIONS ON THE MECHANICAL INTERACTION BETWEEN FUEL AND CLADDING (FCMI) IN FAST BREEDER REACTOR FUEL PINS

The relation between FCMI and plastic cladding distensions of Fast-Breeder pins with oxide as well as carbide fuel was analyzed theoretically and experimentally. This resulted in the possibility of plastic cladding straining caused by differential swelling of fuel and cladding material under stationary power conditions or differential thermal expansion at power changes.

At stationary operating conditions the FCMI in oxide pins is limited by an irradiation-induced creep deformation into inner void volume and thus the fuel swelling pressure will never cause clad distensions worth mentioning.

However, the cladding of carbide pins can be strained under stationary conditions because of the comparatively low fuel plastification under irradiation.

Plastic straining of oxide pins may follow from differential thermal expansion at power changes. The amount of strain is primarily dependent upon magnitude and rate of the power increase, the starting conditions, and the clad material strength. The parameter dependence of the strains and the limiting conditions for their avoidance are reported. The model calculations are carried out by means of a special computer code which was developed following closely the results of irradiation experiments.

It was proved experimentally that a considerably high geometrical swelling occurs after a power reduction until the fuel has come into contact with the cladding again.

Literatur:

0.	Nomenklatur	V
1.	Einleitung und Problemstellung	1
2.	Darstellung der mechanischen Wechselwir- kung als Ursache von Hülldehnungen in der Literatur	4
3.	Ergebnisse von Rechencodes zur Beschreibung des integralen Brennstabverhaltens im Hin- blick auf die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle	8
4.	Auslegungsbedingungen für SNR-Brennstäbe	14
4.1	Brennstabdimensionierung	14
4.2	Stableistung und Hülltemperatur	18
5.	Experimentiereinrichtungen	20
5.1	Prinzip der Längenänderungsmessung mit Mikrowellen	21
5.2	Die instrumentierten Bestrahlungskapseln VADIA und CONFLUENT	23
5.2.1	Die CONFLUENT-Kapsel	24
5.2.2	Die VADIA-Kapsel	25
5.3	Das Helium-Zentralloop im FR2-Reaktor	27
б.	Beschreibung eines Rechenmodells zur Hüll- dehnung durch mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle	30
6.1	Berechnung der zeitabhängigen Größen bei stationären Bestrahlungsbedingungen	33
6.2	Berechnung der Einflußgrößen für die mecha- nische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle	36
6.2.1	Die Berechnung der radialen Temperaturver- teilung im Brennstab	37
6.2.2	Berechnung der thermischen Differenzdehnung zwischen Brennstoff und Hülle	45

6.2.3	Weitere Vorgänge von Einfluß auf die mecha- nische Wechselwirkung	48
6.3	Vorgänge im Hüllmaterial	49
6.3.1	Fließdehnung des Hüllrohres unter Berück- sichtigung der Dickenverminderung durch Korrosion	49
6.3.2	Hüllrohrschwellung im Schnellen Neutronen- fluß	51
6.4	Berechnung von Spannungen und Dehnungen von Brennstoff und Hüllrohr bei Festkörper- oder Spaltgasdruck	51
6.4.1	Festkörper-Kontaktdruck zwischen tragendem Brennstoffring und Hüllrohr bei differen- tieller Ausdehnung	51
6.4.2	Berechnung der plastischen Verformungen von Brennstoff und Hüllrohr	62
6.4.2.1	Hüllrohr-Fließverformungen	64
6.4.2.2	Hüllrohr-Kriechverformungen	64
6.4.2.3	Kriechverformung des tragenden Brennstoff- ringes	65
6.4.2.4	Brennstoff-Heißpressen	71
6.5	Aufbau des Rechencodes INSTAT	73
6.5.1	Die rechnerische Behandlung von Stableis- tungs- und Temperaturänderungen	73
6.5.2	Wahl des Zeitschrittes bei stationären Betriebsbedingungen	76
6.5.3	Flußdiagramm und Ablauf des Rechenprogramms INSTAT	77
7.	Besondere Aspekte des Brennstoffverhaltens bei instationärer Leistung	83
7.1	Nachweis beschleunigter plastischer Verfor- mungen von Oxid- und Karbidbrennstoff bei Spannungsänderungen	84

7.1.1	Brennstoff-Probendaten	85
7.1.2	Durchführung der Kriechexperimente	87
7.1.3	Ermittlung einer quantitativen Beziehung für beschleunigte Verformungen	89
7.1.3.1	Messungen und Auswertung	89
7.1.3.2	Interpretation der Ergebnisse	98
7.2	Beschreibung des Schließvorganges für das thermische Schrumpfungsvolumen im Brennstab nach einer Leistungsreduktion	100
7.2.1	Spaltschließmechnismen	100
7.2.2	Leistungs-Zyklierexperimente im Helium- Zentrallop des FR2 (Loop-Versuchsgruppe 5)	101
8.	Kalibrierung des Rechencodes an Hand von Hüllaufweitungen aus FR2-Bestrahlungsexpe- rimenten	111
8.1	Experimentelle Grundlagen	111
8.2	Parameteranpassung im Rechencode	117
8.3	Übertragung der Resultate auf andere Expe- rimente	125
9.	Anwendungen des INSTAT-Codes	127
9.1	Brennstoffschwelldruck bei stationärer Stableistung	127
9.2	Leistungsrampen mit Kontakt zwischen Brenn- stoff und Hüllrohr. Primärer Einfluß der Stableistung und der Hülltemperatur	130
9.3	Einfluß der Leistungsänderungsgeschwindigkeit	133
9.3.1	Modellrechnungen	133
9.3.2	Experimentelle Ergebnisse zur Hülldehnung in Abhängigkeit von der Leistungsänderungsge- schwindigkeit	137

9.4	Analyse der Hüllaufweitung eines längeren Oxidbrennstabes. Sekundärer Temperatur- und Stableistungseinfluß	139
9.5	Hülldehnungsprofil-Analyse eines Karbid- brennstabes	148
9.5.1	Stabauslegung und Bestrahlungsdaten	149
9.5.2	Berechnung des Hülldehnungsprofils aus der Bestrahlungsgeschichte des Brennstabes	152
10.	Gezielte Leitungszyklierexperimente an Oxid- brennstäben zum Ausbau und Präzisierung des Rechencodes	156
10.1	Brennstabauslegung und Experimentführung	157
10.2	Ergebnisse	160
11.	Besonderheiten der mechanischen Wechsel- wirkung bei Bestrahlung im Schnellen Neutronenfluß	163
12.	Schlußfolgerungen	168
13.	Zusammenfassung	170
	Literatur	174
	Anhang	A1

0. <u>Nomenklatur</u>

.

Verzeichnis der verwendeten Symbole und Abkürzungen.

Symbol	Dimension	Bezeichnung
А	Spaltung/Schw.At.	Abbrand
AG	g/mol	Atomgewicht (Mole- kulargewicht)
C	-	Koeffizienten in nu- merischen Ausdrücken
Ε	GPa	Elastizitätsmodul
Esp	MeV/Spaltung	Spaltenergie
БР F	ċm ²	Fläche
FR	_	Flußformfaktor
FF	_	Verhältnis zwischen lokaler und maximaler Stableistung
G	Cm	effektiver radialer Spalt zwischen Brenn- stoff und Hülle
Н	CM	Höhe
N	cm ⁻³	Teilchenzahldichte
0	cm ²	Oberfläche
Р	vol.Anteil	Porosität
Р	MPa	Druck
Q	W	Wärmeleistung
R	J/K	Gaskonstante
R	Spaltung W%cm	Spaltungsdichte
RDA	(n/(cm ²)/Spaltung/schw.At.)	Verhältnis Dosis/ Abbrand
RR	CM	Rißrauhigkeit
Т	к, ^о С	Temperatur
V	cm ³	Volumen
W	J	mech. Arbeit
С	J/K	Wärmekapazität
d	Cm	Dicke, Wandstärke
h	W/cm ² K	Wärmeübergangs- koeffizient
k	J/K	Boltzmannkonstante
q	W/cm ³	Wärmequelldichte

r	Cm	Radius
t	s, h	Zeit
u	Cm	radiale Verschiebung
W	Cm	axiale Verschiebung
х	-	Stöchiometrieab- weichung von Oxid- brennstoff ^{MO} 2-x
Х	W/cm	Stableistung
ф	n/cm ² s	Neutronenfluß
α	к ⁻¹	thermischer Ausdeh- nungskoeffizient
ε	-	Dehnung
η	MPa h	dynamische Zähigkeit
λ	W/cm K	Wärmeleitfähigkeit
μ	-	Reibungskoeffizient
ν	-	Querkontraktionszahl
π	-	mathematische Konstante
ρ	g/cm ³	Dichte
σ	MPa	Spannung
τ	h	Zeitkonstante

Indizes:

В	Brennstoff
G, g	Spaltgas
Н	Hülle
L	N ₁ =Loschmidt-Konstante
N	Kühlmittel
a	außen
С	Kontakt
eff	effektiv
fl	Fließen
h	hydrostatisch
i	innen
i	Summationsindex
korro	Korrosion
m	mittel

n	normiert
pl	plastisch
r	radial
t	tangential
v	Vergleich
Z	axial
Z	zentral
0	Anfang

Sonstige Bezeichnungen

x	Vektor x
×	Matrix x
x	Mittelwert x

1. Einleitung und Problemstellung

Die gegenwärtigen Schnell-Brut-Reaktor und Brennstabkonzepte sind das Resultat einer vorzugsweise nach wirtschaftlichen Gesichtspunkten durchgeführten Optimierung unter Berücksichtigung physikalischer und sicherheitstechnischer Randbedingungen. International wird in allen favorisierten Referenzkonzepten der bereits in der Leichtwasserreaktor-Technologie verwendete Oxidbrennstoff MO₂ (M=U,Pu) vorgesehen. Weiterhin sehen alle Konzepte als Hüllmaterial austenitischen, kaltverformten Cr-Ni-Stahl vor. Hinsichtlich des Kühlmittels hat sich letztlich die Flüssigmetallkühlung durchgesetzt.

Die Schnellen Brutreaktoren der ersten Generation sind für die Erzeugung von etwa 300 MW_{el} bei konstanter Leistungsabgabe ausgelegt, wobei die Spaltstofferzeugung durch den Brutprozeß zunächst noch eine untergeordnete Rolle spielt. Bei einem größeren Anteil von Brutreaktoren an der elektrischen Leistungserzeugung müssen diese auch für eine zyklische Betriebsweise ausgelegt werden, um sich den jahres- und tageszeitlichen Schwankungen des Stromverbrauchs anzupassen. Zur Weiterentwicklung der Brutreaktoren wird, vor allem zur Erhöhung der Spaltstofferzeugung die Verwendung von karbidischem Brennstoff erwogen, der wegen seiner größeren (U,Pu)-Dichte beträchtlich größere Brutraten ermöglicht.

Die Brennstab-Hüllrohre von Leistungsreaktoren sind außerordentlich hohen Belastungen ausgesetzt. Diese Belastungen sind mechanischer und chemischer Art und sind sowohl durch hohe Betriebstemperaturen als durch direkte Neutronenstrahlungseinflüsse bedingt. In schnellen Brutreaktoren sind diese Einflüsse besonders gravierend. Aus Sicherheitsgründen wird die Integrität der Brennstabhüllrohre bis zum vorgesehenen Entladeabbrand gefordert. Hieraus ergeben sich weitreichende Konsequenzen für die Materialauswahl, die thermische Auslegung und die mögliche Betriebsweise von Leistungsreaktoren.

-1-

Zur Verhinderung von Hüllrohrschäden werden Grenzwerte für die plastische Hülldehnung spezifiziert, die während der Lebenszeit der Brennstäbe nicht überschritten werden dürfen /1/. Diese Grenzwerte müssen bei der Brennstabauslegung berücksichtigt werden. Dabei sind vorher festgelegte Bedingungen des normalen Betriebsablaufes und darüberhinaus noch eine Anzahl sogenannter Auslegungsstörfälle, d.h. Abweichungen der Leistung oder der Hülltemperatur von den Sollbedingungen, zugrunde zu legen, die mit ihrer jeweiligen Eintrittswahrscheinlichkeit gewichtet werden. Die Überprüfung der Brennstabauslegung erfolgt in Bestrahlungsexperimenten, deren Ergebnisse in Modellbeschreibungen des Brennstabverhaltens einfließen. Mit diesen Modellen wird der jeweilige Zustand des Brennstabes in Abhängigkeit von der Betriebsgeschichte berechnet. Dabei wird angestrebt, möglichst alle ablaufenden physikalischen Vorgänge und auch wichtige chemische Vorgänge einzuschließen. Dazu ist auch eine genaue Kenntnis der Materialeigenschaften unter Neutronenbestrahlung erforderlich, die in separaten Eigenschaftsmessungen bestimmt werden.

Wegen der Vielzahl der ablaufenden Vorgänge und ihrer wechselseitigen Beeinflussung sind die entsprechenden Modelle sehr umfangreich und numerisch nur mit Computern berechenbar. Die Brennstabmodelle, die als Computerprogramme bestehen, werden als Brennstabcodes bezeichnet. Innerhalb der letzten zehn Jahre wurden eine Reihe von Brennstab-Rechencodes entwickelt, und zwar zunächst für Leichtwasserreaktor-Brennstäbe und später auch für Schnellbrüterbrennstäbe. Im gegenwärtigen Stand der Modellentwicklung kann das Bestrahlungsverhalten unter stationären Betriebsbedingungen recht genau beschrieben werden, wobei im allgemeinen gute Übereinstimmung mit den Beobachtungen während des Betriebes oder bei den Nachbestrahlungsuntersuchungen erreicht wird.

Die Weiterentwicklung dieser Rechencodes zur Beschreibung des Leistungswechselbetriebes und unter Betriebsbedingungen außerhalb des Auslegungsbereiches, die bei Störungen eintreten können, ist noch nicht abgeschlossen. Die Schwierigkeiten bestehen dabei nicht nur in der Erfassung der physikalischen Vorgänge, sondern

-2-

auch in der rechentechnischen Optimierung der Programme. Bei der Berechnung instationärer Vorgänge vervielfacht sich die erforderliche Rechenzeit der Programme, so daß die Kapazitätsgrenzen auch größerer Rechenanlagen erreicht und die Kosten unangemessen erhöht werden. Die Genauigkeit der großen Rechencodes ist jedoch immer begrenzt, weil die Unsicherheiten der Materialparameter, insbesondere die bestrahlungsabhängigen Eigenschaften, sehr groß sind.

Wegen der zunehmenden Kompliziertheit der Codes zur Beschreibung des integralen Brennstabverhaltens wurden alternativ kleinere Rechencodes zur Untersuchung von Detailvorgängen entwickelt. Diese Codes behandeln z.B. entweder nur die Temperaturverteilung, die Brennstoff-Umstrukturierung oder die Verformungsvorgänge. Diese Programme sind vergleichsweise sehr kurz, weil zum einen nur die für ihre jeweilige Aufgabe relevanten Parameter berücksichtigt zu werden brauchen und zum anderen auch erhebliche Vereinfachungen in der Modellbeschreibung vorgenommen werden können. Durch den geringen Rechenzeitbedarf solcher Programme werden umfangreiche Parameter-Modelluntersuchungen oder Analysen langer Bestrahlungsexperimente möglich.

Diese Arbeit hatte das Ziel, die Ursachen der plastischen Hülldehnungen von Schnellbrüterbrennstäben zu erkennen, insbesondere, ob diese im stationären Leistungsbetrieb durch Brennstoffschwellung oder durch thermische Ausdehnungsdifferenzen bei Stableistungswechseln verursacht werden. Dazu wurden jeweils parallel für Karbid- bzw. Oxidbrennstäbe Modelle und Codes entwickelt, die nur die Vorgänge und Daten mit entscheidendem Einfluß auf die plastische Hülldehnung beinhalten. Diese Codes sind leicht anwendbar, erfordern keine Versuchsspezifischen Anpassungen und benötigen nur wenig Rechenzeit. Im Rahmen der Literaturbearbeitung erfolgte eine Studie über die Beschreibung der plastischen Hülldehnung in den bekannten, umfassenden Codes zur integralen Brennstabbeschreibung, wobei hier jedoch nur veröffentlichte Resultate herangezogen werden konnten.

-3-

Die Rechenprogramme werden zur Analyse von Hülldehnungen, die nach Bestrahlung an Mischoxid- und Mischkarbidbrennstäben gemessen wurden, angewendet und dabei kalibriert bzw. auf ihre Vollständigkeit überprüft. Neben der Analyse von Hülldehnungen von Bestrahlungsexperimenten mit allgemeiner Zielsetzung werden auch spezielle Leistungswechselversuche an kurzen UO₂-PuO₂-Brennstäben durchgeführt.

Wegen seiner großen Bedeutung für die Hülldehnung im stationären Betrieb wird das bestrahlungsbedingte Kriechen von (U,Pu)C-Brennstoff in Bestrahlungskapseln gemessen. Neben der stationären Bestrahlungskriechgeschwindigkeit wird das Verformungsverhalten des Brennstoffes unter Bestrahlung bei Spannungsänderungen gemessen, das ein bedeutender Parameter für die mechanische Wechselwirkung bei Leistungsänderungen ist und worüber keinerlei Aufschlüsse durch Analyse von Bestrahlungsexperimenten mit stationären Betriebsbedingungen erhalten werden können.

2. Darstellung der mechanischen Wechselwirkung als Ursache von Hülldehnungen in der Literatur

Als wahrscheinliche Ursachen für das Versagen von Schnellbrüterbrennstäben kommen neben Fertigungsfehlern die Hüllinnenkorrosion, der Spaltgasdruck und die mechanische Wechselwirkung⁺⁾ in Frage. Im Zusammenhang mit der mechanischen Wechselwirkung wurde zunächst der Brennstoffschwelldruck (aufgrund des zusätzlichen Volumenbedarfes der Spaltprodukte) bei stationärer Stableistung als die treibende Kraft für Hüllaufweitungen infolge von Kriechoder Fließverformungen angesehen. Diese Ansicht ist gegenwärtig für Brennstäbe mit Karbidbrennstoff unumstritten /2,3,4,5/. Für Oxidbrennstäbe wird die mechanische Wechselwirkung im stationären Leistungsbetrieb als Ursache für Hüllaufweitungen dagegen unterschiedlich eingeschätzt. Auf französischer, deutscher und japanischer Seite wird der Brennstoffschwelldruck nicht als

⁺⁾ Hier und im Folgenden ist mit "mechanischer Wechselwirkung" immer die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle gemeint.

ausreichend angesehen, um nennenswerte Hülldehnungen zu verursachen, solange Schmierdichte und Abbrand richtig aufeinander abgestimmt sind /6,7,8/. Dieses resultiert aus der großen Kriechfähigkeit von Oxidbrennstoff unter Bestrahlung, wodurch die radiale Brennstoffschwellung durch eine gegenläufige plastische Verformung in inneres Leervolumen im Brennstab aufgefangen werden kann. Die für den Verformungsvorgang erforderlichen Kontaktdrücke am Hüllrohr sind im allgemeinen eine Größenordnung kleiner als der Spaltgasdruck. Auf amerikanischer Seite wird dagegen für Oxidbrennstäbe mit konstanten Betriebsbedingungen mit einem Anteil plastischer Hülldehnung durch mechanische Wechselwirkung gerechnet /9-13/. Diese Einschätzung beruht auf modelltheoretischen Analysen von Hülldehnungen von Bestrahlungsexperimenten im schnellen Neutronenfluß, in denen die bestrahlungsinduzierte Plastizität des Brennstoffes vergleichsweise niedrig angenommen wird.

Die Annahme, daß instationäre Betriebsbedingungen wie Hülltemperatur- oder Stableistungsschwankungen die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle verstärken können, wurde erstmals von Hines et al. zur Deutung von gemesssenen Hülldehnungen gemacht /14/. Nach den in dieser Arbeit beschriebenen Modellvorstellungen können plastische Hülldehnungen durch thermische Differenzdehnung von Brennstoff und Hüllrohr bei Leistungs- und Temperaturänderungen verursacht werden. Wenn sich bei einer Leistungserhöhung ein mechanischer Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle ergibt, können die dann auftretenden Hüllrohrspannungen die Elastizitätsgrenze des Hüllmaterials erreichen, so daß eine weitere differentielle thermische Dehnung zu einer Fließverformung der Hülle führt. Für eine anschließende Leistungsreduktion wurde eine raschere Ausheilung des sich auf Grund der thermischen Schrumpfung ergebenden Leervolumes postuliert als sie durch die stationäre Spaltproduktschwellung des Brennstoffs möglich wäre. Dadurch wird der beschriebene Hülldehnungsvorgang schneller wiederholbar. Als Mechanismen für eine beschleunigte Rißausheilung wurden ein Transport fester Spaltprodukte in den kalten, äußeren Brennstoffbereich und auch Brennstoff-Verdampfung und Kondensation im radialen Temperaturgradienten in Erwägung gezogen.

-5-

Dienst und Brucklacher haben diese Vermutungen durch Nachbestrahlungsuntersuchungen von Brennstäben, die im thermischen Neutronenfluß bestrahlt wurden, bestätigt /15/. Diese Brennstäbe wiesen nach 10% Abbrand plastische Hülldehnungen von 0.05 - 0,1% je %-Abbrand auf. Da bei thermischer Neutronenbestrahlung weder Hüllrohrschwellung noch Bestrahlungskriechen der Hülle möglich sind, können diese Dehnungen eindeutig auf thermisches Hüllkriechen oder Hüllfließen zurückgeführt werden. Eine Abschätzung ergab, daß der Spaltgasdruck im Brennstab nicht für Hülldehnungen in der beobachteten Größenordnung ausreichend war. Gleichzeitig wurden eigene Messungen der Bestrahlungskriechgeschwindigkeit des verwendeten Oxidbrennstoffs durchgeführt. Damit konnte der stationäre Brennstoffschwelldruck im Brennstab abgeschätzt werden. Dieses ergab Hüllrohr-Tangentialspannungen von höchstens 50% des Wertes, der für die beobachteten Hülldehnungen im Bestrahlungszeitraum erforderlich gewesen wäre. In einem weiteren Experiment wurden Schwelldrücke dieser Größenordnung direkt gemessen. Daraus wurde geschlossen, daß die Hülldehnungen als Folge von Instationaritäten während der Bestrahlung durch thermische Differenzdehnung zwischen Brennstoff und Hüllrohr verursacht wurden. Aus der Analyse von Schliffbildern ergaben sich Hinweise auf einen zusätzlichen Volumenbedarf des Brennstoffs durch Riß-Rast-Mechanismen und unvollständige Rißausheilung bei zyklischem Stableistungsverlauf.

Die Korrelation zwischen Instationarität des Bestrahlungsablaufes und plastischen Hülldehnungen wurde von Gerken an Hand einer großen Anzahl von Bestrahlungsergebnissen und Bestrahlungsgeschichten (d.h. der Hülltemperatur- und Stableistungsverlauf) aus Versuchen in thermischen Reaktoren nachgewiesen /16/⁺⁾. In dieser Arbeit wurde ein Rechenmodell beschrieben, das die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle be-

-6-

⁺⁾Ein Teil der dieser Arbeit zugrunde liegenden experimentellen Ergebnisse werden auch in dieser Arbeit zur Kalibrierung des Rechencodes zur mechanischen Wechselwirkung herangezogen.

handelt. Mit diesem Modell konnten die beobachteten Hülldehnungen auch quantitativ aus den Stableistungssprüngen während der Bestrahlung errechnet werden. In den FR2-Bestrahlungsexperimenten waren die Hülldehnungen durch mechanische Wechselwirkung oft besonders groß, weil in thermischen Versuchsreaktoren viel häufigere und größere Neutronenflußschwankungen vorkommen als in Schnellen Reaktoren. Die beobachteten Hülldehnungen aus diesen Versuchsgruppen waren weit weniger mit dem Abbrand als mit den über die Gesamtbestrahlungszeit summierten Stableistungsanhebungen korreliert.

In dem amerikanischen Schnellen Testreaktor EBR II wurde eine große Anzahl von Stabschäden beobachtet, als der Reaktor nach einem Umbau wieder auf Leistung gebracht wurde /17/. Bei dem Umbau wurde ein Neutronenreflektor angebracht, wodurch sich die spezifische Leistung an den Stabenden einiger Brennstäbe z.T. um über 100% erhöhte. Das Wiederanfahren des Reaktors wurde nach dem Reflektoreinbau ohne besondere Vorsichtsmaßnahmen mit der üblichen Geschwindigkeit vorgenommen. Als Ursache für diese Stabschäden wurde eindeutig die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle während der Anfahrphase auf das höhere Leistungsniveau festgestellt. Dieses wurde auch durch Modellrechnungen mit einem kleineren Rechencode zur mechanischen Wechselwirkung bestätigt.

Im Zusammenhang mit diesen Stabschäden ist auch das vorsichtige Wiederanfahren des französischen Phénix-Reaktors auf Vollast nach einer sehr langen Betriebsphase mit einer auf 66% der Vollast reduzierten Leistung zu sehen. Bei der Wiederanhebung der Leistung wurden Haltezeiten eingeschoben, während derer sich Spannungen im Brennstab über bestrahlungsinduzierte Kriechvorgänge abbauen konnten. Bei dieser Verfahrensweise traten keine Hüllrisse auf /6/.

Bei den bisherigen Aussagen wurde der Mechanismis der Cäsium-Reaktionsschwellung durch lokale Ansammlung des flüchtigen Spaltprodukts Cäsium ausgeklammert. Hierdurch können sich an Oxidbrennstäben im Bereich des Brennstoff/Brutstoff-Übergangs beträchtliche lokale Hülldehnungen einstellen (z.B. /7,18/). Dieser Mechanismus kann sowohl unter stationären als auch instationären Betriebsbedingungen wirksam werden. 3. Ergebnisse von Rechencodes zur Beschreibung des integralen Brennstabverhaltens im Hinblick auf die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle

In den mit der Brutreaktor-Entwicklung befaßten Institutionen wurden jeweils große Rechencodes zur integralen Beschreibung des Brennstabverhaltens unter Bestrahlung entwickelt. Mit diesen Codes sollen die während bzw. nach der Bestrahlung gemachten Beobachtungen an Brennstäben analysiert und auf ihre physikalischen Ursachen zurückgeführt werden. Derartige Codes sind, um einige zu nennen, die amerikanischen Codes LIFE, BEHAVE und CYGRO, die britischen FRUMP und SLEUTH-Codes, der belgische COMETHE-Code, der IAMBUS-Code der Firma Interatom und der SATURN-Code des Kernforschungszentrums Karlsruhe.

Der Aufbau dieser Codes, die verwendeten Materialdaten und die Rechenergebnisse sind größtenteils unveröffentlicht bzw. vertraulich, so daß ein direkter Vergleich der Codes im Hinblick auf die Beschreibung der mechanischen Wechselwirkung nicht möglich ist. Für die Codes LIFE und SATURN liegen ältere Veröffentlichungen mit detaillierten Ergebnissen von Modellrechnungen vor, die in ihren Grundzügen jedoch noch immer gültig sind und sich zwischenzeitlich nur noch durch Modellerweiterungen und verbesserte Materialdaten geändert haben.

SATURN ist ein zweidimensionaler Rechencode in r,z-Geometrie /19/, der die axiale und radiale Verteilung von Temperatur, Brennstoffzustand, Spannungen und Dehnungen im Brennstab in Abhängigkeit von der Zeit und den Bestrahlungsbedingungen berechnet. Der Bericht /20/ enthält eine umfassende Darstellung von Modellrechnungen. Aus den Rechenergebnissen wird gefolgert, daß unter normalen Betriebsbedingungen nur der kalte äußere Brennstoffbereich einen Einfluß auf die mechanische Belastung des Hüllrohres hat, weil durch die Plastifizierung des Brennstoffs im heißen Zentralbereich dort alle thermischen Spannungen schnell relaxieren können. Abb. 3.1 zeigt die SATURN-Rechnung der radialen Verteilung der Brennstoff-Vergleichsspannung, die sich nach Schließen des Fertigungsspaltes unter dem Schwelldruck aufbaut. Der stationäre Schwelldruck ist der Druck, der sich im Gleichgewicht von Brennstoffschwellung und Bestrahlungs-Kriechverformung des Brennstoffes an der Hülle einstellt.



Abb. 3.1: Radiale Verteilung der Brennstoff-Vergleichsspannung in einem SNR-Brennstab bei 300 W/cm Stableistung. Parameter: 1.) Zeit seit Einstellung des Kontaktes zwischen Brennstoff und Hülle, 2.) Spaltgasdruck. (aus /20/).

Diese Modellrechnungen lassen den Schluß zu, daß sich die mechanische Behandlung des Brennstoffbereiches ohne großen Fehler dadurch vereinfachen läßt, daß man nur den kalten äußeren Brennstoffbereich berücksichtigt.

Rechencodes wie IAMBUS und LIFE kommen zu qualitativ völlig gleichartigen Ergebnissen. Dieses ist die Grundlage für das Zweizonen-Brennstoffmodell zur mechanischen Wechselwirkung, das in dieser Arbeit beschrieben wird. Der Brennstoffschwelldruck hängt von der Stärke des tragenden äußeren Brennstoffringes und damit unmittelbar von der Stableistung und der Hülltemperatur ab. Es besteht somit eine fallende Tendenz des Kontaktdruckes mit wachsender Hülltemperatur und Stableistung. Die Abb. 3.2 und 3.3, entnommen aus dem SATURN-Bericht /20/, zeigen,wie sich die Stärke des tragenden Brennstoffringes mit wachsender Stableistung verkleinert und der resultierende Schwelldruck abnimmt. Bei einer Stableistung von 200 W/cm ist noch der gesamte Brennstoffbereich starr, und Kontaktdrücke von 400 bar sind möglich. Bei 500 W/cm ist dagegen der größte Teil des Brennstoffes plastifiziert, und der Kontaktdruck beträgt nur 10-20 bar.



Abb. 3.2: Stärke des tragenden Brennstoffringes in Abhängigkeit von Zeit und Stableistung, berechnet mit SATURN (aus /20/)



Abb. 3.3: Aufbau des stationären Brennstoffschwelldruckes nach Schließen des Anfangsspaltes, berechnet mit SATURN (aus /20/)

Mit SATURN wurde ferner die Auswirkung unterschiedlicher Leistungserhöhungsgeschwindigkeiten auf den Kontaktdruck während einer Leistungsrampe untersucht. Hieraus ergab sich, daß die Hüllverformung durch thermische Überschußdehnung des Brennstoffs bei kleinen Leistungsänderungsgeschwindigkeiten durch Brennstoffkriechen auf ein für das Hüllrohr unschädliches Niveau reduziert werden kann. Die SATURN-Ergebnisse lassen sich zu den folgenden Aussagen zusammenfassen:

- Unter normalen Betriebsbedingungen im stationären Leistungsbetrieb treten keine nennenswerten plastischen Hülldehnungen auf.
- Das bestrahlungsinduzierte Brennstoffkriechen ist der entscheidende Faktor für die Entlastung des Hüllrohres von der Brennstoffschwellung.
- 3.) Für die Beschreibung der mechanischen Verhältnisse im Brennstoff ist das Zweizonenmodell eine ausreichende Näherung.

Teilweise entgegengesetzte Ergebnisse brachte eine Parameterstudie zur plastischen Hüllaufweitung mit dem LIFE II-Code /21/. Die Rechnungen wurden am Beispiel eines Oxidbrennstabes mit hochdichtem Brennstoff und AISI 316-Hülle⁺⁾ für EBR II-Betriebsbedingungen durchgeführt. Sie ergaben auch für stationäre Stableistungen plastische Hülldehnungen durch den Brennstoff-Schwelldruck. Die Schwelldrücke liegen um etwa eine Größenordnung über den SATURN-Ergebnissen und wachsen mit der Stableistung an (z.B. 100 bar bei 300 W/cm und 190 bar bei 340 W/cm Stableistung). Unterhalb einer Hülltemperatur von 480 ^OC werden die Dehnungen durch Hüllrohr-Bestrahlungskriechen und darüber durch thermisches Kriechen verursacht. Für Bestrahlungen unter EBR II-Bedingungen sagt LIFE eine Abnahme des Kontaktdruckes mit der Bestrahlungsdauer voraus, weil die Hüllrohrschwellung die Brennstoffschwellung überholt. Vergleichsrechnungen mit einer um den Faktor 10 erhöhten bzw. erniedrigten Brennstoff-Kriechrate (aus dem Bericht geht nicht hervor, ob das Brennstoff-Bestrahlungskriechen berücksichtigt wurde) ergaben einen wachsenden Kontaktdruck bei zunehmender Brennstoffplastizität. In ihrem Bericht weisen die Autoren auf diese offensichtlichen Widersprüche zur Erfahrung und auf eine erforderliche Verbesserung des Codes hin. Ähnliche Rechnungen mit neueren Versionen des LIFE-Codes sind bisher nicht veröffentlicht worden.

⁺⁾ Die Zusammensetzung aller hier als Hüllmaterial erwähnten Cr-Ni-Stähle ist im Anhang in Tabelle A-1 angegeben.

Eine ausführliche Untersuchung der mechanischen Wechselwirkung wurde auf britischer Seite von Hicks und Hughes mit dem SLEUTH-Code durchgeführt /22/. Die Rechnungen ergaben, daß die Kontaktdrücke durch Brennstoff-Bestrahlungskriechen auf Werte zwischen 10 und 40 bar beschränkt sind, und zwar mit fallender Tendenz bei steigender Stableistung und Hülltemperatur. Hülldehnungen durch thermisches oder bestrahlungsinduziertes Kriechen können unter stationären Bedingungen vernachlässigt werden. Bei einer Leistungsanhebung von 70% auf 100% der vollen Leistung werden Kontaktdrücke bis 350 bar berechnet, wenn Brennstoff und Hüllrohr seit Beginn der Leistungsrampe in Kontakt standen. Dieser hohe Kontaktdruck wird schnell (etwa auf 1/3 in 12 h) über eine Brennstoffverformung durch Bestrahlungskriechen abgebaut. Ähnliche Resultate wurden auch von französischer Seite über Modellrechnungen zur mechanischen Wechselwirkung erwähnt /6/.

Parameteruntersuchungen zur mechanischen Wechselwirkung mit dem neben SATURN bekanntesten Rechencodes aus dem DeBeNe-Bereich⁺⁾, IAMBUS und COMETHE, sind nicht veröffentlicht. Aus publizierten modelltheoretischen Untersuchungen von Bestrahlungsexperimenten (z.B. in /23/) kann jedoch geschlossen werden, daß sich keine nennenswerten plastischen Hülldehnungen durch den Festkörperschwelldruck ergeben. Bei Leistungserhöhungen werden auch in diesen Modellen kurzzeitige Spannungsspitzen errechnet, die durch Bestrahlungskriechen des Brennstoffes abgebaut werden.

Insgesamt gesehen sind die großen Rechencodes für ausführliche Parameteruntersuchungen von Teilaspekten des Bestrahlungsverhaltens von Brennstäben weniger geeignet, weil immer sämtliche unter Bestrahlung ablaufende Vorgänge berücksichtigt werden, auch wenn diese keinen Einfluß auf den jeweils untersuchten Effekt haben. Dadurch werden die Rechnungen sehr aufwendig, insbesondere bei instationärem Bestrahlungsablauf. Zwar wird in neueren Brennstabcodes die mechanische Wechselwirkung bei Analysen

⁺⁾ Deutschland, Belgien, Nederlande

von Bestrahlungsexperimenten mit stationärer Stableistung recht genau beschrieben, sie spielt aber unter diesen Bedingungen im Hinblick auf kritische Hülldehnungen keine Rolle. Dieses zeigt, daß die großen Rechencodes unzureichend zur Beschreibung der mechanischen Wechselwirkung unter instationären Bedingungen bzw. die Resultate nur bedingt zutreffend sind. Es ist daher zweckmäßig und auch notwendig, für diesbezügliche Modelluntersuchungen nicht auf einen derartigen Code zurückzugreifen, sondern einen kleineren Rechencode mit einem speziellen Anwendungsbereich zu entwickeln.

Eine spezielle Schwäche vieler Rechencodes bei der Beschreibung des Brennstabverhaltens unter instationären Bedingungen liegt in der Verwendung nur indirekt ermittelter Materialeigenschaftswerte /24/. Derartige empirische Funktionen (z.B. für die Hüllrohrschwellung) sind häufig aus den Ergebnissen von Nachbestrahlungsuntersuchungen unter der Annahme stationärer Bestrahlungsbedingungen erstellt worden und sind daher nicht ohne weiteres auf instationäre Bestrahlungsabläufe übertragbar.

4. Auslegungsbedingungen für SNR-Brennstäbe

4.1. Brennstabdimensionierung

Die Brennstäbe von Schnellbrüter-Leistungsreaktoren mit Oxidbrennstoff sind etwa 2,5 m lang und haben Hüllrohre aus austenitischem Cr-Ni-Stahl mit Durchmessern zwischen 5,8 und 7,6 mm und Wandstärken zwischen 0,38 und 0,5 mm, wobei das Verhältnis von Stabdurchmesser zu Hüllwandstärke etwa bei 15 liegt. Das DeBeNe-SNR-Konzept⁺⁾ sieht als Hüllmaterial den Stahl X10CrNiMo Ti1515 (Werkstoff-Nr. 1.4970, s. Tab. A-1 im Anhang) mit 15% Kaltverformung und anschließender Auslagerung vor, während sonst weltweit der Stahl AISI 316 (s. Tabelle A-1) zum Einsatz kommt. Bei Karbidbrennstäben liegt der Stabdurchmesser bei 8-10 mm. Brennstoff und Brutstoff bestehen aus Tabletten mit Höhe/Durchmesserverhältnis ~1,5. Das Innere der Brennstäbe wird zu etwa gleichen Anteilen vom Brennstoff, vom Brutstoff und vom Spaltgasraum eingenommen (Abb. 4.1). Der Brutstoffbereich ist zweigeteilt und umgibt die Brennstoffsäule. Die Brennstoff- und

⁺⁾Schneller natriumgekühlter Brutreaktor

-14-

Brutstoffstabletten werden mit radialem Spiel in das Hüllrohr eingeführt und mit einer Haltefeder axial fixiert. Zur Verbesserung der Wärmeübertragung vom Brennstoff an das Hüllrohr ist der Brennstab mit Helium gefüllt.

Karbidbrennstäbe sind im Prinzip gleichartig aufgebaut (Abb. 4.1). Der Tablettendurchmesser ist größer als in Oxidbrennstäben, die Spaltstoffzone ist relativ kleiner und der Spaltgasraum kürzer.



Abb. 4.1: Schematischer Aufbau von Brennstäben (Längen in mm) (aus /25/).

Im Verlaufe der Bestrahlung zeigt der Brennstoff mit zunehmendem Abbrand eine charakteristische Volumenzunahme, die vor allem von der Einlagerung der Spaltprodukte hervorgerufen wird. Der Volumenbedarf eines Brennstoffpellets wird über die reine Spaltproduktschwellung hinaus noch durch Rißbildung im Brennstoff und chemische Reaktionen vergrößert. Daher muß bei der Brennstoffschwellung zwischen der eigentlichen Spaltproduktschwellung und der integralen geometrischen Schwellung unterschieden werden.

Zur Aufnahme der geometrischen Schwellung muß auch im Brennstoffbereich ein Leervolumenanteil vorhanden sein, der durch die Brennstoffporosität, den Fertigungsspalt Brennstoff/Hülle, eine zentrale Bohrung im Pellet oder auch durch "Dishing" (Einsenkung an den Tabletten-Stirnflächen) eingebracht werden kann. Der Leervolumenanteil im Brennstoffbereich wird durch die "Schmierdichte" charakterisiert. Diese Größe gibt das Verhältnis der vorhandenen mittleren Brennstoffdichte im Brennstab zur theoretisch erreichbaren Dichte an.

In Tab. 4.1 sind zwei typische Auslegungen eines Oxid- und eines Karbidbrennstabes gegenübergestellt. Die Auslegung von Testbrennstäben weicht z.T. erheblich von den Daten in Tab. 4.1 ab. Diese sind vor allem viel kürzer, weil die Testreaktoren viel kleinere Cores als Leistungsreaktoren haben.

Hüllmaterial	W.Nr. 1.4970 15% kv + ausgelagert	
Außendmr., mm	6,0	8,5
Hüllwandstärke, mm	0,38	0 , 55
Brennstoff	(U,Pu)0 ₂	(U,Pu)C
PuO ₂ -Gehalt, %	20	15
Brennstoffdichte, % TD	86	84
Brennstoffsäulenlänge, mm	950	850
Tablettendmr., mm	5,1	7,0
Diametrale Spaltweite, mm	0,14	0,5
Schmierdichte, % TD	* 8O	75
Gasplenumlänge, mm	650	540

Tabelle 4.1: Gegenüberstellung typischer Auslegungsdaten eines Oxidbrennstabes und eines Karbidbrennstabes

4.2 Stableistung und Hülltemperatur

Die maximale Stableistung wird in erster Linie durch die Anforderung begrenzt, daß der Brennstoff nicht anschmelzen darf (im zentralen, heißesten Bereich). Bei Berücksichtigung eines Sicherheitsspielraumes kann man mit Oxidbrennstäben bis zu 600 W/cm Leistung erzeugen, und bei Karbidbrennstäben sind wegen der hohen Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes, die im Bereich der von Metallen liegt, mehr als 2000 W/cm möglich. Gegenwärtig werden die Brennstäbe für Leistungsreaktoren für etwa 450 bzw. 1000 W/cm maximale Stableistung ausgelegt.

Die im Brennstab erzeugte Wärme wird an axial vorbeiströmendes Natrium abgegeben, das mit etwa 400 ^OC eintritt und sich auf etwa 600 ^OC aufheizt. Der Neutronenfluß ist in der Coremitte am größten und fällt in axialer Richtung cosinusförmig ab. Die axiale Leistungsverteilung, der Kühltmitteltemperaturverlauf und die Hüllinnentemperatur sind in Abb. 4.2 am Beispiel eines Bestrahlungsexperimentes im französischen Rapsodie-Versuchsreaktor dargestellt.

Im Laufe der Bestrahlung kommen Abweichungen der Stableistung und der Hülltemperatur von den stationären Sollwerten vor, und zwar sowohl innerhalb des normalen Betriebsablaufes als auch bei betrieblichen Störungen. Als Ursachen für Instationaritäten der Stableistung kommen in Frage:

- 1. betriebsbedingte Abschaltungen am Ende eines Betriebszyklus
- 2. Überschreiten der Soll-Leistung bis zum Ansprechen der Abschaltsysteme
- 3. Reaktorschnellabschaltungen bei Betriebsstörungen
- 4. Leistungszyklierbetrieb des Reaktors bei Anpassung an den Strombedarf
- 5. Vorübergehender Teillastbetrieb des Reaktors wegen Teilausfalles oder verminderter Belastbarkeit von Komponenten
- 6. Umladung oder Nachladung von Brennelementen.



Abb. 4.2: Axialer Stableistungs-, Kühlmitteltemperaturund Hüllinnentemperaturverlauf in einem experimentellen Brennstab (Rapsodie I).

Unter diesen Bedingungen kann die mechanische Wechselwirkung gegenüber einem stationären Leistungsbetrieb erheblich verstärkt werden. Dabei spielt die thermische Differenzdehnung zwischen Brennstoff und Hülle eine entscheidende Rolle⁺. Die SNR-Brennstäbe sollen daher so ausgelegt sein, daß eine für die gesamte Bestrahlungsdauer wahrscheinliche Anzahl der obengenannten Leistungsänderungsvorgänge ohne Stabschäden überstanden wird.

⁺⁾ Im Folgenden ist mit "thermische Differenzdehnung" immer diejenige zwischen Brennstoff und Hülle gemeint.

5. Experimentiereinrichtungen

Hinweise auf einen Zusammenhang von plastischer Hülldehnung und Instationarität des Bestrahlungsablaufes ergaben sich zunächst aus Testbestrahlungen in thermischen Versuchsreaktoren (s. auch Abschnitt 2). In diesen Reaktoren ist der Neutronenfluß größeren örtlichen und zeitlichen Schwankungen unterworfen als in Schnellen Reaktoren. Die Hüllaufweitungen wurden erst bei der Nachbestrahlungsuntersuchung ermittelt, so daß ein direkter experimenteller Nachweis einer Fließdehnung des Hüllrohres nach Leistungsrampen nicht erbracht werden konnte. Daher wurden eigene Experimente zur mechanischen Wechselwirkung durchgeführt, in denen Brennstabprüflinge unter Stableistungswechseln bestrahlt und zwischenzeitliche Durchmesserbestimmungen vorgenommen werden konnten.

Zur experimentellen Überprüfung der Modelle zur mechanischen Wechselwirkung ist eine möglichst genaue Kenntnis der Brennstoffkriech- und Schwelldaten unter stationären wie unter instationären Bedingungen erforderlich. Auch hierzu wurden besondere Messungen durchgeführt; und zwar wurde die Verformung von Oxid- und Karbidbrennstoff unter einachsiger Druckspannung kontinuierlich unter Bestrahlung gemessen, wobei die Druckspannung geändert werden konnte.

Die Messung von Längenänderungen einer Brennstoff-Tablettensäule wie auch der Hüllaufweitung eines Brennstabes unter Bestrahlung erfordert ein hochempfindliches Längenmeßsystem mit einem Auflösungsvermögen im µm-Bereich. Da die Längenmessung im Reaktor am Ort der Probe erfolgen muß, ist die Meßeinrichtung nach Experimentbeginn für den gesamten Meßzeitraum, der bis zu 10⁴ h betragen kann, nicht mehr zugänglich. Wegen der hohen Temperaturen in Bestrahlungskapseln (~200 ^OC) können keine elektronischen Bauteile wie Meßverstärker oder ähnliches eingebaut werden. Die Forderung nach hoher Meßgenauigkeit und dabei gleichzeitig einfachem Aufbau und geringer Störanfälligkeit konnten am besten mit der sogenannten Mikrowellen-Hohlraumresonanz-Meßmethode erfüllt werden. Diese Methode wurde in den CONFLUENT-Kriechkapseln zur Messung der Längenänderung von Brennstoffproben und in den VADIA-Kapseln bei der Messung von Hüllaufweitungen kleinerer Versuchsbrennstäbe angewendet.

Die Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen zum Ausbau und zur Präzisierung der Modellbeschreibung der mechanischen Wechselwirkung Brennstoff/Hülle werden erst in späteren Abschnitten an geeigneter Stelle dargestellt und diskutiert. Es erschien jedoch zweckmäßig, schon hier eine zusammenfassende Beschreibung der Experimentiereinrichtung zu geben.

5.1 Prinzip der Längenänderungsmessung mit Mikrowellen

Bei diesem Meßprinzip wird die Abhängigkeit der Resonanzfrequenz elektromagnetischer Wellen vom Volumen eines metallischen Hohlraumes ausgenutzt. Bei einem Hohlraumvolumen von einigen cm³ liegt die Resonanzfrequenz im GHz- oder Mikrowellenbereich.

Die Meßeinrichtung besteht aus einem Hohlzylinder, durch dessen eine Stirnseite ein Mikrowellensignal per Hohlleiter eingeleitet wird. Die zweite Stirnfläche ist beweglich als Kolben ausgeführt, der mit dem Meßobjekt fest verbunden ist. Eine Dimensionsänderung der Probe verschiebt den Kolben und ändert dadurch die Resonanzfrequenz des Hohlzylinders. Infolge der hohen Güte dieser Resonatorart ist die Resonanzlinie sehr scharf, so daß im Prinzip Längenänderungen von $\Delta L = L_0 \cdot 2 \cdot 10^{-6}$ (L_0 : Höhe des Hohlzylinders) gemessen werden können /26/. Die Hohlzylinder in den VADIA- und CONFLUENT-Bestrahlungskapseln haben eine Höhe von 27 mm, womit im Prinzip eine Auflösung von 60 nm erreichbar wäre. Die entsprechende Meßunsicherheit ist gegenüber anderen Störungseinflüssen (wie thermischen Dehnungen des Kolbens, Meßzylinders und Übertragungsgestänges) vernachlässigbar.

Das Meßverfahren ist in Abb. 5.1 schematisch dargestellt:

-21-



Abb. 5.1: Anordnung zur Messung sehr kleiner Längenänderungen im Reaktor nach dem Prinzip der Mikrowellen-Hohlraumresonanzmethode

Ein Klystron erzeugt ein "gewobbeltes" (d.h. frequenzmoduliertes) Mikrowellensignal mit einer Mittenfrequenz in der Nähe der Hohlraum-Resonanzfrequenz. Dieses Signal gelangt über einen Rechteckhohlleiter in die Bestrahlungskapsel im Reaktor R. Der Stempel des Resonanzhohlraumes P der Meßeinheit ist mit der Probe Q verbunden. Entsprechend der Kolbenstellung wird im Resonator ein schmales Frequenzband des eingeleiteten Frequenzspektrums absorbiert (kurzgeschlossen). Der zeitliche Verlauf des Mikrowellensignals wird mit dem Detektorkristall O gemessen, dessen Ausgangssignal an einen Y-Eingang eines Zweistrahloszillographen L gelegt wird. Die Zeitablenkung des Oszillographen wird mit der Wobbelfrequenz des Klystrons gesteuert. Damit wird der Intensitäts-Frequenzverlauf des Signals mit der scharfen Absorptionsstelle graphisch dargestellt (siehe die herausgezeichnete Vergrößerung). Das Klystron-Signal wird gleichzeitig in einen Referenzhohlraum J geleitet, der mit P baugleich ist. Dessen Absorption wird mit dem zweiten Y-Kanal des Oszillographen sichtbar gemacht. Der Kolben dieses Referenzhohlraumes ist mit einer Mikrometerschraube verbunden, an der die Kolbenstellung auf <u>+</u> 1 µm genau abgelesen werden kann. Die beiden Absorptionsstellen auf dem Oszillographenschirm werden durch Verdrehen der Mikrometerschraube zur Deckung gebracht. Jede Verschiebung des Kolbens in P wird durch eine gleich große Verschiebung in J nachgefahren, deren Betrag an der Mikrometerschraube abgelesen werden kann.

Durch die Verwendung eines Referenzhohlraumes entfällt die sonst notwendige Kalibrierung des Meßhohlraumes. Weiterhin stellt dieses Verfahren eine Nullmethode dar, die große Meßgenauigkeiten ermöglicht. Die Genauigkeit der Längenänderungsmessung ist durch das Mikrometer bestimmt und liegt damit bei $\pm 2 \mu m / 26/$. Damit wird das Potential der Mikrowellenmeßmethode bei weitem nicht ausgeschöpft; allerdings ist die Genauigkeit ausreichend, da schon durch Temperaturänderungen in der Kapsel Längenänderungen dieser Größenordnung auftreten können. Der Vorteil dieser Methode liegt vor allem darin, daß sich in der unzugänglichen Kapsel nur mechanische Teile befinden, während die kompliziertere und empfindlichere Elektronik außerhalb des Reaktors installiert ist und dort einfach gewartet bzw. repariert werden kann.

5.2 Die instrumentierten Bestrahlungskapseln VADIA und CONFLUENT

Die Bestrahlungskapseln der Typen VADIA und CONFLUENT wurden vom CEN Grenoble im Auftrag des Kernforschungszentrums Karlsruhe für Bestrahlungsexperimente im thermischen Versuchsreaktor BR-2 in Mol, Belgien gebaut. Der Kapseltyp CONFLUENT ist eine Konstruktion für Kriechmessungen über die Längenänderung einer Brennstoffprobe. Mit den VADIA-Kapseln kann dagegen die Durchmesseränderung kurzer Brennstabprüflinge gemessen werden /26,27/.
5.2.1 Die CONFLUENT-Kapsel

Die Brennstoffprobe in der CONFLUENT-Kapsel besteht aus schichtweise abwechselnden Brennstoff- und Molybdänringen, die auf ein Stahlröhrchen gefädelt sind (Abb. 5.3). Das zentrale Führungsrohr und ein Mo-Zwischenring sind mit einem Thermoelement versehen. Die Probe steht in der Kapsel in stagnierendem NaK-Flüssigmetall (Abb. 5.4). Die Molybdänzwischenringe dienen einmal zum Temperaturausgleich innerhalb des Brennstoff-Tablettenstapels und verhindern zum anderen ein Zerbröckeln des Brennstoffes. Die Brennstofftemperaturverteilung in derartigen Brennstoffproben unter Bestrahlung wurde ausführlich von Brucklacher /28/ untersucht.



Abb. 5.3: Brennstoffkriechprobe in der CONFLUENT-Kapsel, schematisch



Abb. 5.4: Aufbau der CONFLUENT-Kapsel, schematisch

Die Druckspannung im Brennstoff wird über ein pneumatisches, zweistufiges Druckkammersystem mit Faltenbälgen aus nichtrostendem CrNi-Stahl aufgebracht. Sie beträgt maximal 50 MPa. Die Druckkammern werden durch Gaszufuhr von außen belastet, maximal mit 80 bar Gasdruck. Zur Entlastung des Faltenbalges ist die erste Druckkammer von einer zweiten umgeben, in der der Überdruck gerade halb so groß ist. Der unterste Molybdänring ist starr mit dem Zylinder des Meßhohlraumes verbunden, der oberste mit seinem Kolben. Die Kapsel ist außen doppelwandig ausgeführt. In den zwischenliegenden Gasspalt können Gase unterschiedlicher Wärmeleitfähigkeit (He, Ne, N₂) eingeleitet und damit die Temperaturdifferenz zwischen dem Reaktorkühlwasser und dem NaK in der Kapsel um 30% verändert werden.

5.2.2 Die VADIA-Kapsel

Der Aufbau der VADIA-Kapsel (Abb. 5.5) entspricht im Hinblick auf das Meßsystem und die Temperaturregelung der CONFLUENT-Kapsel. Das Prinzip der Hülldurchmesserbestimmung verdeutlicht Abb. 5.6, ursprünglich von Masson /26/.

Auf einer Referenzebene liegen 3 Kugeln, die von einem Tastkonus gegen das Hüllrohr einer kleinen Brennstabprobe gedrückt werden. Entsprechend den Hülldurchmesseränderungen kann der Tastkonus unterschiedlich weit abgesenkt werden. Durch die Wahl des Öffnungswinkels des Tastkonus wird eine Durchmesseränderung ($\Delta\theta$) des Prüflings in eine gleichgroße axiale Verschiebung des Tastkonus Δ L umgewandelt. Um thermische Dehnungen des Meßgestänges zu eliminieren, befindet sich ein weiterer Anschlag für die Außenseite des Tastkonus in der Kapsel. Die Taststrecke L zwischen der oberen und unteren Tastposition ist dann unabhängig von thermischen Dehnungen des Meßgestänges, während die Durchmesseränderungen des Prüflings voll in L eingehen.

-25-



Abb. 5.5: Aufbau der VADIA-Kapsel zur Messung von Hüllaufweitungen (aus /27/)



Abb. 5.6: Umsetzung der radialen Hülldehnung in eine gleichgroße axiale Bewegung. A0: Hülldurchmesseränderung, L: Taststrecke, AL: Änderung der Taststrecke (aus /26/).

Die Kapsel mit Brennstabprüfling und Meßsystem ist hydraulisch um 300 mm axial aus dem Neutronenflumaximum des Reaktorcores verschiebbar. Dadurch kann die Stableistung des Prüflings von etwa 500 W/cm auf 300 W/cm abgesenkt werden. Der Gasspalt ist so ausgelegt, daß die Hüllaußentemperatur bei 350 W/cm und 500 W/cm gleich ist, wenn bei der niedrigen Stableistung N₂ und bei der hohen He eingeleitet wird.

Die Temperaturen in der Kapsel können über 8 Thermoelemente kontrolliert werden. Die Stableistung und die Hülltemperatur wurden aus den Thermoelementtemperaturen berechnet, wobei die Resultate einer 2-dimensionalen Wärmedurchgangsrechnung für die Kapsel verwendet werden /29/. Eine genaue Bestimmung der absoluten Stableistung ist erst nach Abschluß des Experiments nach einer radiochemischen Abbrandanalyse des Brennstoffes möglich. Da in den VADIA-Experimenten in erster Linie die relativen Stableistungsänderungen interessieren, wurde auf zusätzliche Meßeinrichtungen für eine genauere Leistungsbestimmung verzichtet.

5.3 Das Helium-Zentralloop im FR 2-Reaktor

Im thermischen Versuchsreaktor FR2 (Karlsruhe) bestand im Heliumzentralloop eine Experimentiermöglichkeit für Stableistungswechselversuche mit der Möglichkeit von Zwischenvermessungen des Durchmessers von Brennstabprüflingen. Dieses Loop (Abb. 5.7) befand sich in der Mitte des FR 2-Cores. Die Brennstäbe wurden von unten eingefahren, dabei hing die Stableistung von der Einfahrtiefe ab. Die Prüflingsleistung wurde über strömendes Helium abgeführt. Durch eine Regelung des Kühlmittelstromes und -druckes konnte die Hülltemperatur in weiten Bereichen unabhängig von der Prüflingsleistung eingestellt werden. Der Prüfling (Abb. 5.8) konnte während des Reaktorbetriebes beliebig aus dem Core gefahren und mit einer fernbedienten Apparatur vermessen werden.

-27-



Abb. 5.7: Helium-Zentralloop im FR 2 für Kurzzeit-Bestrahlungsexperimente



Abb. 5.8: Brennstabprüfling aus der FR 2-Loop-Versuchsgruppe 5. Erkennbar ist eines der Thermoelemente zur Messung der Hülltemperatur.

Bei der Durchmesser-Vermessung wird der Prüfling zwischen zwei Meßtaster gefahren, deren Verlagerung mit induktiven Wegaufnehmern gemessen wird. Der Brennstab-Prüfling kann um seine Längsachse gedreht werden. Bei jeder Vermessung des Prüflings wird der Durchmesser in Abhängigkeit vom Azimut alle 45° gemessen, in Abhängigkeit von der Prüflingshöhe alle 3 mm. Zusätzlich wird auf jeder Höhenposition die Ovalität des Prüflings durch Verdrehen bei anliegenden Tastern bestimmt. Wegen des kurzen zeitlichen Abstandes von Bestrahlung und Vermessung ist die Prüflingstemperatur durch die Nachzerfalls-Leistung des Prüflinges und die fehlende Kühlung ziemlich hoch und kann bis zu 200 ^OC betragen. Daher muß nach jeder Vermessung eine Temperaturkorrektur vorgenommen werden. Die Apparatur wird vor jeder Vermessung mit Hilfe eines Meisterbolzens (Längennormal), dessen Durchmesser gleich dem nominalen Hülldurchmesser ist, kalibriert. Die Meßgenauigkeit der Apparatur ist mit + 2 µm angegeben.

Die Bestrahlungseinrichtung erlaubte weiterhin große Änderungen der Stableistungsänderungsgeschwindigkeit beim Ein- und Ausfahren.

6. <u>Beschreibung eines Rechenmodelles zur Hülldehnung durch</u> mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle

Ziel aller Rechencodes in der Brennstab-Modelltheorie ist es, ausgehend von der Brennstabgeometrie, den Materialeigenschaften und den Bestrahlungsbedingungen, den Hüll- und Brennstoffzustand, die Spannungsverteilung und die resultierenden Deformationen als Funktion der Bestrahlungsdauer zu berechnen. Das im folgenden beschriebene Modell dient in erster Linie der Berechnung von Hülldehnungen durch mechanische Wechselwirkung, die durch den Festkörperdruck des Brennstoffs auf das Hüllrohr verursacht werden. Da jedoch auch Vorgänge wie z.B. die Hüllschwellung im schnellen Neutronenfluß oder das Hüllkriechen unter Spaltgasdruck die mechanische Wechselwirkung beeinflussen können, muß der Rechencode auch eine Beschreibung sekundärer Vorgänge enthalten. Der Umfang des Modells und des resultierenden Rechenprogrammes wird für das Brennstabverhalten durch eine Zahl von Voraussetzungen und Vereinfachungen erheblich reduziert:

- Es werden nur die radialen Verteilungen von Temperatur, Spannung und Dehnung unter Annahme von Rotations- und Axialsymmetrie (bezüglich kleiner Δz) in einer r,0-Ebene eines Brennstabes berechnet (1-dimensionales Modell).
- Lokale Effekte wie die Spannungsverteilung an Rißspitzen, Cäsium-Akkumulation etc. werden vernachlässigt.
- 3. Die r,θ-Ebene im Brennstab wird nur in drei Zonen unterteilt, die sich mechanisch in starkem Maße unterschiedlich verhalten:
 - a) das Hüllrohr, elastisch und plastisch verformbar
 - b) ein äußerer, tragender Brennstoffring der elastich und durch Brennstoff-Bestrahlungskriechen plastisch verformbar ist

 c) ein heißer, völlig plastifizierter innerer Brennstoffbereich, der als spannungsfrei angenommen wird.
 Die Grenze zwischen den beiden Brennstoffzonen bildet die Isotherme einer charakteristischen Temperatur, der Plastizitätstemperatur T_{pl}. Diese Temperatur liegt in der Nähe der halben Schmelztemperatur des Brennstoffes, für Oxidbrennstoff etwa 1550 K. Diese Vereinfachung wird z.B. durch die SATURN-Ergebnisse gerechtfertigt (siehe Abschnitt 3).

- 4. Die temperaturabhängigen Materialeigenschaftswerte werden im tragenden Brennstoffring und im Hüllrohr jeweils konstant angenommen und als Funktion einer Bezugstemperatur berechnet. Als Bezugstemperatur werden die Hüllmittentemperatur und eine mit dem Volumenanteil gewichtete mittlere Brennstofftemperatur im tragenden Brennstoffring eingesetzt.
- 5. Die durch das Temperaturgefälle im Hüllrohr verursachten Eigenspannungen werden vernachlässigt.
- Die mechanischen und thermischen Daten sind quasistationär, d.h. zeitunabhängig innerhalb eines begrenzten Zeitintervalls.
- 7. Für die Berechnung des mechanischen Verhaltens wird die Näherung des ebenen Dehnungszustandes angewendet. Diese Näherung gilt für den Grenzfall eines unendlich langen Zylinders und ist für die Brennstäbe mit Brennstoffpellets der üblichen Geometrie gerechtfertigt /30/. Die Konsequenzen dieser Näherung werden z.B. in /24,31/ diskutiert.
- 8. Die Berechnung von Verformungen in einem Zeitschritt erfolgt unter der Annahme konstanter Spannungen mit den Werten, die am Ende des vorhergehenden Zeitschrittes berechnet wurden.



Abb. 6.1: Dreizonenmodell des Brennstabes

Das Hüllrohr wird entweder durch den Spaltgasdruck oder durch Brennstoff-Festkörperdruck belastet. Abb. 6.2 veranschaulicht beide Fälle. Bei offenem Spalt zwischen Brennstoff und Hülle wird der Brennstoff spannungsfrei angenommen. Die Hüllrohrspannungen werden für die Randbedingungen: Rohrinnendruck = Spaltgasdruck P_g^+ und Außendruck = Kühlmitteldruck P_N berechnet. Bei geschlossenem Spalt gilt: Hüllrohr-Innendruck = Außendruck auf den Brennstoffring = Kontaktdruck P_c . Die plastische Brennstoffzone überträgt den Spaltgasdruck als hydrostatischen Druck auf den inneren Rand des tragenden Brennstoffringes.

⁺⁾Die Bedeutung und die Maßeinheiten der Abkürzungen ist der vorausgehenden Nomenklaturliste zu entnehmen.



Abb. 6.2: Fälle unterschiedlicher Druckbelastung für das Hüllrohr.

6.1 <u>Berechnung der zeitabhängigen Größen bei stationären</u> Bestrahlungsbedingungen

Das Rechenmodell benötigt die Eingabegrößen Stableistung _X, Hüllaußentemperatur T_{Ha}, das Verhältnis von schneller Neutronendosis zum Abbrand und die Dauer des Bestrahlungsintervalles (z.B. ein Reaktorzyklus). Dieses Intervall wird vom Programm in eine große Anzahl kürzerer Schritte unterteilt.

Aus der Stableistung wird zunächst die Spaltungsrate im Brennstoff R berechnet

$$\dot{R} = \chi / (\pi \cdot (r_a^2 - r_z^2) \cdot E_{sp})$$
 (6.1.1)

Als Spaltungsenergie⁺ wird für Plutonium ein Wert von 3,20·10⁻¹¹ J/Spaltung ≜ 200 MeV/Spaltung eingesetzt /32/. Hieraus ergibt sich die Abbrandgeschwindigkeit nach Division durch die Schwermetalldichte:

$$\dot{A} = R/N_0 = R \cdot AG/(\rho_0 \cdot (1-P) \cdot N_T)$$
 (6.1.2)

mit Bedeutung AG = 238,2 g/mol, ρ_0 = 11,0 bzw. 13,6 g/cm³ für Oxid- bzw. Karbidbrennstoff.

Zur Berechnung der Spaltgasdruckerhöhung wird die Gasfreisetzung im Rechenintervall bestimmt. Zugrunde gelegt wird meistens eine Ausbeute von 0,25 Gasatomen/Spaltung im schnellen Neutronenfluß und 0,3 im thermischen bei einem Freisetzungsgrad von 90% für Oxidbrennstoff, der im Hinblick auf die Verhältnisse bei hohem Abbrand gewählt wurde (Karbid: 40% bei Helium-Bindung). Die Gaserzeugungsrate wird nach der Beziehung:

$$N_g$$
 = Ausbeute x Freisetzung $\cdot \dot{R} \cdot V_B \cdot FR \cdot FF$ (6.1.3)

 $(V_B = Brennstoffvolumen, FF = Flußformfaktor, FR = Verhältnis$ lokaler zu maximaler Stableistung) berechnet und über die Zustandsgleichung für ideale Gase in eine entsprechende Druckerhöhungsgeschwindigkeit umgerechnet:

$$\dot{P}_{g} = N_{g} \cdot k \cdot T_{g}/V_{g}$$
(6.1.4)

 $(V_g = Plenum + Zentralkanalvolumen, T_g = Spaltgastemperatur, k = Boltzmannkonstante).$

Da die Hüllmaterialeigenschaften von der schnellen Neutronendosis abhängen, wird der schnelle Fluß aus den Eingabegrößen berechnet:

 $\Phi_{\rm s} = RDA \cdot A$ (6.1.5)

⁺⁾E_{sp} bedeutet nicht die Energie, die je Spaltung erzeugt wird, sondern diejenige, die im Brennstoff eines Reaktorkerns in thermische Energie umgewandelt wird. In Oxidbrennstäben erfolgt unter Bestrahlung eine schnelle Umstrukturierung des Brennstoffes. Durch Porenwanderung im radialen Temperaturgradienten und bestrahlungsbedingter Nachsinterung verdichtet sich der Brennstoff unter gleichzeitiger Ausbildung eines Zentralkanals. Diese Umstrukturierung ist bei konstanter Stableistung nach einigen 0,1% Abbrand abgeschlossen. Im Modell wird daher die Größe des Zentralkanals nach einer empirischen Formel als Funktion der Brennstoff-Schmierdichte und der Stableistung zeitunabhängig berechnet:

 $V_z/V_0 = 0,0011 \cdot \chi^* - 0,295$ (6.1.6)

mit V_z = Zentralkanalvolumen, V_O = Gesamt-Leervolumen, $\chi^* = \chi/(1-2\cdot P)$.

Diese Formel wurde entsprechend einer Arbeit von Bramman und Powell /33/ nach einer Parametrisierung eigener, aus Schliffbildanalysen gewonnener Daten erhalten. Der Gültigkeitsbereich liegt zwischen χ^* = 400 W/cm und 1000 W/cm.

Die Restporosität des Brennstoffes, die die Wärmeleitfähigkeit und die Bestrahlungskriechgeschwindigkeit stark beeinflußt, wird als homogen verteilt angenommen, ebenso die Spaltstoffverteilung, so daß im schnellen Neutronenfluß die Wärmequelldichte konstant und im thermischen Fluß nur durch die Neutronenflußdepression durch Selbstabschirmung des Brennstoffes beeinflußt wird. Die Neutronenflußdepression wird im Modell bei der Berechnung von Temperaturprofilen im thermischen Fluß als Eingabegröße behandelt.

Im Karbidbrennstoff erfolgt keine Umstrukturierung. Die Brennstoffporosiät verringert sich durch bestrahlungsinduzierte Nachsinterung. Dieser Vorgang führt zu einer entsprechenden Schrumpfung des Brennstoffpellets. Die Nachsinterung wird in Anlehnung an entsprechende Angaben für Oxidbrennstoff durch die folgende Beziehung beschrieben:

$$P = P_0/2 \cdot (1 + \exp(-A/A_0))$$
 (6.1.7)

Die Geschwindigkeit der Verdichtung wird durch die Konstante A_O bestimmt, die im Modell mit 0,04 Spaltungen/Schw.Atom angenommen wird. Dieser Wert ist ungefähr 10 mal so hoch wie der für die Nachsinterung von Oxidbrennstoff, womit den im Vergleich zum Oxid etwa 10 mal geringeren Werten der Bestrahlungsdiffusion und des Bestrahlungskriechens von Karbidbrennstoff Rechnung getragen wird. Zusammenfassend ergibt sich folgende Beziehung für die lineare Schrumpfungsgeschwindigkeit von Karbidbrennstoff infolge bestrahlungsinduzierter Nachsinterung:

$$\epsilon = P_0 \cdot A/(6 \cdot A_0) \cdot \exp(-A/A_0)$$
 (6.1.8)

Die Nachsinterung von Oxidbrennstoff läuft wesentlich rascher ab, wird jedoch durch die erhöhte geometrische Schwellrate des Oxidbrennstoffs bis zum Schließen des Fertigungsspaltes überdeckt (siehe Abschnitt 6.2.3) und daher nicht im Modell berücksichtigt.

Die Brennstoffschwellung im starren Außenbereich wird temperaturunabhängig als lineare Funktion des Abbrands angenommen:

$$\dot{\varepsilon}_{s} = C \cdot \dot{A}$$
 (6.1.9)

Die Konstante C ist die Schwellrate in Volumen-% je % Abbrand. Die verwendeten C-Werte sind im Anhang aufgeführt.

Am Ende eines Zeitschrittes wird die Zunahme der zeitabhängigen Größen aus dem Produkt ihrer Änderungsgeschwindigkeiten und der Zeitintervalldauer berechnet.

6.2 <u>Berechnung der Einflußgrößen für die mechanische Wechsel-</u> wirkung zwischen Brennstoff und Hülle

Die mechanische Wechselwirkung wird durch die differentielle Ausdehnung von Brennstoff und Hülle bestimmt. Als ursächlich unterschiedliche Ausdehnungsmechanismen werden berücksichtigt:

- 1. Thermische Ausdehnung
- 2. Stationäre Schwellung unter Bestrahlung
- 3. Hüllkriechen unter Spaltgas- bzw. Festkörperdruck
- 4. Brennstoffkriechen unter Festkörperdruck
- 5. Brennstoff-Heißpressen auf Grund bestrahlungsinduzierter Brennstoffplastizität
- 6. Bestrahlungsbedingte Nachsinterung von Karbidbrennstoff
- 7. Hüllrohr-Fließdehnungen
- 8. Riß-Rast-Mechanismen im Brennstoff durch partielle Rißblockade bei Abschalt- und Anfahrvorgängen
- 9. Instationäres Schwellen und Kriechen des Brennstoffes bei einer Spannungsänderung.

Die Beschreibung der differentiellen Dehnung erfordert zunächst die Berechnung der Temperaturverteilung im Brennstab, weil hierdurch die thermischen Dehnungen, die Materialeigenschaften und die Größe des starren, äußeren Brennstoffringes bestimmt werden.

6.2.1 <u>Die Berechnung der radialen Temperaturverteilung im</u> <u>Brennstab</u>

Betrachtet wird eine r,0-Ebene eines Brennstabes mit vorgegebener Hüllaußentemperatur und Stableistung. Bei Rotationssymmetrie wird die stationäre radiale Temperaturverteilung durch die Differentialgleichung

 $\frac{1}{r} \quad \frac{d}{dr} (r \cdot \lambda \cdot \frac{dT}{dr}) + q = 0 \qquad (6.2.1)$

bestimmt. Im thermischen Neutronenfluß hängt die Wärmequelldichte q im Brennstoff vom Radius r ab. Die Wärmeleitfähgikeiten λ in Brennstoff und Hüllrohr sind temperaturabhängig. Dies bedeutet, daß eine exakte Lösung der Wärmeleitungsgleichung nur iterativ erfolgen kann in dem Sinne, daß eine Temperaturberechnung zunächst mit Näherungswerten für die Wärmeleitfähigkeit durchgeführt wird, diese danach neu berechnet werden und anschließend eine erneute Temperaturberechnung erfolgt. Dieses wird solange wiederholt, bis die Änderungen in der Temperaturverteilung unterhalb einer sinnvollen Schranke liegen. Weiter kompliziert wird die Temperaturberechnung im Brennstab durch den Wärmeübergang zwischen Brennstoff und Hüllrohr, der von der Größe des Spaltes zwischen den Oberflächen bzw. vom Kontaktdruck abhängt. Das hat zur Folge, daß nach jedem Iterationsschritt der Temperaturberechnung jeweils eine thermomechanische Berechnung des Wärmeüberganges im Spalt erfolgen muß.

Diese Rechnungen können überhaupt nur mit numerischen Verfahren ausgeführt werden, wobei der Rechenaufwand einerseits stark mit der geforderten Rechengenauigkeit sowie andererseits mit der Anzahl der berücksichtigten Einflußgrößen ansteigt. Der Aufwand für eine Temperaturberechnung läßt sich am einfachsten verringern, indem man Iterationen vermeidet und Näherungslösungen, die auf einige K genau sind, zuläßt. Die gewünschte Genauigkeit kann durch eine enge Diskretisierung bei der numerischen Berechnung erreicht werden. Bei der Beschränkung auf nur eine Dimension , r, bleibt der Rechenzeit- und Speicherplatzbedarf der Computer vergleichsweise gering.

Die Temperaturberechnung_Rerfolgt schrittweise von außen nach innen. Wendet man $\cdot 2\pi r \int dr$ auf Gleichung 6.2.1 an ergibt sich: r_z

Die linke Seite der Gleichung stellt die in einer Ringzone im Brennstoff mit Außenradius R und dem Zentralkanalradius r_z als Innenradius erzeugte Wärmeleistung dar. Am Zentralkanal ist der Wärmestrom O, so daß für $r=r_z$ der Temperaturgradient verschwindet und die Klammer auf der rechten Seite O wird.

 T_{Ha} sei die vorgegebene Hüllaußentemperatur und χ die Stablängenleistung. Weiter wird angenommen, daß die Wärmeproduktion nur im Brennstoff erfolgt, d.h. die γ -Leistung im Hüllrohr wird vernachlässigt. Damit ergibt Gleichung 6.2.2 für die Temperatur im Hüllrohr:

$$-2\pi R \cdot \lambda(T) \cdot dT/dR = \chi \qquad (r_{Ha} \ge R \ge r_{Hi})$$

Diese Gleichung läßt sich bei konstantem λ unmittelbar integrieren

$$T(R) = T_{Ha} + \frac{\chi}{2\pi\lambda_{H}} \ln r_{Ha}/R \qquad (6.2.3)$$

Die Wärmeleitfähigkeit der Hüllrohrmaterialien $\lambda_{\rm H}$ liegt im Temperaturbereich zwischen 400 und 650 ^OC bei 0,2-0,5 W/cm K. Bei einem SNR-Brennstab beträgt r_{Ha} z.B. 0,3 cm, r_{Hi} = 0,26 cm. Damit ergibt sich ein Temperatursprung in der Hülle von 0,1 K pro W/cm Stableistung. Die mittlere Hülltemperatur beträgt somit ${}^{\approx}T_{\rm Ha}$ + 0,05 χ , und diese wird als Referenztemperatur T_{Hm} für die Wärmeleitfähigkeit eingesetzt. Damit ergibt sich die Hüllinnentemperatur T_{Hi} zu

$$T_{Hi} = T_{Ha} + (\chi \cdot \ln r_{Ha}/r_{Hi})/2\pi\lambda_{H,T_{Hm}}$$
(6.2.4)

Die Brennstoffrandtemperatur wird aus der Hüllinnentemperatur und dem Wärmeübergang im Spalt berechnet. Als Standardwert für den Wärmeübergangskoeffizienten h wird 1 W/cm² K verwendet. Dieser Wert ist typisch für den Fall, daß Brennstoff und Hülle in Kontakt stehen. Bei sehr hohen Kontaktdrücken kann sich dieser Wert bis auf 1,5 W/cm² K erhöhen.

 $T_{Ba} = T_{Hi} + \chi/(2\pi \cdot r_{Hi} \cdot h)$ (6.2.5)

Bei χ = 400 W/cm und r_{Hi} = 0,26 cm beträgt der Temperaturabfall im Spalt 245 K.Zur Berechnung der Temperaturverteilung im Brennstoff wird der Querschnitt in eine Anzahl von N konzentrischen Ringen der Stärke Δr zerlegt:

$$\Delta r = (r_{Ba} - r_{7})/N \tag{6.2.6}$$

(r_{Ba}: Brennstoffpellet-Außenradius, r_z: Zentralkanalradius).

Innerhalb eines solchen Ringes wird eine konstante Wärmequelldichte und Wärmeleitfähigkeit angenommen. Im Falle thermischer Neutronenbestrahlung darf die Neutronenflußdepression, die eine Abnahme der Spaltungsdichte im Brennstoffinneren zur Folge hat, nicht vernachlässigt werden. Die radiale Neutronenflußverteilung und damit die Wärmequelldichte wird dann durch Besselfunktionen beschrieben. Dieser Verlauf kann auch mit guter Genauigkeit durch eine Funktion der Form $q(r) = q_0 \cdot (C_1 + C_2 \cdot r^3)$ angenähert werden. Dabei ist $q_0 = \chi/(\pi \cdot (r_{Ba}^2 - r_z^2))$ die mittlere spezifische Brennstoffleistung. r_i sei der mittlere Radius des i-ten Brennstoffringes:

$$r_i = r_z + (N-i + 0,5) \cdot \Delta r$$
 (6.2.7)

wobei von außen nach innen gezählt wird, und $q_i = q_0 \cdot (C_1 + C_2 r_i^3)$ = $q_0 \cdot f_i$ die entsprechende mittlere Wärmequelldichte. Durch die Einteilung in Ringzonen mit konstanten Materialparametern läßt sich das Integral in Gleichung 6.2.2 durch eine Summe ersetzen, womit sich für r = r_{Ba} die Stableistung ergibt:

$$\chi = \sum_{i} 2\pi r_{i} q_{i} \cdot \Delta r_{i} \qquad (6.2.8)$$

Wenn man sich durch eine neutronenphysikalische Nebenrechnung den Wert für C₁ (das ist bei einem Vollpellet das Verhältnis von Brennstoffleistung in der Brennstabmitte zur mittleren Leistung) verschafft, erhält man C₂ aus der Bedingung:

$$2\pi q_0 \Sigma r_i \cdot \Delta r = 2\pi \Sigma q_i r_i \Delta r = 2\pi \Sigma q_0 (C_1 + C_2 r_i^3) \cdot r_i \cdot \Delta r$$
$$zu C_2 = (1 - C_1) \cdot \Sigma r_i / (\Sigma r_i^4)$$
(6.2.9)

Der mittlere Wärmestrom Q_i durch den i-ten Brennstoffring ist gleich der Summe der in den weiter innen liegenden Ringen und der Hälfte der im i-ten Ring selbst produzierten Wärme:

$$Q_{i} = ((\Sigma r_{j} \cdot q_{0} \cdot f_{j}) + 1/2 q_{0} \cdot r_{i} \cdot f_{i}) \cdot 2\pi \Delta r$$

Der Temperaturgradient dT/dr auf der rechten Seite der Gleichung 6.2.2 wird durch den Differenzenquotienten AT/Ar angenähert. Damit kann man nun die Temperaturzunahme im i-ten Brennstoffring berechnen:

$$\Delta T_{i} = Q_{i} \cdot \Delta r / (2\pi \cdot r_{i} \cdot \lambda_{B} (\overline{T_{i}})) \qquad (6.2.10)$$

 $\lambda_{B}(\overline{T_{i}})$ ist die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes bei der mittleren Temperatur im i-ten Ring. Bei ausreichend kleiner Ringstärke kann $\lambda(\overline{T_{i}})$ ohne großen Fehler gleich $\lambda(T_{i})$ gesetzt werden (mit T, als der Temperatur am äußeren Rand des Brennstoffringes).

Ausgehend von der Randtemperatur des ersten Brennstoffringes T_{Ba} werden durch sukzessive Anwendung von Gleichung 6.2.10 die Temperaturen an den Rändern der Ringzonen berechnet. Die letzte sich ergebende Temperatur ist die Brennstoff-Zentraltemperatur T_{z} .

Dieses Berechnungsverfahren der Temperaturverteilung soll am Beispiel eines Oxidbrennstabes mit 6,0 mm Außendurchmesser bei einer Hüllaußentemperatur von 600 ^OC und 450 W/cm Stableistung demonstriert werden. Die Hüllwandstärke betrage 0,38 mm und der Spalt zwischen Brennstoff und Hüllrohr sei geschlossen; somit beträgt der Brennstoff-Außenradius 0,262 cm. Der Zentralkanalradius und die Restporosität des Brennstoffs werden zu 0,05 cm bzw. 7% angenommen. Bei Bestrahlung im thermischen Neutronenfluß beträgt die relative Wärmequelldichte am Zentralkanal $q(r_{r_{2}})/q_{O}$ bei 15% Spaltstoffanreicherung etwa 0,8. Bei einer Anzahl der Brennstoffringe von N = 50 ergibt sich nach Gleichung 6.2. C_2 zu 25,5 und die mittlere Wärmequelldichte $q_0 = \chi / (\pi (r_{Ba}^2 - r_z^2)) zu$ 2165 W/cm³. Bei der Rechnung wird $T_{Ba} = 880$ °C gesetzt (entsprechend der Beispielsrechnung auf Seite 42). In Gleichung 6.2 wird die Brennstoffwärmeleitfähigkeit entsprechend der Beziehung im Anhang (A.1.1) für ein O/M-Verhältnis von 1,97 eingesetzt. Den errechneten Temperaturverlauf zeigt die Abb. 6.3.



Abb. 6.3: Temperaturprofil in einem Oxidbrennstab bei 450 W/cm Stableistung und 600 $^{\circ}$ C Hüllaußentemperatur im thermischen Neutronenfluß. q(r)/q₀ ist die relative radiale Wärmequelldichteverteilung, die aus den Neutronenflußdepression im Brennstoff resultiert (Spaltstoffgehalt 15% Pu).

Die Brennstoffzentraltemperatur erreicht den Wert von 2270 $^{\circ}$ C. Die Auswirkung der Neutronenflußabsenkung auf den Temperaturverlauf verdeutlicht eine Vergleichsrechnung mit q(r) = q₀ = const. In Abb. 6.4 sind die Temperaturprofile für beide Fälle gegenübergestellt. Bei konstanter Wärmequelldichte (\triangleq schneller' Neutronenfluß) liegt die Zentraltemperatur bei 2410 $^{\circ}$ C. Bis zu T_{pl} = 1500 $^{\circ}$ C wäre die Größe der starren Brennstoffzone praktisch gleich.



Abb. 6.4: Radialer Temperaturverlauf in einem Oxidbrennstab mit (-----) und ohne (.-.--) Neutronenflußabsenkung durch Selbstabschirmung des Brennstoffes. ($q(r_z) = 0,8 \cdot q_0$ bzw. $q(r_z) = q_0; \chi = 450$ W/cm; P = 7%; Pu/U+Pu = 0,15)

In Karbidbrennstäben ist der Temperaturanstieg wegen der ca. 8-fachen Wärmeleitfähigkeit des Karbidbrennstoffes wesentlich geringer als bei Oxidbrennstoff. Wegen der durchweg größeren Stabdurchmesser und der größeren (U+Pu)-Dichte ist die Neutronenflußabsenkung viel höher. Bei einem Pelletdurchmesser von 7,0 mm und 15% Spaltstoffgehalt beträgt das Verhältnis $q(r=0)/q_0$ etwa 0,45. Eine Temperaturberechnung für einen Karbidbrennstab mit 8 mm Stabdurchmesser, 0,5 mm Hüllwandstärke und 10% Brennstoffporosität ergibt für die Bedingungen $\chi = 900$ W/cm, $T_{Ha} = 600$ °C die in Abb. 6.5 wiedergegebenen Temperaturverläufe. Der Wärmeübergangskoeffizient h wurde für Karbidbrennstoff zu 2 W/cm² K angenommen. Ohne Flußabsenkung beträgt die Zentraltemperatur 1384 °C, mit Flußabsenkung dagegen nur 1219 °C. Bei einer Randtemperatur von 892 °C heißt dieses, daß die Temperaturdifferenz Zentrum/Rand im thermischen Neutronenfluß in Karbidpellets etwa 2/3 des Wertes im Schnellen Neutronenfluß beträgt.



Abb. 6.5: Radialer Temperaturverlauf in einem Karbidbrennstab mit (.-.-.) und ohne (____) Neutronenflußabsenkung durch Brennstoff-Selbstabschirmung, (q(0)/q₀ = 0,45; χ = 900 W/cm; P = 10%; Pu/U+Pu = 0,15)

Bei einer Plastizitätstemperatur von 1300 ^OC würde sich im thermischen Fluß überhaupt keine plastische Brennstoffzone ausbilden, im schnellen Fluß dagegen beträgt der Radius der plastischen Zone das 0,4-fache des Tabletten-Außenradius. Dieser Unterschied ist entscheidend dafür, ob überhaupt eine plastische Kriechverformung des Brennstoffes möglich ist oder nicht.

6.2.2 Berechnung der thermischen Differenzdehnung zwischen Brennstoff und Hülle

Die thermische Differenzdehnung zwischen Brennstoff und Hüllrohr ergibt sich aus den durch die Temperaturunterschiede resultierenden unterschiedlichen thermischen Dehnungen des Brennstoffes und der Hülle. Die thermische Ausdehnung des Hüllrohres u_{H+} wird spannungsfrei angenommen:

$$u_{Ht} = r_{Hi} \cdot \int_{T_O}^{T_{Hm}} \alpha_H(T) dT \qquad (6.2.11)$$

 $(T_{Hm} = H\ddot{u}llmittentemperatur, T_O = Ausgangstemperatur, \alpha_H = lin.therm. Ausdehnungskoeffizient des Hüllrohrmaterials, r_{Hi} = H\ddot{u}llinnenradius)$

Wenn die Stableistung erhöht wird, ist die Temperaturzunahme im Inneren des Brennstoffes viel größer als in den äußeren Brennstoffbereichen. Dadurch treten im Innenbereich Druckspannungen und außen Zugspannungen auf. Bei einer Leistungsanhebung >50 W/cm bilden sich in Oxidpellets von außen her radiale Risse. Dadurch werden in diesem Gebiet die Spannungen erheblich reduziert, und der Brennstoff kann sich annähernd frei ausdehnen.

Bei höheren Leistungen wird das Brennstoffinnere durch thermische Vorgänge weitgehend plastifiziert, so daß der Dehnungsüberschuß dieses Bereiches durch eine gegenläufige Kompression in inneres Leervolumen aufgefangen werden kann. Im Modell wird dieser innere Bereich durch die Plastizitätstemperatur-Isotherme r_{pl} = const. begrenzt; dabei ist zu beachten, daß r_{pl} während einer Leistungserhöhung nach außen wandert. Bei einer Leistungserhöhung von x_1 auf x_2 beträgt die Dehnung der heißen Brennstoff-Innenzone Δr_i dann

$$u_{ti} = r_{pl_2}(\chi_2) \cdot \int_{T_1(r_{pl_2})}^{T_{pl_1}} \cdot \alpha_B(t) dT$$
 (6.2.12)

Der Index 1 bezieht sich auf den Anfangs- und der Index 2 auf den Endzustand.

Die Änderung des äußeren Tablettenradius ergibt sich aus u_{ti} und der freien Ausdehnung des Brennstoffs für r>r_{pl2}, u_{ta}

$$u_{ta} = \int_{r_{pl}} \alpha_{B}(T) \cdot (T_{2}(r) - T_{1}(r)) dr \qquad (6.2.13)$$

Die gesamte thermische Dehnung des Brennstoffpellets ergibt sich aus der Summe der Dehnung von Brennstoffinnen- und Außenzone:

$$u_{Bt} = u_{ti} + u_{ta}$$

Die thermische Differenzdehnung von Brennstoff und Hülle bei einem Leistungs- oder auch Temperaturwechsel beträgt dann

$$\Delta u_{t} = u_{Bt} - u_{Ht} \qquad (6.2.14)$$

Wenn G₁ der Spalt zwischen Brennstoff und Hülle im Anfangszustand ist, beträgt der Spalt unter den neuen Betriebsbedingungen G₂

Hier kann der Fall eintreten, daß G_2 <O errechnet wird. Dieses bedeutet aber, daß Brennstoff und Hüllrohr in mechanischem Kontakt stehen und die thermische Differenzdehnung zunächst in eine elastische und später in plastische Dehnungen von Brennstoff und Hülle umgesetzt wird. Man kann nun formal auch "Spalte" <O zulassen, wobei dann |G| den Überschuß des Brennstoffaußenradius gegenüber dem Hüllrohr-Innenradius bedeutet (Pellet-Cladding-Interference). Bei einer Leistungsabsenkung wird i.a. ein Wert >O für G berechnet. Dieses wird hier und im folgenden als "Spalt zwischen Brennstoff und Hülle" bezeichnet. Diese Bezeichnung wird der Anschaulichkeit halber beibehalten, auch wenn der Brennstoff bei einer Leistungsverminderung an der Hülle haftet und die differentielle Schrumpfung nur zu Rissen innerhalb des Brennstoffes führt. In seiner eigentlichen Bedeutung ist -G ein Maß für den Unterschied zwischen dem Brennstoff-Volumenbedarf und dem Leervolumenangebot des elastisch ungedehnten Hüllrohres.

Die Genauigkeit der berechneten Dehnung hängt von der Unsicherheit der verwendeten Brennstoff-Wärmeleitfähigkeit und vor allem von der des thermischen Brennstoff-Ausdehnungskoeffizienten ab. Für Oxidbrennstoff hängt der Ausdehnungskoeffizient von der Temperatur, dem Pu-Anteil und dem O/M-Verhältnis ab. Weiterhin streuen die veröffentlichten Daten über Ausdehnungskoeffizienten von Mischoxidbrennstoffen sehr stark, weil möglicherweise auch das Brennstoffherstellungsverfahren eine Rolle spielt. Man kann für den Ausdehnungskoeffizienten nur eine Genauigkeitsschranke von + 20% angeben, die entsprechend auch für die errechnete thermische Ausdehnung des Brennstoffs gilt. Da die plastischen Verformungen aber immer nur einen Bruchteil der thermischen Brennstoffdehnung ausmachen, ergeben sich für diese noch beträchtlich größere Unsicherheiten. Die im Anhang angegebene Beziehung für den Ausdehnungskoeffizienten stellt einen Mittelwert aus überwiegend amerikanischen Daten dar.

Die Auswirkung der Unsicherheit des Brennstoff-Ausdehnungskoeffizienten auf die Größe der mechanischen Wechselwirkung wurde bereits 1971 in einer Parameterstudie von Homan /34/ untersucht. Auch in dem verwendeten Rechencode erwies sich der thermische Ausdehnungskoeffizient als der entscheidende Parameter für die Größe der auftretenden Kontaktdrücke.

Für den thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Karbidbrennstoff liegen weit weniger Messungen vor als für Oxidbrennstoff. Im Modell wird der Ausdehnungskoeffizient als Funktion der Temperatur entsprechend der im Anhang angegebenen Beziehung verwendet.

-47-

6.2.3 <u>Weitere Vorgänge von Einfluß auf die mechanische</u> Wechselwirkung

Das Schließen des Brennstoff/Hülle-Spaltes zu Beginn der Bestrahlung wird mit einer relativ hohen Brennstoff-Schwellrate, die empirisch bestimmt wurde, beschrieben (s. Abschnitt 8.2). Dieses geschieht in Anlehnung z.B. an die Arbeit von Dutt et al. /35/, deren Ergebnisse jedoch nicht direkt auf Brennstäbe und Bestrahlungsbedingungen der hier behandelten Experimente übertragbar sind. Für die stationäre Brennstoffschwellung und -Kriechverformung bei geschlossenem Spalt werden die bekannten Daten aus der Literatur verwendet, die im Anhang aufgeführt sind. Im Rahmen der eigenen Untersuchungen wurde eine vorübergehend beschleunigte Brennstoff-Verformung nach Spannungsänderungen im Brennstoff beobachtet. Für diesen Effekt werden im Abschnitt 7.1 vorläufige quantitative Beziehungen zur Beschreibung der transienten Verformung angegeben, die auch in das Modell zur mechanischen Wechselwirkung aufgenommen wurden.

Bei einer großen Leistungsabsenkung (i.b. Reaktorabschaltung) entstehen im Brennstoff Risse, die sich beim Hochfahren nicht wieder vollständig schließen, weil sich die Bruchflächen gegenseitig verschieben. Dadurch kommt es zu einer Verlagerung des Brennstoffes nach außen und somit zu einer verstärkten mechanischen Wechselwirkung gegenüber einem stationären Leistungsbetrieb. Dieser Effekt wird nach einer empirischen Beziehung als Funktion der Rißzahl N_R im Brennstoff und einer effektiven Rißrauhigkeit RR berechnet

$$\Delta r = N_R \cdot RR/2\pi$$

mit $N_R = 0,01 \cdot \chi / W/cm_7 + 4$. Die Rißrauhigkeit ist ein Eingabeparameter, der bei 1-2 µm liegt /36/. Zur Aufrechterhaltung der Masse- und Volumenbilanz wird das Rißvolumen dem äußeren Brennstoffring (T>T_{p1}) als Porosität zugeschlagen. Die Annahme, daß unvollständig geschlossene Risse teilweise ausheilen und der Rißvolumenrest als zusätzliche Porosität im Brennstoff verbleibt, konnte durch Schliffbildanalysen bestrahlter Brennstäbe bestätigt werden /15/.

Wenn der Brennstoff während der Bestrahlung zeitweise nicht am Hüllrohr anliegt, werden nach Bestrahlung oft kondensiertes Cäsium und nicht gasförmige, flüchtige Spaltprodukte am äußeren Brennstoffrand gefunden, zumeist in chemisch gebundener Form. Während eines Leistungszyklierbetriebes öffnet und schließt sich der Spalt zwischen Brennstoff und Hülle bei höherem Abbrand periodisch; die Spaltprodukte können aber nur bei geöffnetem Spalt aus dem Brennstoffinneren austreten und kondensieren. Im Modell wird dieser besondere Schwellvorgang folgendermaßen beschrieben:

- der während der Betriebsphase mit geschlossenem Spalt erzeugte Anteil fester, mobiler Spaltprodukte wird errechnet. Dabei wird eine Erzeugungsrate von 0,4 vol.% je % Abbrand angenommen.
- 2.) Bei Öffnung des Spaltes nach einer Leistungsreduktion wird das errechnete Volumen dieser Spaltprodukte dem Pelletvolumen zugeschlagen (d.h. die Volumenschrumpfung des Brennstoffes durch die Leistungsreduktion wird um diesen Betrag verringert).

6.3 Vorgänge im Hüllmaterial

6.3.1 <u>Fließdehnung des Hüllrohres unter Berücksichtigung der</u> <u>Dickenverminderung durch Korrosion</u>

Die Fließdehnung der Hülle wird über eine stark vereinfachende Spannungs-Dehnungskurve für das Hüllmaterial berechnet. Dabei wird eine elastische Dehnung bis zu einer Spannung VOM 0,75fachen der Streckgrenze $\sigma_{0,2}$ des Hüllmaterials und darüberhinaus nur noch plastische Verformung (bei konstanter Spannung) angenommen. Die Annahme eines festen Wertes von 0,75° $\sigma_{0,2}$ bedeutet

-49-

eine ziemlich starke Vereinfachung, die aber für die kleinen Hülldehnungen von nur $\leq 0,1$ % je Stableistungszyklus zulässig erscheint. Bei strengerer Behandlung müßte das Verhältnis von Fließbeginn und $\sigma_{0,2}$ -Grenze zumindest temperaturabhängig angesetzt werden. Über die Temperaturabhängigkeit der Fließgrenze liegen bisher jedoch nur interne Angaben vor, denen sich für unbestrahltes Material im Temperaturbereich zwischen 300 und 800 ^OC Werte von 0,9 bis 0,6 entnehmen lassen. Somit stellt der im Modell behandelte Wert von 0,75 eine Näherung für den wesentlichen Temperaturbereich zwischen 450 und 650 ^OC dar.

Durch die Innenkorrosion verkleinert sich in Oxidbrennstäben die wirksame Hüllwandstärke, so daß sich bei gleichem Kontaktdruck größere Hüllspannungen ergeben. Die Angriffstiefe der Hüllinnenkorrosion ist in Oxidbrennstäben eine Funktion der Hüllinnentemperatur, des Brennstoff-O/M-Verhältnisses und der Bestrahlungsdauer. Im Modell wird angenommen, daß die Hüllinnenkorrosion bereits abgeschlossen ist, wenn die mechanische Wechselwirkung einsetzt und die Angriffstiefe nur als Funktion der maximalen Hüllinnentemperatur berechnet. Die Hüllangriffstiefe wird nach einer empirischen Formel berechnet, der Ergebnisse von Götzmann /37/ zugrunde liegen. Die maximalen Angriffstiefen können bei hohen Hüllinnentemperaturen bis zu 130 µm und damit etwa 1/3 der Hüllwandstärke betragen. Die für die Spannungsberechnung verwendete effektive Hüllwandstärke ergibt sich aus der Stärke der unkorrodierten Hülle d_u, die um die halbe maximale Angriffstiefe vermindert wird:

$$d_{H,eff} = d_{H} - 0.5 \cdot d_{korro}$$

Die Hüllangriffstiefe wird mit dem Faktor 0,5 gewichtet, womit auch den korrodierten Hüllbereichen eine beträchtliche Restfestigkeit zugeschrieben wird. Der Wichtungsfaktor 0,5 wurde in Anlehnung an eine Untersuchung von Hofmann und Schäfer angenommen /38/.

-50-

In Karbidbrennstäben tritt keine Hüllinnenkorrosion auf, und die Aufkarburierung der Hüllinnenwand wird im Modell nicht berücksichtigt.

6.3.2 Hüllrohrschwellung im Schnellen Neutronenfluß

Im schnellen Neutronenfluß bilden sich im Hüllmaterial nach Erreichen größerer Neutronendosen (> 10^{22} n/cm^2) Poren, wodurch dessen Volumen vergrößert bzw. dessen Dichte verringert wird. Die Hüllrohrschwellung hängt in starkem Maße von der Hülltemperatur und vom Hüllmaterialtyp ab. Der Temperaturbereich hoher Neutronenschwellung liegt etwa zwischen 400 und 550 ^OC und damit innerhalb des Hülltemperaturbereiches von SNR-Brennstäben. Die Schwellung liegt größenordnungsmäßig zwischen 2 vol.% (kaltverformte Hüllmaterialien) und 20 vol.% (lösungsgeglühte Stähle), bezogen auf eine schnelle Neutronendosis von $10^{23} n/cm^2$, E >0,1 MeV (siehe auch Abschnitt 11 und 11.1,2). Die Hüllrohrschwellgeschwindigkeit wird nach der für das jeweilige Hüllmaterial gültigen Schwellformel in Abhängigkeit von der Hüllmittentemperatur, der Neutronendosis und dem Neutronenfluß berechnet (siehe z.B. die Schwellformel im Anhang). Die Hüllrohrschwellung wird als isotrop angenommen, so daß die lineare Schwellgeschwindigkeit

$$\dot{\varepsilon}_{\rm H,s} = 1/3 \ \Delta \dot{V}/V$$

beträgt.

6.4 <u>Berechnung von Spannungen und Dehnungen von Brennstoff</u> und Hüllrohr bei Festkörper- oder Spaltgasdruck

6.4.1 <u>Festkörper-Kontaktdruck</u> zwischen tragendem Brennstoffring und Hüllrohr bei differentieller Ausdehnung

Nach Schließen des Brennstoff-Hüllrohrspaltes führt jede weitere überschüssige Ausdehnung des Brennstoffes zu einem Festkörperkontaktdruck. In diesem Fall wird vom Programm ein Spalt G ≤ O berechnet. Diese Differenz führt zu einer zunächst elastischen Verformung von Hüllrohr und tragendem Brennstoffring. Bei der Berechnung der resultierenden Spannungsverteilung wird vorläufig völlig elastisches Verhalten des Hüllrohres angenommen. Falls dann eine Hüllrohrspannung berechnet wird, die größer als die Fließgrenze des Hüllmaterials ist, erfolgt eine entsprechende Korrektur, bei der die Fließdehnung des Hüllrohres bestimmt wird.

Der rechnerischen Behandlung des Vorganges liegt Abb. 6.6 zugrunde. Dieses Bild zeigt den Quer- und Längsschnitt durch einen Brennstab mit plastifizierter Innenzone, tragendem Brennstoffring und Hüllrohr sowie mit den Drücken auf die Begrenzungsflächen dieser Zonen, die die Randbedingungen für die Spannungsverteilung für geschlossenen Brennstoff/Hüllrohr-Spalt darstellen (siehe auch Abb. 6.2). Eine axiale Kopplung von Brennstoff und Hülle führt zu Kräften in axialer Richtung, die ebenfalls als Drücke beschrieben werden.



Abb. 6.6:

Zoneneinteilung (r), Drücke (P) und Verformungen (u) in einem Brennstabquerschnitt nach dem Zonenmodell

Ausgangspunkt der Spannungsberechnung ist die Größe G, die vom Programm im Falle mechanischer Wechselwirkung als negativer Wert berechnet wird. Damit ergeben sich radiale elastische Verformungen sowohl der Hülle als auch des Brennstoffes, deren Summe gerade so groß ist wie G. Sei u_{tot} die Summe der radialen elastischen Verformung des Brennstoffringes u_B und des Hüllrohres u_H, dann gilt

$$-G = u_{tot} = u_{H} + (-u_{B})$$
 (6.4.1)

wobei eine Dehnung positiv und eine Stauchung negativ gezählt wird.

In der vorliegenden Zylindergeometrie ist die radiale Verformung mit der Tangentialdehnung verknüpft /39/

$$\varepsilon_{+} = u/r \tag{6.4.2}$$

Bei einem Brennstoff/Hüllen-Kontakt ist der Hüllinnenradius gleich dem äußeren Radius des tragenden Brennstoffringes, so daß

$$u_{tot} = r_{Ba} \cdot \epsilon_t = r_{Ba} \cdot (\epsilon_{tH} - \epsilon_{tB})$$
 (6.4.3)

Bei starker Reibung zwischen Brennstoff und Hülle (µ >>0) kann auch ein axialer Differenzdruck zwischen Brennstoff und Hülle aufgebaut werden, weil die Kontaktflächen aneinander haften. Eine axiale Differenzdehnung löst dann entsprechende elastische Dehnungen in axialer Richtung aus. Die axiale Verformung w genügt der Gleichung /39/

$$\varepsilon_{r} = dw/dz \qquad (6.4.4)$$

Im Falle des langen Zylinders ist dw/dz = const. , und es ergibt sich analog:

 $\varepsilon_{z,tot} = \varepsilon_{zH} - \varepsilon_{zB}$ (6.4.5)

wenn große Reibung zwischen Brennstoff und Hülle besteht.

Die elastischen Dehnungen rufen Spannungen in den Hauptrichtungen hervor, entsprechend den Spannungs-Dehnungsbeziehungen für zylindrische Körper:

$$\varepsilon_{i} = 1/E \cdot (\sigma_{i} - \nu \cdot (\sigma_{j} + \sigma_{K}))$$
(6.4.6)
(i,j,k = t,r,z zyklisch)

Dabei sind σ die Spannungskomponenten, und E und ν der isotrope Elastizitätsmodul bzw. die Querkontraktionszahl. Angewandt auf den Bereich des Hüllrohres mit den isotropen elastischen Konstanten E_H und $\nu_{\rm H}$ erhält man in Matrixschreibweise:

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_{tH} \\ \varepsilon_{rH} \\ \varepsilon_{zH} \end{pmatrix} = 1/E_{H} \cdot \begin{pmatrix} 1 - v_{H} - v_{H} \\ - v_{H} + 1 - v_{H} \\ - v_{H} - v_{H} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \sigma_{tH} \\ \sigma_{rH} \\ \sigma_{zH} \end{pmatrix} (6.4.7)$$

Für den Brennstoffring ergibt sich eine entsprechende Gleichung, die sich nur in den Indizes (B für H) unterscheidet.

Zur weiteren Berechnung werden die analytischen Beziehungen für die radiale Spannungsverteilung in einem Hohlzylinder herangezogen, z.B. nach /40/:

$$\sigma_{t}(r) = (A + B/r^{2})/C; \quad \sigma_{r}(r) = (A - B/r^{2})/C \text{ und}$$

 $\sigma_{z}(r) = D + A/C \quad (6.4.8.1-3)$

$$A = P_{i} r_{i}^{2} - P_{a} r_{a}^{2}; B = (P_{i} - P_{a}) \cdot r_{i} r_{a};$$

$$C = r_{a}^{2} - r_{i}^{2}; D = - P_{z}$$

wobei r_i, r_a: Innen- bzw. Außenradius; P_i, P_a: Innen- bzw. Außendruck; P_z: Axialdruck (äußere Axialkraft/Querschnittsfläche). Setzt man die Randbedingungen für das Hüllrohr ein, $(P_i = P_c, P_a = P_N)$ erhält man für die radiale und tangentiale Spannung an der Hüllinnenseite

$$\sigma_{tH} = (-2 r_{Ha}^{2} \cdot P_{N} + (r_{Hi}^{2} + r_{Ha}^{2}) \cdot P_{c}) / (r_{Ha}^{2} - r_{Hi}^{2})$$

$$(6.4.9)$$

$$\sigma_{rH} = -P_{c}$$

$$(6.4.10)$$

Für die Brennstoffoberfläche ($r_a = r_{Ba}$, $r_i = r_{pl}$, $P_i = P_g$, $P_a = P_c$) ergibt sich:

$$\sigma_{tB} = (2 r_{p1}^{2} \cdot P_{g} - (r_{Ba}^{2} + r_{p1}^{2}) \cdot P_{c}) / (r_{Ba}^{2} - r_{p1}^{2})$$

$$(6.4.11)$$

$$\sigma_{rB} = -P_{c}$$

$$(6.4.12)$$

Die Axialspannungen ergeben sich aus einer Kräftebilanz, dabei werden die Fälle unterschieden, ob Brennstoff und Hüllrohr sich axial frei bewegen können oder nicht ($\mu = 0$, $\mu = \infty$).

1.
$$G > 0$$
 oder $\mu = 0$

Dann ergibt sich σ_{tH} über die Gleichgewichtsbedingung

$$\sigma_{\rm H} \cdot F_{\rm H} = P_{\rm g} \cdot F_{\rm i} - P_{\rm N} \cdot F_{\rm a}$$
(6.4.13)

wobei $F_{\rm H}$ die Querschnittsfläche des Hüllrohres $\pi (r_{\rm Ha}^2 - r_{\rm Hi}^2)$, $f_{\rm i}$ die des Spaltgasplenums $\pi r_{\rm Hi}^2$ und $F_{\rm a}$ die Brennstabquer-schnittsfläche $\pi r_{\rm Ha}^2$ bedeuten.

Daraus folgt:

ł

$$\sigma_{\rm zH} = (P_{\rm g} \cdot r_{\rm Hi}^2 - P_{\rm N} \cdot r_{\rm Ha}^2) / (r_{\rm Ha}^2 - r_{\rm Hi}^2)$$
(6.4.14)

$$\sigma_{zB} = 0$$
 (6.4.15)

Falls Brennstoff und Hüllrohr aneinander haften ($\mu = \infty$), üben diese bei einer differentiellen axialen Dehnung Druck- bzw. Zugkräfte aufeinander aus. Diese Drücke sind im Falle des langen Zylinders unabhängig von der Z-Koordinate und seien mit P_{zH} bzw. P_{zB} bezeichnet. Dann gilt für das Hüllrohr

$$F_{H} \cdot \sigma_{zH} = -P_{zH} \cdot F_{H} + F_{i} \cdot P_{g} - F_{a} \cdot P_{N}$$
(6.4.16)

Einsetzen der Größe wie oben ergibt für das Hüllrohr:

$$\sigma_{zH} = -P_{zH} + (r_{Hi}^2 \cdot P_g - r_{Ha}^2 \cdot P_N) / (r_{Ha}^2 - r_{Hi}^2)$$
 (6.4.17)

Für den Brennstoffring ergibt sich einfach:

$$\sigma_{zB} = -P_{zB} - P_{q}$$
(6.4.18)

Die Gleichgewichtsbedingung

$$\int_{O}^{r} \sigma_{z}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{r} \cdot d\mathbf{r} = 0 \qquad (6.4.19)$$

liefert eine Beziehung zwischen P_{zH} und P_{zB} :

$$\begin{array}{c} r_{Ba} \\ \int \sigma_{z} r dr = \int \sigma_{zH} r dr + \int \sigma_{zB} r dr \quad (6.4.20) \\ \sigma_{Hi} & r_{pl} \end{array}$$

Mit den Gleichungen 17 und 18 dieses Abschnittes folgt:

$$P_{zB} = (-P_{zH} (r_{Ha}^{2} - r_{Hi}^{2}) + r_{pl}^{2} P_{g} - r_{Ha}^{2} \cdot P_{N}) / (r_{Ba}^{2} - r_{pl}^{2})$$

und schließlich

$$\sigma_{zB} = (P_{zH}(r_{Ha}^{2} - r_{Hi}^{2}) - r_{Ba}^{2} \cdot P_{g} + r_{Ha}^{2} \cdot P_{N}) / (r_{Ba}^{2} - r_{p1}^{2})$$
(6.4.22)

Die Gleichungen 9, 10 und 17 lassen sich zu einer Vektorgleichung zusammenfassen

$$\underline{\sigma}_{\mathrm{H}} = \underline{P} \times \underline{MH2} + \underline{CH} \tag{6.4.23}$$

mit $\underline{\sigma}_{H} = (\sigma_{tH}, \sigma_{rH}, \sigma_{zH}); P = (P_{C}, P_{zH})$ und

$$\underline{MH2} = (r_{Ha}^{2} - r_{Hi}^{2})^{-1} \cdot \begin{pmatrix} r_{Ha}^{2} + r_{Hi}^{2} & 0 \\ - (r_{Ha}^{2} - r_{Hi}^{2}) & 0 \\ 0 & - (r_{Ha}^{2} - r_{Hi}^{2}) \end{pmatrix}$$

$$\underline{CH} = (r_{Ha}^{2} - r_{Hi}^{2})^{-1} \cdot \begin{pmatrix} -2r_{Ha}^{2}P_{N} \\ 0 \\ r_{Hi}^{2}P_{g} - r_{Ba}^{2}P_{N} \end{pmatrix}$$

Für den Brennstoff ergibt sich analog (Gl. 11, 12, 22)

$$\underline{\sigma}_{\mathrm{B}} = \underline{\mathrm{P}} \cdot \underline{\mathrm{MB2}} + \underline{\mathrm{CB}} \tag{6.4.24}$$

mit $\underline{\sigma}_{B} = (\sigma_{tB}, \sigma_{rB}, \sigma_{zB})$ und

$$\underline{\text{MB2}} = (r_{\text{Ba}}^{2} - r_{\text{pl}}^{2})^{-1} \cdot \begin{pmatrix} -(r_{\text{Ba}}^{2} + r_{\text{pl}}^{2}) & 0 \\ r_{\text{Ba}}^{2} - r_{\text{pl}}^{2} & 0 \\ 0 & r_{\text{Ha}}^{2} - r_{\text{Hi}}^{2} \end{pmatrix}$$

$$\underline{CB} = (r_{Ba}^{2} - r_{pl}^{2})^{-1} \cdot \begin{pmatrix} 2 r_{pl}^{2} \cdot P_{g} \\ 0 \\ - (r_{Ba}^{2} P_{g} - r_{Ha}^{2} P_{N}) \end{pmatrix}$$

Mit Gleichung 7 lassen sich die radialen und axialen Dehnungen von Brennstoff und Hüllrohr als Vektorgleichung in $\underline{\sigma}_{\rm H}$ und $\underline{\sigma}_{\rm B}$ schreiben:

$$\underline{\varepsilon}_{\mathrm{H}} = \underline{\mathrm{MH1}} \cdot \underline{\sigma}_{\mathrm{H}} \tag{6.4.25}$$

mit $\underline{\varepsilon}_{H} = (\varepsilon_{tH}, \varepsilon_{zH})$ und

$$\underline{\mathbf{MH1}} = \mathbf{E}_{\mathrm{H}}^{-1} \cdot \begin{pmatrix} 1 - v_{\mathrm{H}} - v_{\mathrm{H}} \\ & \\ - v_{\mathrm{H}} - v_{\mathrm{H}} \end{pmatrix}$$

und analog

$$\underline{\varepsilon}_{\mathrm{B}} = \underline{\mathrm{MB1}} \cdot \underline{\sigma}_{\mathrm{H}} \tag{6.4.26}$$

mit
$$\underline{\epsilon}_{B} = (\epsilon_{tB}, \epsilon_{zB})$$
 und

$$\underline{\underline{MB1}} = \underline{E}_{B}^{-1} \cdot \begin{pmatrix} 1 - \nu_{B} - \nu_{B} \\ \\ \\ - \nu_{H} - \nu_{H} \end{pmatrix}$$

Bezeichnet man den Vektor der Differenzdehnungen mit $\Delta \underline{\varepsilon} = \underline{\varepsilon}_{H} - \underline{\varepsilon}_{B}$ und faßt die Gleichungen 23-26 zusammen, ergibt sich

$$\Delta \underline{\varepsilon} = \underline{MH1} \cdot (\underline{MH2} \cdot \underline{P} + \underline{CH}) - \underline{MB1} \cdot (\underline{MB2} \cdot \underline{P} + \underline{CB})$$

und
$$\underline{P} = (\underline{MH1} \cdot \underline{MH2} - \underline{MB1} \cdot \underline{MB2})^{-1} \cdot (\Delta \underline{\varepsilon} - \underline{MH1} \cdot \underline{CH} + \underline{MB1} \cdot \underline{CB})$$

(6.4.27)

Mit Gleichung 27 lassen sich P_c und P_{zH} direkt aus den Randbedingungen, den Materialparametern und den Differenzdehnungen errechnen. Die erforderlichen Matrizen-Rechenoperationen sind mit Hilfe eines Rechners sehr einfach durchführbar. Bei verschwindender Reibung zwischen Brennstoff und Hülle ($\mu = 0$) ist $P_{zH} = 0$ und es läßt sich eine explizite Lösung für P_c angeben, wenn man die vom Kühlmittel- und vom Spaltgasdruck herrührenden axialen Spannungskomponenten vernachlässigt. Die Gleichung 7 entsprechende Spannungs-Dehnungsbeziehung lautet dann

$$\varepsilon_t = (\sigma_t - v\sigma_r)/E$$

Mit den Randbedingungen von Gleichung 9 und Gleichung 11 und Gleichung 8.1 ergibt sich, nach P_c aufgelöst:

$$P_{c} = (A+B-G/r_{a})/(C+D)$$
 (6.4.28)

wobei

$$A = 2 r_{p1}^{2} \cdot P_{g}/E_{B} \cdot (r_{Ba}^{2} - r_{p1}^{2})$$

$$B = 2 r_{Ha}^{2} \cdot P_{N}/E_{H} \cdot (r_{Ha}^{2} - r_{Hi}^{2})$$

$$C = (v_{H} + (r_{Ha}^{2} + r_{Hi}^{2})/(r_{Ha} - r_{Hi}^{2}))/E_{H}$$

$$D = (-v_{B} + (r_{Ba}^{2} + r_{p1}^{2})/(r_{Ba}^{2} - r_{p1}^{2}))/E_{B}$$

Diese Lösung läßt sich auch einer Arbeit von Lamkin und Brehm entnehmen, die mit einer völlig anderen Methode gewonnen wurde /41/.

Falls die Hüllwandstärke im Vergleich zum Hülldurchmesser klein ist, ergeben sich aus Gleichung 8.1-3 die sogenannten Kesselformeln als Näherungslösung für die Spannung in der Mitte eines dünnwandigen Hohlzylinders:

$$\sigma_{tH} = (P_{i} - P_{a})/2 \cdot (r_{Hi} + r_{Ha})/(r_{Ha} - r_{Hi})$$

$$\sigma_{rH} = - (P_{i} + P_{a})/2 \qquad (6.4.29.1-3)$$

$$\sigma_{zH} = \begin{cases} \sigma_{tH}/2 & P_{c} = 0 \\ Gl. 17 & P_{c} \neq 0 \end{cases}$$
Die Bedingung $\sigma_z = 1/2 \sigma_t$ ist nur für den Fall $P_c = 0$ erfüllt, d.h. wenn das Hüllrohr nur durch Spaltgasdruck oder Kühlmitteldruck belastet wird. Da bei SNR-Brennstäben das Verhältnis von Hüllwandstärke zu Stabdurchmesser bei 15 liegt, werden die Näherungsformeln 29.1-3 zur Spannungsberechnung verwendet. Der Term ($r_{Ha} - r_{Hi}$) entspricht der Hüllwandstärke d_H. Bei einer korrodierten Hülle wird entsprechend Abschnitt 6.3 die Größe d_{H eff} eingesetzt.

In Abb. 6.7 sind die radialen Spannungsverteilungen in der Hülle für eine Beispielsrechnung mit folgenden Ausgangsgrößen dargestellt:

> $r_{p1} = 0,15;$ $r_a = 0,262;$ $r_{Ha} = 0,3 \text{ cm}$ $E_H = 1,65 \cdot 10^5;$ $E_B = 1,7 \cdot 10^5 \text{ MN/m}^2$ $v_H = 0,31;$ $v_B = 0,33$ $P_N = 0,2;$ $P_g = 2 \text{ MPa}$ $\Delta \varepsilon_+ = \Delta \varepsilon_z = 0,1\%.$

Die Beispielsrechnung zeigt deutlich unterschiedliche Größen der auftretenden Spannungen, die sich einmal unter der Annahme axialer Haftung (σ^1) bzw.ungehinderten axialen Gleitens ergeben (σ^2). Im Falle vollständiger Haftung wird das Hüllrohr axial elastisch gedehnt und der Brennstoffring entsprechend gestaucht.



Abb. 6.7: Spannungsverteilung im Hüllrohr eines SNR-Brennstabes bei 0,1% Differenzdehnung zwischen Brennstoff und Hüllrohr; berechnet unter der Annahme axialer Haftung zwischen Brennstoff und Hüllrohr (oberer Index 1) und freier axialer Ausdehnung (oberer Index 2).

Durch die axialen Dehnungen erfolgt eine radiale Kontraktion der Hülle bzw. eine radiale Expansion des Brennstoffringes, und zwar um das v-fache der jeweiligen axialen Dehnungen. Dadurch erhöht sich der Kontaktdruck entsprechend. Im Falle gleicher Materialien läßt sich zeigen, daß bei verschwindendem Außen- und Innendruck gilt: $\sigma^1 = 1/(1-v)$ · σ_t^2 , was bedeutet, daß bei Haftung zwischen Brennstoff und Hülle die Tangentialspannungen etwa 35% - 40% höher sind als bei freier axialer Ausdehnung. Der Frage, ob sich durch die Reibung zwischen Brennstoff und Hüllrohr ein zur Haftung hinreichend fester Kontakt einstellt, kommt somit in Hinblick auf den Spannungsaufbau im Hüllrohr eine entscheidende Bedeutung zu.

$$F_{R} = \mu \cdot P_{C} \cdot 2\pi r_{a} \cdot H$$

Haftung besteht, wenn die Reibungskräfte größer als die Absolutbeträge der Axialkräfte in Brennstoff und Hülle sind:

$$F_{R} \ge F_{z} = \pi \cdot (|\sigma_{zH}| \cdot (r_{Ha}^{2} - r_{Hi}^{2}) + |\sigma_{zB}| \cdot (r_{Ba}^{2} - r_{pl}^{2}))$$

Daraus ergibt sich eine minimale Zylinderlänge

$$H_{\min} = F_{Z}/(2\pi \cdot P_{C} \cdot \mu \cdot r_{a})$$
 (6.4.31).

Setzt man die Werte der Beispielsrechnung auf Seite 63, so erhält man für H_{min} einen Wert von etwa 0,5 cm. Unter Bestrahlung kann sich der Wert für μ jedoch erheblich ändern, wenn sich eine chemische Reaktionsschicht zwischen Brennstoff und Hülle bildet. Daher wird im Modell nicht mit einem festen Reibungskoeffizienten gerechnet, sondern es werden nur die Grenzfälle $\mu = 0$ bzw. $\mu = \infty$ betrachtet. Als Standardwert im Rechenprogramm wird $\mu = 0$ gesetzt.

6.4.2 <u>Berechnung der plastischen Verformungen von Brennstoff</u> und Hüllrohr

Im mehrachsigen Spannungszustand werden die plastischen Verformungen über die sogenannten Söderberg-Gleichungen als Funktion einer Vergleichsspanung $\overline{\sigma}$ berechnet:

$$\varepsilon_{i,pl} = \overline{\varepsilon}_{pl} / \overline{\sigma} \cdot (\sigma_{i} - 1/2 (\sigma_{j} + \sigma_{k}))$$
(6.4.32)
(i, j, k = t, r, z zyklisch)

dabei ist $\overline{\sigma} = (1/2 \Sigma (\sigma_i - \sigma_j)^2)^{0,5}$ und $\overline{\epsilon}_{pl} = \epsilon (\overline{\sigma})$ die bei einachsiger Belastung gemessenen Kriech- und Fließdehnungen.

Diese Formulierung erfüllt folgende Voraussetzungen: 1.) Bei einer plastischen Verformung bleibt das Volumen konstant:

$$\varepsilon_{t} + \varepsilon_{r} + \varepsilon_{z} = 0$$
 (6.4.33)

2.) Die sogenannte von Mises'sche Hypothese ist erfüllt, daß im mehrachsigen Spannungszustand nur dann eine plastische Verformung auftreten kann, wenn eine Spannungskomponente vom hydrostatischen Druck σ_h

$$\sigma_{\rm h} = 1/3 \ (\sigma_{\rm t} + \sigma_{\rm r} + \sigma_{\rm z})$$
 (6.4.34)

abweicht. Aus den nach Bestrahlung gemessenen Verhältnissen von mittlerer tangentialer und axialer Dehnung sind über die Söderberg-Gleichungen Rückschlüsse auf die Belastungsart des Hüllrohres möglich:

- 1. Wenn der Spaltgasdruck die größten Hüllspannungen verursacht, ist nach Gleichung 29 $\sigma_r < \sigma_z = 1/2 \sigma_t$. Damit ergibt sich über Gleichung 32: $\varepsilon_+ \neq 0$ und $\varepsilon_z = 0$.
- 2. Bei mechanischer Wechselwirkung und freier axialer Ausdehnung des Brennstoffes ist σ_z < σ_r << σ_t , daraus folgt

$$\varepsilon_{z} = 1/2 \varepsilon_{+}$$

3. Bei mechanischer Wechselwirkung und axialer Kopplung von Brennstoff und Hülle ist $\sigma_r << \sigma_z \sim \sigma_t$ (s. Abb. 6.7) und damit $\varepsilon_z \sim \varepsilon_+$.

Es muß aber beachtet werden, daß bei einem Brennstab während der Bestrahlung alle drei Fälle (und zwar auch noch abhängig von der axialen Position) vorkommen können, für die die gemessene axialen Dehnungen einen über die Zeit und die Brennstablänge gebildeten Mittelwert darstellen.

6.4.2.1 Hüllrohr-Fließverformungen

Wenn eine Hüllrohr-Vergleichsspannung $\overline{\sigma}$ berechnet wird, die größer als die Fließgrenze σ_{fl} des Hüllmaterials ist, wird der Spannungsüberschuß in eine entsprechende Dehnung umgerechnet. Unter den auch für die Söderberg-Gleichungen gültigen Voraussetzungen ergibt sich analog den Gln. 32:

$$\epsilon_{pl,i} = \frac{1}{E} \frac{\overline{\sigma} - \sigma}{\overline{\sigma}} fl \cdot (\sigma_{i} - 1/2(\sigma_{j} + \sigma_{k}))$$
(i,j,k = t,r,z zyklisch) (6.4.35)

Nach einer Fließdehnung werden $\varepsilon_{t,H}$ und $\varepsilon_{z,H}$ um die errechneten Fließdehnungswerte vermindert, und anschließend wird eine erneute Spannungsberechnung vorgenommen.

6.4.2.2 Hüllrohr-Kriechverformungen

Für die Hüllrohrverformungen durch Kriechen kommen drei Mechanismen in Frage:

1.) Nabarro-Herring-Kriechen der Form

$$\varepsilon_{c} = C_{1} \cdot \exp((-E_{1}/RT) \cdot \sigma \qquad (6.4.36)$$

Dieser Kriechmechanismus verläuft über Diffusion von Punktdefekten und hängt linear von der Spannung ab. Dieser Effekt dominiert im Bereich niedriger Spannungen.

2.) Norton-Kriechen der Form

$$\varepsilon_{c} = C_{2} \cdot \exp(-E_{2}/RT) \cdot \sigma^{n} \qquad (6.4.37)$$

Dieser Kriechmechanismus beruht auf Versetzungsklettern und dominiert bei hohen Spannungen. Der theoretische Spannungsexponent liegt bei 4 /42/, experimentell bestimmte Werte liegen zum Teil beträchtlich höher. 3.) Bestrahlungskriechen

$$\varepsilon_{c} = C_{3}(T) \cdot \sigma \cdot \phi_{s} \qquad (6.4.38)$$

Dieser Kriechmechanismuns hängt linear vom schnellen Neutronenfluß ϕ_s und der Spannung ab. Das Bestrahlungskriechen dominiert im schnellen Neutronenfluß bei niedrigen Spannungen und Hülltemperaturen.

Neben den drei obengenannten stationären Kriechvorgängen tritt bei Spannungserhöhungen ein primäres Kriechen der Form:

 $\dot{\varepsilon}_{p} = C \cdot \sigma^{n} \cdot t^{m}$ mit O < m < 1 auf.

Dieser Verformungsvorgang wird im Modell nicht berücksichtigt.

6.4.2.3 Kriechverformung des tragenden Brennstoffringes

Das Verfahren zur Berechnung der Hüllrohrkriechverformungen kann im Zwei-Zonen-Brennstoffmodell nicht für den tragenden Ring angewendet werden, da dessen Stärke (im Verhältnis zum Durchmesser) sehr groß werden oder dessen innerer Radius verschwinden kann. Dieses ist vor allem bei niedriger Stableistung und für Karbidbrennstäbe wahrscheinlich. In diesem Falle dürfen die für die Verformung eines Hohlzylinders wirksamen Spannungen nicht mehr wie beim dünnwandigen Hüllrohr durch die Spannungen an der Hüllwandmitte angenähert werden.

Im folgenden wird eine Beziehung hergeleitet, nach der Kriechverformungen eines dickwandigen Rohres durch äußere Kräfte berechnet werden können. Die Ableitung dieser Beziehung geschieht über eine Energiebilanz in der Form, daß die mechanische Leistung, die durch die äußeren Kräfte durch eine plastische Verformung an einem Hohlzylinder verrichtet wird, durch innere Reibung im Hohlzylinder aufgezehrt wird. Die mechanische Leistung läßt sich über ein Oberflächenintegral berechnen:

$$\dot{W} = -\int P \cdot x \cdot dO$$

die Reibungsleistung über ein Volumenintegral der Form:

$$\dot{W} = \int_{V} \dot{\varepsilon} \cdot \sigma \, dV.$$

Die zur Berechnung des ersten Integrals benötigten Druckgrößen ergeben sich aus den Gleichungen des vorhergehenden Abschnittes. Das zweite Integral wird durch effektive Spannungen und Verformungen ersetzt, die ähnlich wie die in Gleichung 32 für einen dickwandigen Zylinder verwendet werden können. Die effektiven Verformungsgeschwindigkeiten werden zunächst in einer rechentechnisch vorteilhaften Form definiert und dann die zugehörigen Effektivspannungen berechnet, die sich aus den Randbedingungen Energieerhaltung, Volumenkonstanz und Gleichgewicht ergeben.

Die Bedingung der Volumenkonstanz muß in jedem Punkt des deformierten Körpers erfüllt sein (Gleichung 33). Die Verträglichkeitsbedingung, Gleichung 2, gilt entsprechend für die Verformungsgeschwindigkeiten:

$$\varepsilon_t = u/r; \quad \varepsilon_r = du/dr$$
 (6.4.39)

Aus den Gleichungen 33 und 39 ergibt sich eine Differentialgleichung für u(r):

$$u/r + du/dr + \varepsilon_{2} = 0 \qquad (6.4.40)$$

Gleichung 32 ergibt für die axiale Komponente der Kriechgeschwindigkeit (i = z)

$$\hat{\epsilon}_{z} = (\overline{\epsilon}/\overline{\sigma}) \cdot (\sigma_{z} - 1/2 (\sigma_{t} + \sigma_{r}))$$
 (6.4.41)

Ersetzt man in Gleichung 41 die Spannungen durch die Beziehungen für die Drücke (P_g , P_c , P_{zB}) nach Gleichung 8.1-3, ergibt sich, daß ε_z unabhängig von r ist:

$$\varepsilon_z = \text{const.}(r)$$
 (6.4.42)

Damit läßt sich Gleichung 40 unmittelbar integrieren:

$$u(r) = C_1/r + C_2 \cdot r$$

Durch Einsetzen dieser Lösung in die Ausgangsgleichung 40 ergibt sich die Konstante C₂ zu - $1/2 \epsilon_z$, so daß

$$u(r) = C_1/r - \dot{\epsilon}_2 \cdot r/2$$
 (6.4.43)

Diese Gleichung läßt sich weiter verwenden, wenn man eine effektive tangentiale Verformungsgeschwindigkeit $\frac{\dot{\epsilon}}{\epsilon}_t$ folgendermaßen definiert:

$$\int r \hat{\epsilon}_r dr = (\dot{\epsilon}_t - 1/2 \dot{\epsilon}_z) \cdot \int r dr$$
 (6.4.44)

Die linke Seite dieser Gleichung läßt sich unter Verwendung von Gleichung 39 durch Gleichung 43 ersetzen:

$$u(r) = r\varepsilon_t \text{ und } \int r\varepsilon_t dr = C_1 \ln r - \varepsilon_z \cdot r^2/4$$
 (6.4.45)

Gleichsetzen von Gleichung 44 und 45 ergibt nach Ausführung der Integration innerhalb der Grenzen $r = r_{pl}$ und $r = r_{Ba}$

$$C_1 \ln (r_{Ba}/r_{pl}) - \dot{\epsilon}_z \cdot (r_{Ba}^2 - r_{pl}^2)/4 = (r_{Ba}^2 - r_{pl}^2)/2 \cdot (\dot{\epsilon}_t - 1/2\dot{\epsilon}_z)$$

Damit kann die Integrationskonstante C_1 in Gleichung 43 durch $\dot{\overline{\epsilon}}_t$ ersetzt werden, und es ergibt sich für die radiale Verformungsgeschwindigkeit des äußeren Zylindermantels (r = r_{Ba}):

(6.4.46)

 $\frac{\dot{\epsilon}}{\epsilon_t}$ und ϵ_z lassen sich über die jeweiligen Kriechgesetze als Funktion einer zugehörigen effektiven Spannung ausdrücken:

$$\frac{1}{\overline{\epsilon}_t} = \epsilon \ (\overline{\sigma}_t)$$
 und $\epsilon_z = \epsilon \ (\overline{\sigma}_z)$

Im kälteren äußeren Brennstoffring dominieren bestrahlungsinduzierte Kriechvorgänge bzw. thermisches Kriechen über Leerstellendiffusion. Bei diesen Kriechmechanismen sind die Verformungen eine lineare Funktion der Spannung, und damit ist der Zusammenhang zwischen $\dot{\overline{\epsilon}}$ und $\overline{\sigma}$ ebenfalls linear. Diese lineare Abhängigkeit gestattet es, die effektiven Spannungen auf eine einfache Art über eine mechanische Leistungsbilanz zu bestimmen.

Die in einem Volumen der Größe V verrichtete Verformungsleistung ergibt sich aus dem Produkt lokaler Spannung und plastischer Verformungsgeschwindigkeit, integriert über das Volumen:

$$W = \int_{V} (\varepsilon_{t} \sigma_{t} + \varepsilon_{r} \sigma_{r} + \varepsilon_{z} \sigma_{z}) \cdot dt dr dz \qquad (6.4.47)$$

Andererseits läßt sich die Verformungsleistung auch aus den äußeren Druckkräften und den Verformungsgeschwindigkeiten errechnen, indem man das Produkt aus äußerem Druck P und der Oberflächen-Verschiebungsgeschwindigkeit x über die Hohlzylinderoberfläche integriert:

$$\dot{W} = \int_{O} - P \cdot \dot{x} dO \qquad (6.4.48)$$

Für den äußeren Zylindermantel ist $P = P_c$ und $x = u(r_a)$, für die Stirnflächen ist $P = -\sigma_{zB}$ und $x = \varepsilon_z$, und für die Hohlzylinderinnenwand ist $P = P_g$ und $\dot{x} = u(r_{pl})$.

Da das Gesamtvolumen des Hohlzylinders durch die Verformung unverändert bleibt (Abb. 6.8), gilt weiter

$$\dot{\mathbf{W}} = 2\pi \mathbf{z} \cdot \mathbf{r}_{Ba} \cdot \mathbf{u}(\mathbf{r}_{a}) + \pi \epsilon_{z} \cdot \mathbf{z} \cdot (\mathbf{r}_{Ba}^{2} - \mathbf{r}_{pl}^{2}) + 2\pi \cdot \mathbf{z} \cdot \mathbf{r}_{pl} \cdot \mathbf{u}(\mathbf{r}_{pl})$$
(6.4.49)

Setzt man die Höhe des Zylinders z = 1, so ergibt sich aus den Gleichungen 48 und 49 die Verformungsleistung $w = W_{(z=1)}$



Abb. 6.8: Plastische Verformung eines Hohlzylinders unter innerer, äußerer und axialer Belastung. Das Volumen des Hohlzylinders bleibt während der Verformung unverändert.

$$\dot{\mathbf{w}} = 2\pi \mathbf{r}_{Ba} \cdot \dot{\mathbf{u}}(\mathbf{r}_{Ba}) \cdot (-\mathbf{P}_{c}) + \pi (\mathbf{r}_{Ba}^{2} - \mathbf{r}_{pl}^{2}) \cdot (\sigma_{zB}) - [2\pi \mathbf{r}_{Ba} \cdot \dot{\mathbf{u}}(\mathbf{r}_{Ba}) + \frac{1}{2\pi \epsilon_{z}} \cdot (\mathbf{r}_{Ba}^{2} - \mathbf{r}_{pl}^{2})] \cdot (-\mathbf{P}_{g})$$

und daraus über Gleichung 18 ($\sigma_{zB} = -P_{zB} - P_{g}$) schließlich

$$\dot{w} = 2\pi r_{Ba} \dot{u}(r_{Ba}) \cdot (P_g - P_c) + \pi (r_{Ba}^2 - r_{pl}^2) \cdot \dot{\epsilon}_z \cdot P_{zB} \quad (6.4.50)$$

Da die drei ε -Komponenten in Gleichung 47 wegen Gleichung 33 nicht unabhängig sind, kann der Integrand durch zwei linear unabhängige ε -Komponenten ausgedrückt werden. Wählt man für diese Komponenten $\overline{\varepsilon}_t$ und ε_z , so sind die zugehörigen Spannungen $\overline{\sigma}_t$ und $\overline{\sigma}_z$ noch unbestimmt. Da $\dot{\overline{\epsilon}}_t$, $\dot{\overline{\epsilon}}_z$, $\overline{\sigma}_t$ und $\overline{\sigma}_z$ nicht von r abhängig sind, ergibt Gleichung 47

$$\dot{w} = \pi \left(r_{Ba}^{2} - r_{pl}^{2} \right) \cdot \left(\dot{\overline{\epsilon}}_{t} \cdot \overline{\sigma}_{t} + \overline{\epsilon}_{z} \cdot \overline{\sigma}_{z} \right) \quad (6.4.51)$$

Wegen der Identität von Gleichung 50 und 51 ergeben sich die $\overline{\sigma}$ durch Koeffizientenvergleich, wobei u(r_a) in Gleichung 50 über Gleichung 46 durch $\overline{\epsilon}_t$ und ϵ_z ausgedrückt wird. Im einzelnen ergeben sich:

$$\overline{\sigma}_{t} = (P_{g} - P_{c})/\ln (r_{a}/r_{pl})$$
 (6.4.52)

$$\overline{\sigma}_{z} = -P_{zB} - r_{Ba}^{2} / (r_{Ba}^{2} - r_{pl}^{2}) \cdot (P_{g} - P_{c})$$
 (6.4.53)

Mit den nach Gleichung 52 berechneten effektiven Spannungen wird über das betreffende Kriechgesetz $\dot{\epsilon}_t$ und damit über Gleichung 46 die radiale Verformungsgeschwindigkeit $u(r_a)$ des äußeren Hohlzylindermantels berechnet. Entsprechend läßt sich ϵ_z nach Gleichung 53 berechnen.

Wenn $r_{pl} = 0$ ist, d.h. wenn entweder kein Zentralkanal vorhanden ist oder die Zentraltemperatur unter der Plastizitätstemperatur liegt, ist $\dot{\overline{\epsilon}}_t = \overline{\sigma}_t = 0$; das bedeutet, daß $u(r_a)$ nur noch über eine axiale Verformung $\neq 0$ werden kann (Gleichung 46), wo der Brennstoff dann gewissermaßen "in die Länge gequetscht" wird.

Bei einer sehr dünnen starren Brennstoffzone ($r_{pl} \approx r_{Ba}$) folgt aus Gleichung 46 und 51 der Grenzfall des dünnwandigen Rohres. Dieses ergibt sich, wenn für ln x die Näherung x-1 und $\varepsilon_z = 0$ gesetzt wird:

$$\dot{u}(r_{a}) = \frac{\dot{\varepsilon}}{\sigma} \cdot (P_{g} - P_{c}) \cdot \frac{(r_{Ba}^{2} - r_{pl}^{2})}{2r_{Ba} \cdot \ln^{2} (r_{Ba}/r_{pl})}$$

daraus folgt
$$\hat{\epsilon}_{t} = \frac{\hat{\epsilon}}{\overline{\sigma}} \cdot (P_{g} - P_{c}) \cdot \frac{(r_{Ba} + r_{pl})}{2 \cdot (r_{Ba} - r_{pl})}$$

In diesem Ergebnis ist die Tangentialspannung mit dem Ausdruck in der Kesselformel identisch (Gleichung 29.1).

6.4.2.4 Brennstoff-Heißpressen

Als weitere Möglichkeit einer plastischen Brennstoff-Verformung wird ein dem Heißpressen entsprechender Vorgang berücksichtigt. Hierbei kann das Brennstoffvolumen unter einem äußeren, hydrostatischen Druck verkleinert werden, wobei die Porosität verringert wird. Dieser Verformungsmechanismus dominiert bei $r_{pl} \sim 0$, d.h. vor allem in Karbidbrennstäben oder in Oxidbrennstäben mit sehr niedriger Stableistung. Bei einem Kriechgesetz mit linearer Spannungsabhägigkeit beträgt die Porositätsänderungsgeschwindigkeit z.B. nach Olander /43/

$$\dot{P} = \frac{9 P_{C}}{4 \eta} \cdot P$$

Dabei ist n die dynamische Zähigkeit des Brennstoffes, P_c der Kontaktdruck und P die Brennstoffporosität. Da im Brennstoffring für T<T_{pl} das bestrahlungsinduzierte Kriechen dominiert, kann man setzen: 1/n = $\dot{\epsilon}_{irr}/\sigma$. Die Verformungsgeschwindigkeit der Brennstoffoberfläche errechnet sich dann zu

$$\dot{u}(r_a) = -r_{Ba} \cdot \dot{P}/3$$

Abb. 6.9 zeigt ein Ergebnis der im Abschnitt 6.4 beschriebenen Rechnungen am Beispiel eines SNR-ähnlichen Oxidbrennstabes bei 500 W/cm Stableistung und 500 ^OC Hüllaußentemperatur. Die Hülle des Brennstabes wurde am Zeitpunkt t = 0 durch eine Leistungserhöhung bis an die Fließgrenze elastisch verformt. Bei den großen Kontaktdrücken kriecht der Brennstoff sehr schnell, und die



Abb. 6.9: Zeitlicher Verlauf der Hüllrohr-Tangentialspannung nach einer großen elastischen Dehnung durch thermische Differenzdehnung zwischen Brennstoff und Hüllrohr. Der Spannungsabbau erfolgt durch bestrahlungsinduziertes Brennstoffkriechen. Annahme: feste Haftung zwischen Brennstoff und Hülle oder axiales Gleiten. Stableistung: 500 W/cm.

Hüllrohrspannung klingt exponentiell auf ihren Gleichgewichtswert ab, dabei liegt die Abklingkonstante (die Zeit, in der die Spannung auf den 1/e-ten Teil abfällt) bei 1,8 h. Die Rechnungen wurden für $\mu = 0$ und $\mu = \infty$ (axiales Gleiten bzw. feste Haftung) durchgeführt. Bei der niedrigen Hüllrohrtemperatur findet praktisch kein Kriechen des Hüllrohres statt, so daß die Überschußdehnung des Brennstoffs nur durch plastische Brennstoff-Verformung abgebaut wird. In Karbidbrennstäben erfolgt ein entsprechender Spannungsabbau mit etwa 10 - 100 fach längeren Abklingzeiten.

6.5 Aufbau des Rechencodes "INSTAT"

Die im vorangehenden beschriebenen Rechnungen werden von einem Computercode ausgeführt, dem lediglich die Brennstab-Auslegungsdaten und Betriebsdaten eingegeben werden, und der daraus den thermischen und mechanischen Zustand des Brennstabes als Funktion der Bestrahlungsdauer berechnet. In dem bisher beschriebenen Modell können nur stationäre Betriebszustände (in einem allerdings beliebig kleinen Zeitintervall) berechnet werden, d.h. für konstante Stableistung und Hülltemperatur. Infolgedessen müssen Leistungsänderungsvorgänge durch quasistationäre Leistungsverläufe angenähert werden.

6.5.1 <u>Die rechnerische Behandlung von Stableistungs- und</u> Temperaturänderungen

Bei der Temperaturberechnung im Brennstab (Abschnitt 6.2.1) wurde die stationäre Wärmeleitungsgleichung 6.2.1 angewendet. Der Gültigkeitsbereich dieser Gleichung für die Berechnung von Leistungsrampen kann über eine einfache Rechnung abgeschätzt werden.

Die Anwendung der stationären Gleichung ist gerechtfertigt, wenn die Energiezunahme des Brennstoffes bei einer Temperaturerhöhung viel kleiner ist als die während der Rampe im Brennstoff erzeugten Energie. Bei einer Leistungsrampe von O auf χ in der Zeit Δ t wird die Energie

$$\Delta Q_1 = \int_{0}^{\Delta \tau} \dot{\chi} \cdot t \cdot dt = 1/2 \dot{\chi} \Delta t^2 = 1/2 \chi \cdot \Delta t$$

. .

pro Längeneinheit erzeugt. Im stationären Zustand stellt sich im Brennstoff ein parabolisches radiales Temperaturprofil der Form

$$\Delta T(r) = \chi \cdot (r_a^2 - r^2) / 4\pi \lambda_B r_a^2 \text{ ein, wenn } r_z = 0 \text{ ist.}$$

Dadurch erhöht sich die thermische Energie der Brennstoff-Längeneinheit um

$$\Delta Q_2 = \int_0^1 2\pi r \cdot \rho \cdot c \cdot \Delta T \, dr = \chi r_a^2 \cdot c \cdot \rho / 8\lambda_B$$

(C: spezifische Wärme).

~

Aus $Q_1 >> Q_2$ folgt dann:

$$\Delta t >> \cdot c \cdot \rho \cdot r_a^2/4\lambda_B$$

Setzt man für einen Oxidbrennstab C = 0,33 J/g und K, ρ = 10 g/cm³, r_a = 0,26 cm, $\lambda_{\rm B}$ = 0,02 W/cm K, so ist

und für einen Karbidbrennstab

mit C = 0,25 J/g K,
$$\rho$$
 = 12 g/cm³, r_a = 0,35 cm, λ = 0,17 W/cm K
 $\Delta t >> 0,6$ s.

Diese Voraussetzungen sind bei betrieblichen Leistungsänderungen, die alle im Minutenbereich oder noch langsamer ablaufen, immer sicher erfüllt.

Seien χ_1 und T_1 die Anfangswerte und χ_2 und T_2 die Endwerte von Stableistung und Hülltemperatur bei einer Leistungsrampe, und $\dot{\chi}$ die konstante Leistungsänderungsgeschwindigkeit. Dann beträgt die Rampendauer

$$t_{R} = (\chi_{2} - \chi_{1})/\dot{\chi}$$

Die Rampe wird durch einen treppenartigen Verlauf mit der Stufenhöhe $\Delta \chi$ angenähert. Dann beträgt die Zahl der Leistungsstufen

$$N_{R} = (\chi_{2} - \chi_{1}) / \Delta \chi$$

und die Zeitdauer jeder Stufe

$$\Delta t_R = t_R / N_R$$

Die Hülltemperaturänderung wird proportional zur Leistungsänderung angenommen:

$$\Delta T = [(T_2 - T_1)/(X_2 - X_1)] \cdot \Delta X = (T_2 - T_1)/N_R$$

Diese Diskretisierung kann in einem Rechenprogramm einfach über eine Programmschleife vorgenommen werden, in der ein Laufindex I die Zahlen 1,2,3.... N_R durchläuft und χ und T sich dann einfach nach

$$\chi(I) = \chi_1 + I \cdot \Delta \chi; \quad T(I) = T_1 + I \cdot \Delta T$$

berechnen. Mit den neuen Werten erfolgt dann eine Neuberechnung der Temperaturverteilung und daraus dann der Spannungen und Verformungen in jedem Zeitschritt Δt_R . Falls sich N_R nicht ganzzahlig ergibt, müssen in einem letzten Durchlauf $\chi = \chi_2$ und $T = T_2$ mit einem entsprechenden Δt_R gesetzt werden.

Die Genauigkeit der Rechnung hängt von der Größe von $\Delta \chi$ ab, eine sehr feine Unterteilung würde sehr viele Durchläufe der Programmschleife und entsprechend viel Rechenzeitaufwand erfordern. Der optimale Wert für $\Delta \chi$ wurde durch eine Parameterrechnung, bei der $\Delta \chi$ variiert wurde, bestimmt.

Dazu wurde mit dem Rechenprogramm die plastische Hülldehnung eines Brennstabes mit vergleichsweise weichem Hüllrohr für einen großen Leistungssprung (350 \rightarrow 500 W/cm) bei kleiner Leistungsänderungsgeschwindigkeit ($\dot{\chi}$ = 0,3 W/cm min.) berechnet. Die errechnete Hülldehnung wurde mit zunehmender Verfeinerung der Leistungsstufen geringer und wurde für $\Delta\chi$ < 5 W/cm konstant (Abb. 6.10). Im Programm wird daher (mit Berücksichtigung eines Sicherheitsspielraumes) ein Wert von 3 W/cm für Oxidbrennstäbe verwendet. Entsprechende Rechnungen ergaben für kaltverformtes Hüllmaterial einen doppelt so großen Wert.



Abb. 6.10: Abhängigkeit der errechneten Fließverformung vom Feinheitsgrad der Stufeneinteilung einer Leistungsrampe. Angenommene Parameter: Stableistungssprung von 350 nach 500 W/cm mit $\dot{\chi} = 0,3$ W/cm min ; Brennstab: Mischoxid, lösungsgeglühtes Hüllmaterial.

6.5.2 Wahl des Zeitschritts bei stationären Betriebsbedingungen

Unter stationären Betriebsbedingungen kann der Zeitschritt, für den das Programm die Verformungen von Brennstoff und Hülle berechnet, wesentlich größer sein als während der Leistungsrampe. Der jeweils optimale Zeitschritt wird vom Programm nach folgenden Kriterien berechnet:

- Bei großen Kontaktdrücken (z.B. nach einer Leistungserhöhung mit starker mechanischer Wechselwirkung) wird der Zeitschritt Δt so klein bemessen, daß die Hüllrohr-Tangentialspannung durch Kriechvorgänge nur um 5% abgebaut wird.
- 2. Bei offenem Brennstoff/Hülle-Spalt wird At gerade so groß angenommen, daß der Spalt durch die stationäre differentielle Schwellung von Brennstoff und Hülle geschlossen wird. Schwillt das Hüllrohr stärker als der Brennstoff, wird At = 200 h gesetzt.
- 3. Bei geschlossenem Spalt und stationärem Festkörperschwelldruck wird ein Zeitschritt von $\Delta t = 10$ h gewählt.
- Die Ausgabe von Zwischenergebnissen kann für wählbare Bestrahlungszeitintervalle erfolgen, z.B. alle 200 h oder 500 h. Der Zeitschritt wird dann entsprechend angepaßt.
- 5. Wenn im Programm mit instationärem Schwellen und Kriechen gerechnet wird, werden die Zeitschritte noch feiner als nach Punkt 1 und 2 unterteilt.

6.5.3 Flußdiagramm und Ablauf des Rechenprogramms INSTAT

Das Programm INSTAT ist in FORTRAN geschrieben und umfaßt mit den Unterprogrammen etwa 650 Statements (einzelne Programmanweisungen). Der Ablauf der Rechnungen läßt sich am einfachsten an Hand eines Flußdiagramms verdeutlichen (Abb. 6.11 und 12). INSTAT besteht aus einem Hauptprogramm und einer Anzahl von Unterprogrammen. Diese Unterteilung bringt wesentliche programmiertechnische Vorteile mit sich, auf die hier aber nicht eingegangen werden soll. In den Unterprogrammen werden z.B. die Material-Eigenschaftswerte oder der optimale Zeitschritt berechnet.

Das Hauptprogramm liest zunächst Rechenparameter und Konstanten sowie die Brennstab-Auslegungsdaten ein. Dann wird am Punkt I eine Programmschleife erreicht, die mit dem Einlesen der Betriebsdaten für ein Bestrahlungsintervall beginnt und innerhalb derer sämtliche Rechnungen ausgeführt werden. Diese Schleife kann verlassen (und damit die Rechnung beendet werden), wenn eine



(Den zwischen A und B liegenden Abschnitt zeigt Abb. 6.12)



Abb. 6.12: Teilabschnitt des INSTAT-Flußdiagramms

-79-

Intervalldauer <0 eingegeben wird. Über eine Kennzahl wird angegeben, ob eine Leistungsrampe von $\chi = 0$ oder vom Wert am Ende eines vorhergehenden Zyklus ausgehen soll. Bei einer Zwischenabschaltung wird eine nach dem Rißmodell (Abschnitt 6.2.3) berechnete Durchmesservergrößerung des Brennstoffringes vorgenommen. An der Stelle II verzweigt das Programm. Falls $\dot{\chi}$ > O eingegeben wurde, wird die Berechnung für eine Leistungsrampe mit der Stufenhöhe Ax vorgenommen. Für jede Leistungsstufe wird eine untergeordnete Programmschleife durchlaufen, die am Punkt III beginnt. Dort erfolgt zunächst eine Neuberechnung der Temperaturverteilung im Brennstab und dann eine Berechnung der Spannungen und der Verformungen im Zeitschritt (zwischen den Punkten A und B des Flußdiagramms, s. Abb. 6.12). Wenn sich die Stableistung erhöht hat, wird ein Unterprogramm aufgerufen, in welchem die Größe des Zentralkanals und die Restporosität im Brennstoff berechnet bzw. überprüft wird (ZENTKA). Am Ende dieser Schleife erfolgt eine Ausgabe von Zwischenergebnissen. Nach Erreichen der Endstableistung wird $\dot{\chi}$ auf den Wert O gesetzt, und es erfolgt die Ausgabe weiterer Zwischenergebnisse. Die Weiterrechnung für nunmehr stationäre Betriebsbedingungen erfolgt in einer kürzeren Programmschleife, weil die Neuberechnung der Temperaturverteilung entfällt. Wenn von vornherein $\dot{\chi}$ < O eingegeben wird, erfolgt keine Unterteilung in kleinere Leistungsstufen und ggf. eine Neuberechnung der Temperaturverteilung.

Bei der Berechnung der Spannungsverteilung wird unterschieden, ob der Spalt zwischen Brennstoff und Hülle geschlossen oder offen ist. Der Festkörperdruck wird bei geschlossenem Spalt in einem Unterprogramm (PKONT) berechnet. Anschließend werden die Spannungen im Brennstoff und Hüllrohr berechnet. Die Hüllrohr-Spannungen werden mit der Fließgrenze des Hüllrohrmaterials (aus Unterprogramm SIGFL) verglichen und ggf. die Fließverformung berechnet. Anschließend werden die Verformungsgeschwindigkeiten der Hülle und der Brennstoffoberfläche, die sich durch Kriechen, Schwellen usw. einstellen, berechnet (Unterprogramme HKRSU, BKRSU). Nach Ermittlung des optimalen Zeitschrittes werden die Verformungen im Rechenzeitintervall berechnet. Die Ausgabe erfolgt bei stationären Betriebsbedingungen für feste Zeitintervalle.

-80-

Der Umfang der Programmausgabe kann über einzelne Parameter im Programm beeinflußt werden. Zunächst werden die Experimentbezeichnung, die wesentlichen Rechenparameter und die Brennstabauslegungsdaten, die den nachfolgenden Rechnungen zugrunde liegen, ausgedruckt. Abb. 6.13 zeigt ein Beispiel einer solchen Ausgabe. Abb. 6.14 zeigt ein Beispiel einer vollständigen Ausgabe für ein Eingabeintervall. In diesem Intervall wurde die Stableistung von 250 auf 500 W/cm erhöht. Bei dieser Rechnung wurde die Leistungsrampe in 2 W/cm-Stufen berechnet, jedoch nur Zwischenergebnisse für die letzten 60 der 125 einzelnen Leistungsstufen ausgedruckt. Die Ausgabe enthält die aktuellen Werte von Stableistung und Hülltemperatur, die Spaltweite zwischen Brennstoff und Hülle, den Kontaktdruck, einzelne Spannungsund Temperaturwerte sowie den normierten Radius der plastifizierten Zone. Die Bezeichnungen und Dimensionen werden in einer Kopfzeile angegeben. In diesem Beispiel ist G < O, so daß mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle besteht.

> ANALYSE DES BESTRAHLUNGSEXPERIMENTES SNR-TYPISCH, REISPIELSRECHNUNG FESTE HAFTUNG ZWISCHEN BRENNSTEFF UND FLELLE,KEIN AXIALES GLEITEN DEHNUNGSUEBERSCHUSS DER HEISSEN INNENZENE UNTERDRUECKT TEMPERATURBERECHNUNG ERFELGT IN 50 RINGZENEN IM BRENNSTOFF

PREXIMATION DER	STABLEISTUNGSRAPPEN DURCH	TREPPENFUNKTION, STUFENFOEHE	2.0 %/04
-----------------	---------------------------	------------------------------	----------

BRENNSTABAUSLEGUNG		RECHNUNGSPARAMETER					
YUELLAL SSENDURCHMESSER UELLDICKE PRENSTOFFDIRCHMESSER SRENSTOFFDICHTE SCHMIERDICHTE LENUMTEMPERATUR RENNSTOFFVCLUMEN VLENUMVCLUMEN YUELLMMATERIALKENNZ. AC.ANFANGSSPALT	6.COC MM 0.38C MM 5.1CC MM 0.86C TC 0.815 TC 40C.C CEL 30.0C0 CC 20.CCC CC 1.4970 76.CCC MLM	REAKTCR ZYKLUSLAENGE 300. STD. SPALTUNGSENERGIE 203. PEV SPALTLEITFAEHIGKEIT 1.0CC W/CV**Z/K GASFREISETZUNGSRATE C.229CC AT/SPLTG KUEHLMITTELDRUCK 1.8 ATM PLASTIZITAETSEMPERATUR 1400. CELS INT.FLUSSABSENKUNG 1.0O RISSRAUHIGKEIT 2.00 MUM/RISS					

Abb. 6.13: INSTAT-Ausgabe der Rechen- und Brennstabauslegungsparameter

POSITIVE STABLEISTUNGSRAMPE												
SCHRITT	CH1 W/CM	TH CELS	SPALT' T MIKROM P	TANG.SPG	PL.SPG	PKONT	EPS PL 10**-3	RPL/RA	TA Cels	TZ CELS	BS•SPG KP/MH**2	AX.SPG KP/MM*2
ECCESSEECCES	=======================================	*********			**********				*******	********		ITTEIRI
60	380.0	527.7	-5.0	28.2	34.0	382.7	0.0	0.678	758.8	1815.2	-9.1	16.6
59 58	382.0 384.0	528.5 529.2	-5.1 -5.3	29.0 29.8	33.9 33.9	393.4 404.8	C.0 0.0	0.682 0.685	760.7 762.7	1824.0 1832.7	-9.5 -9.9	17.4 18.2
57 56	386.0 388.0	529.9 530.7	-5.4	30.5	33.8	414.3	0.0	0.689	764.6	1841.4	-10.3	18.9
55	390.0	531.4	-5.7	31.9	33.7	433.6	0.0	0.695	768.5	1858.7	-11.1	20.3
53	392.0 394.0	532.9	-5.8	32.7	33.5	443.8 451.8	0.0	0.699	770.4 772.4	1867.4	-11.5	21.1 21.7
52 51	396.0 398.0	533.6 534.3	-6.0	33.5 33.4	33.5 33.4	458.9 465.2	0.02	0.705	774.3 776.2	1884.6 1893.1	-12.3	22.2
50	400.0	535.1	-6.0	33.3	33.3	464.2	0.12	0.711	778.2	1901.6	-12.7	23.2
48	404.0	536.5	-5.9	33.2	33.2	461.9	0.23	0.717	782.0	1918.6	-13.0	24.0
46	406.0	537.3	-5.9	33.1 33.1	33.1 33.1	462•4 462•2	0.29	0.720	783.9 785.9	1927.1	-13.1	24.4 24.9
45 44	410.0 412.0	538.7 539.5	-5.8 -5.8	33.0 32.9	33.0 32.9	459.4 460.1	0.40	0.725	787.8 789.7	1943.8 1952.2	-13.4 -13.5	25.1 25.6
43 42	414.0	540.2	-5.8	32.9	32.9	457.6	0.51	0.731	791.6	1960.5	-13.6	25.9
41	418.0	541.7	-5.7	32.7	32.7	455.1	0.62	0.736	795.5	1977.1	-13.9	26.5
40 39	420.0 422.0	542.4 543.1	-5.7 -5.7	32.7 32.6	32.7	455•1 454=6	0.67 0.73	0.738 0.741	797.4 799.3	1985.4 1993.6	-14.0 -14.2	26.8 27.1
38 37	424.0 426.0	543.9 544.6	-5.7 -5.7	32.5	32.5 32.5	451.6 451.0	0.77	0.743	801.3 803.2	2001.8 2010.0	-14.2	27.3 27.6
36	428.0	545.3	-5.7	32.4	32.4	450.2	0.87	0.748	805.1	2018.1	-14.5	27.8
34	432.0	546.8	-5.6	32.3	32.3	447.3	0.96	0.753	809.0	2034.3	-14.7	28.1
33 32	434.0 436.0	547.5 548.3	-5.6 -5.6	32.2 32.1	32.2 32.1	444.7 443.0	1.00	0.755 0.758	810.9 812.8	2042.3 2050.3	-14.8	27.9 27.8
31 30	438.0	549.0 549.7	-5.7	32.0	32.0	442.6	1.07	0.760	814.7	2058.3	-15.0	27.8
29	442.0	550.5	-5.7	31.9	31.9	440.1	1.13	0.764	818.6	2074.2	-15.3	27.6
28	444.0	551.9	-5.7	31.9	31.9	440.4	1.20	0.767	820.5	2090.0	-15.4	27.6
26 25	448.0 450.0	552.7 553.4	-5.7 -5.8	31.9 31.9	31.9 31.9	439 . 1 437.6	1.23	0.771 0.773	824.4 826.3	2097.8 2105.6	-15.7 -15.8	27.6 27.5
24	452.0	554.1	-5.8	31.9	31.9	435.7	1.26	0.775	828.2	2110.4	-15.9	27.4
22	456.0	555.6	-5.8	31.8	31.8	434.1	1.28	0.778	632.1	2119.8	-16.1	27.3
20	458.0	556.3 557.1	-5.8 -5.8	31.8	31.8	433.6 433.8	1.29	0.780 0.782	834.0 836.0	2124.5	-16.2	27.2
19 18	462.0 464.0	557.8 558.5	-5.8 -5.8	31.8 31.8	31.8 31.8	433.8 432.9	1.31	0.763	837.9 839.8	2133.7	-16.5 -16.7	27.3
17	466.0	559.3	-5.9	31.8	31.8	433.5	1.33	0.787	841.7	2142.8	-16.8	27.3
15	470.0	560.7	-5.9	31.8	31.8	432.1	1.35	0.790	845.6	2151.8	-17.1	27.2
14 13	472.0 474.0	561.5 562.2	-5.9	31.7 31.7	31.7 31.7	431.6 431.1	1.35	0.792 0.793	847.5 849.5	2156.3 2160.7	-17.2	27.2
12	476.0	562.9 563.7	-5.9	31.7	31.7	431.0	1.36	0.795	851.4	2165.1	-17.5	27.1
10	480.0	564.4	-5.9	31.7	31.7	431.3	1.38	0.798	855.3	2173.8	-17.6	27.2
9 8	482.0	565.1	-6.0	31.7	31.7	430.6	1.38	0.800	857.2	2178.1	-17.9	27.1
7	486.0	566.6	-6.0	31.6	31.6	430.0	1.39	0.803	861.1	2186.6	-18.2	27.1
5	466.0 490.0	567.3	-6.0	31.6 31.6	31.6	429•4 429•1	1.39	0.804 0.806	863.0 864.9	2190.8 2195.0	-18.3	27.1 27.1
4 3	492.0 494.0	568.8 569.5	-6.0	31.6	31.6	429.3 428.4	1.40	0.807	866.9 868.8	2199.2	-18.6	27.1
2	496.0	570.3	-6.0	31.6	31.6	428.0	1.40	0.810	870.7	2207.4	-18.9	27.0
0	500.0	571.0	-6.1	31.5	31.6	427.8	1.40	0.811	872.1	2211.5	-19.0	27.0
ZEIT STO	ABBR %	TBA C	TZ C	SIGT MPA	SIGZ MPA	SIGV MPA	SIGB MPA	PGAS BAR	PCONT BA	R DMR-ZK	MM RPL/RA	SPALT MUM
EPSPL %	EPSTH %	EPSIR %	EPSSW 8	EPSTOT %	DHA MM	DBA MM	\$.DO\$15	S.FLUSS	DKOR MUM	LAEUF	E DA/DT 1/	H R.POROS
2504												
0.14	3.49 0.00	874.6	0.00	315.41	269.55 5.2991	441.34 5.3113	-192.01 •12E+23	30.0 •15E+16	427.8 114.1	1.64	0.813	-6.1 9.7
3600.0	3.50	874.6	2215.6	22.66	12.80	29.55	-1.11	30.1	32.4	1.64	1 0.812	-0.3
0.14	0.00	0.01	0.00	0.0	5.2991	5.2997	•12E+23	•15E+16	114.1	137	0.0	9.7
3800.0	3.76	874.6	2215.6	22.47 0.0	11.24	29.20	0.0	32.1	32.1	1.64	1 0.812	-0.4
4000.0	4 02	074 4	2215 /	24.00	12.00	21.10	•••••	-120.10	24.0	1.44		-0.4
0.14	0.00	0.01	0.00	0.0	5.2991	5.2998	•14E+23	•15E+16	114.5	413	0.012	9.7
4200.0	4.29	874.6	2215.6	25.52	12.76	33.17	0.0	36.3	36.2	1.64	1 0.812	-0.4
0.14	0.00	0.01	0.00	0.0	5.2991	5.3000	•15E+23	•15E+16	114.7	544	0.0	9.7
4400.0 0.14	4.55 0.00	874.6 0.01	2215.6 0.00	27.05 0.0	13.52 5.2991	35.17 5.2999	0.0 16E+23	38.3 15E+16	38.3 114.8	1.64 674	1 0.812 0.0	-0.4 9.7
4600.0	4-81	874.6	2215.6	28.61	14.30	37.21	0.0	40.4	40.4	1.64	1 0.812	-0.4 9.7
4800.0	5.07	874-4	2215-4	30.13	15-07	39,21	0.0	42.5	49-5	1 - 44	0.0 1 0.812	-()_4
0.14	0.00	0.01	0.01	0.0	5.2991	5.3000	.18E+23	+15E+16	115.1	921	0.0	9.7
5000.0 0.14	5.33 0.00	874.6 0.91	2215.6 0.01	31.66 0.0	15.83 5.2991	41.20 5.3001	0.0 .19E+23	44.5 •15E+16	44.5 115.2	1.64 1038	1 0.812 0.0	-0.5 9.7
5121.8 0.14	5.49 0.00	874.6 0.02	2215.6 0.01	32.59 0.0	16.29 5.2991	42.42 5.3002	0.0 .20E+23	45.8 •15E+16	45.8 115.3	1.64 1107	1 0.812 0.0	-0.5 9.7
			*** ENDE	DER ANALY	SE ***							
***********	*****	*********	****	********	******	****	****	****	*******	*****	****	144

HUELLAUFWEITUNG INSGESAMT 0.166 % ENTSPR. 10.0 MIKROM.

A68RAND 5.49 7 ENTSPR 46117. MWD/T ODER 52317. MWD/TM

AXIA. PLAST. DEHNUNG TOTAL 0.0

Abb. 6.14: Beispiel einer INSTAT-Ergebnisausgabe für eine Leistungsrampe und anschließender stationärer Stableistung

-82-

Bei χ = 396 W/cm erreicht die Tangentialspannung die Fließgrenze des Hüllmaterials und die Fließverformung setzt ein. In diesem Beispiel bleibt die Axialspannung unter der Fließgrenze. Am Ende der Leistungsrampe wird entsprechend dem Flußdiagramm für stationäre Stableistung weitergerechnet. Die Ausgabe erfolgt hier nach jeweils 200 h Bestrahlungszeit. Die Bedeutung der Zahlen ist auch hier dem Tabellenkopf in Abb. 6.14 zu entnehmen. Am Ende des Programms werden die totale Hülldehnung und der Abbrand ausgegeben.

Die verwendeten Daten für die thermischen und mechanischen Eigenschaften von Brennstoff und Hülle sind im Anhang aufgelistet. Die dortigen Angaben entstammen teils der internationalen Literatur, teils internen Empfehlungen aus dem eigenen Bereich. Viele dieser Beziehungen, etwa für die Hüllrohrschwellung, werden häufig revidiert. Daher sind die im Anhang angegebenen Werte nicht als endgültig anzusehen.

7. <u>Besondere Aspekte des Brennstoffverhaltens bei instationärer</u> Leistung

Die verwendeten Daten über Brennstoff-Schwellen und -Kriechen beruhen auf Messungen, die im Rahmen des Projektes Schneller Brüter vom Institut für Material- und Festkörperforschung des KfK durchgeführt wurden. Diese Daten sind zusammenfassend in /47/ dargestellt. Bei der Auswertung eigener Kriechexperimente konnte beobachtet werden, daß die Verformung des Brennstoffes bei Spannungsänderungen nicht allein durch stationäre Kriechoder Schwellbeziehungen beschrieben werden kann. Dieser Effekt ist u.U. von großer Bedeutung für die mechanische Wechselwirkung bei Leistungsänderungen, wird aber bislang in keinem der Modelle zur mechanischen Wechselwirkung berücksichtigt.

-83-

Der Volumenbedarf des Brennstoffes wird bei instationären Bestrahlungsbedingungen nicht nur durch die homogene Spaltproduktschwellung bestimmt, sondern durch Rißbildung und -ausheilung und durch Spaltproduktumverteilung gegenüber dem stationären Leistungsbetrieb vergrößert. Im folgenden Abschnitt werden diese Aspekte ausführlich behandelt. Dabei werden über Analysen eigener Bestrahlungsexperimente Relationen für eine Beschreibung der komplexen Vorgänge ermittelt, die in den Rechencode zur mechanischen Wechselwirkung eingebaut werden können. Zu den Resultaten dieses Abschnittes ist zu sagen, daß die Ergebnisse wegen der Vielzahl der Parameter und der geringen Anzahl experimenteller Daten vorläufigen Charakters sind und noch durch weitere Bestrahlungsexperimente abgesichert bzw. erweitert werden müssen.

7.1 <u>Nachweis beschleunigter plastischer Verformungen von Oxid-</u> und Karbidbrennstoff bei Spannungsänderungen

Im Rahmen der BR2-Versuchsgruppe Mol 12 konnten in zwei CONFLUENT-Bestrahlungskapseln (s. Abschnitt 5) Messungen des Bestrahlungskriechens von UO₂-PuO₂ (Mol 12B2) und (U,Pu)C (Mol 12B3) bis zu hohem Abbrand (7,7 bzw. 10,1%) durchgeführt werden. Transiente Verformungen bei Änderungen der Druckspannung oder Brennstofftemperatur wurden für Oxidbrennstoff erstmalig von Clough /44/ und später von Dienst am Mol 12B2-Experiment /45/ beobachtet. Sie können sich in zweifacher Hinsicht auf die mechanische Wechselwirkung beim zyklischen Leistungsbetrieb von SNR-Brennstäben auswirken:

- Bei einer Leistungserhöhung unter größerem Festkörperdruckaufbau kann eine transiente Kriechverformung des Brennstoffs das Hüllrohr entlasten.
- 2. Wenn bei einer Leistungsabsenkung wieder ein Spalt zwischen Brennstoff und Hüllrohr entsteht, wird der Brennstoff vom stationären Schwelldruck entlastet. Durch eine transiente Schwellung kann sich der Spalt in kurzer Zeit verkleinern und steht bei einer Wiederanhebung der Stableistung nicht mehr voll zur Verfügung.

Die zahlreichen Spannungsänderungen, die mit der CONFLUENT-Kapsel unter Bestrahlung durchgeführt wurden, ermöglichen innerhalb des untersuchten Parameterbereiches eine quantitative Beschreibung der transienten Deformationen.

7.1.1 Brennstoff-Probendaten

Die wesentlichen Daten der Brennstoffproben sind in Tab. 7.1 aufgeführt.

Experiment	Mol 12 B-2	Mol 12 B-3
Brennstofftyp	UO ₂ -PuO ₂	(U,Pu)C
Pu-Anreicherung	0.15	0.15
Pu spaltbar / Pu	0.9	0.71
Dichte (% TD)	86	96
O/M-Verhältnis	1.97	-
Tablettendurchmesser (mm)	5.1	5.1
Zentralbohrung (mm)	2.1	2.1
Tablettenhöhe (mm)	1	4
Anzahl der Tabletten	10	4

Tab. 7.1: Charakteristische Daten der Brennstoffproben der Mol 12B-Kriechexperimente

Der Oxidbrennstoff wurde aus mechanisch gemischtem UO_2 - und PuO_2 -Pulvern gesintert, dabei blieb die Pu-Verteilung stark inhomogen. Abb. 7.1 zeigt eine α -Autoradiographie einer Oxid-Brennstofftablette vor Bestrahlung mit plutoniumreichen Zonen in einer UO_2 -Matrix. Infolge der niedrigen Bestrahlungstemperaturen erfolgte keinerlei weitere Homogenisierung. Die Komponenten des Karbidbrennstoffs bildeten dagegen schon vor Bestrahlung einen vollständigen Mischkristall.



Abb. 7.1: α-Autoradiographie einer Mol 12B2-Brennstofftablette mit inhomogener Pu-Verteilung (Pu-reiche Zonen hell)

Die Bestrahlung erfolgte auf Reflektorpositionen im Versuchsreaktor BR2 (Mol) bei thermischen Neutronenflüssen zwischen 1,2 und 3,3·10¹⁴ n/cm²s. Mit fortschreitendem Abbrand wurden die Kapseln auf Positionen mit höherem Neutronenfluß gesetzt, um die abbrandbedingte Abnahme der Spaltungsrate im Brennstoff zu kompensieren. Tab. 7.2 enthält die wesentlichen Bestrahlungsdaten und Versuchsparameter. Die Längenmeßeinrichtung arbeitete während der gesamten Versuchsdauer einwandfrei. Bei der gewählten Dimensionierung des Kapsel-Gasspaltes konnten 750 bzw. 990 K Brennstofftemperatur nicht überschritten werden.

Experiment	Mol 12 B-2	Mol 12 B-3
Anzahl der Reaktorzyklen	10	15
Bestrahlungsdauer, total (h)	6500	8250
Abbrand (%)	7.7*	10.5**
Spaltungsdichte (Sp/cm ³)	1.89·10 ²²	3.44·10 ²²
mittl. Spaltungsrate (Sp/cm ² s)	8.1.10 ¹³	1.16.10 ¹⁴
Druckspannungsbereich (M/Pa)	2-30	2-40
Temperaturbereich (K)	560-750	690-990
abs. max. Spannungsände- rung (MPa)	20	38

Tab. 7.2: Bestrahlungsdaten der Mol 12 B-2 und B-3-Experimente (* aus radiochemischer Abbrandanalyse, **aus Thermoelementanzeigen errechnet)



Abb. 7.2: Gemessene Verformung einer Oxidbrennstoff-Probe unter Bestrahlung. Schrittweise Verringerung der Druckspannung in Abhängigkeit von der Zeit.



Abb. 7.3: Gemessene Verformung einer Oxidbrennstoff-Probe unter Bestrahlung bei Spannungserhöhungen in Abhängigkeit von der Zeit

Die Abb. 7.2 und 7.3 zeigen Beispiele der gemessenen Verformung des Oxidbrennstoffes bei Erniedrigung der Spannung (Abb. 7.2) und bei einer Spannungserhöhung (Abb. 7.3). Bei jeder Spannungserhöhung wurde über einen Zeitraum von ca. 50 h eine beschleunigte Verkürzung der Probe beobachtet, ehe die Deformationsrate konstant wurde. Bei Spannungsreduktion trat ein entgegengesetzter Effekt auf, d.h. eine verstärkte Schwellung, die ebenfalls jeweils etwa 50 h andauerte.

7.1.3 <u>Ermittlung einer quantitativen Beziehung für beschleunigte</u> Verformungen

7.1.3.1 Messungen und Auswertung

Insgesamt konnten 48 (Mol 12B2) und 29 (Mol 12B3) Bestrahlungsintervalle mit konstanter Druckspannung wie die in Abb. 7.2 und 7.3 ausgewertet werden. Die gemessenen Verformungen wurden zunächst im Hinblick auf thermische Dehnungen durch Leistungsschwankungen im Prüfling (infolge Änderungen des Neutronenflusses am Probenort bzw. durch den Abbrand) korrigiert. Dazu wurde jeweils am Anfang einer Reaktorbetriebsperiode eine Korrekturbeziehung zwischen der Längenänderung des Prüflings und der Probentemperatur ermittelt /46/.

Beim niederdichten Oxidbrennstoff wurde zu Beginn der Bestrahlung bei niedriger Druckspannung eine starke Nachsinterung beobachtet, die wegen der niedrigen Temperaturen nur über bestrahlungsinduzierte Vorgänge ablaufen konnte. Die Nachsinterung konnte über eine abbrandabhängige Restporosität beschrieben werden:

$$P = P_0/2 \cdot (1 + \exp(-A/0,005))$$
 (7.1)

(P_O: Sinterporosität, A: Abbrand in Metallatom-Anteilen, P: Restporosität).

Diese Beziehung wurde aus den Längenänderungs-Meßdaten der ersten 370 h Bestrahlungsdauer ermittelt. Die im weiteren Verlauf des Experiments gemessenen Verformungen wurden dann mit extrapolierten Werten von Gleichung 7.1 korrigiert. Bei der Karbidbrennstoffprobe mit 96% Sinterdichte wurde keine Nachsinterung beobachtet.

Nach der Korrektur der Meßwerte hinsichtlich thermischer Ausdehnung und Nachsinterung erhält man die Verformung des Brennstoffes, die sich nur noch aus der Spaltproduktschwellung und der Kriechverformung zusammensetzt. Abb. 7.4 zeigt die an der Mol 12 B-3-Karbidbrennstoffprobe gemessenen Verformungsgeschwindigkeiten, die unter der Annahme einer linearen Abhängigkeit von der Spaltungsrate auf 10¹⁴ Sp/cm³s normiert wurden, als Funktion der Druckspannung. In diesem Experiment war im Druckspannungsbereich zwischen 2 und 40 MPa die Schwellung stärker als die Kriechverformung, so daß die Probenlänge insgesamt zunahm. Bei dem Oxidbrennstoff im Mol 12 B2-Experiment wurden dagegen in demselben Druckspannungsbereich beträchtliche Verkürzungen der Probe beobachtet, die durch die viel höhere Kriechgeschwindigkeit des Oxidbrennstoffes unter Bestrahlung ermöglicht werden.

Die Separation der gemessenen Verformungen in einen Schwell- und Kriechanteil und die quantitative Parameterbestimmung konnte wegen der Vielzahl der Einzelmessungen mit einer statistischen Methode durchgeführt werden. Dabei wurde vorläufig angenommen, daß sich die gemessenen Verformungsgeschwindigkeiten $\dot{\epsilon}_n$ additiv aus stationärem Kriechen $\dot{\epsilon}_c$ und stationärer Spaltproduktschwellung $\dot{\epsilon}_s$ zusammensetzen:

$$\epsilon_n = \epsilon_s + \epsilon_c$$
 (7.2)



Abb. 7.4: Gemessene mittlere Verformungsgeschwindigkeiten einer (U,Pu)C-Probe unter Bestrahlung in Abhängigkeit von der Druckspannung (normiert auf eine Spaltungsrate von 10¹⁴ Sp/cm³s)

 $\hat{\epsilon}_s$ wird als Funktion der Spaltungsrate, des Abbrandes und der Temperatur angesetzt:

$$\varepsilon = f(R, A, T_{\rm B}) \tag{7.3}$$

Für die Kriechgeschwindigkeit wird zusätzlich die Spannungsabhängigkeit berücksichtigt:

$$\varepsilon_{\rm C} = f(R, A, T_{\rm B}, \sigma) \qquad (7.4)$$

Für ε_s und ε_c werden verschiedene Funktionsansätze mit unbestimmten Koeffizienten gemacht. Die Koeffizienten werden nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate bestimmt, so daß

$$Q = \Sigma \left(\frac{\dot{\epsilon}}{\epsilon_{ni}} - \dot{\epsilon}_{ni}\right)^2 = Minimum$$
 (7.5)

mit $\dot{\epsilon}_{ni} = \dot{\epsilon}_{s} + \dot{\epsilon}_{c} (\dot{R}_{i}, A_{i}, T_{Bi}, \sigma_{i})$ als den Werten der Approximationsformeln für die jeweiligen Parameter in der i-ten Messung. Als Approximationsfunktionen wurden zunächst lineare Ansätze gewählt, z.B.

$$\dot{\epsilon}_{s} = \dot{R} \cdot (C_{1} + C_{2} \cdot A)$$
 und $\dot{\epsilon}_{c} = \dot{R} \cdot \sigma \cdot (C_{3} + C_{4} \cdot A)$

Gleichung 7.5 wird erfüllt, wenn für alle Koeffizienten C_i die Bedingungen $\frac{dQ}{dC_i} = 0$ erfüllt sind.

Bei einem linearen Ansatz ergibt sich daraus ein lineares System von Bestimmungsgleichungen für die C_i , das direkt lösbar ist. Bei nichtlinearen Termen (z.B. σ^C) können die Koeffizienten über ein Standard-Iterationsverfahren bestimmt werden. Alle Rechnungen wurden im APLSV-Timesharingsystem des KfK mit den dort vorhandenen Bibliotheksprogrammen durchgeführt. Die Güte der Approximationsfunktionen wurde über den linearen Korrelationskoeffizienten zwischen den Meßwerten und den Fitwerten bestimmt. Der Korrelationskoeffizient zwischen den Zahlenmengen x_i und y_i (i=1...n) ist folgendermaßen definiert:

$$r_{xy} = \frac{\sum (x_i - \overline{x}) \cdot (y_i - \overline{y})}{(\sum (x_i - \overline{x})^2 \cdot \sum (y_i - \overline{y})^2)^{0,5}}$$

 $(\overline{x} \text{ und } \overline{y} \text{ sind die arithmetischen Mittel der } x_i \text{ bzw. der } y_i)$.

Ist $r_{xy} = \pm 1$, so ist der Zusammenhang zwischen den x- und y-Werten direkt bzw. indirekt linear. Ist $r_{xy} = 0$, so besteht kein linearer Zusammenhang. Ergibt sich ein Korrelationskoeffizient zwischen den Meß- und den Fitwerten, der nahe 1 liegt, so liegen die Punkte mit den Koordinaten x_i und y_i in einem x-y-Diagramm sehr nahe an der Winkelhalbierenden durch den Koordinatenursprung (vergl. Abb. 7.5).

Es ergeben sich z.B. für das Karbidbrennstoffexperiment Mol 12B3 und einen Ansatz der Form:

$$\overline{\epsilon}_n = (C_1 + C_2 \cdot \sigma) \cdot R$$

die Koeffizienten $C_1 = 8,58 \cdot 10^{-20} (\text{Sp/cm}^3 \text{s})^{-1}$ und C_2 zu -1,79 \cdot 10^{-21} (MPa \cdot \text{Sp/cm}^3 \text{s})^{-1}. Dieser Ansatz impliziert eine konstante Schwellrate und eine Kriechgeschwindigkeit, die linear von der Spaltungsrate und der Druckspannung abhängt, jedoch keine mögliche Temperatur- oder Abbrandabhängigkeit einschließt. Der Korrelationskoeffizient zwischen den Meßwerten und den Resultaten dieses einfachen Ansatzes beträgt 66%. Nach diesem Verfahren wurden zahlreiche Ansätze mit zunehmender Verfeinerung der Parameterabhängigkeit geprüft, auch mit Termen höherer Ordnung wie A^2 oder A·T. Dabei stellte sich heraus, daß die Meßwerte praktisch temperaturunabhängig waren; d.h. daß die Schwellung und die Kriechgeschwindigkeit im untersuchten Bereich nicht von der Temperatur abhingen. Weiter wurde für die Kriechgeschwindigkeit ein Spannungsexponent von 0,995 für den (U,Pu)C-Brennstoff bzw. von 1,12 für den Mischoxidbrennstoff gefunden. Im Rahmen der Meßgenauigkeit kann damit die lineare Abhängigkeit der Bestrahlungskriechgeschwindigkeit von der Spannung, die sich auch aus allen theoretischen Betrachtungen ergeben hat /48, 49, 50/, als sehr gut bestätigt angesehen werden.

Als beste Approximationsfunktion für die Beschreibung der gemessenen Verformungen durch eine <u>stationäre</u> Kriech- und Schwellgeschwindigkeit wurde ermittelt:

1. Mol 12B2, Oxidbrennstoff:

 $\varepsilon_{s} / h^{-1} / = 4,79 \cdot 10^{-20} \cdot R (Sp/cm^{3}s)^{-1}$ (7.6)

d.h. eine temperatur- und abbrandunabhängige Schwellung, die (Isotropie vorausgesetzt) einer Volumenschwellrate von 1,0 vol.% je % Abbrand entspricht.

 $\varepsilon_{c} / h^{-1} / = -5,60 \cdot 10^{-20} \cdot \sigma \cdot R (MPa \cdot Sp / cm^{3}s)^{-1}$ (7.7)

Die Meßergebnisse und die aus den Versuchsbedingungen nach Gleichung 7.6, 7.7 und 7.2 erhaltenen Werte sind zu 84,5% korreliert. 2. Mol 12B3, Karbidbrennstoff:

$$\hat{\epsilon}_{s}/[h^{-1}_{-7}] = (4,32+2,26\cdot10^{-21}\cdot R(sp/cm^{3})^{-1})\cdot10^{-20}\cdot R(sp/cm^{3}s)^{-1}$$
(7.8)

Dieses entspricht bei isotroper Schwellung einer Volumenschwellrate von (1,16 + 20 · A (Sp/Schw.At)⁻¹) vol.% je % Abbrand, d.h. einer temperaturunabhängigen und linear mit dem Abbrand anwachsenden Schwellrate

$$\epsilon_{c} / h^{-1} / = -1,45 \cdot 10^{-21} \cdot \sigma \cdot R (MPa \cdot Sp/cm^{3}s)^{-1}$$
 (7.9)

Die Bestrahlungskriechgeschwindigkeit der hochdichten Karbidbrennstoffprobe liegt um den Faktor 30 unter der der niederdichten Oxidbrennstoffprobe bei gleicher Spaltungsrate. Der Korrelationskoeffizient zwischen den gemessenen Werten und den Werten nach Gleichung 7.8, 7.9 und 7.2 beträgt in diesem Fall 81%.

In Abb. 7.5 sind die Formelwerte graphisch über den gemessenen Werten aufgetragen, der Abstand der Punkte von der Geraden $\dot{\overline{\epsilon}}_n = \dot{\epsilon}_n$ zeigt unmittelbar die Abweichungen der einzelnen Werte an. In diesem Diagramm sind die einzelnen Punkte danach markiert, ob gegenüber dem vorhergehenden Intervall die Druckspannung erhöht ($\Delta \sigma > 0$), konstant geblieben ($\Delta \sigma = 0$) oder verkleinert wurde ($\Delta \sigma < 0$). Hierbei ist deutlich schon die aus den Abb. 7.2 und 7.3 für den Oxidbrennstoff ersichtliche Tendenz zu erkennen, daß die gemessenen Verformungsgeschwindigkeiten zumeist gerade dann größer als die stationären Formelwerte ausfallen, wenn $\Delta \sigma < 0$ ist bzw. niedriger bei $\Delta \sigma > 0$. Daher ist die Annahme gerechtfertigt, daß Spannungsänderungen einen zusätzlichen Verformungsmechanismus auslösen, der sich den stationären Schwell- und Kriechverformungen überlagert.



Abb. 7.5: BR2-Karbid-Kriechexperiment Mol 12B3. Vergleich gemessener Verformungsgeschwindigkeiten mit den Formelwerten eines Ansatzes ohne spannungsänderungsabhängigen Term.

Zur Bestimmung der Parameterabhängigkeit dieses Verformungsmechanismus wird wieder dasselbe Verfahren angewendet, dabei geht man aus von der Differenz

$$\Delta \dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_n - \dot{\overline{\varepsilon}}_n$$

als dem Unterschied zwischen den gemessenen Werten und den Formelwerten nach Gleichungen 7.6-9 (in Abb. 7.5 entspricht $\Delta \dot{\epsilon}$ dem horizontalen Abstand der Punkte von der Geraden $\dot{\tau}_n = \dot{\epsilon}_n$). Für $\Delta \dot{\epsilon}$ wird ein entsprechender Approximationsansatz gemacht, der zusätzlich noch über Δt eine Zeitabhängigkeit einschließt. Δt ist die Zeitspanne zwischen der jeweiligen Messung und der vorhergehenden Spannungsänderung:

$$\Delta \dot{\varepsilon} = f (A, R, \Delta \sigma, \Delta t)$$

Für die integrale beschleunigte Verformung $\Delta \epsilon$ legen die Messungen einen asymptotischen Verlauf der Form
$$\Delta \varepsilon \sim 1 - \exp(-\Delta t/t_0)$$

nahe (Abb. 7.2 und 7.3) mit einer Zeitkonstanten t_0 , die die Geschwindigkeit der Annäherung an die stationäre Verformungsrate beschreibt. Für $\Delta \hat{\epsilon}$ ergibt sich dann

$$\Delta \varepsilon = 1/t_0 \cdot \exp(-\Delta t/t_0)$$

Weil im untersuchten Temperaturbereich alle Verformungen des Brennstoffes von der bestrahlungsinduzierten Plastizität kontrolliert werden, ist neben der Zeit auch die Spaltungsrate entscheidend. Deshalb wird der Ansatz

$$\Delta \epsilon \sim 1/t_0 \cdot \exp(-\Delta R/R_0)$$

mit $R_0 = \dot{R} \cdot t_0$ und $\Delta R = R \cdot \Delta t$ als differentieller Spaltungsdichte seit der Spannungsänderung gemacht.

Für den Proportionalitätsfaktor dieses Terms werden Ansätze der Form

$$C_1 + C_2$$
 · R bzw. C_1 · max { $O, R - R_K$ }

d.h. ein mit dem Abbrand wachsender Verlauf bzw. ein Einsetzen des Effektes erst oberhalb einer kritischen Spaltungsdichte R_{K} in Betracht gezogen.

Für die beiden Brennstofftypen ergeben sich folgende Resultate:

1. Mol 12B2 (Oxidbrennstoff)

$$\Delta \varepsilon = -3,24 \cdot 10^{-25} \cdot R \cdot \Delta \sigma \cdot (1 - \exp(-\Delta R/1,65 \cdot 10^{19}))$$
 (7.10)

2. Mol 12B3 (Karbidbrennstoff)

$$\Delta \epsilon = -2,23 \cdot 10^{-26} \cdot R \cdot \Delta \sigma^* \cdot (1 - \exp(-\Delta R/5,75 \cdot 10^{19}))$$
(7.11)

 $\Delta\sigma^*$ bedeutet, daß Spannungsänderungen nur bis zu einem Betrag von <u>+</u> 14 MPa wirksam sind und größere Spannungsänderungen zu keiner weiteren Vergrößerung der instationären Verformung führen. Für den Oxidbrennstoff wurde innerhalb des untersuchten $\Delta\sigma$ -Bereiches (<u>+</u> 20 MPa) kein entsprechender Grenzwert gefunden. Eine Spaltungsdichte von 5,75 \cdot 10¹⁹ bzw. 1,65 \cdot 10¹⁹ Sp/cm³ entspricht bei einer Spaltungsrate von 1¹⁰ Sp/cm³s einem Zeitraum von 160 h bzw. 46 h. Diese Zeiten verdeutlichen die Größenordnung der Abklingkonstanten für die beschleunigten Verformungen.

Durch die Berücksichtigung dieses Verformungsmechanismus verbessert sich die Korrelation zwischen den Meßwerten und den Formelwerten für das Mol 12B2-Experiment auf 96% und beim Karbidexperiment auf 91%. Abb. 7.6 stellt die zeitlichen Verläufe der beschleunigten Verformung für die Oxid- und Karbidprobe gegenüber, und zwar für $\Delta \sigma = 10$ MPa, $R = 10^{21}$ Sp/cm³, $\dot{R} =$ 10^{14} Sp/cm³s. Unter diesen Bedingungen macht die beschleunigte Verformung alleine eine Volumenänderung von 1,0% bei der Oxidprobe und 0,06% bei der Karbidprobe aus.



Abb. 7.6: Beschleunigte Verformung bei einer Spannungsänderung um 10 MPa für einen Oxid- und einen Karbidbrennstoff aus der Versuchsgruppe Mol 12B

7.1.3.2 Interpretation der Ergebnisse

Für beide Brennstofftypen wurde ein einheitliches Gesetz für beschleunigte Verformungen durch Spannungsänderungen gefunden:

$$\Delta \varepsilon = -C \cdot R \cdot \Delta \sigma \cdot (1 - \exp(-\Delta R/R_{o}))$$
(7.12)

Damit läßt sich das instationäre Verformungsverhalten im Bereich niedriger Temperaturen durch zwei Materialkonstanten vollständig beschreiben. C gibt dabei die Größe der maximalen transienten Verformung (bezogen auf die Spannungsänderung) und R_O die Geschwindigkeit an, mit der dieser Vorgang abläuft (bezogen auf die Spaltungsrate). Der relativ große Effekt beim Oxidbrennstoff kann durch einen Gleichgewichts-Einstellungsprozeß zwischen dem Druck von Spaltgasblasen an Korngrenzen im Brennstoff und dem äußeren Druck erklärt werden. Dabei muß weiterhin die inhomogene Spaltstoffverteilung in der untersuchten Brennstoffprobe beachtet werden (Abb. 7.1).

Bei niedrigen Temperaturen (<1300 K) bilden sich Spaltgasblasen erst oberhalb einer Abbrandschwelle, die etwa in der Größenordnung von 3-5% liegt. Bei inhomogener Spaltstoffverteilung im Probenmaterial ist die Spaltprodukterzeugung in reinen PuO₂-Teilchen etwa 20 mal höher als in der umgebenden UO₂-Matrix mit Natururan. Daher wird die Abbrandschwelle für die Bildung von Spaltgasblasen innerhalb der PuO₂-Teilchen bereits sehr früh überschritten und damit ein frühzeitiges Einsetzen des Effekts ermöglicht. Darüberhinaus kann auch mit einem Anteil bestrahlungsbedingten Primärkriechens mit einer eigenen Parameterabhängigkeit gerechnet werden. Dieser Anteil primären Kriechens kann aber mit der angewandten statistischen Auswertungsmethode nicht eindeutig von dem dominierenden Effekt (Spaltgasblasen) separiert werden /51/.

-98-

Die inhomogene Spaltstoffverteilung hat dann vermutlich auch einen Einfluß auf die Größe der Konstanten R_O. In /51/ wird abgeschätzt, daß R_O für einen Oxidbrennstoff mit homogener Spaltstoffverteilung die Hälfte des im Mol 12B2-Experiment bestimmten Wertes betragen müßte. In einem SNR-Brennstab würden die instationären Verformungen bei 400 W/cm Stableistung $(\dot{R} = 8 \cdot 10^{13})$ mit einer Zeitkonstanten von etwa 30 h ablaufen.

Bei 400 W/cm Stableistung beträgt der Festkörperschwelldruck des Brennstoffes gegen das Hüllrohr in Oxidbrennstäben größenordnungsmäßig 0,3 - 0,5 MPa (s. Abschnitt 9.1). Dabei liegt die Tangentialspannung im Brennstoff bei 1-2 MPa. Bei einer Leistungsabsenkung wird der Kontakt von Brennstoff und Hülle aufgehoben und die inneren Brennstoffspannungen relaxieren. Bei einem Abbrand von 5% $(10^{21} \text{ Sp/cm}^3)$ ergibt sich nach Gleichung 7.10 ein Spaltschließeffekt von 2 µm. Derselbe Betrag entspricht einer stationären Schwellung von etwa 200 h. In Karbidbrennstäben liegt die Verkleinerung des Spaltes durch instationäre Schwellung in derselben Größenordnung, weil der kleinere C-Wert in Gleichung 7.12 durch den größeren Schwelldruck kompensiert wird. Der Einfluß auf das Spaltschließen nach Stableistungsverminderung wäre nach diesen Ergebnissen relativ gering.

Aber es muß berücksichtigt werden, daß die Brennstofftemperaturen in Brennstäben oberhalb des untersuchten Bereiches liegen und somit im Hinblick auf das Spaltgasverhalten eventuell wesentlich größere Effekte zu erwarten sind. Dagegen kann bei Stableistungserhöhungen das Hüllrohr schon nach den vorläufigen Ergebnissen durch die beschleunigte Brennstoffverformung beträchtlich entlastet werden, denn hierbei können durch eine thermische Überschußdehnung des Brennstoffs kurzzeitig sehr hohe Kontaktdrücke auftreten. Die Verformungsmechanismen nach Gleichung 7.10 und 7.11 sind trotz ihres vorläufigen Charakters in die Oxid- bzw. Karbidversion des INSTAT-Codes aufgenommen worden und können bei Rechnungen (durch Wahl eines Eingabeparameters) entweder berücksichtigt oder vernachlässigt werden.

Mit den hier angegebenen Gleichungen wird der Effekt wahrscheinlich zu klein beschrieben, da das Temperaturniveau in Brennstäben beträchtlich höher als in den Experimenten liegt. Bei einer Unterschätzung des Effektes liegt man jedoch, was Aussagen über maximale zulässige Stableistungsrampenhöhen oder -änderungsgeschwindigkeiten betrifft, auf der sicheren Seite, weil die beschleunigten Schwell- und Kriechverformungen insgesamt für das Hüllrohr eine Entlastung bringen.

7.2 <u>Beschreibung des Schließvorganges für das thermische</u> <u>Schrumpfungsvolumen im Brennstab nach einer Leistungs-</u> reduktion

7.2.1 Spaltschließmechanismen

Im Leistungswechselbetrieb können Hülldehnungen nur dann auftreten, wenn das bei einer Leistungsabsenkung im Brennstab entstandene Leervolumen (Risse und Spalte durch differentielle thermische Schrumpfung) bei der folgenden Leistungserhöhung nicht mehr oder nur noch teilweise zur Verfügung steht. Neben der stationären und instationären Schwellung (Abschnitt 7.1) kommen noch weitere drei beschleunigende Mechanismen in Frage, durch die das verfügbare Leervolumen im Brennstab bei Teillast verkleinert werden kann:

- Riß-Rastmechanismus (siehe Abschnitt 6.2.3)
 Die Größe seines Effektes hängt über die Anzahl der bei Abschalt-Anfahrvorgängen erzeugten Risse quantitativ von der Größe der Leistungssprünge ab.
- Ausheilung von Rissen durch Materietransportvorgänge, Sinterung und stationäres Brennstoffschwellen. Diese Vorgänge werden durch hohe Temperaturen, hohe Abbrände und lange Teillastzyklusdauern begünstigt.

Beispiele für derartige Rißausheilungsmechanismen zeigen die Abb. 7.7 und 7.8. Abb. 7.7 zeigt teilweise ausgeheilte Abkühlungsrisse im äußeren Brennstoffbereich eines Brennstabes aus einer FR2-Kapselversuchsgruppe. Hierdurch wird zusätzliche, grobe Porosität in den Brennstoff eingebracht und damit der Volumenbedarf des Brennstoffs gegenüber einem Betrieb bei stationärer Stableistung erhöht. Abb. 7.8 zeigt die Blockade eines Risses in der äußeren Brennstoffzone durch den Transport von Hüllmaterial in den Brennstoff. In ähnlicher Anordnung werden auch häufig Verbindungen des flüchtigen Spaltprodukts Cäsium gefunden.

In den Bestrahlungsexperimenten der FR2-Loop-Versuchsgruppe 5 konnten einige Aufschlüsse über die Auswirkung der obengenannten Mechanismen gewonnen werden.

7.2.2 <u>Leistungs-Zyklierexperimente im Helium-Zentralloop</u> des FR 2 (Loop-Versuchsgruppe 5)

In diesen Experimenten wurden 7 mm dicke Oxidbrennstäbe mit Hüllrohren aus lösungsgeglühtem Incoloy 800, (Tab. A.1) einem vergleichsweise weichen Material, zyklisch bestrahlt und nach jedem Leistungszyklus vermessen (siehe Abschnitt 5.3). Die Tabelle 7.3 enthält eine Aufstellung der wesentlichen Bestrahlungsdaten aller Prüflinge dieser Versuchsgruppe.

Abb. 7.7: Rißblockade durch Ausheilungsvorgänge in der äußeren Brennstoffzone eines Oxidbrennstabes. Das Rißvolumen wird teilweise in grobe Brennstoffporosität umgewandelt (FR2-Versuchsgruppe 5a, Vergrößerung 100-fach)



Abb. 7.8: Rißblockade durch Materietransport (hier Hüllmaterial) (FR2-Versuchsgruppe 5a, Vergrößerung 500-fach)

Prüf- ling Nr.	Pu-Anr. %	ge me insam m.Prüfl. Nr.	Tabl. Dichte [% TD]	Bestr. Zyklen	Abbr rechn.	and [%] radioch.	FR2- Vermes- sung	Bestr. Zeit [h]	Hüllaufweitur Mittelwert Ausw.Zone	ng [µm] max.	max.Stab- leistung [W/cm]	max.Hüll - temperat. [°C]
19	6	21	84,3	6	0,36	-	+	450	13	20	520	730
20	6	22	85,0	9	0,58	0,58	+	853	12	36	440	740
21	6	19	92,3	6	0,33	-	-	450	10	13	520	730
22	6	20	93,0	9	0,53	0,54	-	853	-3	-3	440	740
23	6	39	92,3	7	0,40	-	-	449	16	23	490	740
29	18	DUMMY	92,8	16	1,16	1,27	+	2229	9	14	510	610
30	18	DUMMY	92,7	10	0,72	-	+	1556	5	7	500	600
39	6	23	84,5	7	0,43	-	+	499	8	10	490	740
43	18	44	93,0	20	1,59	1,60	+	2810	162	180	510	650
44	18	43	93,0	20	1,59	1,32	-	2810	22	23	510	650

Tabelle 7.3: Auslegungs- und Betriebsparameter und nach Bestrahlung gemessene Hüllaufweitung der Prüflinge der Loop-Versuchsgruppe 5

¥

.

Bei der gewählten Stabauslegung wird die Fließgrenze des Hüllmaterials bei 500 W/cm Stableistung bei einer Überschußdehnung des Brennstoffes von 8 µm (diametral) erreicht. Wenn bei einer Leistungsabsenkung ein Spalt > 8 µm entsteht, würde sich dieser bei 350 W/cm Stableistung und bei einer Brennstoffschwellrate von 1 vo.% je % Abbrand erst in 700 h um 8 µm reduzieren. Das bedeutet, daß bei ausschließlich stationärer Brennstoffschwellung erst nach Teillastzyklusdauern > 700 h plastische Hülldehnungen bei schneller Wiederanhebung der Stableistung auf Vollast auftreten können.

In einem Experiment dieser Versuchsgruppe mit sehr speziellen Betriebsbedingungen (Prüfling Nr. 43) konnten jedoch bereits nach beträchtlich kürzeren Teillastphasen plastische Hülldehnungen gemessen werden (Abb. 7.9). Dieser Brennstab wurde bei 350 W/cm Teillast und 650 ^OC Hüllaußentemperatur bestrahlt. Beim Übergang auf Vollast (500 W/cm mit $\dot{\chi} = 20$ W/cm min) wurde die Hülltemperatur gegenläufig auf 450 ^OC abgesenkt.



Abb. 7.9: FR2-Loop-Versuchsgruppe 5. Bereich gemessener plastischer Hülldehnungen nach einer Leistungsanhebung von 350 auf 500 W/cm und gegenläufiger Hülltemperaturabsenkung von 650 auf 450 °C, in Abhängigkeit von der Teillastzyklusdauer. Leistungsänderungsgeschwindigkeit 20 W/cm min.

Unter diesen Bedingungen setzten die plastischen Hülldehnungen schon nach etwa 6-10 h Teillastzyklusdauer ein, d.h. daß sich in diesem kurzen Zeitraum der Abkühlungsspalt schon um mindestens 8 µm verkleinert haben mußte. Mit wachsender Teillastzyklusdauer schließt sich der Spalt weiter um Beträge, die dann voll in plastische Hülldehnung umgesetzt werden. Nach etwa 20 h Teillastzyklusdauer tritt eine Sättigung der Hülldehnung bei etwa $\Delta D = 18 \ \mu m \ (\Delta D/D = 0,26\%)$ ein. Nach dieser Zeit hat sich der Abkühlungsspalt während der Teillastphase offenbar vollständig geschlossen. Das Diagramm Abb. 7.9 ist noch durch die Aussage zu ergänzen, daß kurze Vollastzyklen mit Zwischenabschaltung ("Teillast O") alleine noch zu keiner Hülldehnung führten. Hieraus läßt sich eine obere Grenze für den Riß-Rast-Effekt bei Abschaltung und Wiederanfahrten herleiten: An Hand des Schliffbildes Abb. 7.10 erkennt man ungefähr 10 Radialrisse und einen Umfangriß im Pellet. Aus der Bedingung, daß die Durchmesserzunahme < 8 µm war, ergibt sich gem. den Betrachtungen aus Abschnitt 6.2.3 eine obere Grenze von 2,5 µm je Riß für die Rißrauhigkeit RR.

In einem anderen Experiment aus dieser Versuchsgruppe (Prüfling Nr. 29) wurde die Leistung zwischen denselben Werten zykliert, die Hülltemperatur jedoch konstant auf 580 ^OC gehalten. Unter diesen Bedingungen wären plastische Hülldehnungen von 3 µm je Leistungszyklus möglich, wenn sich der Abkühlungsspalt vollständig schließt. Dieser Wert konnte nach einer Teillastzyklusdauer von 500 h tatsächlich gemessen werden. In einem Falle war dieses auch bereits nach 250 h der Fall, bei einer Wiederholung wurde aber keine Hülldehnung gemessen, ebenso auch nach 100 h Teillastzyklusdauer. Obwohl die Messungen in diesem Falle nicht so schlüssig und reproduzierbar waren wie im Experiment mit der gegenläufigen Hülltemperaturführung, kann man doch eine Tendenz zu wesentlich langsameren Spaltschließgeschwindigkeiten ablesen.

-105-



Abb. 7.10: FR2-Loop-Versuchsgruppe 5. Schliffbild des Prüflings Nr. 43.

Die Zunahme der Hülldehnung mit der Teillastzyklusdauer und der Hülltemperatur (650 ^OC gegenüber 600 ^OC nominal) weist auf den 2. Mechanismus, d.h. auf einen Rißausheilungseffekt hin. Da in diesen Experimenten der Abbrand unter 2% lag, kann eine beschleunigte Schwellung nach Abschnitt 7.1 ausgeschlossen werden, zumal der Brennstoff gut homogenisiert war. Auch wenn der Brennstoff in diesem Experiment nicht an der Hülle haftete (Abb. 7.10), können trotzdem Hülldehnungen über eine beschleunigte Rißausheilung im Teillastbetrieb stattfinden, nur befinden

sich dann die Risse im äußeren Bereich des Brennstoffes, wo die Temperaturen niedrig sind und die Voraussetzungen für eine Rißausheilung ungünstiger werden. Im Teillastbetrieb heilen die Abkühlungsrisse von innen her nach außen fortschreitend aus, und zwar bis zu einer Temperaturgrenze, deren Wert sich mit steigender Teillastzyklusdauer verkleinert. Bei einem hohen Temperaturniveau im Brennstoff bei Teillast ist dann der Ausheilungsgrad der Abkühlungsrisse größer als bei einem niedrigen Temperaturniveau, so daß geringe Unterschiede in Stableistung und Hülltemperatur schon großen Einfluß auf die Spaltschließgeschwindigkeit haben. In Abb. 7.11 sind die radialen Temperaturverläufe im Brennstab bei Teillast und Vollast für beide Prüflinge dargestellt. Bei der Temperaturberechnung wurden kleine Korrekturen in der Stableistung vorgenommen, um die Temperaturverläufe an die beobachteten Gefügeradien anzupassen /52/.



Abb. 7.11: Temperaturprofile der Brennstäbe 29 und 43 aus der FR2-Loop-Versuchsgruppe 5 bei Teillast (350 W/cm) und Vollast (500 W/cm). Die Hülltemperatur des Prüflings 29 beträgt konstant 600 °C, die des Prüflings 43 bei Vollast 450 °C, bei Teillast 650 °C. Wärmeübergangskoeffizienten: 1,0 bzw. 0,75 W/cm²K bei geschlossenem oder geöffnetem Brennstoff/Hüllrohr-Spalt.

Die Diagramme zeigen das höhere Temperaturniveau im Stab Nr. 43 bei Teillast im Vergleich zum Stab Nr. 29.

Nach den Versuchsergebnissen schien jedoch für die Ausheilungsgeschwindigkeit des thermischen Differenz-Schrumpfungsvolumens beim Übergang von Voll- auf Teillast nicht nur die Brennstofftemperatur, sondern auch die Größe des auszuheilenden Volumens maßgeblich zu sein. Die Differenzschrumpfung Δu_{rO} beträgt für den Stab Nr. 43 26 µm und für Nr. 29 11 µm. Zusammenfassend ergibt sich der folgende einfache Ansatz für die Kinetik des Spaltschließvorganges:

$$d(\Delta u_r)/dt = (u_{rO} - \Delta u_r)/\tau (\chi, \overline{T}_B)$$

Dabei ist Δu_r der Betrag der thermischen Differenzdehnung, der bei der Rückkehr zur Vollast nicht mehr zur Verfügung steht. Die Größe τ bezeichnet eine Zeitkonstante, die auf eine zunächst unbestimmte Weise von der Brennstofftemperatur während der Teillast und damit von der Stableistung und der Hülltemperatur abhängt. Dieser Ansatz führt auf

$$\Delta u_{r}(t) = u_{r0} \cdot (1 - \exp - (t/\tau))$$
 (7.13)

Diese Beziehung beschreibt den beobachteten asymptotischen Verlauf der Hülldehnung mit der Teillastzyklusdauer des Stabes Nr. 43 (Abb. 7.9) richtig. Aus den Meßwerten läßt sich ein Wert von 16 h für τ bestimmen. Eine entsprechende Abschätzung aus den Meßwerten des Prüflings 29 ergibt einen τ -Wert von ungefähr 80 h.

Die Größe τ ist ein Maß für die Geschwindigkeit der thermisch aktivierten Transportvorgänge bei der Rißausheilung im Brennstoff. Für die Temperaturabhängigkeit von τ kann daher ein Ansatz der Form

$$1/\tau \sim \exp(-E_A/R \cdot \overline{T}_B)$$

-108-

gemacht werden (E_A hat die Bedeutung einer Aktivierungsenergie, R ist die Gaskonstante, \overline{T}_B eine charakteristische Brennstofftemperatur). Setzt man für \overline{T}_B die mittlere Brennstofftemperatur unter Teillast-Betriebsbedingungen ein, so ergibt sich aus den beiden τ -Werten eine Aktivierungsenergie von größenordnungsmäßig 275 kJ/mol (66 kcal/mol). Auch wenn man die Brennstoffzentraltemperatur beider Prüflinge als Referenztemperatur einsetzt, ergibt sich ein ähnlicher E_A -Wert.

Dieser Ansatz für die Kinetik der Rißausheilung führt auf Aktivierungsenergien, die mit den bekannten Aktivierungsenergien für die Oberflächendiffusion in UO₂ übereinstimmen, die z.B. die Porenwanderungsgeschwindigkeit im Temperaturgradienten im Brennstoff bestimmt /53/. Messungen der Rißausheilung durch Zusammensintern von Bruchflächen an UO₂-Pellets ergaben Geschwindigkeiten, deren Temperaturabhängigkeit ebenfalls durch einen Arrhenius-Term mit einer Aktivierungsenergie von 64 kcal/mol beschrieben werden konnte /54/.

Die Beschreibung der Rißausheilung im Brennstoff durch eine Referenztemperatur kann jedoch nur eine sehr grobe Näherung sein, weil die Temperaturen in den beteiligten Bereichen im Brennstoff sehr unterschiedlich und die Geschwindigkeit der Materietransportvorgänge nichtlineare Funktionen der Temperatur sind. Aus den hier dargestellten Messungen ergibt sich kein Rückschluß darauf, welcher Bereich im Brennstoff oder welche Temperaturzone für die Blockade des Schrumpfungs-Differenzvolumens während der Teillastphasen maßgeblich ist. Auch wenn die hier ermittelten Daten noch nicht für eine Modellbeschreibung ausreichen, lassen sich jedoch qualitativ die beiden wesentlichen Parameter erkennen:

1. Die Differenzdehnung zwischen Brennstoff und Hülle bei einer Leistungsreduktion 2. Das Temperaturniveau im Brennstoff. Dieses hängt von der Stableistung und der Hülltemperatur ab. Dadurch werden im Bereich maximaler Stableistung die Voraussetzungen für eine Hülldehnung durch mechanische Wechselwirkung am ehesten erfüllt.

Genauere Aufschlüsse über die Zeit- und Temperaturabhängigkeit eines für plastische Hülldehnungen ausreichenden Ausheilungsgrades (bei ausreichenden Leistungshüben) können nur durch Leistungszyklierexperimente unter wahrscheinlichen SNR-Betriebsbedingungen gewonnen werden. Wegen dieser Unsicherheiten bei der quantitativen Beschreibung des Spaltschließverhaltens nach einer Leistungsabsenkung kann gegenwärtig noch kein Modell in den INSTAT-Code aufgenommen werden. Die Experimente zeigen zunächst, daß im Teillastbetrieb mit einer beträchtlich größeren "geometrischen" Schwellrate gerechnet werden muß als mit den für den stationären Leistungsbetrieb bei offenem Spalt gültigen Schwellraten, zumindest bei relativ hohen Teillaststableistungen (> 300 W/cm). Daher kann man für eine konservative Modellrechnung für die Bereiche eines Brennstabes mit hoher Stableistung bei langem Teillastbetrieb mit einer völligen Auffüllung des Schrumpfungsvolumens rechnen, wenn der Abbrand über der kritischen Grenze für das Einsetzen der mechanischen Wechselwirkung (s. Abschnitt 8.2) liegt. Bei längeren Brennstäben lagen die Hüllaufweitungsmaxima nach instationärer Bestrahlung im thermischen Neutronenfluß immer in der Nähe der Position höchster Stableistung, so daß für Auslegungsfragen in erster Linie diese axialen Positionen untersucht werden müssen (s. Abschnitt 9.4).

Bei hohen Leistungszyklierfrequenzen (z.B. Tag/Nacht-Rythmus) bei konstanter Hülltemperatur ist diese Annahme nicht mehr zutreffend. Dieses ergibt sich aus den Leistungszyklierexperimenten der Versuchsgruppe Mol 10 (s. Abschnitt 10), wo wesentlich kleinere Hülldehnungen gemessen wurden als auf Grund der Leistungsrampen bei voll ausgeheilten Abkühlungsspalten möglich gewesen wären. In der Oxidbrennstoffversion des Rechenprogrammes kann zunächst einfach die Schwellrate über einen Eingabefaktor beschleunigt werden, wodurch Parameteruntersuchungen zum Spaltschließen ermöglicht werden.

8.) <u>Kalibrierung des Rechencodes an Hand von Hüllaufweitungen</u> aus FR2-Bestrahlungsexperimenten

8.1 Experimentelle Grundlagen

In den FR2-Kapselversuchsgruppen 4b und 5b wurde eine größere Anzahl von kurzen Brennstäben bis zu hohem Abbrand bestrahlt (A ≤ 120 MWd/kgM ≜ 13%). Die Bestrahlung erfolgte in Kapselversuchseinsätzen (KVE) zu je 4 Brennstäben, die untereinander angeordnet waren. Die wichtigsten Brennstab- und Bestrahlungsdaten sind in den Tabellen 8.1 und 8.2 aufgeführt.

Die Hüllaufweitung der Stäbe zeigt nur eine sehr schwache Korrelation mit dem Abbrand (Abb. 8.1). Daraus läßt sich der Schluß ziehen, daß stationäre Effekte wie Spaltgasdruck und Brennstoffschwelldruck nur eine untergeordnete Rolle für die Hülldehnung gespielt haben. In seiner umfangreichen Analyse hat Gerken /16/ nachgewiesen, daß die Hüllaufweitungen mit der Instationarität des Bestrahlungsablaufes der Brennstäbe zusammenhängen.

Die Brennstäbe waren 170 mm lang, die aktive Länge betrug 80 mm. Die Anordnung der Brennstäbe innerhalb eines KVE's zeigt Abb. 8.2. Der Abstand der Mittelpunkte der Brennstoffsäulen betrug 420 mm. Durch die unterschiedliche axiale Position der Prüflinge war deren Stableistungsverlauf sehr unterschiedlich.

KVE	Stab/TE-	A	AD/D _{gem} .	X	^X max.	ΣΔχ	TH max.
	Pos.	MWd/kgM	%	W/cm	W/cm	W/cm	°C
47	2/4	87,4	1,4	321	496	503	574
	3/6	85,5	0,9	313	443	312	520
	4/7	85,3	0,5	313	417	128	520
48	5/2	78,3	1,4	324	466	392	543
	7/4	83,8	1,0	346	450	256	527
	8/6	74,3	0,7	309	423	298	500
	9/7	79,1	0,3	331	424	174	500
49	10/4	123,8	1,0	342	545	683	625
	12/6	110,4	0,8	309	476	393	554
	11/7	100,0	0,6	278	535	93	616
56	16/3	64,9	0,5	358	471	223	593
	17/5	62,7	0,15	349	463	142	585
	18/7	60,4	0,2	337	442	59	560
57	19/2	91,2	0,6	332	428	583	539
	20/5	87,8	0,4	321	426	307	542
	21/7	81,8	0,15	298	398	148	509
58	22/2	85,5	0,5	279	591	164	722
	23/5	109,1	0,4	352	529	244	661
	24/7	109,5	0,3	303	548	133	684

Tab. 8.1:Bestrahlungsdaten und Hülldehnung von Brennstäben der FR 2-Versuchsgruppe 4b
(Stabdmr. 6 mm, Hülldicke 0,38 mm, Brennstoffdmr. 5,1 mm, Brennstoffdichte
90%/84% TD, Hüllmaterial 1.4988)

Tab. 8.2:Bestrahlungsdaten und Hülldehnung von Brennstäben der FR 2-Versuchsgruppe 5b
(Stabdmr. 4,7 mm, Hülldicke 0,3 mm, Brennstoffdmr. 4 mm, Brennstoffdichte
86,2% TD, Hüllmaterial 1.4988)

KVE	ST/TÉ	A MWd/kgM	AD/D %	X mitt1.W/cm	X max.W/cm	ΣΔχ W/cm	T _H max. ^o C
77	2/3	118,4	1,00	388	498	394	470
	3/5	112,8	0,36	371	462	161	440
	4/7	110,1	0,15	361	452	34	421
80	5/2	111,3	0,90	345	442	644	423
	6/5	115,9	0,64	358	475	510	452
	7/7	115,9	0,53	358	469	271	446
81	1/2	86,9	0,77	351	475	406	515
	8/5	95,8	0,49	382	478	266	451
	9/7	90,6	0,15	361	410	99	395
82	10/2	85,2	0,87	339	434	429	448
	11/5	91,1	0,60	364	466	320	421
	12/7	92,6	0,34	369	456	168	434



Abb. 8.1: Gemessene Hüllaufweitungen von Brennstäben der FR2-Versuchsgruppen 4b und 5b in Abhängigkeit vom Abbrand

Während des Reaktorzyklus wurden die Trimmstäbe zum Ausgleich abbrandbedingter Neutronenflußänderungen langsam aus dem Core gezogen. Dadurch war der Leistungsverlauf für die unteren Prüflinge eines KVE wesentlich ungleichmäßiger als für die oberen Prüflinge, d.h. deren Leistung nahm während eines Zyklus stärker ab als die der oberen Prüflinge. Zu Beginn eines neuen Zyklus wurde durch Umladung oder Erneuerung von Reaktor-Brennelementen wieder ein gleichmäßigerer Leistungsverlauf über die Prüflinge eingestellt. Das hatte zur Folge, daß die Anfahrleistung für die unteren Prüflinge meistens beträchtlich über der



Abb. 8.2: Anordnung der Brennstäbe in einem KVE der FR2-Versuchsgruppe 5b

Leistung am Ende des vorhergehenden Zyklus lag. Diese Tendenz war für den oberen Prüfling eines KVE weit weniger ausgeprägt bzw. schon entgegengesetzt. Abb. 8.3 zeigt den Stableistungsverlauf für den oberen (5b4) und den unteren Brennstabprüfling (5b2) eines KVE.

Wenn man unterstellt, daß der Spalt zwischen Brennstoff und Hülle bei allen Brennstäben infolge der Brennstoffschwellung immer geschlossen bleibt, so erlebt der Brennstab 5b2 bei nahezu jedem Zyklusbeginn einen positiven Leistungssprung mit mechanischer Wechselwirkung, während dieses für den Prüfling 5b4 nur



Abb. 8.3: Zeitlicher Verlauf der Stableistung im thermischen Versuchsreaktor FR2 für zwei axial unterschiedlich angeordnete Brennstabprüflinge

selten der Fall ist. Die Hüllaufweitung des Prüflings 5b2 betrug nach Bestrahlung 1,0%, die des Prüflings 5b4 dagegen nur 0,15%. Bei den übrigen Brennstäben der Versuchsgruppe 4b und 5b ergibt sich dasselbe Bild: eine Zunahme der Hüllaufweitung mit der Größe und Anzahl der Stableistungssprünge am Anfang der Reaktor-Bestrahlungszyklen (s. Tabelle 8.1, 2; Spalten $\Delta D/D$ und $\Sigma \Delta \chi$). In Abb. 8.4 sind die Hülldehnungen einiger Brennstäbe aus der Versuchsgruppe 5b in Abhängigkeit von der Summe der positiven Stableistungssprünge $\Sigma \Delta \chi$ in der Bestrahlungsgeschichte aufgetragen. Die Korrelation beider Größen ist offensichtlich. Das bedeutet, daß die Hülldehnungen durch mechanische Wechselwirkung infolge thermischer Differenzdehnung zwischen Brennstoff und Hüllrohr bei Leistungserhöhungen verursacht werden.



Abb. 8.4: Gemessene Hüllaufweitungen der KVE 77, 78, 81 und 82 (VG 5b) aufgetragen über der Summe pos. Stableistungsänderungen

Wegen des klaren Zusammenhanges von Hülldehnung und instationärem Bestrahlungsablauf sind diese experimentellen Ergebnisse gut zur Kalibrierung eines Rechencodes geeignet. Ausgewählt für die Testrechnungen werden die 12 Testbrennstäbe aus der 5b-Serie, die einen Abbrand >3% aufwiesen und deren Hülldehnungen im Bereich zwischen $\Delta D/D = 0,15\%$ und 1,00% lagen.

8.2 Parameteranpassung im Rechencode

Wegen der einerseits großen Stableistungen, die bei den geringen Stabdurchmessern (4,7 mm in der VG 5b) sehr hohe Spaltungsraten bedeuten, und der langen Zyklusdauern im FR2 (~1000 h) andererseits kann für die Brennstäbe angenommen werden, daß der

-117-

Brennstoff auch bei fallender Stableistung am Zyklusende noch an der Hülle anliegt. Damit entfällt die Schwierigkeit, das Schwellverhalten richtig zu beschreiben, und es müssen nur noch die Parameter angepaßt werden, die während der Leistungserhöhungsphase wirksam werden. Dieses sind die folgenden Größen, die für Rechnungen mit dem Code angegeben werden müssen:

- 1. die Plastizitätstemperatur (T_{p1})
- der Wärmeübergangskoeffizient zwischen Brennstoff und Hüllrohr (h)
- 3. Der Riß-Rauhigkeitsparameter (RR)
- 4. Die Abbrandschwelle für das Einsetzen der mechanischen Wechselwirkung (A_{O}) .

Wegen der einheitlichen Auslegungsdaten innerhalb der Versuchsgruppe kann angenommen werden, daß die oben aufgeführten Parameter für jeden Brennstab zutreffen.

In einer ersten Rechnung wurden die Hülldehnungen der zwölf Stäbe mit folgenden Eingabewerten berechnet: $T_{pl} = 1500$ °C; $h = 1 \text{ W/cm}^2\text{K}$; RR = O; $A_0 = 0$. Bei dieser Rechnung (und auch in den folgenden) wurde freie axiale Ausdehnung des Brennstoffes angenommen. Als Leistungsänderungsgeschwindigkeit wurden 10 W/cm² min eingesetzt; dieses entspricht den Verhältnissen während der Endphase der FR2-Anfahrrampe. Weiter wurden die Haltezeiten bei 80% und 90% der vollen Reaktorleistung berücksichtigt.

In Abb. 8.5 sind die errechneten Hülldehnungen über den gemessenen Werten aufgetragen. Die Ordinatendifferenz zwischen dem Rechenwert und dem entsprechenden Wert auf der Winkelhalbierenden durch den Koordinatenursprung ist ein Maß für die Annäherung der Rechenergebnisse an die Meßwerte (siehe auch Abschnitt 7.1).



Abb. 8.5: Errechnete Hülldehnung als Funktion der gemessenen Hülldehnungen von Stäben der FR2-Kapselversuchsgruppe 5b. Plastizitätstemperatur: 1500 ^OC. Links Einzelwerte, rechts Ausgleichsgrade durch die Punkte.

Die Meß- und die Rechenwerte stimmen in der Tendenz überein, d.h. sie sind von derselben Größenordnung, und wo große Hülldehnungen gemessen wurden, wurden auch große Werte berechnet. Allerdings fallen die Rechenwerte zumeist deutlich größer als die gemessenen aus, vor allem bei großen Hüllaufweitungen. Dieses zeigt auch die Ausgleichsgerade durch die Punkte im linken Teil von Abb. 8.5 die im Idealfall mit der Winkelhalbierenden zur Deckung kommen müßte.



Abb. 8.6: Vergleich von gemessener und errechneter Hülldehnung der FR2-Versuchsgruppe 5b. Plastizitätstemperatur 1400 ^OC. Alle anderen Daten entsprechen Abb. 8.5

Dieselbe Rechnung ergibt mit einer auf 1400 ^OC erniedrigten Plastizitätstemperatur auch niedrigere Werte für die Hülldehnung. Durch die Annahme einer niedrigeren Plastizitätstemperatur wird der tragende Brennstoffring verkleinert und dessen Belastbarkeit entsprechend verringert. Die Übereinstimmung mit den Meßergebnissen ist in dieser Rechnung insgesamt besser als in der vorhergehenden, jedoch werden kleine Hülldehnungen zumeist zu niedrig, große Hülldehnungen jedoch zu groß berechnet (vergl. die Ausgleichsgerade auf der rechten Seite von Abb. 8.6).

Insgesamt gesehen wirkt sich eine Änderung der Plastizitätstemperatur nicht sehr stark auf die Rechenergebnisse aus. Ebenfalls recht unempfindlich ist das Modell gegenüber Änderungen des Wärmeübergangskoeffizienten zwischen Brennstoff und Hülle, h. Hier brachten Vergleichsrechnungen mit h = 0.8 bzw. h = 1.2 W/cm²K kaum merkliche Änderungen für die Hülldehnungswerte, so daß der Wert von $h = 1 \text{ W/cm}^2$ K in den folgenden Rechnungen beibehalten wird.

In den bisher erwähnten Rechnungen wurde ein sofortiges Schließen des Anfangspaltes und mit festem Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle unterstellt (A_O = O). Dieses geschieht jedoch erst im Verlaufe des Abbrandes durch Brennstoffschwellung sowie ggf. Rißbildung und Ausheilung im Brennstoff.

Der anfängliche radiale Kaltspalt beträgt für alle Stäbe aus der Versuchsgruppe 5b 75 µm. Beim Hochfahren in den Stableistungsbereich zwischen 400 und 500 W/cm verringert sich der Spalt durch thermische Differenzdehnung auf 50 bis 55 µm. Selbst wenn man für die äußere Brennstoffzone eine Schwellrate von 1,2 Vol.% je % Abbrand annimmt, würde der Spalt in einem Stab der Versuchsgruppe 5b erst nach einem Abbrand von etwa 5% geschlossen sein, wobei eine evtl. Nachsinterung des Brennstoffes vernachlässigt würde. Es hat sich jedoch gezeigt, daß die Spaltschließgeschwindigkeit zu Anfang der Bestrahlung größer ist als die mittlere stationäre Schwellgeschwindigkeit des Brennstoffs. Für den Brennstoff-Hülle-Kontakt wurde eine Abbrandschwelle von 3 bis 4% vorgeschlagen /55/.

Die Rechenergebnisse mit A_O = 3% bzw. 4% sind in Abb. 8.7 dargestellt. In beiden Fällen fällt die errechnete Hülldehnung fast immer zu klein aus. Daraus kann gefolgert werden, daß der Wert von 3 bis 4% wahrscheinlich zu hoch liegt. Wegen des großen Einflusses dieses Parameters soll zunächst untersucht werden, über die große Anzahl der Meßdaten Rückschlüsse auf einen besser zutreffenden Wert zu finden.



Abb. 8.7: Vergleich gemessener und errechneter Hülldehnungen von Brennstäben der FR2-Versuchsgruppe 5b. Parameter: Abbrandschwelle A_O für das Einsetzen der mechanischen Wechselwirkung. Alle übrigen Daten wie in Abb. 8.6.

Dazu soll zunächst ein bereits bestehender Ansatz für das beschleunigte Spaltschließen diskutiert werden. Als Ursache für die erhöhte Spaltschließgeschwindigkeit wird ein als eine "radial relocation" bezeichneter Effekt angesehen, ein Riß-Rastmechnismus im Brennstoff, der beim Leistungszyklieren auftritt und eine Verschiebung der Brennstoffoberfläche in Richtung Hüllinnenwand hervorruft /56/. Dieser Ansatz zur Beschreibung des Spaltschließvorgangs durch Brennstoffschwellung und "radial relocation" der Brennstoffragmente ist die Spaltschließformel von Dutt, die durch Anpassung an experimentelle Daten aus Schliffbildern bestrahlter Brennstäbe gewonnen wurde /35/. Nach dieser Formel ergibt sich für die Stäbe der Versuchsgruppe 4b und 5b ein Schließen des Spaltes bei ungefähr 1,1%

Abbrand. Dieser Wert ist jedoch zweifellos zu niedrig. Die erwähnte Formel ist wahrscheinlich nicht ohne weiteres auf die. hier behandelten Experimente übertragbar, weil ein Verschwinden des Fertigungsspaltes zwar eine Verbesserung der Wärmeübertragung an das Hüllrohr zur Folge hat, aber noch keinen hinreichend festen Kontakt für eine starke mechanische Wechselwirkung bedeutet. Es ist daher bei der Erstellung von Spaltschließmodellen zu unterscheiden, ob die Einstellung eines "mechanischen" oder nur "thermischen" Kontaktes beschrieben werden soll. Bei der Erstellung der Spaltschließformel wurden außerdem Ergebnisse von Bestrahlungsexperimenten herangezogen, in denen die Stableistung zwischen 170 und 410 W/cm und die Brennstoffdichte oberhalb 91% TD lag. In den hier behandelten Experimenten betrug die Brennstoffdichte zumeist 96% TD, so daß hier ein möglicher größerer Nachsinterungseffekt unberücksichtigt bliebe. Wesentlich ist auch noch die Stableistung, die bei Bestrahlungsbeginn ~480 W/cm betrug. Nach der Dutt-Formel ist am Anfang der Bestrahlung die Spaltschließgeschwindigkeit proportional dem Quadrat der Stableistung. Die Extrapolation auf 480 W/cm liefert wahrscheinlich auch eine zu hohe Spaltschließgeschwindigkeit und damit eine zu niedrige Abbrandschwelle. Der zutreffende Wert liegt jedenfalls im Bereich zwischen 1% und 4% Abbrand und soll im folgenden aus den Meßergebnissen ermittelt werden.

Im rechten Teil von Abb. 87 sind die Ausgleichsgeraden für die Meßpunkte aus den Abb. 8.6 und 8.7 gegenübergestellt. Trotz der großen Abweichungen der Meßpunkte von der Ausgleichsgeraden kann man diese trotzdem für eine statistische Aussage heranziehen. Für A_O >~3% sind die Meßwerte durchweg größer als die errechneten Werte, man kann daher schließen, daß die aufgetretenen Hülldehnungen nicht ausschließlich durch die Stableistungsdifferenzen zwischen den Reaktorzyklen erklärt werden können. Es ist zu vermuten, daß auch spontane Hülldehnungsbeiträge durch nicht ausheilbare Rauhigkeit (RR), der bei Leistungszyklen gebildeten und wieder geschlossenen Risse auftreten.

-123-

Daher ist es gerechtfertigt, einen Wert für RR > O anzusetzen. Da alle Brennstäbe die gleiche Anzahl von Bestrahlungszyklen aufweisen, ist der Einfluß der Riß-Rastmechanismen für alle Stäbe etwa derselbe. Bei Vernachlässigung des Effektes müssen die Rechenwerte alle im Mittel um einen konstanten Betrag unter den Meßwerten liegen. Die Ausgleichskurve durch diese Punkte verläuft dann unterhalb parallel zur Winkelhalbierenden.

Die Steigung der Ausgleichsgeraden beträgt für $A_O = 0$ % 1,98; für $A_O = 3$ % 0,93 und für $A_O = 4$ % 0,73. Eine parabolische Interpolation liefert für $A_O = 2,7$ % einen Wert von 1 für die Steigung der Ausgleichsgeraden. Jetzt kann durch eine Variation von RR bei festgehaltenem A_O die beste Anpassung der Ausgleichsgerade an die Winkelhalbierende gesucht werden. Abb. 8.8 zeigt das Ergebnis der besten Anpassung, die mit RR = 1,0 µm je Riß erzielt wurde. Die Steigung der Ausgleichsgeraden beträgt 1,03; ist also durch die Berücksichtigung von RR praktisch nicht beeinflußt worden.

Damit sind die erforderlichen Modellparameterwerte für die Brennstäbe aus der Versuchsgruppe 5b bestimmt worden.



Abb. 8.8: Vergleich gemessener und errechneter Hülldehnungen aus der FR2-Kapselversuchsgruppe 5b. Alle Daten wie Abb. 8.7. Der Parameter R ist ein Relativwert für die Rißrauhigkeit, R = 0,2 entspricht einer Rißrauhigkeit RR von 1,0 μm je Riß)

-125-

8.3 Übertragung der Resultate auf andere Experimente

Das Ergebnis und die Bestimmungsmethode bedürfen noch einiger Kommentare. Zunächst muß noch überprüft werden, ob das Ergebnis eindeutig ist, oder ob andere Kombinationen, etwa von T_{pl} und RR, dieselbe oder auch sogar eine bessere Übereinstimmung von Meßwerten und Rechenwerten erbringen können. Dieses wurde in einer Reihe weiterer Rechnungen untersucht, dabei wurde gefunden, daß die oben beschriebene Lösung tatsächlich die beste Übereinstimmung im Sinne der kleinsten Fehlerquadratsumme ist. Die Fehlerschranken für die gefundenen Parameter sind sehr schwierig anzugeben, weil einmal die Unsicherheiten in den verwendeten Materialeigenschaften z.T. beträchtlich sind (vor allem der thermische Ausdehnungskoeffizient, die Brennstoff-Wärmeleitfähigkeit und die Bestrahlungskriechgeschwindigkeit) und zum anderen auch,weil die modellbedingten Vereinfachungen zu Fehlern führen können, die nur schwierig abzuschätzen sind.

Rückschlüsse auf die Unsicherheit der Rechenparameterwerte lassen sich z.B. durch Vergleichsrechnungen mit anderen experimentellen Ergebnissen gewinnen. Daher wurde eine Berechnung der Hülldehnungen der FR2-Versuchsgruppe 4b durchgeführt, wobei die über die Anpassung des Rechencodes an die Ergebnisse der Versuchsgruppe 5b ermittelten Parameter T_{pl} , A_0 , RR und h eingesetzt werden. Diese Rechnung wurde ebenfalls für 12 Stäbe durchgeführt. Es wurden wieder nur Stäbe mit einem Abbrand >4% herangezogen. Weiterhin wurden Stäbe, deren Hülltemperatur bei der Bestrahlung zeitweise oberhalb 700 $^{\circ}$ C lag, ausgenommen, weil hier bereits unter stationären Bestrahlungsbedingungen Kriechdehnungen des Hüllrohrs möglich sind.

Abb. 8.9 zeigt die Ergebnisse dieser Rechnung. Die Übereinstimmung ist recht befriedigend. Die Hülldehnungen werden i.a. etwas zu niedrig berechnet, und der Verlauf der Ausgleichsgeraden läßt auf einen größeren Wert für A_O als 2,7% schließen.



Abb. 8.9: FR2-Versuchsgruppe 4b. Vergleich gemessener und errechneter Hülldehnungen. Parameter entsprechen der Optimierung für die Versuchsgruppe 5b. (h = 1 W/cm² K; T_{pl} = 1400 °C; A₀ = 2,7%; RR = 1 μm je Riß)

Eine erneute Optimierungsrechnung ergab für $A_0 = 3,1$ %, und entsprechend muß ein größerer Rechenparameter eingesetzt werden, um die Hülldehnungen größenordnungsmäßig anzupassen. Das Resultat ist: RR = 1,7 µm je Riß.

Da die Stäbe aus der Versuchsgruppe 4b sich im Stabdurchmesser und z.T. in der Brennstoffdichte von den 5b-Stäben unterscheiden, ist keine allgemeine Gültigkeit der Rechenparameterwerte zu erwarten. Der Vergleich beider Resultate gibt somit einen ungefähren Aufschluß über die Unsicherheit und/oder den Wertebereich der Parameter. Da die Brennstäbe der Versuchsgruppe 4b eher der SNR-Auslegung entsprechen, wird in den folgenden Rechnungen ein Wert von $A_O = 3$ % und RR = 1,5 µm verwendet, d.h. ein Mittelwert aus beiden Ergebnissen mit etwas stärkerer Wichtung des 4b-Ergebnisses.

9.) Anwendungen des INSTAT-Codes

-127-

Durch seinen allgemein gehaltenen Aufbau ist "INSTAT" sowohl für Parameterstudien als auch für die Analyse plastischer Hülldehnungen aus Bestrahlungsexperimenten geeignet. In Parameterstudien können die Auswirkungen von Änderungen der Brennstab-Auslegung (Hüllmaterialtyp, Brennstoffdichte etc.) und der Einfluß der Betriebsbedingungen (Stableistung, Hülltemperatur, Leistungsänderungsgeschwindigkeit) untersucht werden.

9.1 Brennstoffschwelldruck bei stationärer Stableistung

In einer Parameterrechnung wurde der Brennstoffschwelldruck für einen Oxidbrennstab mit hochdichtem Brennstoff bei konstanter Stableistung berechnet. Bei dieser Rechnung wurde ein Zentralkanaldurchmesser von 1,0 mm und eine Restporosität im tragenden Brennstoffring von 7% angenommen. Dieselbe Rechnung wurde zum Vergleich für einen Karbidbrennstab mit 15% Brennstoffporosität durchgeführt. Bei diesen Rechnungen wurde eine plastische Verformung des Hüllrohres ausgeschlossen. Abb. 9.1 zeigt die Ergebnisse.

Bei niedrigen Stableistungen liegt der Brennstoffschwelldruck im Oxidbrennstab oberhalb 50 MPa; der Brennstoff verformt sich durch Heißpressen in die Poren und nur in geringem Maße durch Kriechen in den Zentralkanal. Wenn bei steigender Stableistung die Brennstoffzentraltemperatur die Plastizitätstemperatur T_{pl} überschreitet, verringert sich der Schwelldruck sehr stark, weil der Brennstoff von innen her plastifiziert wird, und weil sich die Plastizitätsgrenze im Brennstoff wegen des flachen Temperaturprofils im Brennstabinneren (Abb. 6.3, 6.4) sehr schnell nach außen verschiebt. Bei Stableistungen >300 W/cm liegt der Schwelldruck dann unterhalb 0,3 MPa.



Abb. 9.1: Brennstoffschwelldruck als Funktion der Stableistung, berechnet mit dem INSTAT-Code für einen Oxid- und Karbidbrennstab mit SNR-typischer Auslegung. (Schwellrate: Oxid 1,0; Karbid : 2,0 vol.% je % Abbrand; Hüllmaterial: 1.4970)

Wegen der viel besseren Wärmeleitfähigkeit des Karbidbrennstoffes bildet sich erst bei Stableistungen oberhalb 650 W/cm eine plastifizierte Zone aus, die zu einer Reduktion des Schwelldruckes führt. Wegen der stärkeren Schwellung des Karbidbrennstoffes und der niedrigeren Kriechgeschwindigkeit liegen die Schwelldrücke gegenüber dem Oxidbrennstoff (bei gleichem Anteil plastifizierten Brennstoffes) um etwa den Faktor 20 höher.

Die Abnahme des Schwelldruckes mit ansteigender Stableistung kommt jetzt nur durch die thermische Plastifizierung des Brennstoffes zustande. Die Änderungen der Spaltungsrate mit der Stableistung haben kaum Einfluß auf das Gleichgewicht von Schwellen und Bestrahlungskriechen des tragenden Brennstoffringes, da die Schwellrate nicht und die Bestrahlungskriechgeschwindigkeit nur sehr schwach temperaturabhängig ist, und da beide Größen linear von der Spaltungsrate abhängen. In Brennstäben der üblichen SNR-Geometrie betragen die Hüllrohr-Tangentialspannungen nach Gleichung 6.4.29 etwa das 7fache des Kontaktdruckes und liegen für Oxidbrennstäbe oberhalb 250 W/cm Stableistung im Bereich zwischen 1 und 10 MPa. Bei Spannungen dieser Größenordnung sind noch keine nennenswerten Hüllaufweitungen durch thermisches Hüllkriechen zu erwarten, wenn die Hülltemperatur nicht weit oberhalb des Auslegungsbereiches liegt. Hier sind Hüllaufweitungen nur unter besonderen Bedingungen (sehr hohe Hülltemperaturen, kleines Spaltgasplenum) durch den Spaltgasdruck zu erwarten, der bei höheren Abbränden mehr als eine Größenordnung über dem Festkörperschwelldruck liegt. Nur bei sehr niedrigen Stableistungen werden hohe Kontaktdrücke errechnet, die in diesem Beispiel bei χ = 120 W/cm so hoch werden, daß Hüllrohrfließen einsetzt. Diese Grenze ist in Abb. 9.1 durch eine gestrichelte Linie gekennzeichnet. Derartig niedrige Stableistungen sind allenfalls denkbar an den Brennstabenden und bei sehr niedriger Reaktorleistung. Da sich aber unter diesen Umständen überhaupt erst nach sehr langen Zeiten ein Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle einstellt (s. Abschnitt 7.2), kann auch für diesen Spezialfall ausgeschlossen werden, daß Hülldehnungen durch mechanische Wechselwirkung möglich sind.

Im Gegensatz dazu besteht für Karbidbrennstäbe praktisch für alle technisch in Frage kommenden Stableistungen die Möglichkeit von Hülldehnungen durch mechanische Wechselwirkung bei stationärer Stableistung. Hierfür ist in erster Linie die relativ niedrige Brennstoff-Kriechgeschwindigkeit unter Bestrahlung die Ursache und erst in zweiter Linie die größere Schwellrate. Hülldehnungen lassen sich hier nur dadurch wirkungsvoll vermeiden, daß man das Schließen des Spaltes zwischen Brennstoff und Hülle möglichst lange hinauszögert. Wenn jedoch ein fester Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle besteht, wird die mechanische Wechselwirkung mit steigender Stableistung geringer. Eine derartige Tendenz konnte in einem Karbid-Bestrahlungsexperiment bestätigt werden (s. Abschnitt 9.5). In dem beschriebenen Modell führt eine höhere Brennstoff-Bestrahlungskriechgeschwindigkeit immer zu einer Verringerung des Schwelldruckes und damit auch zu kleineren Hüllaufweitungen. Dieses entspricht den Ergebnissen der meisten Rechencodes, steht aber im Gegensatz zu den Aussagen des LIFE-Rechencodes (s. Abschnitt 3.).

Die Ergebnisse für den Kontaktdruck in der Zweizonen-Modell-Näherung stimmen sehr gut mit den Ergebnissen eines französischen Rechencodes überein, der eine feinere Zonenunterteilung des Brennstoffbereiches vornimmt. In einer Vergleichsrechnung ergaben sich nur für sehr niedrige Stableistungen nennenswerte Abweichungen in den berechneten Kontaktdrücken /58/.

9.2 <u>Leistungsrampen mit Kontakt zwischen Brennstoff und Hüll-</u> rohr. Primärer Einfluß der Stableistung und der Hülltemperatur

Für einen SNR-Brennstab mit 1,4970-Hülle (kaltverformt + ausgelagert) und Auslegungsdaten entsprechend dem Mol 10/1-Prüfling (siehe Abschnitt 10) wurde die Hüllrohr-Fließdehnung für Leistungsrampen von 70% auf 100% Stableistung berechnet, dabei wurde die Größe der 100%-Stableistung zwischen 250 und 550 W/cm variiert. Es wurde jeweils angenommen, daß zu Beginn der Leistungsanhebung Fertigungs- oder Abkühlungsspalte geschlossen sind und daß sich Brennstoff und Hülle von Anfang an in losem Kontakt befinden. Als Leistungsänderungsgeschwindigkeit wurde der hohe Wert von 20 W/cm min angenommen. Bei dieser Änderungsgeschwindigkeit ist der Spannungsabbau durch Brennstoffbestrahlungskriechen ohne Einfluß (s. Abschnitt 9.3). Die Hüllaußentemperatur wurde während der Rampe konstant gehalten, und zwar auf jeweils 500, 550 oder 600 °C. Die Rechnungen wurden sowohl unter Annahme ungehinderten axialen Gleitens ($\mu = 0$) als auch vollständiger axialer Kopplung von Brennstoff und Hüllrohr vorgenommen ($\mu = \infty$).

Abb. 9.2 zeigt die Ergebnisse der Rechnung für den Fall $\mu = \infty$ bzw. $\mu = 0$. Bei $\mu = 0$ ergeben sich bei jeweils gleicher thermischer Differenzdehnung etwa um 40% niedrigere Kontaktdrücke und Hüllspannungen als im Falle $\mu = \infty$, und mit $T_{Ha} = 600$ ^OC wird dann die Fließgrenze bei keiner Stableistung mehr erreicht.



Abb. 9.2: Maximale Hüllrohr-Fließdehnung bei einer 30%-igen Leistungsrampe für einen Oxidbrennstab in Abhängigkeit von der vollen Stableistung. Parameter: Hülltemperatur, Reibungskoeffizient.
Hieraus wird ersichtlich, daß die Reibung zwischen Brennstoff und Hüllrohr einen maßgeblichen Einfluß auf die Größe der Hüllrohr-Fließverformungen bei Leistungsrampen hat. Die Festlegung des Reibungskoeffizienten für Modellrechnungen gestaltet sich aber schwierig, weil 1. die Abstände der transversalen Brennstoffrisse über Haften und Gleiten mitentscheidet (siehe Abschnitt 6.4), und 2. der in-pile-Reibungskoeffizient niedriger sein kann als der erwähnte out-of-pile Wert von 0,8 (siehe Abschnitt 6.4.1), denn an der Kontaktfläche zwischen Brennstoff und Hülle kommt es durch Reaktion des Brennstoffes mit dem dort kondensierten flüchtigen Spaltprodukt Cäsium zur Bildung von Verbindungen, die eine weit größere Plastizität als der Brennstoff aufweisen und somit ein Gleiten in axialer Richtung erleichtern. Die axiale Reibung hängt somit von der Stableistung, der Hülltemperatur und vom Abbrand ab, d.h. von Bedingungen, die sich in Brennstäben unter Bestrahlung lokal und zeitlich ändern. Die Experimente der Versuchsgruppe Mol 10 im BR2 haben einige Aufschlüsse über das Fließdehnungsverhalten von Hüllrohren bei Leistungsrampen erbracht, die auch Rückschlüsse auf die Reibungsverhältnisse zulassen (siehe Abschnitt 10).

Von maßgeblichem Einfluß auf die Fließdehnung ist weiterhin die Hüllrohrfestigkeit, die die Fließgrenze des Hüllrohres festlegt. Eine Vergleichsrechnung mit $\mu = 0$ zeigt Abb. 9.3 für einen entsprechenden Brennstab wie in Abb. 9.2, aber mit lösungsgeglühtem 1.4988-Hüllrohr (Mol 10/2-Auslegung). Bei diesem Hüllmaterial ist die Fließgrenze etwa halb so groß wie bei dem Stahl 1.4970 kaltverformt + ausgelagert. Bei einer 30%-igen Leistungsanhebung kann die Fließverformung bis zu 0,17% betragen (1.4970: 0,03%). Für den Fall $\mu = \infty$ liegen die errechneten Hülldehnungen noch um 0,1% höher.



Abb. 9.3: Vergleichsrechnung entsprechend Abb. 9.2 mit $\mu = 0$ und einem lösungsgeglühten Hüllmaterial (1.4988)

9.3 Einfluß der Leistungsänderungsgeschwindigkeit

9.3.1 Modellrechnungen

Wenn während der Leistungserhöhungsphase Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle besteht, bewirkt die Überschußdehnung des Brennstoffes zunächst elastische Verformungen von Hüllrohr und tragendem Brennstoffring. Da unter normalen Betriebsbedingungen der Oxidbrennstoff wesentlich plastischer als das Hüllmaterial ist, kann bei ausreichender Rampendauer die thermische Überschußdehnung des Brennstoffes durch Brennstoff-Bestrahlungskriechen unter dem Kontaktdruck Brennstoff/Hülle aufgefangen werden, wobei die Hüllspannung unterhalb der Fließgrenze verbleibt. Der Grenzbereich für die maximale Leistungsänderungsgeschwindigkeit χ und Rampenhöhe $\Delta \chi$ wurde für einen Oxidbrennstab mit einer Parameterrechnung bestimmt.

Variiert wurden die Anfangsstableistung χ_{O} und die Hüllaußentemperatur, die während der Rampe als konstant angenommen wurde. Weiter wurde eine freie axiale Ausdehnung des Brennstoffes vorausgesetzt ($\mu = 0$). Eine mögliche beschleunigte Verformung des Brennstoffes nach Abschnitt 7.1 wurde zunächst ausgeschlossen. Die Rechnungen wurden am Beispiel eines SNR-Brennstabes mit folgenden Auslegungsdaten durchgeführt: 6 mm Hülldurchmesser; 0,38 mm Hüllwandstärke, 1.4970-Hüllmaterial; Brennstoff-Schmierdichte 80% TD. Für die Porosität der äußeren Brennstoffzone, die die Kriechgeschwindigkeit in hohem Maße mitbestimmt, wurde entsprechend der Empfehlung von Dienst ein Restwert von 7% angenommen /59/.

Die Ergebnisse der Rechnung sind zusammengefaßt in Abb. 9.4 zusammenfassend dargestellt. Dieses Diagramm stellt Grenzkurven dar, die den Bereich möglicher Leistungssprünge und -Änderungsgeschwindigkeiten danach unterteilen, ob eine Fließdehnung stattfindet oder nicht. Für unterschiedliche Betriebsbedingungen zu Beginn der Rampe ergeben sich jeweils andere Grenzkurven. Bei $\dot{\chi}$ = 100 W/cm min (sehr schnelle Leistungsrampe, praktisch kein Brennstoffkriechen) wird die Überschußdehnung des Brennstoffs bei Stableistungserhöhungen bis zu 85 W/cm durch rein elastische Verformung von Brennstoff und Hülle aufgefangen. Eine höhere Anfangsstableistung ermöglicht wegen der geringeren Stärke des tragenden Ringes größere Stableistungssprünge. Entsprechend wirkt sich eine höhere Hülltemperatur aus; erst oberhalb 600 ^OC macht sich die Abnahme der Hüllmaterialstreckgrenze mit wachsender Temperatur durch eine geringfügige Abnahme der möglichen elastischen Verformung bemerkbar.

Durch eine Verlangsamung des Stableistungsänderungsvorganges läßt sich die Belastung des Hüllrohres vor allem bei großen Stableistungen beträchtlich verringern.



Abb. 9.4: Grenzkurven für die maximalen, ohne Hüllrohrfließverformung ablaufenden Stableistungsrampen für einen Oxidbrennstab in Abhängigkeit von der Leistungsänderungsgeschwindigkeit $\dot{\chi}$. Parameter: Kombination von Stableistung (χ_0) und Hülltemperatur (T_{Ha}). Eine Kombination von $\Delta \chi$ und $\dot{\chi}$, die unterhalb bzw. links einer Grenzkurve liegt, führt unter den jeweiligen Bedingungen für T_{Ha} und χ_0 nicht zu einer Fließverformung. Für Kombinationen, die auf der anderen Seite einer Grenzkurve liegen, erfolgt eine Fließdehnung, über deren Größe im Diagramm nichts ausgesagt wird.

Bei Stableistungsänderungsgeschwindigkeiten <0,5 W/cm min wird die Fließgrenze des Hüllmaterials überhaupt nicht mehr erreicht. Zusammenfassend läßt sich das untersuchte Parameterfeld in drei Bereiche unterteilen:

 Bei niedriger Stableistung und Hülltemperatur ist eine plastische Hülldehnung nur durch Begrenzung der Stableistungssprünge zu vermeiden. Die Leistungsänderungsgeschwindigkeit hat keinen Einfluß auf die Größe der plastischen Hülldehnung.

- Bei hoher Stableistung und Hülltemperatur tritt in einem breiten Intervall der Leistungsänderungsgeschwindigkeit wegen des geringen Widerstands des tragenden Brennstoffringes überhaupt keine plastische Hülldehnung auf.
- 3. Zwischen diesen Bereichen liegt ein Übergangsbereich mit einer starken Abhängigkeit der plastischen Hülldehnung von Stableistung, Hülltemperatur und Leistungsänderungsgeschwindigkeit. Da die realen Betriebsbedingungen meistens in diesem Bereich liegen, ist die Stableistungsänderungsgeschwindigkeit ein für die plastische Hülldehnung wesentlicher Parameter.

Die Bereiche links bzw. unterhalb der Grenzkurven von Abb. 9.4 geben stets sichere Kombinationen zulässiger Leistungserhöhungen mit bestimmten Leistungserhöhungsgeschwindigkeiten bei verschiedenen Ausgangswerten der Stableistung und Hülltemperatur an. Dabei ist ein Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle bei Beginn der Leistungserhöhung vorausgesetzt. Die Einstellung des Kontaktes hängt jedoch von den Betriebsbedingungen, in erster Linie von der Größe der Stableistung und der Dauer des stationären Betriebes vor der Leistungserhöhung ab. Deshalb könnten bei ziemlich schnellen, z.B. täglichen Leistungswechseln, durchaus größere Leistungsprünge bzw. Leistungserhöhungsgeschwindigkeiten zulässig sein. Eine Präzisierung dieser Aussage erfordert jedoch zunächst experimentelle Untersuchungen (siehe Abschnitt 10).

Bei axialer Kopplung von Brennstoff und Hüllrohr verkleinert sich in erster Linie der maximale Leistungshub bei großen Stableistungsänderungsgeschwindigkeiten, und zwar um etwa 30%-40%auf etwa $\Delta \chi = 60$ W/cm; die Lage der Grenzkurven hinsichtlich der Leistungsänderungsgeschwindigkeit wird davon weniger beeinflußt. Berücksichtigt man die beschleunigte Verformung des Brennstoffes bei einer Druckerhöhung (Abschnitt 7.1), ergibt sich eine Erhöhung der zulässigen Leistungsänderungsgeschwindigkeiten. Dieser Einfluß kann vom Programm wahlweise berücksichtigt werden. Im folgenden wird wegen des vorläufigen Charakters der experimentellen Ergebnisse nur eine Abschätzung dieses Effektes gemacht. Wenn $\dot{\chi}$ im Bereich zwischen 0,5 und 1,0 W/cm min liegt, sind die Rampendauern immer noch sehr viel kürzer als die Zeitkonstanten für eine beschleunigte Verformung (~30 h). Somit darf der Term exp $(-\Delta R/R_0) = \exp(-R \cdot \Delta t/R \cdot \Delta t_0)$ in Gleichung 7.10 gleich 1 gesetzt werden. Weiterhin sei der Brennstoff zu Beginn der Rampe spannungsfrei, so daß $\Delta \sigma = \sigma$. Differenziert man Gleichung 7.10 implizit nach der Zeit und verwendet Gleichung 7.6, erhält man für das Verhältnis von beschleunigtem zum stationären Bestrahlungskriechen: $(\Delta \varepsilon)/\dot{\varepsilon}_c = 1,46 \cdot 10^{-21} \cdot R.$ Somit wird bei Spaltungsdichten oberhalb 7 · $10^{20}/cm^3$ die transiente Kriechrate größer als die stationäre. Diese Spaltungsdichte entspricht einem Abbrand von ungefähr 3%. Bei diesem Abbrand setzt in SNR-Oxidbrennstäben die mechanische Wechselwirkung erst ein (siehe Abschnitt 8). Hieraus kann man folgern, daß man für Modellrechnungen zu betrieblichen Leistungsänderungen in der Nähe der kritischen Geschwindigkeit mit einer mindestens doppelt so hohen Brennstoffplastizität rechnen kann wie unter stationären Bedingungen.

9.3.2 <u>Experimentelle Ergebnisse zur Hülldehnung in Abhängigkeit</u> von der Leistungsänderungsgeschwindigkeit

In der FR2-Loop Versuchsgruppe 5 konnten unter den speziellen Zyklierbedingungen des Stabes Nr. 43 (siehe Abschnitt 7.2 und Abb. 7.7) nach langen Teillastzyklusdauern (> 100 h) und großer Leistungsänderungsgeschwindigkeit ($\dot{\chi}$ >20 W/cm min) reproduzierbar Hülldehnungen von jeweils 0,26-0,28% $\Delta D/D$ gemessen werden. Bei diesen langen Teillastzyklen war die Ausheilung des differentiellen thermischen Dehnungsvolumens vollständig, und bei den großen Leistungsänderungsgeschwindigkeiten war während der Rampe kein Spannungsabbau durch Brennstoffkriechen möglich. In zwei Fällen wurde bei diesem Brennstab-Prüfling nach langem Teillast-Betrieb (>400 h) die Leistungserhöhung mit erheblich verlangsamter Geschwindigkeit vorgenommen ($\dot{\chi}$ = 0,33 bzw. $\dot{\chi}$ = 0,12 W/cm min) und dort auch beträchtlich kleinere plastische Verformungen als die 0,28% bei $\dot{\chi}$ = 20 W/cm min gemessen.

Abb. 9.5 zeigt die gemessenen Hülldehnungen als Funktion der reziproken Leistungsänderungsgeschwindigkeit, damit entspricht der Abszissenwert der Meßpunkte der Rampendauer. Die Messungen bestätigen die Vorstellung vom Abbau der thermischen Brennstoff-Überschußdehnung durch Kriechvorgänge während der Leistungsrampe. Dieses wird auch durch die Ergebnisse des INSTAT-Codes untermauert, die in Abb. 9.5 den Meßwerten gegenübergestellt sind (Annahme: $\mu = 0$). Die maximale Hülldehnung wurde etwas zu klein berechnet ($\Delta D/D = 0,25\%$ bei $\chi = 20$ W/cm min), was in Anbetracht der unsicheren Materialdaten (thermische Ausdehnung, Hüllrohr-Fließgrenze) nur eine geringe Abweichung bedeutet. Ausgezeichnet ist dagegen die Übereinstimmung mit den gemessenen Abnahmen der Hülldehnung durch Brennstoffbestrahlungskriechen. Die Größe der Kriechverformung des Brennstoffes während der Leistungsrampe hängt unmittelbar mit der Hüllrohrfestigkeit zusammen. D.h. bei dem gegenüber Incoloy-800 lösungsgeglüht (FR2-Loop-VG 5) wesentlich festeren Hüllmaterial 1.4970 kaltverformt und ausgelagert ist der Effekt entsprechend größer, wodurch sich wiederum kleinere Hülldehnungen bzw. größere zulässige Leistungsänderungsgeschwindigkeiten ergeben. Darüberhinaus könnte eine transiente Verformung des Brennstoffes (nach Abschnitt 7.1), die in dem hier behandelten Experiment wegen des geringen Abbrandes noch keine Rolle gespielt hat, diesen Effekt weiter vergrößern.



Abb. 9.5: FR2-Loop-Versuchsgruppe 5. Hülldehnung als Funktion der Leistungsänderungsgeschwindigkeit nach sehr langem Teillastbetrieb (V: Meßpunkte, -: INSTAT-Rechenergebnisse)

9.4 Analyse der Hüllaufweitung eines längeren Oxid-Brennstabes. Sekundärer Temperatur- und Stableistungseinfluß

In Brennstäben mit einer wesentlich längeren Brennstoffsäule als in den bisher behandelten variiert die Stableistung wegen des axialen Neutronenflußprofils im Reaktor längs der Brennstoffsäule ziemlich stark. Die Brennstäbe aus der Kapselversuchsgruppe Mol 8c mit einer aktiven Länge von 520 mm wiesen bereits ein merkliches Stableistungsprofil auf (siehe die Auslegungsund Bestrahlungsdaten in Tab. 9.1). Aus dieser Versuchsgruppe eignet sich der Stab Nr. 5 am besten für eine Analyse der Hüllaufweitungen durch mechanische Wechselwirkung, weil der Stab bis zu einem maximalen lokalen Abbrand von 10,7% intakt blieb, deutliche plastische Hülldehnungen zeigte und zudem im Bestrahlungsablauf große Schwankungen in der Stableistung vorkamen. Die Abb. 9.6 zeigt die zeitlich gemittelten axialen Verläufe von Stableistung und Hülltemperatur sowie die nach Bestrahlung gemessene Hülldehnung. Das Verhältnis der Stableistung an den Stabenden zur maximalen Stableistung betrug 0,6 (unteres Brennstoffsäulenende: 0 mm) bzw. 0,76 (oberes Brennstoffsäulenende: +520 mm). Der Abbrand ist den mittleren Stableistungen proportional; im Maximum bei +210 mm betrug er 10,7%.

ليبيري فكؤويها فسيبعط استرجيب كمعذاد ويهيرا كالمتحاد بمستعد فتشبعا الكيمي كأسباب المتجامية المتعاد ويساكا	كالاركان فسنست ويبيع كالهوي تقداليت كالروي فتعوا المتعار	
Stabdmr., mm	6,0	
Brennstoff	UO2-PuO2	
Tablettendichte, % TD		
Br Schmierdichte, % TD	80	
Brennstoff-Säulenlänge, mm	520	
Brennstablänge, mm		
Hüllmaterial	1.4988 lg	
Hüllwandstärke, mm		

Bestrahlungsdauer, h

max. schnelle Neutronen- Dosis (E> O,1 MeV) n/cm ²	1,0 · 10 ²²
max. Abbrand, %	10,7
max. Hüllaufweitung, %	0,5
Längenänderung, mm	0,50

Tab. 9.1: BR2-Versuchsgruppe Mol 8c. Auslegungs- und Bestrahlungsdaten des Brennstabes 8c-5.



Abb. 9.6: Mittleres Stableistungs-, Hülltemperatur- und Hüllaufweitungsprofil des Oxidbrennstabes Mol 8c-5 nach Kapselbestrahlung im BR2 bis zu einem maximalen Abbrand von 10,7%

Der Brennstab wurde im Versuchsreaktor BR2 (Mol) im epithermischen Neutronenfluß unter Cadmium-Abschirmung bestrahlt. Die maximale schnelle Neutronendosis (E >0,1 MeV) betrug 1·10²² n/cm². Damit liegt das Neutronendosis/Abbrand-Verhältnis etwa um den Faktor 10 niedriger als in schnellen Testreaktoren. Bei derart kleinen Neutronendosen spielen die Hüllrohrschwellung und Hüllrohr-Bestrahlungskriechvorgänge noch keine Rolle, so daß hinsichtlich der Ursachen von Hülldehnungen kein Unterschied zu thermischen Bestrahlungen besteht. Andererseits verursachte die schnelle Neutronendosis schon eine merkliche Verfestigung des lösungsgeglühten Hüllmaterials (1.4988), so daß die Streckgrenze des Hüllmaterials am Ende der Bestrahlung in der Nähe der Werte von kaltverformten Materialien lag.

Das ursprünglich gemessene Hüldehnungsprofil zeigte ein Maximum von 0,5% im Bereich der Brennstabmitte und kleinere lokale Maxima an den Enden der Brennstoffsäule. Über die gesamte Brennstablänge (also auch über die Brutstoffzone und das Spaltgasplenum) wurde ein gleichmäßiger Dehnungsgrundbetrag von 0,15% gemessen, der nicht durch mechanische Wechselwirkung verursacht worden sein kann. Zur Ermittlung der Hülldehnung durch mechanische Wechselwirkung wurde dieser Betrag von der gemessenen Hülldehnung abgezogen, desgleichen auch die Maxima an den Stabenden, die wahrscheinlich durch Cäsium-Reaktionsschwellung verursacht wurden. Damit ergibt sich eine mittlere Durchmesserzunahme von $\Delta r/r = 0,15$ %.

Die axiale Längenänderung des Brennstabes betrug nach Bestrahlung 0,5 mm (0,05%). Es war nicht feststellbar, ob die axiale Dehnung gleichmäßig über den Brennstab verteilt oder nur im Brennstoffbereich lokalisiert war. Wenn man annimmt, daß die Längenänderung durch mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle verursacht wurde, ergibt sich eine Dehnung der Hülle im Brennstabbereich von $\Delta L/L = 0,1$ %. Dieses bedeutet einen (im Vergleich zur mittleren Durchmesseraufweitung von 0,15%) ziemlich hohen Wert, der darauf schließen läßt, daß sich während der mechanischen Wechselwirkung Brennstoff und Hüllrohr

-141-

nicht frei in axialer Richtung gegeneinander bewegen konnten und in Kontakt mit sehr großer Reibung standen (siehe Abschnitt 6.4.2 Punkt 3).

Die Stableistung schwankte in diesem Bestrahlungsexperiment zeitlich ziemlich stark, und zwar waren diese Leistungsschwankungen am unteren Ende der Brennstoffsäule am größten. Dort war auch der zeitliche Stableistungsverlauf derart, daß die Leistung am Anfang eines Zyklus meistens höher lag als am Ende des vorhergehenden Zyklus, so daß starke mechanische Wechselwirkung wahrscheinlich ist. In Abb. 9.7 sind die Stableistungen zu Beginn und Ende der 22 BR2-Betriebszyklen für zwei axiale Stabpositionen aufgetragen, die diese Tendenz deutlich für die Position +70 mm und weit weniger ausgeprägt für die Position +340 mm zeigen.

Abb. 9.8 zeigt den Verlauf der relativen Summe der positiven Stableistungssprünge oberhalb 3% Abbrand in Abhängigkeit von der axialen Position. Diese Kurve hat ihr Maximum bei +140 mm; bei dieser Position wären somit, entsprechend den Ergebnissen aus der Untersuchung der FR2-Versuchsgruppe 5b, die größten Hülldehnungen zu erwarten. Ein Vergleich mit den gemessenen Hülldehnungen (Abb. 9.9) zeigt, daß die Maxima beider Kurven deutlich verschoben sind und somit keine ausgeprägte Korrelation zwischen der Summe der positiven Leistungssprünge und der plastischen Hülldehnung besteht.

Zur weiteren Analyse wurden mit dem INSTAT-Code Modellrechnungen für zwei extreme Annahmen hinsichtlich der Schwellrate durchgeführt:

- 1. Oberhalb 3% Abbrand ist der Brennstoff-Hüllrohrspalt zu Beginn jeder Leistungserhöhung geschlossen.
- 2. Der Schrumpfungsspalt, der sich nach einer Leistungsreduktion öffnet, schwillt mit einer stationären Schwellrate von 1,5 vol.% je % Abbrand zu.



Abb. 9.7: Zeitlicher Verlauf der Stableistung eines längeren Brennstabes bei Bestrahlung im BR2. Oberer Teil: axiale Brennstoffposition mit während der Zyklen fallender Stableistung. Unterer Teil: Stableistungsanstieg während der Zyklen.



Abb. 9.8: Mol 8c5. Axialer Verlauf der normierten Summe positiver Stableistungssprünge oberhalb 3% Abbrand.



Abb. 9.9: Mol 8c5. Gemessene plastische Hülldehnung auf Grund mechanischer Wechselwirkung nach Abzug eines Untergrundes von 0,15% (Kurvenzug I), INSTAT-Rechnung mit einer angenommenen freien Schwellrate von 1,5 vol.% je % Abbrand (Kurvenzug II) und einer angenommenen völligen Rißausheilung oberhalb 3% Abbrand (Kurvenzug III). Bei diesen Rechnungen wurden die im Abschnitt 8 gefundenen Werte für die Parameter A_0 , RR und T_{pl} verwendet (3% Abbrand, 1 µm/Riß, 1400 ^OC). Die Leistungsänderungsgeschwindigkeiten wurden entsprechend den BR2-Anfahrprogrammen für die jeweiligen Zyklen eingegeben. Im Mittel betrug χ etwa 1,2 - 2 W/cm min. Wegen $\Delta L/L \approx \Delta r/r$ wurde für die Rechnungen axiale Kopplung von Brennstoff und Hülle angenommen (siehe oben).

Die Ergebnisse der Rechnungen sind in Abb. 9.9 zusammen mit den gemessenen Werten dargestellt. Bei völligem Spaltschließen werden die Hülldehnungen durchweg zu groß berechnet, vor allem am unteren Stabende (im Diagramm Kurvenzug III). Das bedeutet, daß die während der Bestrahlung aufgetretenen Leistungshübe im Prinzip ausgereicht haben, um die beobachteten Dehnungen der Hülle zu verursachen. Das Hülldehnungsprofil II, berechnet mit der höchsten in Frage kommenden stationären Schwellrate, zeigt dagegen nur im Bereich des Leistungsmaximums geringe Hülldehnungen. Hieraus läßt sich zunächst der Schluß ziehen, daß einmal während der Leistungserhöhung nicht ständig mechanische Wechselwirkung bestand, andererseits die effektive Schwellrate beträchtlich höher gelegen haben mußte als 1,5 vol.% je % Abbrand.

Die Erhöhung der "effektiven" Schwellrate war nach den Ergebnissen der FR2-Loop-Versuchsgruppe 5 abhängig von der Größe des Schrumpfungsvolumens und von einer charakteristischen Brennstofftemperatur $\overline{\mathbf{T}}_{\mathrm{B}}$, die ihrerseits durch die lokale Stableistung und Hülltemperatur bestimmt ist. Obwohl keine quantitative Auswertung dieser Versuchsergebnisse, die auf andere Bestrahlungsexperimente übertragbar wäre, vorgenommen werden konnte, zeichnete sich dennoch (innerhalb des untersuchten Leistungs- und Temperaturbereiches) eine wesentlich stärker als linear mit der Brennstofftemperatur ansteigende Spaltschließgeschwindigkeit ab. Das bedeutet aber, daß sich die mittlere, effektive Spaltschließgeschwindigkeit nicht als Funktion der zeitlichen Mittelwerte von Stableistung und Hülltemperatur beschreiben läßt. An den axialen Positionen, an denen die Leistung während eines Zyklus stark um ihren Mittelwert schwankt (wie am unteren Ende der Brennstoffsäule), können sich u.U. kleinere Ausheilungsgrade ergeben als an Positionen mit gleicher mittlerer Stableistung, aber kleineren Schwankungen.

Dieses verdeutlicht Abb. 9.10. Hier sind zwei Fälle für den Stableistungsverlauf während eines Bestrahlungszyklus angenommen: Links starker Leistungsabfall; rechts schwacher Leistungsabfall über einen Zyklus (obere Diagramme). Die mittlere Leistung ist für beide Fälle gleich. Die thermische Schrumpfung des Brennstoffes ist proportional zum Leistungsabfall, d.h. dieser Vorgang läuft mit unterschiedlicher Geschwindigkeit ab. Bei hoher Stableistung ist das Ausheilungsvermögen im Brennstoff so groß, daß der Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle erhalten bleibt. Wenn jedoch am Zyklusende die Stableistung stark abfällt, ist die Ausheilung nicht mehr vollständig, und es entsteht Leervolumen im Brennstab durch die thermische Schrumpfung des Brennstoffes, die schneller vor sich geht als die effektive Brennstoffschwellung. Wenn dagegen die Leistung nicht so stark abfällt, bleibt die Ausheilung am Zyklusende schneller und das entsprechende Leervolumen kleiner.

Bei relativ niedrigen Stableistungen und kurzen Reaktorbetriebsperioden (300 - 400 W/cm, 500 h) ist die Summe der positiven Leistungssprünge nicht mehr allein maßgeblich für die plastische Hülldehnung infolge mechanischer Wechselwirkung. Im BR2 sind die Betriebsperioden mit 500 h nur halb so groß wie im FR2 und werden durch häufige Zwischenabschaltungen weiter verkürzt. Damit sind die Bedingungen für eine vollständige Ausheilung des entstehenden differentiellen Schrumpfungsvolumens zwischen Brennstoff und Hülle im FR2 besser als im BR2. Das erklärt die enge Korrelation von Leistungssprüngen und Hülldehnungen im FR2. Diese Korrelation besteht unter den BR2-Bedingungen nur dann, wenn 1. die Leistungsschwankungen nicht zu groß werden und 2. die Stableistung auf einem hinreichend hohen Niveau liegt.

-146-



Abb. 9.10: Schematische Darstellung für die Ausheilung des thermischen Schrumpfungsvolumens bei einem langsamen, kontinuierlichen Abfall der Stableistung während eines Bestrahlungszyklus (links: starke Stableistungsabnahme, rechts: geringere Stableistungsabnahme). Die mittlere Stableistung und der Abbrand sind in beiden Fällen gleich.

Mol 8c5-Stabes am besten erfüllt. Dadurch stimmen die hier gemessenen Hülldehnungen gut mit den Rechnungen (unter Annahme vollständiger Ausheilung) überein. In der Brennstabmitte wären zwar aufgrund der größeren Leistungssrpünge größere Hülldehnungen möglich als am oberen Ende, aber offenbar dominiert hier bereits der Effekt der unvollständigen Ausheilung, so daß die Hülldehnungen hier wieder abnehmen. Diese Tendenz setzt sich bis zum unteren Brennstoffsäulenende fort, bis schließlich die Hülldehnung ganz aufhört. Beim Vergleich von gemessenen und errechneten Hülldehnungen muß weiter berücksichtigt werden, daß immer eine vollständige axiale Kopplung von Brennstoff und Hülle vorausgesetzt wurde. Diese Annahme wurde durch die große axiale Hülldehnung gerechtfertigt, die nur bei einer derartigen Kopplung erklärbar ist. Diese Voraussetzung war offenbar nicht immer bzw. nicht überall erfüllt, weil $\Delta L/L < \Delta r/r$ war. Unter der Annahme freier axialer Ausdehnung zwischen Brennstoff und Hülle liefert INSTAT für dieses Bestrahlungsexperiment im Mittel 50% kleinere Hülldehnungen. Somit ist nicht nur der Grad der Ausheilung entscheidend, sondern auch die Reibung zwischen Brennstab und Hülle. Auch hierfür können über die Stablänge unterschiedliche Voraussetzungen bestehen, die zur Erklärung der niedrigen Hülldehnung am unteren Brennstoffsäulenende herangezogen werden können.

9.5 Hülldehnungsprofil-Analyse eines Karbidbrennstabes

Im Rahmen der Bestrahlungsexperimente des Projektes Schneller Brüter wurde eine Reihe von Karbidbrennstab-Auslegungsvarianten im BR2 (Mol) und in dem schnellen Testreaktor DFR (Dounreay) getestet mit dem Ziel, ein Referenzkonzept für einen schnellen Reaktor mit karbidischem Brennstoff zu entwickeln. Ein Brennstab aus einer BR2-Bestrahlung erwies sich besonders geeignet zur Untersuchung von Hüllaufweitungen durch mechanische Wechselwirkung. Dieser Stab wurde im epithermischen Neutronenfluß unter Cadmium-Abschirmung bis zu einem maximalen lokalen Abbrand von 7,6% bestrahlt. Bei diesem Bestrahlungsexperiment wurden nach Bestrahlung längs der Brennstoffsäule plastische Hülldehnungen bis zu 1,2% gemessen (Abb. 9.11), die noch nicht zu einem Hüllschaden führten. Die Bestrahlung erfolgte bei relativ hohen Stableistungen (>1100 W/cm) und relativ niedrigen Hülltemperaturen (<500 ^OC). Die Stableistung schwankte innerhalb der Zyklen, so daß der Bestrahlungsablauf in vergleichbarer Weise instationär ablief wie in dem BR2-Oxidbrennstabbestrahlungsexperiment in Abschnitt 9.4. Dadurch können an Hand dieses Bestrahlungsexperimentes Hinweise darauf gewonnen werden, ob die instationäre Betriebsweise die mechanische Wechselwirkung bei Karbidbrennstäben vergrößert, verkleinert oder gar nicht beeinflußt.

-148-



Abb. 9.11: Hüllaufweitungsprofil eines Karbidbrennstabes nach Bestrahlung im epithermischen Neutronenfluß bis zu einem maximalen lokalen Abbrand von 7,6%. (Durchgezogene Linie: Meßprofil, Punkte: errechnete Werte)

9.5.1 Stabauslegung und Bestrahlungsdaten

Die Stabauslegungsdaten und der Bestrahlungsablauf sind in dem Bericht /60/ enthalten. Die wesentlichen Angaben sind in Tab. 9.2 aufgeführt.

Die Bestrahlung erfolgte in einer speziell für Versuche hoher Leistung ausgelegten Bestrahlungskapsel unter Cadmiumabschirmung. Die Hüllaußentemperaturen lagen dabei verhältnismäßig niedrig und hingen im Bereich zwischen $\chi = 600$ W/cm und $\chi = 1300$ W/cm linear von der Stableistung ab /60/ (T_{Ha} = 294 ^OC bei 600 W/cm und 445 ^OC bei 1300 W/cm).

Bestrahlungsexperiment	Mol 11K2/2
Brennstoff	^{(U} 0,85 ^{Pu} 0,15 ^{)C}
Hüllmaterial	1.4988 lg
Hüllrohrdurchmesser, mm	8,0
Hüllwanddicke, mm	0,45
Brennstoff-Pelletdurchmesser mm	6,96
Brennstoff-Sinterdichte, % TD	83,3
Diam. Kaltspalt, µm	140
BrSchmierdichte, % TD	80
Brennstoff-Säulenlänge, mm	510
Bestrahlungsdauer, Tage	271
max. Abbrand, %	7,6

Tab. 9.2: Auslegungs- und Bestrahlungsdaten des (U,Pu)C-Brennstabes Mol 11 K2/2

Der Brennstab war längs der Brennstoffsäule an acht Positionen mit Thermoelementen versehen, womit das axiale Stableistungsund Abbrandprofil gemessen bzw. errechnet werden kann (Abb. 9.12). Der zeitliche Verlauf der Stableistung in Brennstabmitte wird durch den in Abb. 9.13 dargestellten Verlauf approximiert, der alle größeren Leistungssprünge, die während der Bestrahlung auftraten, umfaßt. Diese Sprünge waren eine Folge willkürlicher Änderungen der Reaktorleistung oder resultieren aus den Stableistungsunterschieden zwischen Zyklusende und Anfang des nächsten Zyklus.

-150-



Abb. 9.12: Axialer Stableistungs- und Hülltemperaturverlauf des (U,Pu)C-Brennstabes Mol 11K2/2 zu Bestrahlungsende (aus /60/)



Abb. 9.13: Zeitlicher Verlauf der maximalen Stableistung in einem Karbidbrennstab bei Bestrahlung im BR2 (Approximation aus den Meßschrieben. Zwischenabschaltungen nicht mit eingezeichnet.)

Den axialen Stableistungs- und Hülltemperaturverlauf bei Bestrahlungsende gibt Abb. 9.12 wieder. Die Leistung an den Enden der Brennstoffsäule beträgt etwa 60% bzw. 75% der maximalen Stableistung, die im Mittel bei 1100 W/cm lag. In Brennstabmitte beträgt die maximale schnelle Neutronendosis (E >0,1 MeV) 8,5 \cdot 10²¹ n/cm². Der Stab war mit einer Einrichtung zur Spaltgasdruckmessung versehen, wodurch sich das effektive Plenumvolumen vergrößerte, und der Spaltgasdruck immer unter 1 MPa (10 bar) lag. Bei diesen Drücken ist eine Hüllrohraufweitung infolge Kriechens unter Spaltgasdruck noch nicht möglich. Bei den niedrigen Hülltemperaturen und Neutronendosen ist aber ein merkliches thermisches oder bestrahlungsinduziertes Hüllkriechen auch unter Festkörperdruck ausgeschlossen, so daß die beobachteten Hülldehnungen allein auf plastischem Fließen des Hüllmaterials beruhen müssen. Bei schnellen Neutronendosen dieser Größenordnung erfolgt jedoch schon eine bestrahlungsbedingte Verfestigung des 1.4988-Hüllmaterials, so daß in den Modellrechnungen die Dosisabhängigkeit der Streckgrenze berücksichtigt werden muß (entsprechend Abschnitt 9.4).

9.5.2 <u>Berechnung des Hülldehnungsprofils aus der Bestrahlungs-</u> <u>geschichte des Brennstabes</u>

Die Hülldehnung wurde mit der Karbidversion des INSTAT-Codes abschnittsweise aus den lokalen Betriebsbedingungen des Brennstabes berechnet. Für die Rechnungen wurde der T_{pl} -Standardwert für Karbidbrennstoff (1200 ^OC) eingesetzt. Das unvollständige Schließen von Brennstoffrissen wurde mit einer angenommenen Tablettendurchmesservergrößerung von 1,0 µm je Abschaltund Anfahrvorgang beschrieben. Dieser Wert würde etwa der Auswirkung eines Umfangrisses entsprechen. Ein entsprechender Ansatz über die Rißzahl und die Rißrauhigkeit wie beim Oxidbrennstoff (Abschnitt 6.3) ist wegen der unregelmäßigen Rißstruktur des Karbides nicht sinnvoll.

Die Hülldehnung wurde zunächst für die Position mit der höchsten Stableistung χ_{max} entsprechend dem Stableistungsverlauf in Abb. 9.13 berechnet. Anschließend wurde die Rechnung mit reduzierter Stableistung wiederholt ($\chi/\chi_{max} = 0,95; 0,9...0,6$). Dabei wurden alle leistungs- und neutronenflußabhängigen Parameter wie Abbrand, Hülltemperatur, schnelle Neutronendosis usw. angepaßt. Diese Art der Rechnung stellt gegenüber der entsprechenden Rechnung für den Oxidbrennstab in Abschnitt 9.4 eine wesentliche Vereinfachung dar, weil nicht der tatsächliche, aus der jeweiligen axialen Position gemessene Leistungsverlauf herangezogen wird, sondern der relative Verlauf der maximalen Stableistung, der dem Abbrand und allen größeren Leistungsänderungen des Brennstabes entspricht, jedoch feinere Unterschiede, die vor allem die lokalen Werte der Größe $\Sigma \Delta \chi$ beeinflussen, unberücksichtigt läßt. Die Instationarität des Bestrahlungsablaufes, die durch $\Sigma \Lambda \chi$ quantitativ beschrieben wird und bei Oxidbrennstäben einen entscheidenden Faktor für die mechanische Wechselwirkung darstellt, spielt bei Karbidbrennstäben keine derartige Rolle, weil Hülldehnungen auch schon unter stationären Bedingungen möglich sind. Dieses wurde in Abschnitt 9.1 für einen typischen SNR-Karbidbrennstab gezeigt (Abb. 9.1) und gilt für Brennstäbe mit 1.4988-Hüllrohr und niedrigerer Hülltemperatur auch noch für wesentlich größere Stableistungen.

Die Ergebnisse der Modellrechnungen zeigt die Abb. 9.14. Dort ist die zeitliche Entwicklung der plastischen Hülldehnung für verschiedene χ/χ_{max} -Werte aufgetragen. Die Fließdehnung des Hüllrohres setzt an der Position höchster Stableistung (und höchsten Abbrands) nach etwa 3700 h Bestrahlungsdauer ein. Am Brennstabende mit der niederen Stableistung ($\chi/\chi_{max} = 0,6$) setzt die Fließdehnung erst nach 5900 h ein. Das Maximum der Hülldehnung liegt bei $\chi/\chi_{max} = 0,85$. Die errechneten Hülldehnungswerte sind in Abb. 9.11 den gemessenen Hülldehnungen gegenübergestellt. Die Übereinstimmung ist ausgezeichnet, insbesondere wurde der markante Abfall der Hülldehnungen im Brennstababschnitt höchster Stableistung vom Modell richtig beschrieben.



Abb. 9.14: Zeitliche Entwicklung der plastischen Hülldehnung eines Karbidbrennstabes mit 80% Brennstoffschmierdichte und 1.4988 lg-Hüllrohr. Parameter: Verhältnis lokaler zu maximaler Stableistung.

Das Anwachsen der plastischen Hüllaufweitung von den Enden der Brennstoffsäule zur Mitte hin erklärt sich aus dem axialen Stableistungs- bzw. Abbrandprofil. Mit wachsender Stableistung steigt die Schwellgeschwindigkeit des Brennstoffes, wodurch einmal das Schließen des Anfangsspaltes beschleunigt und dann, nach Herstellung des Kontaktes zwischen Brennstoff und Hülle, der Schwelldruck verstärkt wird.

Durch die bestrahlungsbedingte Nachsinterung wird bei den niedrigen Abbränden die aus der Überlagerung mit der stationären Schwellung resultierende effektive Schwellrate verringert, so daß das Schließen des Spaltes verzögert wird. Für Auslegungsspalte > 100 μ m diametral ist die Nachsinterung bei Beginn des festen Kontaktes Brennstoff/Hülle weitgehend beendet, so daß dann in der Phase mechanischer Wechselwirkung die Schwellrate stets voll wirksam wird. Bei hohen Stableistungen, wie sie in der Brennstabmitte herrschten, erfolgte ein merklicher Abbau der Hüllrohrbelastung durch Brennstoffkriechen. Aus dem Diagramm Abb. 9.14 erkennt man, daß für $\chi/\chi_{max} = 100$ % die Hüllaufweitungen überwiegend bei Leistungserhöhungen auftreten (senkrechter Kurvenverlauf), während sie für $\chi/\chi_{max} = 80$ % überwiegend kontinuierlich erfolgten. Entscheidendes Kriterium für eine stärkere Entlastung der Hülle durch Brennstoffkriechen ist das Vorhandensein einer plastischen Innenzone, weil die mechanische Festigkeit einer starren Zone in Ringgeometrie wesentlich geringer ist als die einer massiven Scheibe, bei der der Spannungsabbau durch Heißpressen geschieht.

Die Zentraltemperatur überschreitet hier bei $\chi = 1050$ W/cm die Plastizitätstemperatur von 1200 ^OC. In den axialen Bereichen des Brennstabes mit χ/χ_{max} <85% wird diese Stableistung nur selten oder gar nicht überschritten, so daß sich eine mit dem Abbrand stetig wachsende Hülldehnung einstellt. Wenn diese Stableistung häufiger überschritten wird, wird die Hülldehnung insgesamt geringer, weil die Fließverformung während der stationären Leistungsphase verringert wird (geringere Steigung der Dehnungskurven in Abb. 9.14 bei hohen χ/χ_{max}). Nach einer Leistungsabsenkung wird das Hüllrohr vorübergehend entlastet, so daß die Hülldehnung eine Zeit lang nicht weiter anwächst.

Das Hülldehnungsprofil des Prüflings und die modelltheoretische Analyse haben gezeigt, daß der kritische Bereich stärkster mechanischer Wechselwirkung im Bereich zwischen Brennstoff und Hülle bei Stableistungen von 950 bis 1100 W/cm liegt, wo die mechanische Festigkeit des Brennstoffes noch nicht durch eine beträchtlich große plastifizierte Zone herabgesetzt wird. Dieser Stableistungsbereich ist typisch für das hier analysierte Bestrahlungsexperiment. Bei höheren Hüllaußentemperaturen wird dieses Intervall zu kleineren Stableistungen verschoben. Entscheidend für eine Entlastung des Hüllrohres vom Brennstoff-Schwelldruck ist immer ein ausreichendes Temperaturniveau im Brennstoff, um die Stärke des tragenden Ringes mit

-155-

T < T_{pl} zu verringern. Diese Aussage gilt für den Betrieb mit konstanter Stableistung. Bei einer zwischenzeitlichen Leistungsrücknahme bildet sich ein Abkühlungsspalt, in den der Brennstoff ungehindert schwellen kann. Bei einer Wiederanhebung der Leistung wird dieser Schwellbetrag dann in plastische Dehnung umgesetzt. Hierauf sind vor allem die Hüllaufweitungen in der Zone hoher Stableistung zurückzuführen. Derartige Hülldehnungen können auch nicht durch ein verlangsamtes Wiederhochfahren der Leistung verhindert werden, wie das bei Stäben mit Oxidbrennstoff möglich ist (siehe Abschnitt 9.3). Durch die geringe Kriechgeschwindigkeit des Karbids würden unpraktikable Leistungsänderungsgeschwindigkeiten erforderlich. In den Abschnitten geringerer Stableistung $(\chi/\chi_{max}$ <85%) ist der Spannungsabbau durch Kriechen ohnehin sehr gering. Daher führen starke Leistungsschwankungen z.B. durch Lastwechselbetrieb, in diesen am stärksten belasteten Bereichen nicht zu einer zusätzlichen Belastung des Hüllrohrs. Das bedeutet, daß sich die Lebensdauer eines Karbidbrennstabes unter den hier vorliegenden Bedingungen durch einen instationären Leistungsverlauf nicht wesentlich verringern dürfte.

10.) <u>Gezielte Leistungszyklierexperimente an Oxidbrennstäben</u> zum Ausbau und zur Präzisierung des Rechencodes

Die beiden vorhergehenden Abschnitte haben gezeigt, daß 1. die Summe der positiven Stableistungssprünge und 2. die Zeit und die Betriebsbedingungen bei Teillast die dominierenden Einflußgrößen für die Hülldehnung eines Oxidbrennstabes im Leistungswechselbetrieb sind. Andererseits wurde auch gezeigt, daß immer nur ein Bruchteil der aufgrund der Leistungshübe möglichen Hülldehnungen tatsächlich realisiert wird, wobei der Grad der Realisierung durch die Stableistung, die Zyklierfrequenz und die Leistungsänderung bestimmt wird. In das Größenverhältnis von Stableistungshub zur maximalen Fließdehnung der Hülle geht die Hüllmaterial-Festigkeit als wesentlicher Parameter ein. Hülldehnungen sind bei Oxidbrennstäben mit lösungsgeglühten Hüllmaterialien wegen der niedrigen Fließgrenzen durchweg beträchtlich größer als die von Brennstäben mit kaltverformten Hüllrohren. Wegen der Größe der Hülldehnungseffekte wurden in den vorhergehenden Abschnitten bevorzugte Bestrahlungsergebnisse von Brennstabexperimenten mit lösungsgeglühten Hüllmaterialien herangezogen.

Die Übertragung dieser Ergebnisse auf SNR-Referenzbrennstäbe kann über Modellrechnungen geschehen, jedoch müssen alle Aussagen zur Hülldehnung im Leistungszyklierbetrieb auch über Experimente abgesichert werden. Derzeit werden im Rahmen des Projektes Schneller Brüter umfangreiche Versuche zum Leistungszyklier- und Überlastverhalten von Brennstäben mit SNR-typischer Auslegung vorbereitet. Ein Vorläufer dieser Versuchsreihen ist die BR2-Versuchsgruppe Mol 10. Im ersten Experiment dieser Versuchsgruppe (Mol 10/1) wurde ein Brennstab mit 1.4970-Hülle (kaltverformt und ausgelagert) in einer VADIA-Kapsel bestrahlt (siehe Abschnitt 5). Im Anschluß an diese Bestrahlung folgte mit Mol 10/2 die Bestrahlung eines bis auf das Hüllmaterial (1.4988 lösungsgeglüht) gleichen Stabes.

10.1 Brennstabauslegung und Experimentführung

Die Auslegungsdaten der Brennstäbe enthält Tab. 10.1. Es wurde eine relativ hohe Brennstoff-Schmierdichte (89% TD) verwendet, die durch einen kleinen Fertigungsspalt (40 µm) und eine große Brennstoff-Sinterdichte (90,6% TD) erzielt wurde, um ein frühzeitiges Einsetzen der mechanischen Wechselwirkung zu erreichen.

	Anzahl der Tabletten:	5
	Material:	UO2-PuO2
	PuO2-Anteil:	15%
	Tablettendichte:	90,6% TD
	Tablettendurchmesser:	5,21 mm
	Tablettenlänge:	8,00 mm
	Stapelhöhe der Tabletten:	40 mm
	Schmierdichte:	89,2% TD
b)	Hülle:	
	Material (Mol 10/1):	1.4970 15% kv + ausge- lagert
	(Mol 10/2):	1.4988 lg
	Länge:	7.9 mm
	Außendurchmesser:	5,98 mm
	Innendurchmesser:	5,25 mm
	Wandstärke:	0,36 mm

Tab. 10.1: Auslegungsdaten der Brennstabprüflinge in den BR2-Leistungszyklierexperimenten der Versuchsgruppe Mol 10.

Die Bestrahlung erfolgte auf Reflektorpositionen im Versuchsreaktor BR2 (Mol) mit thermischen Neutronenflüssen zwischen 1,1 und 3,1 \cdot 10¹⁴ n/cm²s. Aus betrieblichen Gründen und wegen Störungen durch Nachbarexperimente im Reaktor konnten die Sollbedingungen (χ : 350 \leftrightarrow 500 W/cm bei 550-650^OC Hülltemperatur) nicht immer eingehalten werden, so daß die Leistungszyklen für den Prüfling 10/1 im Bereich zwischen 270-320 W/cm (Teillast)

10/1	10/2*
1.4970	1.4988
9600	4200
7,5	3,5
19	7
36	14
270-320	340-360
400-460	480-510
5-400	5-120
~ 120	~140
92	45
0,3	0,5
	10/1 1.4970 9600 7,5 19 36 270-320 400-460 5-400 ~120 92 0,3

*) gegenwärtig erreicht

Tab. 10.2: Betriebsbedingungen in den Leistungszyklierexperimenten mit in-pile-Hüllaufweitungsmessung der BR2-Versuchsgruppe Mol 10.

und 400-460 W/cm (Vollast) erfolgten. Die Leistungshübe lagen meistens bei 100-120 W/cm (maximal 160 W/cm). Die Bestrahlung dieses Prüflings erfolgte in 19 BR2-Betriebsperioden von durchschnittlich 500 h Dauer. Infolge zahlreicher Zwischenabschaltungen betrug die Zahl der Anfahrvorgänge insgesamt 36 (Tab. 10.2). Die Zahl der Teillast/Vollast-Rampen betrug 92 bei Teillastdauern zwischen 5 und 300 h.

Das Hüllaufweitungsprofil, ermittelt aus Wendelschrieben auf einer Meßbank mit induktivem Meßaufnehmer vor und nach Bestrahlung, zeigt Abb. 10.1. Hier ist deutlich die Hülldehnung über dem Brennstoffbereich zu erkennen, die zwischen 5 und 18 µm beträgt und im Mittel 12 μ m ausmacht. Die Hüllaufweitung beträgt an der Stelle, wo der Brennstoff in der VADIA-Kapsel abgetastet wurde, nach Bestrahlung 15 μ m. Die Spitzen im axialen Hülldehnungsprofil sind nicht mit der Lage der Brennstoffpellet-Stoßstellen korreliert, wie es häufig bei LWR-Brennstäben beobachtet wird.



<u>Abb. 10.1:</u> Hülldehnungsprofil des (U,Pu)O₂-Brennstabes Mol 10/1 nach Kapselbestrahlung im BR2 bis 7,5% Abbrand. Der Pfeil bezeichnet die in-pile-Tastposition.

10.2 Ergebnisse

In Anbetracht der zahlreichen Leistungswechsel ist die beobachtete Hülldehnung insgesamt sehr gering. Diese Beobachtung entspricht den Modellrechnungen für den Fall, daß sich Brennstoff und Hülle frei gegeneinander bewegen können (Abschnitt 9.2, Abb. 9.2 μ = 0). Bei Hülltemperaturen um 550 ^OC und Leistungsrampen von 25-30% bei 400-450 W/cm Vollast wird gerade der Grenzbereich für das Einsetzen von Fließverformungen berührt. Bei großen Leistungsrampen war außerdem die Teillast-Stableistung immer verhältnismäßig niedrig (<290 W/cm), so daß die Voraussetzungen für eine vollständige Auffüllung des thermischen Differenzdehnungsspaltes ungünstig waren. Dadurch tritt der Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle während der Rampe erst verspätet auf, was zu einer weiteren Verminderung bzw. zur Verhinderung von Fließdehnungen führt.

Die gemessenen Hülldehnungen sind zu klein, um einzelnen Leistungswechselvorgängen zugeordnet werden zu können. Aus Abb. 10.2 sind die mittleren, temperaturkorrigierten Hülldurchmesseränderungen während der Zyklen ersichtlich. In diesem Diagramm ist die Verkürzung der Taststrecke des Meßkonus zwischen Hüllrohrkontakt und Referenzanschlag in Abhängigkeit von der Bestrahlungsdauer dargestellt. Einer Verkürzung der Taststrecke entspricht eine gleichgroße Hülldurchmesserzunahme. Die Schwankungen wurden vermutlich durch Bildung einer dünnen Oxidschicht auf der Außenseite des Hüllrohres hervorgerufen, die durch den Druck des Tastsystems gelegentlich abplatzt. Bei der Demontage des Einsatzes nach Bestrahlungsende waren deutliche Eindrücke der Kugeln des Tastsystems in einer Oxidschicht zu erkennen.



<u>Abb. 10.2:</u> Taststrecke des Meßkonus in der VADIA-Bestrahlungskapsel in Abhängigkeit von der Bestrahlungsdauer für die Prüflinge Mol 10/1 und 10/2. Der Abnahme der Taststrecke entspricht eine gleichgroße Durchmesservergrößerung.

-161-

Aus den Meßpunkten in Abb. 10.2 läßt sich dennoch erkennen, daß die Hülldehnung bei Mol 10/1 erst nach etwa 3200 Stunden einsetzte. Bei dieser Bestrahlungsdauer betrug der Abbrand 2,5%. Dieser Wert ist nur etwas niedriger als der in Abschnitt 8 gefundene A_0 -Wert von 3,0%, was jedoch im Hinblick auf die größere Schmierdichte der Mol 10-Brennstäbe am Gesamtbild nichts ändert. Die Hülldurchmesserzunahme verläuft nach 3200 h etwa linear mit ~4 µm je 1000 h Bestrahlungsdauer; dem entspricht ein Wert von $\Delta D/D = 0,07\%$ je % Abbrand.

Dieser Wert ist in Anbetracht der rauhen Zyklierweise und im Vergleich zu den Hülldehnungen der FR2-Versuchsgruppen 4 und 5 sehr klein. Es sind im wesentlichen zwei Gründe, auf die die Unterschiede zurückzuführen sind:

- Die kürze Teillastzyklusdauer und die niedrigere Stableistung im BR2 im Vergleich zum sägezahnartigen Leistungsverlauf im FR2 (Abb. 8.3) führt zu einem umvollständigen Schließen des Abkühlungsspaltes bzw. der Risse im Brennstoff (siehe Abschnitt 9.4).
- 2. Beim Hüllmaterial 1.4970 kaltverformt und ausgelagert ist das Verhältnis der Festigkeiten von Brennstoff und Hüllrohr wesentlich günstiger als bei 1.4988 lösungsgeglüht. Unter diesen Umständen wird die bestrahlungsinduzierte Brennstoff-Plastizität in stärkerem Maße zum Abbau der Spannungen und Kontaktdrücke bei Leistungsrampen ausgenutzt.

Die zweite Feststellung wird durch die vorläufigen Ergebnisse eines entsprechenden Versuches gestützt, bei dem ein Prüfling mit lösungsgeglühter 1.4988-Hülle eingesetzt wurde (Mol 10/2). Die Betriebsbedingungen dieses noch nicht beendeten Bestrahlungsexperimentes enthält Tab. 10.1. Obwohl der Abbrand hier bisher nur 3,5% beträgt, ist doch die Hülldehnung nach vergleichbaren Bestrahlungsbedingungen bereits größer als die des Prüflings mit 1.4970-Hüllrohr nach 7,5% Abbrand (Abb. 10.2). Eine Abbrandgrenze für das Einsetzen der mechanischen Brennstoff/ Hüllen-Wechselwirkung ist hier wegen der großen Streuung der Meßdaten nicht zu erkennen. Die wesentliche Aussage dieser Experimente ist die, daß ein SNR-Brennstab mit hochfester Hülle eine große Anzahl von Teillast/Vollastzyklen auch längerer Teillastdauer ohne größere plastische Hülldehnungen übersteht. Die z.T.sehr großen Hüllaufweitungen einiger FR2-Versuchsgruppen sind für SNR-Brennstäbe nicht charakteristisch, weil jene infolge ihrer geringeren Hüllfestigkeit weniger widerstandsfähig gegen Verformungen durch den Kontaktdruck des Brennstoffs bei Leistungswechseln waren.

11.) <u>Besonderheiten der mechanischen Wechselwirkung bei Bestrah</u> lung im schnellen Neutronenfluß

Die bisher dargestellten Untersuchungen zur mechanischen Wechselwirkung beschränkten sich auf Bestrahlungsexperimente im thermischen bzw. epithermischen Neutronenfluß. Dieses geschah, um gemessene Hülldehnungen möglichst eindeutig auf ihre Ursachen zurückführen zu können. Bei Bestrahlung im schnellen Neutronenfluß tritt (zusätzlich zu den Dehnungsmechanismen in thermischen Bestrahlungen) noch eine Hüllrohrschwellung durch Porenbildung und ein Hüllrohr-Bestrahlungskriechen auf. Diese Vorgänge sind abhängig von der Neutronendosis, der Temperatur und in starkem Maße vom Hüllmaterialtyp.

Die Meßwerte von Hüllrohrschwellung und -bestrahlungskriechen streuen sehr stark, so daß eine feinere Analyse von Hülldehnungen unter Separation der Anteile von Schwellung, Bestrahlungskriechen, thermischem Kriechen und Fließen unmöglich und somit ein Vergleich von Bestrahlungsergebnissen und Modellrechnungen erschwert ist. Die Bestrahlungsexperimente, die im Rahmen des Projektes Schneller Brüter in den schnellen Versuchsreaktoren Rapsodie und DFR durchgeführt wurden, haben z.T. beträchtliche Hüllaufweitungen (Abb. 11.1) und/oder Hüllschäden gezeigt.

Die Hüllaufweitungen werden größtenteils, insbesondere bei Brennstäben mit lösungsgeglühtem Hüllrohr, durch Hüllrohrschwellung verursacht. Dieser Anteil kann über eine Messung der Hüllmaterialdichteänderung unabhängig von der Durchmesseränderung bestimmt werden. Bei isotroper Schwellung stellt die Differenz zwischen 1/3 der beobachteten Dichteänderung $\Delta \ell / \ell$ und Durchmesseränderung $\Delta D/D$ den Anteil der plastischen Hülldehnung dar.

Das Verhältnis von Hüllrohrschwellung und plastischer Hülldehnung läßt sich integral für einen Brennstab auch aus einem Vergleich von Längenänderung und mittlerer Durchmesseränderung bestimmen /61/. Unter der Annahme, daß die Hüllrohrschwellung isotrop ist und das Hüllrohr überwiegend durch Spaltgasdruck belastet wird, entspricht die relative Längenänderung des Brennstabes der mittleren Hüllrohrschwellung, weil die spannungsabhängigen Verformungen in axialer Richtung vernachlässigt werden (siehe Abschnitt 6.4.2).

Das Auftreten plastischer Hülldehnungen auch in Brennstababschnitten mit niedriger Hülltemperatur schließt thermisches Hüllkriechen als alleinige Ursache aus. Weiterhin ist für schnelle Versuchsreaktoren ein ziemlich konstanter Neutronenfluß charakteristisch. Die Stableistung ändert sich daher nur wenig, und zwar, bedingt durch den Abbrand, mit fallender Tendenz. Das bedeutet, daß die Summe der positiven Stableistungsänderungen bei schneller Bestrahlung sehr klein ist und somit Fließverformungen des Hüllrohrs sehr unwahrscheinlich sind. Damit kommt als Hauptursache für plastische Dehnungen bestrahlungsinduziertes Hüllkriechen in Frage, wobei an den heißen Brennstabenden zusätzlich noch mit einem Anteil thermisch



Abb. 11.1: Hüllaufweitung und -dichteänderung (nach Bestrahlung im schnellen Neutronenfluß bis ~10% Abbrand) eines Brennstabes mit lösungsgeglühter Hülle (oberes Diagramm) und kaltverformter Hülle (unteres Diagramm). Die Ordinatenmaßstäbe stehen im Verhältnis 10:1.

aktivierten Hüllkriechens zu rechnen ist. Es stellt sich nun die Frage, ob diese Kriechdehnungen durch den Spaltgas- oder den Brennstoffschwelldruck verursacht werden.

Nach den bisherigen Kenntnissen kann hierzu keine endgültige Aussage gemacht werden. Sicher kann bei sehr hohen Abbränden ein großer Festkörperdruck entstehen, wenn das verfügbare Leervolumen im Brennstab durch die Brennstoffschwellung ausgeschöpft wurde und ein Spannungsabbau durch bestrahlungsinduziertes Brennstoffkriechen nicht mehr möglich ist. Sieht man aber von diesem extremen Fall ab, bleibt die Frage nach der Ursache der beobachteten Hülldehnungen offen. Wegen der großen Unsicherheit der Materialeigenschaften unter schneller Bestrahlung kann auch über Modellrechnungen keine schlüssige Antwort auf diese Frage gefunden werden. Bezüglich der KfK-Experimente mit Oxidbrennstäben im schnellen Neutronenfluß kann man feststellen, daß die beobachteten Hülldehnungen im Rahmen der Genauigkeit der Materialdaten alleine durch die Hüllrohrschwellung und durch Hüllkriechen unter Spaltgasdruck erklärt werden können und kein zusätzlicher, durch den Brennstoffschwelldruck verursachter Anteil angenommen zu werden braucht. Andererseits zeigten französische Experimente eine Zunahme der plastischen Hülldehnung auch noch nach einer zwischenzeitlichen Entfernung des Spaltgases /62/.

In Hinblick auf den Festkörperdruck ist die Frage von Bedeutung, ob die Hüllschwellung unter SNR-Bedingungen so groß werden kann, daß die Schwellgeschwindigkeit des Brennstoffes überschrittten wird und die Hülle vom Brennstoff abhebt. Dieses ist möglich, weil die Brennstoff-Schwellgeschwindigkeit (in erster Näherung) linear von der Stableistung abhängt, die Hüllrohrschwellung jedoch nach einem Potenzgesetz von der schnellen Dosis, und zwar mit Dosisexponenten im Bereich zwischen 1,5 und 3. Bestrahlungsexperimente aus schnellen Versuchsreaktoren zeigten deutlich, daß bei stark schwellenden Hüllmaterialien auch nach hohem Abbrand noch ein großer Spalt zwischen Brennstoff und Hülle besteht und somit jede mechanische Wechselwirkung ausgeschlossen ist. Unter vergleichbaren Bestrahlungsbedingungen besteht dagegen mit einer geringer schwellenden Hülle sehr fester Kontakt zum Brennstoff (Abb. 11.2).

Da jedoch in schnellen Leistungsreaktoren das Verhältnis von schneller Neutronendosis zu Abbrand 2 bis 3 mal so hoch liegt wie in Testreaktoren, sind diese Beobachtungen im Falle des geringer schwellenden Hüllmaterials nicht ohne weiteres übertragbar. Eine Nachrechnung mit den 1.4970 zur Zeit in Betracht gezogenen Hüllschwellungswerten ergab aber, daß auch unter SNR-Bedingungen im Bereich des Stableistungsmaximums und des heißen Brennstabendes stets Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle besteht. Da die Schwellung von 1.4970-Hüllrohren im Bereich der niedrigen Hülltemperaturen maximal ist, kann die Hüllrohrschwellgeschwindigkeit die Brennstoffschwellgeschwindigkeit nur am kalten Brennstabende übersteigen.

Im Hinblick auf die mechanische Wechselwirkung entspricht also die Situation für gering schwellende Hüllrohre völlig den Bedingungen im thermischen Neutronenfluß. Die am höchsten belasteten Hüllrohrabschnitte stehen immer in Kontakt mit dem Brennstoff, und jede Leistungserhöhung führt unmittelbar zu einer starken mechanischen Wechselwirkung. Zwar ist infolge der kleineren differentiellen Schwellung von Brennstoff und Hülle der stationäre Brennstoffschwelldruck etwas niedriger, was jedoch bei Oxidbrennstäben wegen der ohnehin sehr niedrigen Kontaktdrücke keine Rolle spielt. Durch die Hüllrohrschwellung wird jedoch das Leervolumen im Brennstab in einer für das Hüllrohr unschädlichen Weise vergrößert. Dadurch wird der mit Rücksicht auf die Brennstoffschwellung maximal zulässige Abbrand erhöht.

Bei Karbidbrennstäben wirkt sich die Hüllrohrschwellung stärker als bei Oxidbrennstäben aus. Hier führt die im Vergleich zu thermischen Bestrahlungen niedrigere differentielle Brennstoff-Hüllrohrschwellung zu einer beträchtlichen Verminderung der hohen Brennstoffschwelldrücke, wodurch hier der entscheidende Anteil der Hülldehnung erniedrigt wird.


Abb. 11.2: Keramographische Schliffe von Oxidbrennstäben nach Bestrahlung im schnellen Neutronenfluß bis zu ca. 10% Abbrand. Brennstabschmierdichte jeweils 80% TD. Links: wenig schwellender Hüllwerkstoff (1.4970 kv + A); rechts: stark schwellender Hüllwerkstoff (1.4988 lg). Vergrößerung 20-fach

12.) Schlußfolgerungen

Sowohl die experimentellen Ergebnisse als auch die Modellrechnungen haben gezeigt, daß bei Oxid- und Karbidbrennstäben Hüllaufweitungen durch mechanische Brennstoff/Hüllrohr-Wechselwirkung möglich sind.

Bei Oxidbrennstäben werden die Hülldehnungen überwiegend durch thermische Differenzdehnung zwischen Brennstoff und Hülle verursacht und sind daher eng mit der Instationarität des Bestrahlungsablaufes korreliert. Bei einem Betrieb mit stationärer Stableistung ist bei SNR-Brennstäben bis zum maximal zulässigen Abbrand nicht mit einer nennenswerten Hülldehnung durch mechanische Wechselwirkung zu rechnen. Darüberhinaus sind Zwischenabschaltungen unschädlich, wenn das Leistungsniveau beim Wiederanfahren nicht deutlich über dem vor der Abschaltung liegt.

Die nach Testbestrahlungen beobachteten Hülldehnungen, die zweifelsfrei auf mechanische Wechselwirkung zurückgeführt werden konnten, hängen mit den großen zeitlichen Schwankungen des Neutronenflusses in thermischen Reaktoren zusammen, sind in ihrem Ausmaß aber auch durch die von typischen SNR-Bedingungen abweichenden Brennstabauslegungen beeinflußt.

Ein Leistungszyklierbetrieb im tageszeitlichen Wechsel führt bei Oxidbrennstäben zu einer verstärkten mechanischen Wechselwirkung gegenüber dem stationären Betrieb, die aber keine nennenswerten zusätzlichen Kriech- oder Fließdehnungen des Hüllrohres hervorruft. Mit zunehmender Dauer der Teillastphase wird die mechanische Wechselwirkung während der Leistungserhöhung stärker. Ein Leistungswechselbetrieb innerhalb 85% bis 100% der Vollast ist für einen SNR-Brennstab immer unschädlich, weil die Hülle nur elastisch gedehnt wird und alle Spannungen sehr schnell durch Brennstoff-Bestrahlungskriechen abgebaut werden. Andererseits dürfte auch ein Leistungszyklierbetrieb zwischen niedriger Teillast von höchstens 60% und 100% Vollast ebenfalls nicht zu nennenswerten Hülldehnungen führen, weil sich der thermische Schrumpfungsspalt bei niedriger Stableistung nur unvollständig schließt. Zwischen diesen beiden Bereichen, d.h. bei 60-85% Teillast-Stableistung, muß u.U. im Leistungswechselbetrieb mit Hülldehnungen gerechnet werden. Diese Hülldehnungen können durch eine mäßige Laständerungsgeschwindigkeit verhindert werden. Hierfür kann eine Obergrenze von 1 W/cm min als konservativ angesehen werden. Mit Rücksicht auf die beschleunigte Verformung des Brennstoffes bei Spannungsänderungen scheint zumindest eine Verdopplung der Leistungsänderungsgeschwindigkeit möglich.

Außer im Leistungswechselbetrieb können plastische Hülldehnungen auch bei einer Störfall-Überlast mit einer Stableistungserhöhung um mehr als 15% auftreten. Bei Karbidbrennstäben werden die Hülldehnungen überwiegend durch den Brennstoffschwelldruck verursacht und sind auch bei stationärem Leistungsbetrieb möglich.

Es besteht immer eine starke mechanische Wechselwirkung, nachdem sich der Anfangsspalt zwischen Brennstoff und Hüllrohr geschlossen hat. Infolge der niedrigen Temperaturen und der geringen Plastizität des Brennstoffs unter Bestrahlung wird ein großer Teil der Brennstoffschwellung in plastische Hülldehnung umgesetzt, und zwar je nach den Bestrahlungs- und Hülltemperaturbedingungen entweder durch Fließen, thermisches Kriechen oder Bestrahlungskriechen. Bei sehr hohen Stableistungen kann durch einen hohen Grad thermischer Plastifizierung des Brennstoffes das Verhältnis von Abbrand und plastischer Hülldehnung merklich verbessert werden.

Die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle kann mit dem dargestellten Modell weitgehend auch quantitativ beschrieben werden. Die Zahl der im Modell anzupassenden Parameter ist klein und die Anpassung nur innerhalb eines engen Parameterbereiches erforderlich.

Nur die Beschreibung des Schließvorganges für den Abkühlungsspalt bei Teillast ist noch recht unvollständig. Diese Lücke kann nur über Leistungszyklierexperimente geschlossen werden.

13.) Zusammenfassung

Die hier beschriebenen Untersuchungen zur mechanischen Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hüllrohr wurden durch den Nachweis plastischer Hülldehnungen von Brennstäben ausgelöst, die durch Festkörperdruck des Brennstoffes verursacht wurden und eine mögliche Schadensursache für Brennstäbe bedeuten.

-170-

Bei der Untersuchung dieses Teilaspektes des Bestrahlungsverhaltens von SNR-Brennstäben erwiesen sich die bestehenden Rechencodes als wenig brauchbar. Diese mangelnde Eignung rührt daher, daß diese Codes überwiegend für die Beschreibung stationärer Bestrahlungsvorgänge konzipiert waren, wogegen die mechanische Wechselwirkung in Oxidbrennstäben gerade bei instationären Vorgängen entscheidend wirksam wird. Die Beschreibung der Vorgänge im Brennstoff erfordert im Modell eine sehr feine Unterteilung der Leistungs- bzw. Temperaturrampen und daher eine sehr große Anzahl von Rechnungen des thermischen und mechanischen Zustandes der Brennstäbe. Dafür erwiesen sich die Codes in ihrem gegenwärtigen Entwicklungsstand als zu kompliziert und zu zeitaufwendig.

Daher war es erforderlich, einen speziell auf die Behandlung der mechanischen Wechselwirkung zugeschnittenen Code zu entwickeln. In diesem Code wurden alle die Parameter vernachlässigt, die die mechanische Wechselwirkung nicht direkt oder indirekt beeinflussen. Durch weitere, gegenüber großen Codes wesentliche Vereinfachungen, konnte der Programmumfang und der Rechenzeitbedarf niedrig gehalten werden. Der äußere Bereich niederer Temperatur im Brennstoff ist allein maßgeblich für die mechanische Wechselwirkung mit der Hülle. Im Rechencode wird eine integrale Behandlung dieses Bereiches vorgenommen, wobei das mechanische Verhalten weitgehend durch analytische Beziehungen beschrieben werden konnte. Durch diese und weitere Vereinfachungen war es möglich, die zeitintensiven iterativen Berechnungen zu vermeiden.

Die Modelldarstellung der mechanischen Wechselwirkung wurde gegenüber bisherigen Beschreibungen durch Einführung neuer Parameter erweitert, die auf eigenen experimentellen Beobachtungen fußen. Das beschleunigte Schließen thermischer Schrumpfungsspalte in Oxidbrennstäben nach Leistungsreduktion wurde experimentell nachgewiesen. Weiter wurde gezeigt, daß bei Abschalt/ Anfahrvorgängen ein Riß-Rastmechanismus im Brennstoff abläuft,

-171-

durch den sich die mechanische Wechselwirkung verstärkt. An Oxid- und Karbidbrennstoffproben wurde eine transiente Verformung bei Spannungsänderungen beobachtet, die zumindest für Oxidbrennstäbe einen neuen wesentlichen Effekt darstellt und durch dessen Berücksichtigung sich die Grenze kritischer Betriebsbedingungen für Brennstäbe erweitern lassen. Für die genannten Effekte wurden erstmals quantitative Relationen hergeleitet und z.T. in den Code aufgenommen und der Einfluß auf die mechanische Wechselwirkung in Parameterstudien untersucht.

Die Modellentwicklung wurde begleitet von eigenen Brennstab-Leistungszyklierexperimenten zur Untersuchung schwierig zu ermittelnder Parameterabhängigkeiten. Hierzu konnten über den Schließvorgang des Fertigungsspaltes und der Schrumpfungsspalte nach Leistungsreduktionen sowie über den wichtigen Parameter der Reibung zwischen Brennstoff und Hülle einige neue Aufschlüsse gewonnen werden. Zur Beschreibung der mechanischen Wechselwirkung ist zwischen einem "thermischen" und "mechanischen" Schließen des Fertigungsspaltes zu unterscheiden. Ein sichtbares Schließen des Spaltes führte zu einer verbesserten Wärmeübertragung auf das Hüllrohr, die Übertragung mechanischer Kräfte erfolgt erst deutlich später nach Erreichen einer Abbrandgrenze.

Der Rechencode wurde anhand einer Vielzahl geeigneter experimenteller Ergebnisse kalibriert und überprüft. Die Rechnungen ergaben, daß plastische Hülldehnungen von Oxidbrennstäben nur unter instationären, die von Karbidbrennstäben auch unter stationären Bedingungen auftreten können. Bei Karbidbrennstäben wirkt sich hohe Stableistung günstig aus, weil die Brennstoff-Festigkeit durch thermische Plastifizierung herabgesetzt wird. In Oxidbrennstäben ist die Teillaststableistung der entscheidende Parameter für die mechanische Wechselwirkung bei Leistungswechseln mit vorgegebener Frequenz. Kaltverformte Hüllrohre sind den lösungsgeglühten hinsichtlich der Hüllaufweitungen durch mechanische Wechselwirkung überlegen, weil durch deren hohe Streckgrenze Fließdehnungen weitgehend unterdrückt werden können. Neben Hülldehnungsanalysen von Bestrahlungsex-

-172-

perimenten konnten wegen des geringen Rechenzeitbedarfs des Rechenprogrammes umfangreiche Parameterstudien durchgeführt werden, um optimale bzw. maximale Auslegungs- und Betriebsbedingungen für Brennstäbe zu bestimmen. Diese Untersuchungen erstreckten sich neben einem Vergleich von Oxidund Karbidbrennstoff auf die Hüllmaterial-Streckgrenze, die Leistungsänderung, die Leistungsänderungsgeschwindigkeit sowie auf die Reibung zwischen Brennstoff und Hülle.

Die Genauigkeit des vorgestellten Rechenprogrammes ist zum gegenwärtigen Zeitpunkt ausreichend, da weitere Verfeinerungen erst dann zweckmäßig sind, wenn sich das Verhalten der Brennstabmaterialien unter schneller Neutronenbestrahlung insgesamt genauer beschreiben läßt. Dieses wird erst nach Abschluß weiterer Bestrahlungsexperimente möglich werden. Die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente und Modellrechnungen können erheblich dazu beitragen, die Zahl der Stabschäden infolge mechanischer Überbeanspruchung der Brennstäbe zu begrenzen, wenn die angegebenen Beschränkungen hinsichtlich des Leistungswechselbetriebes von Oxidbrennstäben eingehalten werden.

Literatur:

- /1/ K. Kummerer, KfK 1999 (1974), 1
- /2/ K.Q. Bagley, Proc.Conf. Advanced LMFBR Fuels, Tucson, Arizona, USA (1977), 313
- /3/ P. Combette, ibid., 43
- /4/ H. Blank, ibid., 492
- /5/ H. Steiner, P. Weimar, KfK 2577 (1978)
- /6/ J.P. Gatesoupe, Y. Guérin, C. Courtois, J. Truffert Proc.Int.Conf.on FBR Fuel Performance, Monterey, USA (1979), 246
- /7/ W. Dienst, I. Müller-Lyda, ibid., 468
- /8/ K. Uematsu, Y. Ishida, J. Komatsu, T. Kawata ibid., 16
- /9/ B.F. Rubin, Nuclear Technology 16 (1972), 89
- /10/ N.M. Tuttle, R.F. Hilbert
 Journal Nucl. Mater. 65 (1977), 9
- /11/ P.J. Levine, U-P. Nayak, A.L. Schwallie, A. Boltax Proc.Int.Conf. on FBR Fuel Performance, Monterey, California, USA (1979), 143
- /12/ A. Biancheria, T.S. Roth, U.P. Nayak, A. Boltax ibid., 513
- /13/ A. Boltax, A. Biancheria IWGFR/16, Tokyo (1977), 158
- /14/ D.P. Hines, S. Oldberg, E.L. Zebroski Nucl. Appl. and Technology 9, (1970), 338
- /15/ D. Brucklacher, W. Dienst Proc.Conf. Fuel and Fuel Elements for Fast Reactors, Wien, 1974, IAEA-SM-173/31

- /16/ A. Gerken, KfK 1913 (1974)
- /17/ M. Patel, R.E. Murata, GEAP-14057 (1975)
- /18/ J.D.B. Lambert u.a., Trans. ANS 17 (1973), 193
- /19/ H. Kämpf, KfK 1400 (1971), 39
- /20/ H. Kämpf, H. Elbel, F. Depisch, KfK 1477 (1971)
- /21/ J.D. Stephen u.a., GEAP 13951-1 (1973)
- /22/ E.P. Hicks, H. Hughes
 Journal British Nuclear Energy Society <u>14</u>,
 Jan. No. 1, 63
- /23/ P. Verbeek, H. Többe, N. Hoppe, B. Steinmetz Nuclear Technology 39 (1978), 167
- /24/ R. W. Weeks Nucl.Eng. Design 46 (1978), 303
- /25/ K. Kummerer, KfK 1111 (1969)
- /26/ M. Masson, Journal Nucl.Materials 65 (1977), 307
- /27/ H.E. Häfner, ibid., 65
- /28/ D. Brucklacher, Dissertation Karlsruhe, 1978
- /29/ H. van den Boorn, W. Doser unveröffentlichte Ergebnisse
- /30/ J.R. Matthews
 Nuclear Engineering and Design, 12 (1970), 291
- /31/ K. Laßmann
 5th Int.Conf. SMIRT, Berlin (1979), D3/1
- /32/ M.F. James
 Journal Nuclear Energy, 23 (1969), 517

- /33/ J.I. Bramman, H.J. Powell J.Brit.Nucl Energy Soc. 14 (1976), 63
- /34/ F.J. Homan ORNL-TM-3508 (1971)
- /35/ D.S. Dutt, R.B. Baker, S.A. Chastain Trans.Am.Nucl.Soc. 17 (1975), 175
- /36/ I. Müller, KfK 2376 (1976)
- /37/ O. Götzmann IWGFR, Seattle, Washington, USA (1975)
- /38/ L. Schäfer, P. Hofmann Journal Nuclear Materials 67 (1977)
- /39/ D.R. Olander Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements Springfield, Va. USA (1976), Appendix A5
- /40/ L.D. Landau, E.M. Lifshitz Lehrbuch der theoretischen Physik, Elastizitätstheorie Akademie Verlag Berlin 1965, Seite 25
- /41/ D.E. Lamkin, R.L. Brehm Nuclear Technology 27 (1975), 273
- /42/ J. Weertmann
 American Soc.Metals Trans.Quarterly 61 (1968), 681
- /43/ D.R. Olander Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements Springfield, Va. USA (1976) Kap. 16
- /44/ D.J. Clough Journal Nuclear Materials 65 (1977), 24
- /45/ W. Dienst, KfK 1277/1 (1977), 112
- /46/ I. Müller-Lyda
 Journal Nuclear Materials 90(1980), 232

- /47/ W. Dienst, I. Müller-Lyda, H. Zimmermann Proc.Int.Conf. on FBR Fuel Performance, Monterey, USA (1979), 166
- /48/ D. Brucklacher, W. Dienst, F. Thümmler Proc.Int. Meeting on Fast Reactor Fuel and Fuel Elements, Karlsruhe (1970), 343
- /49/ W. Dienst
 Journal Nuclear Materials 65 (1977), 1
- /50/ A. Solomon Journal American Ceramic Society 56 (1973), 164
- /51/ I. Müller-Lyda
 Journal Nuclear Materials 88 (1980), 161
- /52/ I. Müller-Lyda, KfK 2523 (1977)
- /53/ H. Hoffmann, KfK 1863 (1973)
- /54/ J. Ainscough, R. Rigby Journal Nuclear Materials 47 (1973), 246
- /55/ W. Dienst, KfK 1999 (1974), 70
- /56/ H. Elbel, KfK 1275/3 (1975), 112-6
- /57/ P. Weimar, Th. Dippel, H. Freund KfK 1952 (1974)
- /58/ W. Dienst, Y. Guerin, J.P. Gatesoupe, I. Müller-Lyda to be published Journal Nuclear Materials (1980)
- /59/ W. Dienst Journal Nuclear Materials 61 (1976), 185
- /60/ D. Freund, H. Elbel, H. Steiner Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der UCund (U,Pu)C-Brennstäbe der Versuchsgruppe Mol 11K/1 und Mol 11K/2 KfK 2268 (1976)

- /62/ F. Anselin
 Bull.Ing.Sci.Tech.N^O 196 (1974), 27-40
- /63/ K. Ehrlich, K. Herschbach, W. Schneider KfK 1999 (1974), 149

Anhang

Material-Eigenschaftsfunktionen.

A1. Brennstoff

A1.1. Wärmeleitfähigkeit

Die Brennstoff-Wärmeleitfähigkeit wird als Produkt zweier Terme beschrieben. Ein Term hängt von der Brennstoffporosität P und der zweite von der Temperatur und dem Stöchiometrieverhältnis O/M ab:

$$\lambda_{b} = (T, P, O/M) = f(P) \cdot \lambda_{O}(T, O/M)$$

$$\lambda_{B} = \frac{(1-P)^{3/2}}{0,9259} \qquad \frac{1 + C_{1} \cdot T^{2} + C_{2} \cdot T^{4}}{C_{3} + C_{4} \cdot \Theta} \cdot (W/cm K)$$

$$C_{1} = -0,35 \cdot 10^{-7} + 0,3 \cdot 10^{-6} \cdot x$$

$$C_{2} = 0,284 \cdot 10^{-13} - 0,13 \cdot 10^{-12} \cdot x$$

$$C_{3} = 10,80 + 360 \cdot x$$

$$C_{4} = 0,0218$$

$$\Theta = \frac{T \text{ für } T < T_{O}}{T_{O} \text{ für } T \ge T_{O}}$$

$$T_{O} = 1930. - 5000 \cdot x$$

$$x = 2 - 0/M$$

Mischkarbid (U,Pu)C $\lambda_{\rm B} = (1-P)^{3/2} \cdot (0,204 + 2,836 \cdot 10^{-8} \cdot (T-570)^2) /A2,A3/$ $2/T_7 = {}^{\rm O}C, \qquad 2/\lambda_7 = W/cm^2 K$

A.1.2. Linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient
$$(U, Pu)O_2$$

 $\alpha(T) = \alpha_0(T) \cdot f(O/M)$
 $\alpha_0 = 6,797 \cdot 10^{-6} + 5,792 \cdot 10^{-9} T$ /A4/
 $f(O/M) = 1 + 5,1 \cdot (2 - O/M)$ /A5/
 $\angle T_7 = {}^{O}C, \ \angle \alpha_7 = K^{-1}$

$$(U, Pu)C$$

 $\alpha(T) = 10,04 \cdot 10^{-6} + 2,2 \cdot 10^{-9} T (K^{-1}) /A6/$
 $/ T_7 = ^{O}C$

A.1.3. Elastizitätsmodul /A7/

$$(U,Pu)O_2$$

 $E(T,P) = E(T) \cdot f(P)$
 $E = 223,4 \cdot (1 - 8,0 \cdot 10^{-5} T) \cdot (1 - 2,28 P)$
 $(U,Pu)C$
 $E(T,P) = 22,49 \cdot (1 - 7,96 \cdot 10^{-5} T) \cdot (1 - 2,30 P)$
 $\angle T_7 = {}^{O}C, \quad \angle E_7 = GPa$

A.1.4. Querkontraktionszahl (U,Pu)0₂ $v = 0,317 \cdot (1 - P)$ (U,Pu)C $v = 0,288 \cdot (1 - P)$ A.1.5. Kriechgeschwindigkeit, thermisch $(U,Pu)O_2$ $\dot{\varepsilon} = 3,38 \cdot 10^{-9} \cdot \text{Kg}^{-2} \cdot \sigma \cdot (1+2,11(0,97-\rho)) \cdot \exp(-387 \text{ kJ/RT})$ + $3,24 \cdot 10^{6} \cdot \sigma^{4}, 4 \cdot (1+0,22 \cdot (0,97-\rho)) \cdot \exp(-569 \text{ kJ/RT})$

KG: Brennstoff-Korngröße, µm /A8/ 1 – P ρ: Porosität als Volumenanteil P:

U, PuC

 $\dot{\epsilon} = 14,5 \cdot 10^9 \sigma^{2,44} \cdot \exp(-523 \text{ kJ/RT})$ /A9/ $/\tilde{\epsilon}_{7} = h^{-1}, /\sigma_{7} = MPa$

A.1.6. Bestrahlungskriechgeschwindigkeit

(U, Pu)O₂ $\dot{\epsilon}_{c} = 0,56 \cdot \dot{A} \cdot (1 + 1250 P^{2}) \cdot \exp(-2626/T_{B}) \cdot \sigma$ /A10/ $\angle P_7 = Volumenanteil, \angle T_B_7 = K, \angle \sigma_7 = MPa, \angle A_7 = Spaltung/schw.Atom, \angle \epsilon_7 = h^{-1}$

(U,Pu)C

$$\dot{\epsilon}_{c} = 0,012 \cdot A \cdot \sigma$$

/A11/

/A11/

(U,Pu)0₂

 $\Delta V/V = 1,0$ vol.% je % Abbrand

A.1.7. Stationäre Brennstoffschwellung

(U,Pu)C

$$\Delta V/V = \begin{cases} 1,5 \\ 3,0 \end{cases}$$
 vol.% je % Abbrand, Spalt $\begin{cases} \text{geschlossen} \\ \text{offen} \end{cases}$

A.1.8. Bestrahlungsinduzierte Nachsinterung /A11/ (U,Pu)C

 $P = P_0/1 \cdot (1 + exp (- A/0,04 \text{ Spaltg/schw.At}))$

A.2. Hüllmaterial

Die Hüllmaterialdaten werden entsprechend dem Hüllmaterialtyp eingesetzt. In der folgenden Aufstellung werden meistens Bezeichnungen für den Stahl 1.4988 lg angegeben. Die entsprechenden Werte für den 1.4970 kv + ausgelagert sind (bis auf die von der schnellen Neutronendosis abhängigen und die Streckgrenze) sehr ähnlich. Literaturangaben in tabellarischer Form wurden durch Polynomapproximationen ersetzt. Die Zusammensetzung der Stähle enthält Tabelle A1.

A.2.1. Wärmeleitfähigkeit

$$\lambda_{\rm H} = 0,146 \pm 1,19 \cdot 10^{-4} \text{ T}$$
 /A12/
 $2^{-}T_{-}7 = {}^{\rm O}C, \quad 2^{-}\lambda_{-}7 = W/\text{cm}^{2} \text{ K}$

A.2.2. Lineare thermische Ausdehnung

$$\Delta 1/1 = -0,002 + 7,11 \cdot 10^{-6} \text{ T} + 7,734 \cdot 10^{-9} \text{ T}^2$$

(400 K \leq T \leq 1680 K) /A13/

A.2.3. Elastizitätsmodul

$$E = (206, 1 - 0,078 T)$$
 /A13/
 $/T_7 = {}^{O}C, / E_7 = GPa$

 $v_{\rm H} = 0,33$

A.2.5. Streckgrenze

Die Streckgrenze setzt sich additiv zusammen aus der Streckgrenze für unbestrahltes Material ($\sigma_{0,2}$) und einem Anteil, der von der Versprödung unter Bestrahlung herrührt ($\Delta \sigma_{0,2}$).

 $\sigma_{0,2} = 235, 5 - 0, 2205 \cdot T - 12, 27 \cdot 10^{-5} T^2$ /A15/ 250 °C $\leq T \leq 800$ °C $\angle \sigma_{0,2} - 7 = MPa$

$$\Delta \sigma_{0,2} = 2,56 \cdot (700 - T) \cdot (1 - \exp(-\phi t/2,5 \cdot 10^{-22} n_s/cm^2))$$
/A16/

für 400 $^{\circ}C \leq T \leq 700 ^{\circ}C$

$$\sigma_{0,2} = 526 - 0,0016548 \cdot (T - 410)^2$$

f. 410 ^OC \leq T \leq 700 ^OC
= 526 für T \leq 410 ^OC /A16/

$$\Delta \sigma_{0,2} = 2,51 \cdot (T - 550) \cdot (1 - \exp(-\phi t/2, 5 \cdot 10^{22} n_s/cm^2))$$

für 400 °C < T < 550 °C /A16/

(Die Daten aus /A16/ sind graphisch dargestellt, die hier angegebenen Beziehungen entstammen einer eigenen Parametrisierung.)

$$\epsilon_{c}/\sigma = 4,2 \cdot 10^{-6} \cdot D$$

 $\angle D_7 =$ schnelle Neutronendosis (in displacements per atom), $\angle \varepsilon_c / \sigma_7 = MPa^{-1}$

A.2.7. Thermisch aktiviertes Kriechen (1.4988) /A18/ $\dot{\epsilon} = 6,55 \cdot 10^{13} \exp(-353 \text{ kJ/RT}) \cdot (\sinh 0,0113 \cdot \sigma)^{2,94}$ $\sqrt[3]{\epsilon}_7 = h^{-1}, \sqrt[3]{\sigma}_7 = MPa$

A.2.8. Bestrahlungsinduziertes Schwellen (1.4988) /A19/ $\Delta V/V = 0.085 \cdot (\phi t)^{1.6} \cdot \exp(-(0.01 \text{ T} - 4.9)^2)$ $2/\phi t_7 = 10^{22} \text{ n}_{s}/\text{cm}^2$, $2/T_7 = ^{\circ}\text{C}$

Neben dieser Formel sind im Rechenprogramm noch andere, neuere Materialbeziehungen enthalten, die aber firmen-vertraulich behandelt werden müssen.

DIN- bzw. AISI-Be- zeichnung	1.4970 X10CrNiMoTi1515	1.4988 X8CrNiMoVNb1613	316
C	0,08 - 0,12	0,1	0,08
Si	0,3 - 0,5	0,6	0,5
Mn	2	1,5	2
Cr	15	15,5 - 17,5	16 - 18
Ni	15	12,5 - 14,5	10 - 14
Мо	1,3	1,1 - 1,5	3
Ті	0,3 - 0,55	-	_
V	-	0,6 - 0,85	_
Nb	-	1,2	-
В	30 - 80 ppm	-	-

Tab. A1: Zusammensetzung (in Gew.%) der wesentlichen Hüllmaterialien in SNR-Brennstab-Bestrahlungsexperimenten. (Fe: Matrix)

.

Literatur:

- /A1/ H.E. Schmidt High Temp.-High Press. 3 (1971), 345
- /A2/ G. Ondracek, B. Schulz KfK 1999 (1974), 48
- /A3/ R. DeConinck, W. van Lierde, A. Gijs
 Journal Nuclear Materials 57 (1975)
- /A4/ J.B. Conway, R.M. Finchel, R.A. Hein Trans. ANS. 6 (1963)
- /A5/ J. Roth, M.E. Hybert, J.R. Cherry, C.S. Caldwell Trans. ANS 10 (1967), 457
- /A6/ R. Mendez-Penalosa, R.E. Taylor Journal American Cer.Soc. 47 (1964), 101
- /A7/ A. Padel, Ch. de Novion Journal Nuclear Materials 33 (1969), 40
- /A8/ M. Patel, R.E. Murata GEAP-14057 (1975), 43
- /A9/ M. Tokar Journal Am.Cer.Soc. 56 (1973), 173
- /A10/ D. Brucklacher Dissertation Karlsruhe (1978)
- /A11/ W. Dienst, I. Müller-Lyda, H. Zimmermann Proc.Int.Conf. on Fast Breeder Reactor Fuel Performance Monterey, Californien (1979), S. 173
- /A12/ Röchling: Handbuch für hochwarmfeste Stähle (1966) S.39
- /A13/ P. Nikolopoulos, B. Schulz Journal Nuclear Materials 82 (1979), 172

- /A14/ H.Elbel, J.R.Matthews KfK-Ext. 6/76-4
- /A15/ Stahl-Eisen-Werkstoffblätter des Vereins Deutscher Eisenhüttenleute, Nr.67 - 69, Verlag Stahleisen, Düsseldorf

.

- /A16/ H. Böhm, W. Dienst, K. Kummerer KfK 1999 (1974), 136
- /A17/ H.J. Bergmann, W. Dietz
 J.Nucl.Materials 65 (1975), 224
- /A18/ D.K. Closs KfK 2112 (1975)

.

/A19/ K. Ehrlich KfK 1400 (1971), Abschnitt XXVIII