

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

KARLSRUHE

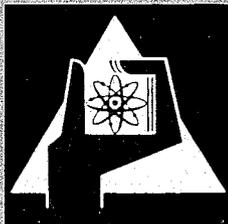
Dezember 1967

KFK 700
EUR 3713 d

Institut für Angewandte Reaktorphysik

Die Entwicklung von Brennelementen schneller Brutreaktoren

H. Beißwenger, H. Blank, H. van den Boorn, D. Geithoff, W. Häfele,
H. Kämpf, G. Karsten, K. Kummerer, H.J. Laue, S. Leistikow



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Dezember 1967

KFK-700
EUR 3713 d

Institut für Angewandte Reaktorphysik

DIE ENTWICKLUNG VON Brennelementen Schneller Brutreaktoren

mit Beiträgen von

H. Beißwenger*

H. Kämpf

H. Blank**

G. Karsten

H. van den Boorn***

K. Kummerer****

D. Geithoff

H.J. Laue

W. Häfele

S. Leistikow*****

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

* delegiert von NUKEM, Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH, Hanau, zum Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

** Europäisches Institut für Transurane

*** delegiert von EURATOM, Brüssel

**** jetzt Institut für Material- und Festkörperforschung

***** Institut für Material- und Festkörperforschung

THE HISTORY OF THE UNITED STATES

FROM THE EARLIEST SETTLEMENTS TO THE PRESENT

BY JOHN W. BARKER

1898

THE EARLY HISTORY OF THE UNITED STATES

The first European settlers in North America were the Spanish, who discovered the continent in 1492. They established colonies in Florida, Texas, and the Southwest. The English followed in 1607, settling in Virginia. The Pilgrims arrived in 1620, settling in Massachusetts. The French established colonies in the St. Lawrence Valley and the Mississippi River region. The Dutch settled in New York and New Jersey. The Swedish and Finnish settled in the Delaware and Pennsylvania regions. The Quakers settled in Pennsylvania. The German immigrants came in the 17th and 18th centuries, settling in the Pennsylvania and New York regions. The Scotch-Irish settled in the Appalachian Mountains. The Irish immigrants came in the 18th and 19th centuries, settling in the New York and Pennsylvania regions. The American Revolution began in 1775, and the United States was declared independent in 1776. The Constitution was adopted in 1787, and the Bill of Rights was added in 1791. The United States expanded its territory through the Louisiana Purchase in 1803 and the Mexican-American War in 1846. The Civil War was fought from 1861 to 1865, and the Reconstruction period followed. The United States emerged as a world power in the late 19th and early 20th centuries, and played a leading role in World War I and World War II. The United States is a democratic republic, and its government is based on the principles of liberty, justice, and equality under the law.

THE AMERICAN WEST

The American West was a region of vast territory, stretching from the Rocky Mountains to the Pacific Ocean. It was a land of opportunity and adventure, attracting settlers from all over the world. The West was a land of pioneers, who sought a better life in a new land. The West was a land of discovery, where new resources were found. The West was a land of conflict, where different groups of people fought for control. The West was a land of change, where the landscape was transformed. The West was a land of hope, where a better future was sought. The West was a land of dreams, where a new life was lived. The West was a land of legends, where heroes were born. The West was a land of mystery, where secrets were hidden. The West was a land of wonder, where the impossible seemed possible. The West was a land of beauty, where nature was magnificent. The West was a land of freedom, where people lived as they saw fit. The West was a land of progress, where new ideas were tried. The West was a land of progress, where new technologies were used. The West was a land of progress, where new industries were created. The West was a land of progress, where new cities were built. The West was a land of progress, where new lives were lived. The West was a land of progress, where a new future was created.

VERZEICHNIS DER BEITRÄGE

- | | | |
|-------|---|------------------|
| I. | Die Brennelemententwicklung als physikalisch-technische Aufgabe | K. Kummerer |
| II. | Brennstoffauswahl und -herstellung | G. Karsten |
| III. | Hüllmaterialauswahl | H.J. Laue |
| IV. | Die Temperaturverteilung im Brennelement | H. Kämpf |
| V. | Das Betriebsverhalten eines Brennelementstabes | G. Karsten |
| VI. | Transporterscheinungen im Brennstoff | H. Blank |
| VII. | Brennstoffzyklus und Brennelementauslegung | W. Häfele |
| VIII. | Die mechanische Beanspruchung der Brennelementhülle | H.J. Laue |
| IX. | Die chemische Beanspruchung der Brennelementhülle | S. Leistikow |
| X. | Bestrahlungsversuche an Hüllmaterialien und ihre Auswertung | H. van den Boorn |
| XI. | Die Auslegung und Durchführung von Brennelement-Bestrahlungsexperimenten | H. Beißwenger |
| XII. | Die Nachuntersuchungen bei Brennelement-Bestrahlungsexperimenten | D. Geithoff |
| XIII. | Theoretische Beziehungen für Brennelementauslegung und Brennelementkosten | K. Kummerer |

VORBEMERKUNG

Im Winter 1966/67 wurde am Institut für Angewandte Reaktorphysik des Kernforschungszentrums Karlsruhe ein Seminar über die Entwicklung von Brennelementen schneller Brutreaktoren durchgeführt. Die vorliegende Zusammenfassung enthält die 13 Seminarvorträge in schriftlich ausgearbeiteter und teilweise ergänzter Form. Die Beiträge sind in sich abgeschlossen und hier in chronologischer Reihenfolge angeordnet.

Dieser Bericht wurde zusammengestellt und redaktionell bearbeitet von H. Kämpf und K. Kummerer.

Diese Arbeit wurde im Rahmen der Assoziation zwischen der Europäischen Atomgemeinschaft und der Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe, auf dem Gebiet der Schnellen Reaktoren durchgeführt.

I. DIE BRENNELEMENTENTWICKLUNG ALS
PHYSIKALISCH-TECHNISCHE AUFGABE

von

K. Kummerer

Inhalt:

1. Einführung und Zielsetzung
2. Themenabgrenzung und Definitionen
3. Grundsätzliche Auswahlentscheidungen
4. Typische betriebliche Bedingungen
 - 4.1 Zusammensetzung des Brennstoffs
 - 4.2 Leistungsgrößen und Brennstoffdurchmesser
 - 4.3 Abbrand und Hüllbeanspruchung
5. Sicherheitsanforderungen
 - 5.1 Kühlung und Kühlkreislauf
 - 5.2 Reaktivitätsrückwirkungen
6. Auslegungsparameter
7. Die geschlossene Brennelemententwicklung
8. Literatur

1. Einführung und Zielsetzung

Die Auslegung von Brennelementen für schnelle Brutreaktoren ist heute noch nicht Stand der Technik, sondern eher eine "spekulative Kunst". Diese stützt sich

- auf wenige praktische Erfahrungen aus dem Betrieb der jetzt vorhandenen schnellen Versuchsreaktoren (DFR, EBR-II, EFFBR, BR-5)*, die sich noch dazu fast ausschließlich auf metallischen Brennstoff beschränken
- auf eine größere Anzahl von Bestrahlungsexperimenten in thermischen Reaktoren und auf einige einschlägige Experimente in schnellen Reaktoren
- auf Einzelexperimente in thermischen und schnellen Reaktoren, bei denen der Brennstoff und insbesondere das Hüllmaterial separat untersucht werden
- schließlich auf theoretische Überlegungen

Die Behandlung der einzelnen Themen in dieser Vortragsreihe soll zeigen, wie man zu physikalisch und technisch sinnvollen Brennelementauslegungen kommt und wie man gleichzeitig wichtige Nebenbedingungen, z.B. bezüglich der Reaktorsicherheit erfüllen kann. Der Aufgabenkreis der Brennelemententwicklung umfaßt zuerst einmal die in Betracht kommenden Grundtatsachen der Physik und Chemie, ermittelt dann die komplexe Beanspruchung einer Brennelement-Konfiguration im Betrieb und versucht schließlich eine ökonomisch zufriedenstellende Lösung hinsichtlich der Fabrikation anzugeben. Dabei wird immer angestrebt, die Fülle empirischer Erscheinungen mit Hilfe von Modellvorstellungen quantitativ zu erfassen.

Die Behandlung dieses Referates sowie der ganzen Vortragsreihe nimmt immer wieder Bezug auf konkrete Beispiele. Es liegt hierbei nahe, die

* DFR: Dounreay Fast Reactor, Großbritannien
EBR-II: Experimental Breeder Reactor II, USA
EFFBR: Enrico Fermi Fast Breeder Reactor, USA
BR-5: Schneller Brutreaktor mit 5 MW Leistung in USSR

beiden 1000 MWe-Referenzstudien des Karlsruher Brüterprojektes [1,2] als Demonstrationsobjekte für

- Brennelemente eines Na-gekühlten schnellen Brüters und für
- Brennelemente eines dampfgekühlten schnellen Brüters

zu verwenden. Dabei soll selbstverständlich die Allgemeinheit möglichst wenig beschränkt werden. Dies ist aber zumindest bezüglich der oxydischen Brennstäbe dieser Studien ziemlich von selbst gewährleistet. Weitere Beispiele für Brennstabauslegungen finden sich in einem detaillierten Bestrahlungsvorschlag für den EFFBR [3]. Über zahlreiche Gesichtspunkte der Brennelementauslegung und experimentelle Erfahrungen wurde auch auf der Londoner Schnellbrüterkonferenz 1966 berichtet, u.a. auch über die Struktur des Karlsruher Entwicklungsprogramms [4].

2. Themenabgrenzung und Definitionen

Zuerst sollen einige begriffliche Festlegungen Verwechslungen vermeiden. Es sei unterschieden zwischen

Brennstoff (= Spaltstoff + Brutstoff in der Spaltzone)

Brennelement (= Brennstab, "pin", "rod")

Brennelementbündel (= "subassembly")

und Hülle (= "can", "cladding").

In dieser Vortragsreihe werden nur Brennelemente, d.h. Brennstäbe, nicht aber Bündel betrachtet. Somit entfallen alle Assemblierungsfragen. Auch die Diskussion des Wärmeüberganges Brennstab-Kühlmittel kommt nur am Rande vor.

Alle Studien und Untersuchungen berücksichtigen jedoch die logische Einordnung der Brennelemente in den Brennstoffkreislauf allein, Fig.1, und in das Wechselspiel zwischen Brutstoff- und Brennstoffkreislauf, Fig.2. Letzteres ist in dieser ausgeprägten Form zwar nur bei getrennter Wiederaufbereitung von Spaltzone und Radialbrutmantel gültig, die Massenflüsse an Pu und U 238 zwischen beiden Bereichen bleiben davon aber unberührt. Die Behandlung aller Themen geht ausführlich auf alle stofflichen Aspekte, wie z.B. Bestrahlungsschäden, ein, befaßt sich aber nicht mit reiner Festkörperphysik. Die kernphysikalischen Vorgänge im

Brennelement werden als bekannt vorausgesetzt, ebenso die hier nötigen Einzelheiten der Reaktorphysik.

3. Grundsätzliche Auswahlentscheidungen

Die in dieser Vortragsreihe betrachtete Brennelemententwicklung bezieht sich auf ein Brennelementkonzept, das in einigen grundsätzlichen Auswahlparametern bereits festgelegt ist, nämlich bezüglich

- Brennstoff: Festkörper; möglichst großes internes Brüten, also U 238 im Reaktorkern; Oxydkeramik
- Form: Senkrechte Stäbe mit angesetztem Axialbrutmantel, nicht Kugeln oder Platten oder Rohre
- Innere Geometrie: Spaltgasraum, nicht Spaltgasablaß ins Kühlmittel
- Stabilität: Feste Hülle - schwacher Brennstoff; bei Dampfkühlung aber evt. einige Stützkräfte durch den Brennstoff nötig.

4. Typische betriebliche Bedingungen

4.1 Zusammensetzung des Brennstoffs

Als Spaltstoff wird in einem schnellen Reaktor grundsätzlich Plutonium verwendet. Zwar ist ein Betrieb mit U 235 möglich (und wird zeitweise wegen Pu-Knappheit wohl auch nötig sein). Die "innere Logik" des Brennstoffkreislaufs führt aber zu einem Betrieb mit Pu, da letztlich nicht U 235, sondern Pu nachgeliefert wird.

Der Spaltstoff in den Brennelementen ist sinnvollerweise immer mit dem Brutstoff U 238 vermischt. Dieses "interne" Brüten trägt sehr wesentlich zur Brutrate bei. Bei nur externem Brüten, d.h. wenn U 238 nur in den radialen und axialen Brutmänteln eingesetzt ist, ist die gesamte Konversionsrate so vermindert, daß praktisch kein echtes Brüten mehr zustande kommt.

Für die Isotopenzusammensetzung des Pu stellt sich beim mehrfachen Rezyklieren ein Gleichgewicht ein, das für eine Reaktorauslegung und für die gewählte Betriebsweise des Brennstoffkreislaufes charakteristisch ist. Bei gemeinsamer Aufbereitung von Spaltzone und Brutmantel enthält das "schmutzige" Plutonium beispielsweise etwa

75 %	Pu 239
22 %	Pu 240
2,5 %	Pu 241
0,5 %	Pu 242

Eine derartige Zusammensetzung verlangt wegen der (α, n)-Reaktionen und wegen der Spontanspaltungen besondere Abschirmmaßnahmen bei der Refabrikation des chemisch wieder aufbereiteten Brennstoffes.

4.2 Leistungsgrößen und Brennstoffdurchmesser

Die beiden Grundgleichungen für die Auslegung von Brennstäben sind

$$\chi = 4\pi \int_{T_a}^{T_Z} k(T) dT \quad (1)$$

$$\chi = \frac{\pi R^2 b S_H}{1 + y} \quad (2)$$

Hierin bedeuten

χ	die Stabileistung	W/cm
k	die Wärmeleitfähigkeit	W/cm ^{°C}
T	die (laufende) Brennstofftemperatur	°C
T_Z, T_a	die Temperatur im Zentrum und am Brennstoffrand	°C
R	den Brennstoffradius	cm
b	die spezifische Leistung	W/g Spaltatome
S_H	(U+Pu)-Dichte im Brennstoff	g U+Pu/cm ³
y	Massenverhältnis Brutatome/Spaltatome	

Die in (1) und (2) enthaltenen Größen sind nun der Reihe nach festzulegen. Für einen Na-gekühlten schnellen Brutreaktor mit 1000 MW elektrischer Gesamtleistung (entspricht etwa 2500 MW thermischer Leistung) geht ein plausibles Konzept, z.B. von einem Kernvolumen von 6 m³, aus.

Eine vernünftige Volumenverteilung im Reaktorkern führt beispielsweise zu 30 % Brennstoff, 50 % Kühlmittel und 20 % Strukturmaterial. Die mit diesen Ausgangsdaten anzustellende detaillierte reaktorphysikalische Rechnung ermittelt die kritische Masse für diese Konfiguration, z.B. 2200 kg spaltbare Pu-Isotope. Die Verteilung dieses Spaltmaterials auf das Brennstoffvolumen verlangt eine Spaltstoffdichte von etwa $1,2 \text{ g/cm}^3$. Bei oxydischem Brennstoff, bei dem die Schwermetall-dichte maximal etwa $\rho_H = 9 \text{ g/cm}^3$ betragen kann, verbleibt somit als Brutstoffdichte $7,8 \text{ g/cm}^3$. Damit erhält das Atomverhältnis Brutstoff/Spaltstoff in diesem Beispiel einen Wert von etwa $y = 6,5$.

Wenn nun gefordert wird, daß die Zentraltemperatur T_Z auch beim maximal belasteten Brennstab deutlich unterhalb des Oxydschmelzpunkts von ca. 2700°C bleibt, dann ist nach Formel (1) eine mittlere Stableistung von z.B. $\chi = 400 \text{ W/cm}$ angemessen. Mit diesen Zahlenwerten folgt als numerische Bedingung für R und b aus Formel (2):

$$R^2 \cdot b \approx 106 \frac{\text{W cm}^2}{\text{g}}$$

Für die spezifische Leistung ergibt sich aus der Konkurrenz zwischen den Kapitalkosten für den Brennstoff und den Herstellungskosten für die Brennstäbe ein ökonomisches Optimum, das nach den Annahmen des Na1-Referenzentwurfes [1] bei etwa $b = 1200 \text{ W/g}$ Spaltatome liegt. Damit ergibt sich als Brennstoffradius ungefähr $R = 0,3 \text{ cm} = 3 \text{ mm}$.

4.3 Hüllbeanspruchung und Abbrand

Während die Ökonomie des Gesamtkraftwerkes möglichst hohe Kühlmitteltemperaturen und damit hohe Hüllwandtemperaturen verlangt, ist letztere aus Festigkeits- und Korrosionsgründen natürlich beschränkt. Für hochwarmfeste Edelstähle können Temperaturen bis höchstens etwa 650°C zugelassen werden, wenn andererseits noch eine hinreichende Dauerstandfestigkeit gegen Spaltgasdruck, Brennstoffschwellen und thermische Spannungen verbleiben soll. Der Abbrand eines Brennstabes ist in erster Linie von der Hüllwandfestigkeit her begrenzt. Sowohl der Spaltgasdruck als auch der Schwelldruck des festen Brennstoffes setzt der Lebensdauer des Brennstabes praktisch ein Ende. Daneben sei zumindest die Möglichkeit einer Begrenzung durch die Spaltproduktver-

giftung des Brennstoffes erwähnt. Typische Auslegungsabbrände liegen nach den jetzigen Vorstellungen und Entwürfen im Bereich um 100 000 MWd/t U+Pu bei Na-gekühlten Reaktoren; bei dampfgekühlten Reaktoren sind sie wegen der nötigen höheren Hüllwandtemperatur und wegen des hohen Kühlmittelaußendruckes deutlich niedriger.

5. Sicherheitsanforderungen

5.1 Kühlung und Kühlkreislauf

Da der Kühlkreislauf von Spaltstoffen und Spaltprodukten frei bleiben muß, ist es nötig, für die Brennelemente eine völlig undurchdringliche Hülle vorzusehen. Es ist eine prinzipielle Forderung, daß diese Dichtigkeit bei gegebener mechanischer Beanspruchung, bei der Kühlmittelkorrosion und unter Bestrahlung mit schnellen Neutronen erhalten bleibt. Bei einem Brennelementkonzept mit Spaltgasablaß ("vented fuel") gelangen die Spaltgase - nicht aber die festen Spaltprodukte - betriebsmäßig ins Kühlmittel, woraus sie dann kontinuierlich entfernt werden müssen.

Da die Kühlverhältnisse selbst stabilisiert bleiben müssen, sind keine wesentlichen Veränderungen der freien Strömungsquerschnitte im Brennstabbündel zulässig, weiterhin auch keinerlei lokale Überhitzungen an den Stäben selbst. Daher muß die geometrische Integrität der Stäbe gewährleistet sein, d.h. es darf kein Verbiegen, Schwellen oder Beulen auftreten. Lokale Überhitzungen werden durch gleichmäßige Verteilung der Wärmequellen (Spaltstoffe) und durch homogene Wärmeabführung vermieden. Hier spielt - zumindest beim Anfahren eines neuen Brennstabes - auch die Gleichmäßigkeit des Spaltes zwischen Tablettenbrennstoff und Hüllwand eine Rolle.

5.2 Reaktivitätsrückwirkungen

Bei Normalbetrieb und im Überlastzustand sollen im Brennstab möglichst geringe axiale Brennstoffverschiebungen auftreten können, damit eine Reaktivitätszunahme sicher auszuschließen ist. Bei Brennstoffzentraltemperaturen deutlich unterhalb des Schmelzpunktes ist diese Forderung wohl für den Normalbetrieb erfüllt. Um einem Überlastzustand in dieser Hinsicht zu begegnen, muß das mögliche Ausmaß des

Brennstoffsackens ("slumping") begrenzt werden. Daher darf die Schmierdichte des Brennstoffes nicht zu klein gewählt werden, z.B. nicht unter 75 % der theoretischen Dichte.

Für ausgeprägte Leistungsüberschläge sind zwei Gegensteuermechanismen des Brennstoffes zu diskutieren, einmal die Reaktivitätsabnahme, durch Wärmeausdehnung, weiterhin die entsprechende günstige Rückwirkung durch einen negativen Doppler-Temperaturkoeffizienten. Eine sicher wirkende axiale Wärmeausdehnung ist nur bei hochdichten Brennstoffen zu erwarten, insbesondere bei Metallen. Keramische Brennstoffmischungen können sich nur auf den Doppler-Effekt verlassen. Die negative Reaktivitätswirkung kommt hierbei von der mit der Temperatur ansteigenden Neutronenabsorption des Brutstoffanteils. Damit der günstige Effekt sich instantan, d.h. ohne wesentliche Zeitverzögerung, einstellt, sind die Wärmetransportwege von den Wärmequellen - dem Spaltstoff - zu den Neutronensenken - dem Brutstoff - kurz zu halten. Daraus resultiert die Forderung nach hinreichender Spaltstoff-Brutstoff-Homogenität im Brennstoff. Die hier- nach noch zulässigen maximalen Pu-Partikelgrößen sind um 200 μm . Die früher in diesem Zusammenhang noch aufgestellte Forderung nach Beschränkung des Spaltstoffanteils im Brennstoff auf etwa 25 % ist nicht mehr bedeutsam, da neuerdings der vermutete positive Doppler-Temperaturkoeffizient des Pu 239 sich als praktisch gleich Null erwiesen hat.

6. Auslegungsparameter

Hierbei kann zwischen Funktions- und Fabrikationsparametern unterschieden werden. Funktionsparameter sind solche Größen, die die Beanspruchung des Brennelementes im Reaktor beschreiben. Mit ihnen braucht der Brennelementhersteller sich im Prinzip nicht auseinanderzusetzen. Dazu gehören

- die Stabileistung
- die Hüllwandtemperaturen
- der Innen- und Außendruck
- der Abbrand

Die Fabrikationsparameter stellen mit ihren ausgewählten Zahlenwerten, Toleranzen und den zugeordneten Prüfvorschriften das Grundgerüst der Brennstabspezifikationen dar. Sie beschreiben

die äußere Geometrie (Durchmesser, Länge, Durchbiegung)

die innere Geometrie (Hüllwandstärke, Spalt, Axialverteilung der Bereiche)

den Brennstoff (Art, Zusammensetzung, Dichte, Homogenität)

die Hülle (Material und Zustand, Eigenschaften, Schweißnähte)

das Füllgas (Art, Fülldruck)

Eine Liste von typischen Auslegungsdaten, wie sie etwa den 1000 MWe Referenzentwürfen für Na- und Dampfkühlung [1,2] entsprechen, ist in Tabelle I zusammengestellt.

7. Die geschlossene Brennelemententwicklung

Eine geschlossene Brennelemententwicklung führt die Evolution von den physikalischen Grundtatsachen und den daraus resultierenden Betriebs- und Sicherheitsanforderungen über ein Netz von Entwicklungsarbeiten und einzelnen Bestrahlungsversuchen zu einem anwendungsreifen Brennelementkonzept. In Fig.3 ist ein derartiges Entwicklungsschema für das Karlsruher Projekt Schneller Brüter angeführt. Die im Winterseminar 1966/67 - worauf sich dieser KFK-Bericht ausschließlich bezieht - vorgelegten Referate beziehen sich in ihrer gemeinsamen Zielsetzung auf die Lösung dieser Entwicklungsaufgabe. Die logische Anordnung versucht, von den besonders aktuellen stofflichen Grundtatsachen und Aspekten auszugehen und modellmäßige Vorstellungen zu erzeugen. Von daher sind dann die Bestrahlungsversuche und ihre Auswertung zu verstehen. Die zwischendurch eingestreuten und am Schluß erneut aufgenommenen Versuche einer formelmäßigen Durchdringung der Brennelementauslegung und Brennelementökonomie - letzteres besonders mit Bezug auf den ganzen Brennstoffzyklus - fassen die einzelnen Teile des Gesamtschemas zusammen und geben ihnen die Zielrichtung auf ein aktuelles technisches Großprojekt.

8. Literatur

- [1] Smidt, D., Müller, A.: Referenzstudie für den 1000 MWe natriumgekühlten schnellen Brutreaktor (Na1), 1964, KFK-299
- [2] Müller, A. et al.: Referenzstudie für den 1000 MWe dampfgekühlten schnellen Brutreaktor (D1), 1966, KFK-392
- [3] Karsten, G. and Kummerer, K.: Program, Pin Design and Specifications for Fuel Irradiation Experiments in the Enrico Fermi Fast Breeder Reactor, 1967, KFK-586
- [4] Kummerer, K. and Karsten, G.: Some Results on the Development of a Fast Reactor Fuel Element, BNES Conference on Fast Breeder Reactors, London, 1966, KFK-575

Tabelle I Typische Auslegungsdaten für Brennelemente
schneller Brutreaktoren

		Beispiel für		
		Na-Kühlung	Dampf-Kühlung	
Funktions-Parameter	Max. Stabileistung, nominell (W/cm)		566	326
	Max. Hüllmittwandtemperatur, nominell (°C)		625	622
	Max. Hüllmittwandtemperatur, Heißkanal (°C)		654	737
	Max. Innendruck von Füllgas und Spaltgas (atm)		70	260
	Max. Außendruck (atm)		4	170
	Max. Abbrand, axial gemittelt (MWd/t U+Pu)		100 000	55 000
Fabrikations-Parameter	Äußere Geometrie	Außendurchmesser (mm)	6,7	7,0
		Länge außen (mm)	2 672	2 155
	Innere Geometrie	Hüllwandstärke (mm)	0,35	0,37
		Diametraler Spalt (µm)	-	180
		Oberer Brutmantel, Länge (mm)	400	350
		Brennstoffteil, Länge (mm)	955	1 510
		Unterer Brutmantel, Länge (mm)	400	(separat)
		Spaltgasplenum, Lage	unten	oben
	Hüllmaterial		16/13 CrNi	Inconel 625
	UO ₂ -PuO ₂ -Brennstoff	Brennstoff-Form	Vibrierpulver	Tabletten
		Zusammensetzung in Zone 1/2 (Gew.-% PuO ₂)	16/20	13/16
	Schmierdichte (% th.D.)		85	85
UO ₂ -Brutmantel, Schmierdichte (% th.D.)		90	90	
He-Füllung, Anfangsdruck bei Raumtemperatur (atm)		1	56	

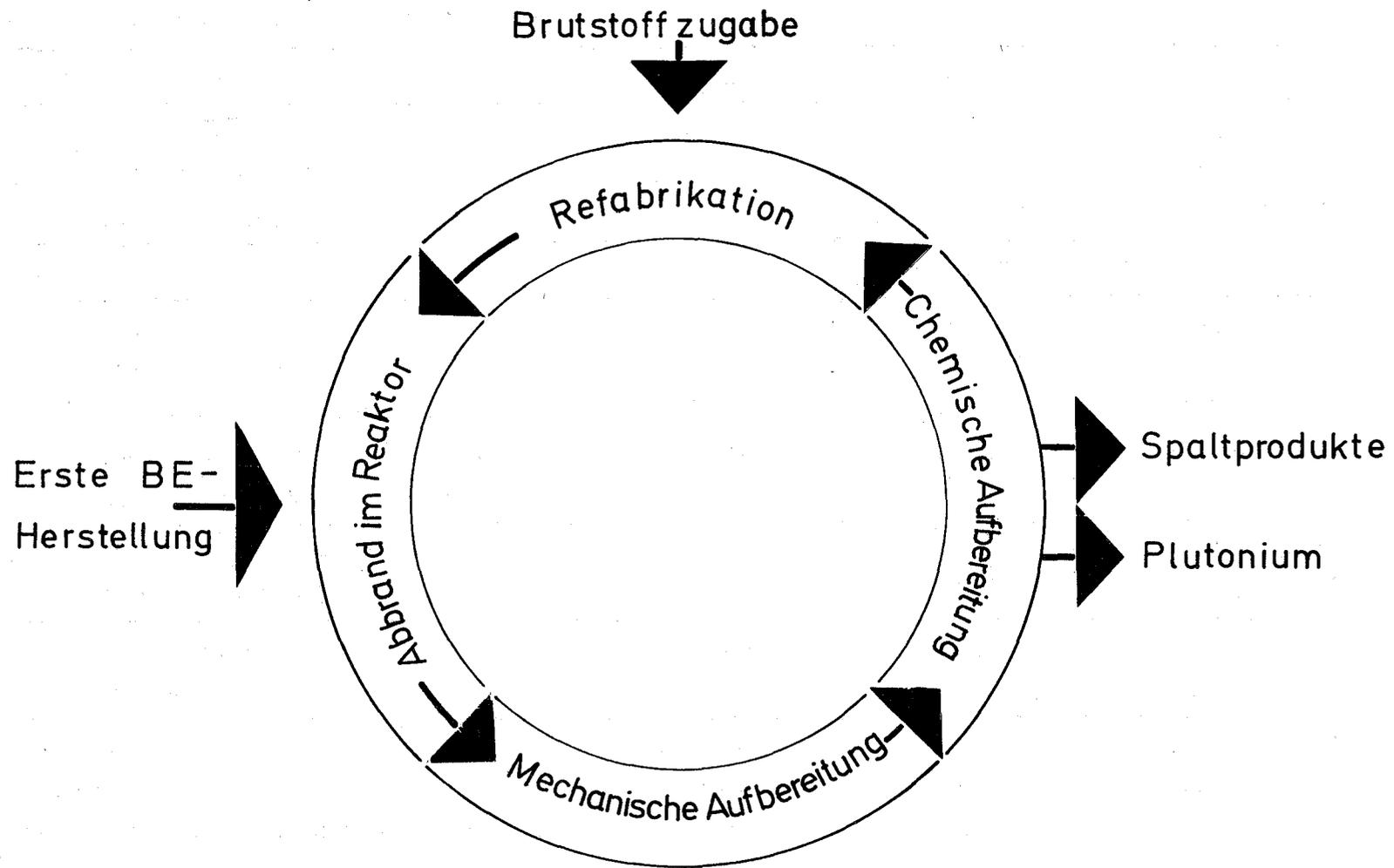


Fig. 1 Der Brennstoffkreislauf

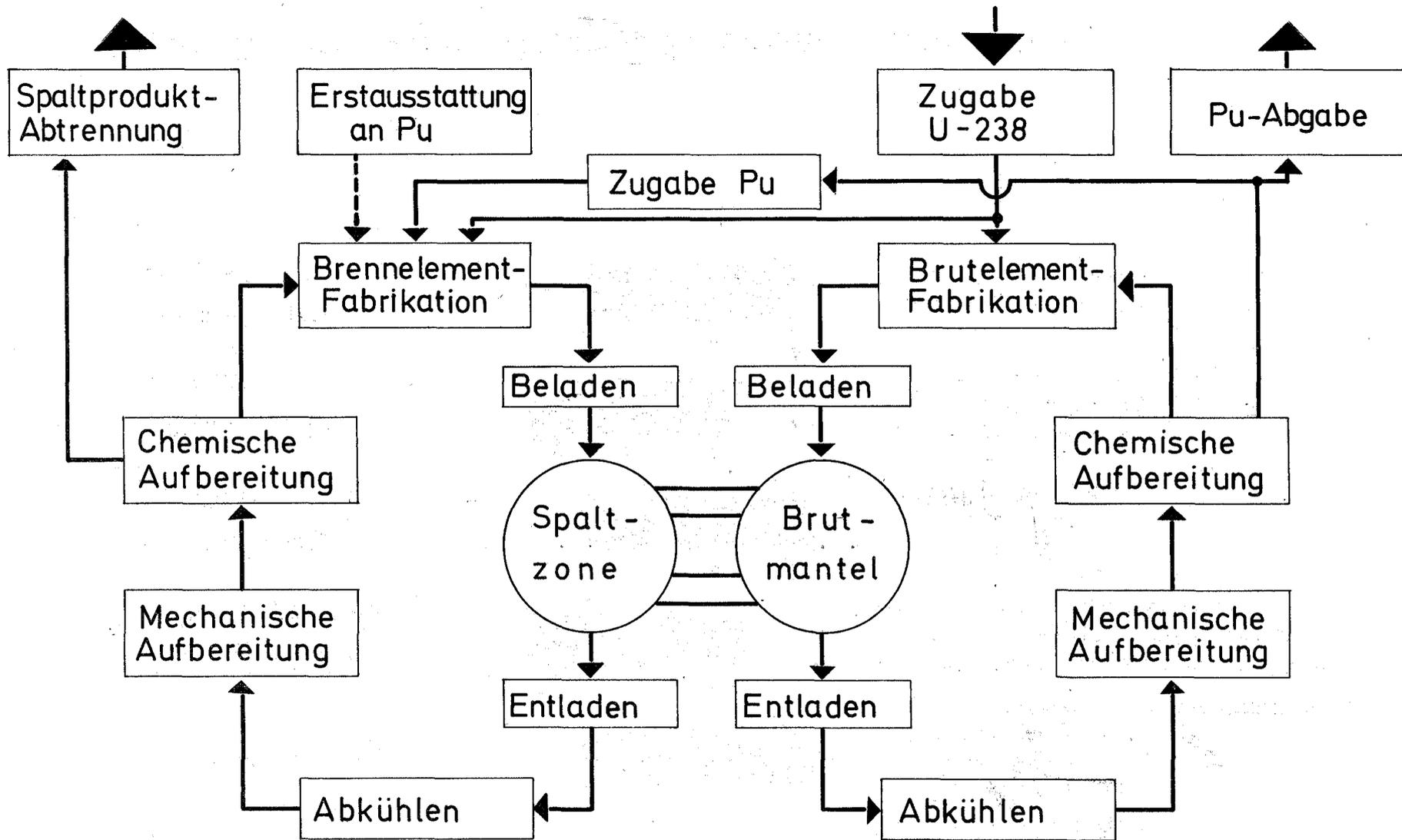


Fig.2 Verknüpfung von Brennstoff- und Brutstoffkreislauf

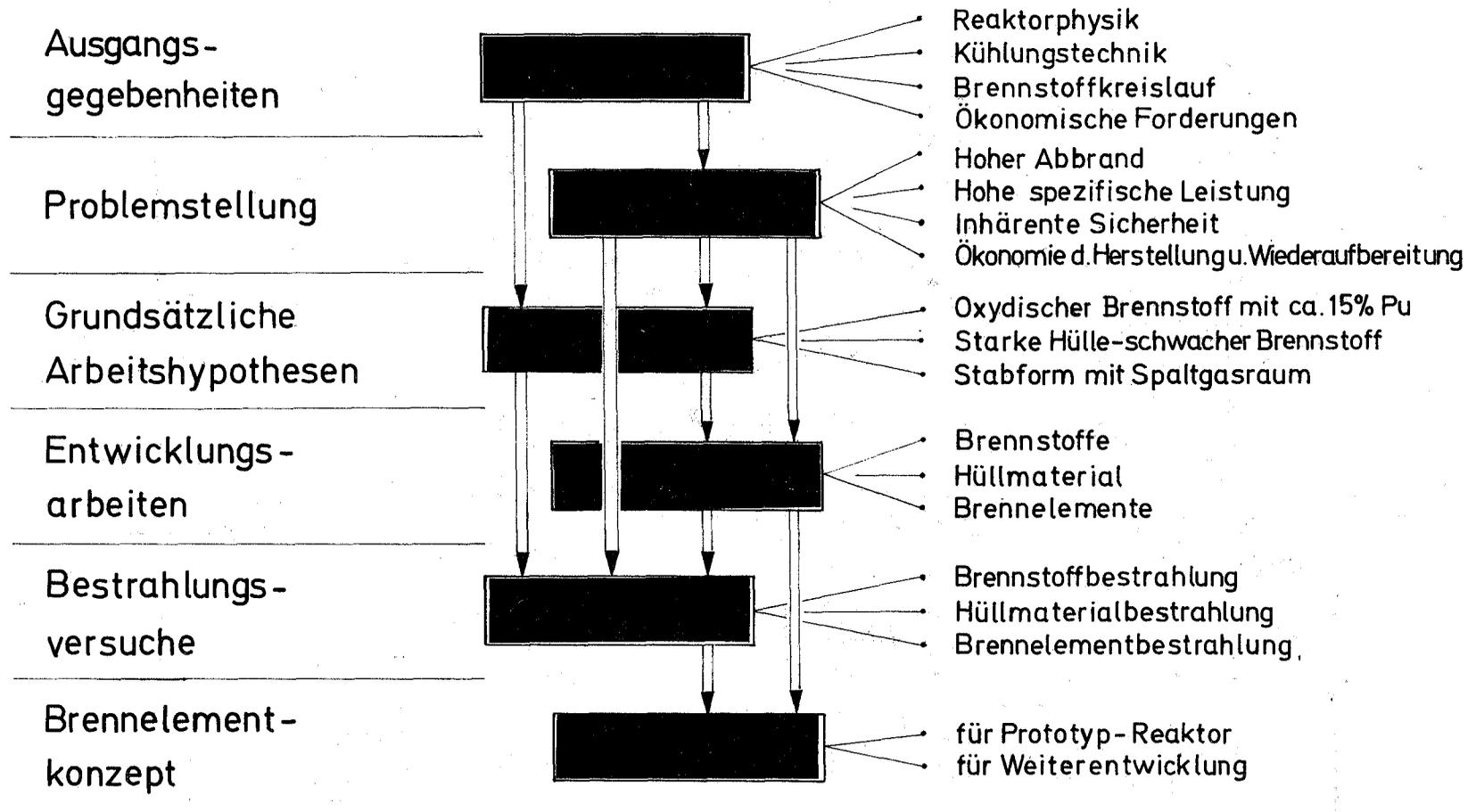


Fig.3 Schema einer Brennstoffelement - Entwicklung

II. BRENNSTOFFAUSWAHL

von

G. Karsten

Inhalt

1. Einleitung
2. Herstellung der Brennstoffvorprodukte
3. Anwendungsformen von Brennstoffen und ihre Herstellung
4. Physikalische Eigenschaften
 - 4.1 Dichte
 - 4.2 Wärmeleitfähigkeit, Stableistung
 - 4.3 Schmelzpunkte, maximale Stableistung
 - 4.4 Kristallstruktur und thermische Ausdehnung
 - 4.5 Kompatibilität
5. Zusammenfassung

1. Einleitung

Aus theoretischen und allgemeinen Überlegungen zur Frage des Brennstoffzyklus und der Brennelementauslegung ergeben sich für die Auswahl von Brennstoffen und die Herstellung von Brennstäben einige Kriterien, die im folgenden zu diskutieren sind. Es soll nicht so sehr die Aufgabe sein, eine erschöpfende Darstellung von Daten zu geben, sondern vielmehr sollen die charakteristischen und für die Auslegung wichtigen Eigenschaften der Brennstoffe erwähnt werden. Dabei wird keine Optimalisierung für den einen oder anderen Brennstoff durchgeführt; es wird lediglich typisiert. Behandelt werden Uran und Plutonium sowie die entsprechenden Oxyde, Monocarbide und Mononitride. Die im erwähnten Zusammenhang wichtigen Charakteristiken sind in der Herstellung der Komponenten, ihrer Anwendungsform und den physikalischen Eigenschaften zu finden. Daher werden diese Brennstoffarten unter diesen Aspekten zu beschreiben sein. Auf die Beschreibung des Verhaltens unter Bestrahlung und der mechanischen Eigenschaften wird aus Mangel an fundierten, allgemein anwendbaren Daten verzichtet.

2. Herstellung der Brennstoffvorprodukte

Als Brennstoffvorprodukte werden hier die keramischen Brennstoffe in ihrer Rohform bezeichnet. Zu dieser Rohform gelangt man über mehrere Stufen. Zunächst wird eine Ausgangssubstanz geschaffen, die als Basis für die Herstellung der verschiedensten Brennstoffarten dient. Je nachdem, für welchen weiteren Herstellungsprozeß man sich entscheidet, ist diese Ausgangssubstanz das Metalloxyd oder das Metall selbst. Beide Ausgangssubstanzen werden durch Standardverfahren hergestellt. Nun genügt es nicht immer, die reinen Substanzen herzustellen. Vielmehr werden häufig Uran-Plutoniummischungen verwendet. Außerdem werden in vielen Fällen bestimmte Uran- und Plutonium-Isotopenverhältnisse gefordert. Diese Varianten sind durch Mischen im wässrigen Lösungszustand und anschließendes Ausfällen der Oxyde, durch Herstellung der Metalle oder auch durch mechanisches Mischen der Komponenten herstellbar. Die Basissubstanzen, Oxyd und Metall, werden dann in weiteren Prozessen zum Brennstoffvorprodukt entwickelt. Das Oxyd

ist lediglich zu trocknen und zu kalzinieren. Es kann dann in seine Anwendungsform als Oxyd gebracht werden. Soll Karbid oder Nitrid entstehen, so werden verschiedene Karburierungs- oder Nitrierungsprozesse durchlaufen. Sie sind in Fig.1 oberhalb der Trennlinie aufgezeichnet. Die angegebenen Daten sind in der gesamten Fig.1 Beispiele, stellvertretend für eine größere Zahl veröffentlichter Daten, von denen hier nur einige ausgewählt worden sind [1 - 11]. Es werden Karbide durch Reaktion der Metalle mit Kohlenwasserstoffen oder durch Reaktion der Oxyde oder Hydride mit Kohlenstoff hergestellt [8 - 10]. Die Herstellung der Nitride wird über Stickstoffreaktion mit dem Hydrid bei mittleren Temperaturen um 1000 °C oder durch Lichtbogenreaktion unter Stickstoff durchgeführt. Ein wesentliches allgemeines Kriterium für die Führung der Herstellungsprozesse ist das Erreichen einer bestimmten Stöchiometrie und das Erreichen eines Minimums an Verunreinigungen der Produkte, was speziell bei den Nitriden und besonders bei den Karbiden Schwierigkeiten bereitet.

3. Anwendungsformen von Brennstoffen und ihre Herstellung

Die Brennstoff-Geometrie wird durch die Art des Brennelements bestimmt. Es gibt Reaktoren mit plattenförmigen, kugelförmigen und stabförmigen Brennelementen. Die häufigste Form ist das Brennelementbündel aus Brennstäben zylinderförmiger Geometrie. Diese Stäbe bestehen aus einer verschlossenen Metallhülle, in der sich der Brennstoff und einige Bauteile befinden. Die Anwendungsform des Brennstoffs kann sehr verschieden sein. Eine Auswahl der wichtigsten Formen zeigt Tabelle 1. Die Zahl der Varianten läßt sich in vier Gruppen zusammenfassen:

- a) Tabletten
- b) Vibrierte Partikel
- c) Gegossener Brennstoff, flüssig oder fest
- d) Cermet-Brennstoff

a) Tabletten sind herstellbar durch Sintern und Heißpressen. Das reine Sintern ohne gleichzeitige Druckanwendung wird bei steigenden Temperaturen in der Reihenfolge Oxyd, Karbid,

Nitrid durchgeführt, Fig.1. Diesem Vorgang geht ein Granulieren des Brennstoffvorproduktes und Kaltpressen voraus. Beim Heißpressen dagegen wird beim Karbid und Nitrid als Sinterhilfe äußerer Druck angewendet. Dadurch erniedrigen sich die Arbeitstemperaturen beträchtlich.

Die so hergestellten Tabletten haben ein sehr verschiedenes Höhen- zu Durchmesser Verhältnis, welches im allgemeinen zwischen 2 und 0,5 schwankt. Die Geometrie ist meist ein Vollzylinder, jedoch werden auch Vollzylinder mit Stirnflächeneinsenkungen oder auch Hohlzylinder angewandt, damit die Volumeneinsparungen Ausdehnungen während des Betriebes aufnehmen können. Je nach Anforderung werden die Mantelflächen nachgeschliffen.

- b) Vibrierte Partikel können durch Sintern von granuliertem Ausgangsmaterial oder durch Brechen des Vorproduktes hergestellt werden. Man kann Oxydpartikel auch mit chemischen Spezialverfahren [2] oder als Mikrotabletten herstellen. In jedem Fall besteht das Granulat jedoch aus Partikeln mit der Maximalgröße von ca. 2 mm. Zwischenräume werden beim Vibrieren mit kleineren Kornfraktionen gefüllt, deren Abstufung empirisch ermittelt wird. Das Vibrieren selbst wird mit elektromagnetisch oder pneumatisch betriebenen Vibratoren durchgeführt [3]. Die Gesamtdichte, die mit diesem Verfahren erreicht wird, liegt meist etwas niedriger als beim Tablettenbrennstoff.
- c) Gegossenen Brennstoff gibt es in metallischer Form oder als Karbid [8]. Als reiner Uran- oder Plutonium-Uranbrennstoff in metallischer Form wird er weniger angewandt, meist wird er legiert, z.B. mit Co oder Fe, um mit flüssigem Brennstoff während des Betriebes zu arbeiten [12] oder mit Zr oder Ti [13], um günstigere physikalische Eigenschaften zu erhalten. Bei der Herstellung des Karbidbrennstoffs wird auch das Gußverfahren angewandt, bei dem Brennstoffstäbe sehr hoher Dichte gegossen werden.
- d) Der Cermetbrennstoff schließlich ist eine Mischung aus metallischem Brennstoff mit Keramik, z.B. Al_2O_3 oder von oxydischem

Brennstoff mit Metall, z.B. Mo.

Im ersten Fall ist die Keramik ein Verdünnungsmittel, im zweiten Fall dient Mo zur Verbesserung der Wärmeleitfähigkeit. Es gibt selbstverständlich noch mehrere Gründe für die Herstellung von Cermets, z.B. eine Erhöhung der Brennstoffduktilität oder die beabsichtigte Kompression schwellenden Brennstoffs usw.

4. Physikalische Eigenschaften

4.1 Dichte

Bei den physikalischen und ökonomischen Überlegungen eines Reaktorkonzeptes spielt die Brennstoffdichte eine Rolle. Von diesem Standpunkt aus wäre der Brennstoff in metallischer Form jeder anderen Uran- oder Plutoniumverbindung weit überlegen, siehe Tabelle 2 [6, 14]. Das Uranoxyd z.B. hat mit einer theoretischen Metалldichte von $9,68 \text{ g/cm}^3$ nur eine etwa halb so große Dichte wie das Uranmetall. Hinsichtlicher keramischer Brennstoffe haben die Karbide und Nitride mit $13 - 13,5 \text{ g/cm}^3$ theoretischer Metалldichte einen Vorteil gegenüber Oxyd.

4.2 Wärmeleitfähigkeit, Stabileistung

Die Stabileistung χ hängt mit der Wärmeleitfähigkeit k bekanntlich wie folgt zusammen:

$$\chi = 4\pi \int_{T_a}^{T_i} k(T) dT$$

T_a = Brennstoffoberflächentemperatur

T_i = Zentraltemperatur

T_a ist durch die Reaktorauslegung gegeben, als obere Grenze von T_i wird üblicherweise die Schmelztemperatur zugrundegelegt, siehe Kapitel 4.3. Bei gegebenen T_a und T_i erhält man aus einem Vergleich der mittleren Wärmeleitfähigkeiten der verschiedenen Brennstoffe einen Vergleich der dabei möglichen Stabileistungen.

In Fig.2 sind die Wärmeleitfähigkeiten von Uran-Plutonium-Brennstoffen mit 20 Gew.% Plutonium zusammengestellt. Dabei wurde

entsprechend den Erfahrungen bei den keramischen Brennstoffen mit höherer Dichte die Wärmeleitfähigkeit einer U-Pu-Legierung mit 20 % Pu zu 80 % der Wärmeleitfähigkeit der reinen Uranverbindung angenommen [17]. Die Daten für UO_2 - PuO_2 sind bereits im Beitrag V erwähnt, hier aber auf 95 % theoretischer Dichte umgerechnet. Die Daten für das U-Pu-Mischkarbid bzw. Mischnitrid sind als repräsentative Mittelwerte aus mehreren Quellen dargestellt [10,11,17]. Hier wurde lediglich der Einfluß der Dichte auf die Wärmeleitfähigkeit mit einer Reduzierung von 15 % bei Erniedrigung der Dichte von 100 auf 95 % theoretischer Dichte angewandt [17]. Aus Fig.2 ergibt sich, daß z.B. bei 900 °C die Wärmeleitfähigkeiten der Reihe

Metall - Nitrid - Karbid - Oxyd dem Verhältnis
12 : 4 : 4 : 1 entsprechen.

Bei 1500 °C, einer Temperatur, die als mittlere Betriebstemperatur keramischer Brennstoffe repräsentativ ist, ergibt sich das Verhältnis der Reihe

Nitrid - Karbid - Oxyd wie folgt
7 : 7 : 1

Das bedeutet, daß bei niedrigen Temperaturen mit Metall vergleichsweise die höchste Stableistung zu erzielen und die Anwendung keramischer Brennstoffe wesentlich ungünstiger wäre. Bei höheren Temperaturen liegt das Verhältnis eindeutig zu Gunsten von Karbid oder Nitrid bzw. Karbonitrid [10], der Mischung aus Karbid und Nitrid. Um nun das Bild realer zu gestalten, muß betrachtet werden, ob die Temperaturen T_a und T_i wirklich bei allen Brennstoffen gleich sind.

4.3 Schmelzpunkte, maximale Stableistung

Aus Tabelle 3 kann man entnehmen, daß die Schmelzpunkte der verschiedenen Brennstoffe sehr unterschiedlich sind. Nimmt man an, daß die Brennstoffoberflächentemperatur bei Metallen etwa 500 °C und bei keramischen Brennstoffen etwa 900 °C ist, so ergeben sich für den maximal möglichen Temperaturanstieg im Brennstoff $T_i - T_a$ jeweils spezifische Werte. Nun ist T_i nicht unbedingt mit dem Schmelzpunkt zu identifizieren. Viel-

mehr dürfte in einigen Fällen eine wesentlich tiefere maximale Betriebstemperatur anzusetzen sein. Aus Dampfdruckbestimmungen [11] ergibt sich, daß für das (UPu)N infolge des hohen Dampfdrucks, der zu einem Brennstofftransport von heißeren zu kälteren Orten führt, die obere Grenztemperatur etwa 1800 °C, also 1000 °C unter dem Schmelzpunkt, sein könnte. Aus einigen Daten über die Thermodynamik der Karbide [5,20] und Oxyde [21,22] zeigt sich, daß bei den Karbiden je nach Stöchiometrie die beiden Elemente verschieden verdampfbar sind, während bei den Oxyden kongruentes Verdampfen und Verdampfen von PuO und O₂ im Vordergrund stehen. Das bedeutet, daß beim Karbid die maximale Betriebstemperatur in jedem Fall unter dem Schmelzpunkt liegen sollte, etwa bei 2000 °C, wogegen beim Oxyd aus thermodynamischen Gründen eine Temperaturbegrenzung nicht klar erkennbar ist.

In Tabelle 4 sind für verschiedene Brennstoffe unter Zugrundelegung der diskutierten Temperaturgrenzen und Verwendung der in Fig.2 angegebenen Wärmeleitfähigkeiten die maximalen Stableistungen angegeben. Man erkennt, daß unter den angegebenen Voraussetzungen das Karbid, gefolgt vom Nitrid, dem Metall und dem Oxyd deutlich überlegen ist.

4.4 Kristallstruktur und thermische Ausdehnung

Die kristallographische Struktur spielt bei der Betrachtung des Schwellverhaltens der Brennstoffe unter Bestrahlung eine wesentliche Rolle. Aus Tabelle 3 ist zu entnehmen, daß von diesem Einfluß her die Karbide und Nitride ähnliches Verhalten zeigen sollten. Mit dem kubisch-flächenzentrierten Gitter, der dichtesten Kugelpackung also, wird die Neigung, Spaltprodukte auszuscheiden, größer sein als beim einfachen symmetrischen Flußspatgitter der Oxyde. Auch dürfte die Duktilität der Karbide und Nitride höher sein als beim Oxyd, was die besondere Empfindlichkeit auf Spaltgasschwellen erklären könnte [23,29,31]. Metalle müßten auf Grund ihrer noch niedrigeren kristallographischen Symmetrie als beim Oxyd eine noch geringere Schwellrate zeigen. Da aber die Metalle von allen Brennstoffen am stärksten schwellen, muß dieser Effekt von anderen Einflüssen völlig überdeckt werden. Tabelle 3 zeigt weiterhin, daß auch

das thermische Ausdehnungsverhalten bei den Metallen auf Grund der Mannigfaltigkeit der metallischen Phasen sehr kompliziert ist. Das hat u.a. dazu geführt, Metallbrennstoffe in solchen Legierungsformen anzuwenden, deren Verhalten günstiger ist, siehe Kapitel 3. Die thermische Ausdehnung der keramischen Brennstoffe ist in größeren Bereichen gleich, wie Tabelle 3 zeigt.

4.5 Kompatibilität

Wir beschränken uns auf die Diskussion der Kompatibilität bzw. Verträglichkeit der keramischen Brennstoffe mit den folgenden Medien: Luft, Wasser, Natrium und austenitischer Stahl, siehe Tabelle 5.

An Luft beständig sind nur PuO_2 und UN, alle anderen hier aufgeführten keramischen Brennstoffe reagieren mit Luft mehr oder weniger langsam. Ähnliches gilt für die Reaktion mit Wasser, nur reagieren UO_2 und PuN schon schneller, während die Karbide, vornehmlich das PuC, heftig reagieren. Die Verträglichkeit mit Natrium ist auch bei höheren Temperaturen ausnahmslos gut. Die Verträglichkeit mit Stahl ist prinzipiell im Detail zu untersuchen. Generell aber läßt sich sagen, daß die Oxyde und Nitride keine Schwierigkeiten bereiten, wobei diese Aussage für Nitrid sich nur auf Untersuchungen außerhalb des Reaktors beschränkt, lediglich Incoloy 800 und Inconel 625 scheinen geringfügige Reaktionen mit Nitrid zu haben [11]. Die leicht überstöchiometrischen und stöchiometrischen Karbide scheinen verträglicher zu sein als allgemein angenommen wird [29, 31], lediglich Natrium scheint als Überträger von Überschußkohlenstoff auf die Hülle zu wirken. Unterstöchiometrisches Karbid reagiert mit Stahl wegen freier Metallanteile eutektisch [29]. Nach neueren Erkenntnissen [10] ist die Reaktion mit Stahl nur auf freien Kohlenstoff zurückzuführen oder auf höheren MC_2 -Gehalt, nicht aber auf Anwesenheit von M_2C_3 im Gefüge des Brennstoffs.

5. Zusammenfassung

Die Auswahl eines optimalen Brennstoffs erscheint sehr schwierig, um so mehr als eine quantitative umfassende Analyse z.Zt. noch gar nicht möglich ist. Einige Stoffe sind noch fast gar nicht untersucht [7]. In größerem Umfange sind eigentlich erst die Oxyde und Karbide untersucht, wenn auch längst noch nicht vollständig, wie einige Gesamtberichte zeigen [29, 30]. Der Gesamteindruck ist, daß die Oxyde am besten bekannt sind, die Karbide, besonders die Nitride dagegen noch weitgehend zu untersuchen sind. Aber der Eindruck wird deutlich, daß die Karbide am leistungsfähigsten und außer dem Oxyd wohl auch am billigsten herzustellen sind. Die Karbide sind allerdings, was die Verträglichkeit mit dem Hüllmaterial betrifft, etwas schwieriger anwendbar. Außerdem scheiden sie sicher bei Wasser- und Dampfkühlung als Brennstoff aus. Die Nitride sind hinsichtlich ihrer Herstellung möglicherweise etwas teurer, ihre thermische Belastbarkeit ist ebenfalls geringer als beim Karbid. Auch ist ihre Verträglichkeit mit Dampf beschränkt, wenn auch nicht so sehr wie beim Karbid. Die Verträglichkeit mit Stahl bei längerem Abbrand ist unbekannt, vor allem im Hinblick auf die Freisetzung von Stickstoff während der Kernspaltung. Die bevorzugt in Frankreich propagierte Herstellung von Karbonitriden beruht auf der Tatsache, daß sie leicht einphasig stöchiometrisch herzustellen sind. Die neuere Erfahrung an gleicher Stelle geht jedoch dahin, daß bei Verzicht auf Nickel als Sinterhilfe, Karbid auch in stöchiometrischer einphasiger Form herstellbar ist [10]. Damit treten die Karbonitride wieder etwas in den Hintergrund. Insgesamt also kann man sagen, daß Karbid und Nitrid leistungsfähiger sind als Oxyd, daß aber das Karbid insgesamt von der Ökonomie her vor dem Nitrid liegen dürfte, was z.Zt. allerdings nur abzuschätzen ist, da für das Nitrid noch keine ökonomischen Herstellungsmethoden für größere Chargen bekannt sind.

Literatur

- [1] C.S. Caldwell, K.H. Puechl: Plutonium-Uranium Dioxide Powder and Pellet Fuel Manufacture, Nuclear Metallurgy Symposium, Plutonium Fuels Technology, Phoenix, Arizona (1967) Konf. 78, C1
- [2] F.G. Kitts et al.: Sol - Gel Urania - Plutonia Microsphere Preparation and Fabrication into Fuel Rods, Nuclear Metallurgy Symposium, Plutonium Fuels Technology, Phoenix, Arizona (1967) Konf. 78, C2
- [3] G. Karsten, Th. Dippel, H.J. Laue: Fabrication of Fast Reactor Fuel Pins for Test Irradiations, KFK-577 (1967)
- [4] R.W. Endebroek, E.L. Foster jr., D.L. Keller: Preparation and Properties of Cast UN, BMI 1690 (1967)
- [5] J. Bugl, A.A. Bauer: Phase, Thermodynamic, Oxidation and Corrosion Studies of the System Uranium - Nitrogen, BMI 1692 (1964)
- [6] W.M. Pardue et al.: Synthesis, Fabrication and Chemical Reactivity of Plutonium Mononitride, BMI 1693 (1964)
- [7] W.M. Pardue, V.W. Storhok, R.A. Smith, D.L. Keller: An Evaluation of Plutonium Compounds as Nuclear Fuels, BMI 1698 (1964)
- [8] P. Himmelstein et al.: Entwicklung von Verfahren zur Herstellung von Urankarbiden sowie Cermets auf UC-Basis, EUR 2004d (1965)
- [9] W.M. Pardue, V.W. Storhok, R.A. Smith: Properties of Plutonium Mononitride and its Alloys, 3rd Intern. Conf. on Plutonium, London 1965
- [10] R. Pascard: Properties of Carbides and Carbonitrides, Nuclear Metallurgy Symposium, Plutonium Fuels Technology, Phoenix, Arizona (1967), Conf. 78, D5

- [11] W.M. Pardue, F.A. Rough, R.A. Smith: Uranium-Plutonium Nitrides: Fabrication and Properties, Nuclear Metallurgy Symposium, Plutonium Fuels Technology, Phoenix, Arizona (1967), Conf. 78, D6
- [12] Los Alamos Quarterly Reports, z.B. LA-3244 - 3316 - 3370 - 3431 - MS
- [13] E.L. Zebroski, H. Kittel, D.W. Moss: Reviews of Status of Technology of Fast Reactor Fuels, ANS 101, April 1967, San Francisco
- [14] H. Blank, G. Brossmann, M. Kemmerich: Zwei- und Mehrstoffsysteme mit Plutonium, Teil I, KFK-105, 1962
- [15] G. Brossmann, M. Kemmerich, F. Weitzenmiller: Zwei- und Mehrstoffsysteme mit Plutonium, Teil II, KFK-220, 1964
- [16] W.E. Baily et al.: Thermal Conductivity of Uranium-Plutonium Oxide Fuels, Nuclear Metallurgy Symposium, Plutonium Fuels Technology, Phoenix, Arizona (1967), Conf. 78, D1
- [17] J.A. Leary, K.W.R. Johnson: Thermal Conductivity of Uranium-Plutonium Carbide Fuels, Nuclear Metallurgy Symposium, Plutonium Fuels Technology, Phoenix, Arizona (1967) Conf. 78, D2
- [18] D.L. Keller: Development of Uranium Mononitride, BMI-X-178 (1961)
- [19] F.A. Rough, A.A. Bauer: Constitution of Uranium and Thorium Alloys, BMI-1300 (1958)
- [20] J.M. Leitnaker, W.G. Wittemann: The Dissociation Pressure of Uranium Dicarbide, TID 13629 (1961)
- [21] BMI-Compilation of Fuels Data, unpublished - persönliche Mitteilung

- [22] R.J. Ackermann, et al.: The Thermodynamic Study of the Urania - Uranium System, ANL 7048 (1965)
- [23] R.A. Wullaert, I.M. Facknlmann, W. Chubb: An Evaluation of UC-PuC for Sodium-Cooled Fast Reactors, BMI 1799 (1967)
- [24] F.A. Rough et al.: Progress on the Development of Uranium Carbide - Type Fuels, BMI 1488 (1960)
- [25] O.O. Gamba, The Nature and Properties of the Carbides of Uranium, NAA-SR-10929 (1965)
- [26] J.M. Gerhart et al.: The Irradiation and Examination of a Plutonium Uranium Oxide Fast Reactor Fuel, ASTM Spec. Techn. Pub. No. 306 (1962)
- [27] D.M. Poole, et al.: Properties of some Plutonium Fuels, 1960 p. 627-649
- [28] Metallurgy Division Annual Report for 1960, ANL-6330, 1960
- [29] L. Neimark, A. Strasser, C. Wheelock: Uranium-Plutonium Carbide Fuels for Fast Breeder Reactors, ANS 100 (1965), E.L. Zebroski, J.P. Mustdier, C. Caldwell: Oxide Fuels for Fast Reactors, ANS 100
- [30] Carbide Fuels in Fast Reactors, NAA-SR-10751 (1965)
- [31] A.A. Strasser, J.M. Kittel: Irradiation Performance of Uranium-Plutonium Carbide Fuels, Nuclear Metallurgy Symposium, Plutonium Fuels Technology, Phoenix, Arizona, (1967), Conf. 78, E5

Tabelle 1 Anwendungsformen von Brennstoffen

Anwendungsform	U	Pu	U-Pu	UO ₂	PuO ₂	UO ₂ -PuO ₂	UC	PuC	UC-PuC	UN	PuN	UN-PuN
gesinterte Tabletten				x	x	x						
gesinterte Tabletten spezieller Form				x	x	x						
gesinterte, vibrierte Partikel aus gebrochenen Grünlingen				x	x	x						
gesinterte, vibrierte Partikel aus Spezialverfahren				x	x	x						
gesinterte, vibrierte Mikro-tabletten				x	x	x						
gesinterte Tabletten aus gebrochenem Reaktionsgut							x	x	x	x	x	x
gebrochenes, vibriertes Reaktionsgut							x	x	x	x	x	x
gebrochenes, vibriertes Schmelzgut				x	x	x	x	x	x			
fester, reiner Guß	x		x									
flüssige, reine Schmelze			x									
feste Legierung oder Mischung mit nicht radioaktiven Stoffen	x		x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
flüssige Legierung oder Mischung mit nicht radioaktiven Stoffen			x									

x = Anwendungsformen wurden realisiert

Tabelle 2a: Keramische Brennstoffdichten bei 625 °C

	UO ₂	PuO ₂	UC	PuC	UN	PuN
Theoretische keramische Dichte (g/cm ³)	10,96	11,46	13,63	13,60	14,32	14,25
Metallmasseanteil (%)	88,1	88,1	95,2	95,2	94,4	94,5
Metалldichte (g/cm ³)	9,68	10,12	13,0	13,0	13,5	13,4

Tabelle 2b: Dichten von metallischen U und Pu

U		Pu	
α	19,04	α	19,86
β	18,11	β	17,70
γ	18,0	γ	17,13
		δ	15,90
		δ'	16,10
		ε	16,51

Tabelle 3 Thermische Daten von Brennstoffen

	Phasen mit U-Punkt °C	linearer thermischer Ausdehnungskoeffi- zient $\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$	Schmelzpunkt °C	Literatur
U	α B 668 γ 774	α 17 B 22 γ 17	1132	[14]
Pu	α B 126 γ 209 δ 316 δ' 456 E 484	α 67 β 41 γ 35 δ -8.6 δ' -596 E 15	640	[14]
UO ₂	Kfz (CaF ₂)	10.5 20 - 1000°	2800	[14]
PuO ₂	Kfz (CaF ₂)	11.4 20 - 1000°	2290	[14]
UO ₂ - 20 w/o PuO ₂			2690	[6]
UC	Kfz (NaCl)	11.0 20 - 1600° [19]	2400 [14]	[14, 19]
PuC	Kfz (NaCl)	10.8 20 - 1000° [14]	1650 [7]	[7, 14]
UC - 20 w/o PuC	(NaCl)	11.9 20 - 1400°	2480	[29]
UN	Kfz (NaCl)	10.1 20 - 1600° [18]	2850 [4]	[4, 18]
PuN	Kfz (NaCl)	11.2 - 13.6 20 - 1000° [9]	2750 [7]	[7, 9]

Tabelle 4 Maximale Stabileistungen verschiedener U-Pu-Brennstoffe für bestimmte Brennstofftemperaturbegrenzungen

Brennstoff	Relative mittlere Wärmeleitfähigkeiten *)	T_a (°C)	T_i (°C)	$\Delta T = T_i - T_a$ (°C)	χ_{\max} ($\frac{W}{cm}$)
U-Pu	12	500	850	350	1300
(U-Pu)C	7	900	2000	1100	2300
(U-Pu)N	7	900	1800	900	1900
(U-Pu)O ₂	1	900	2700	1800	550

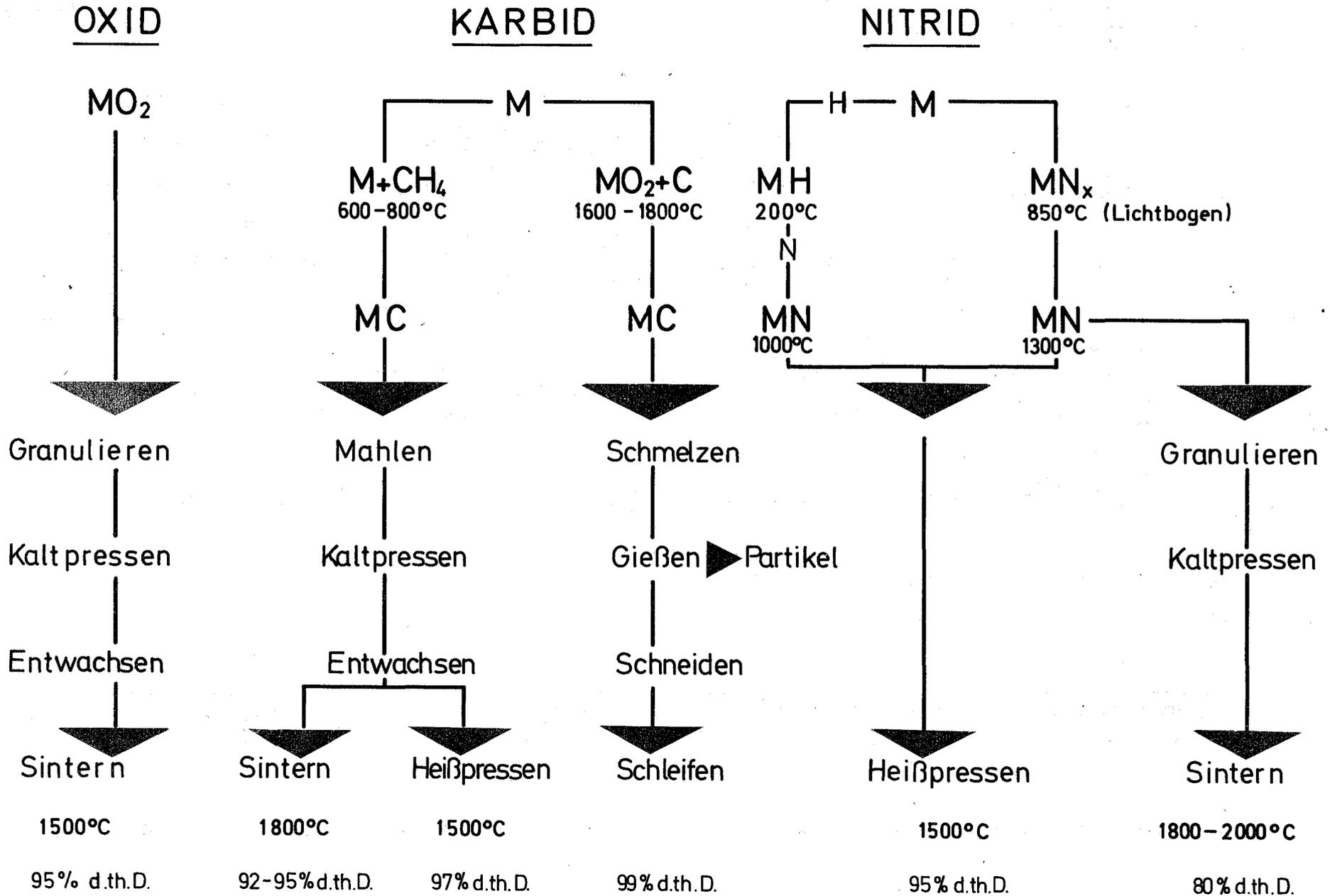
Zusammensetzung der Brennstoffe: jeweils 20 Gew.% Pu

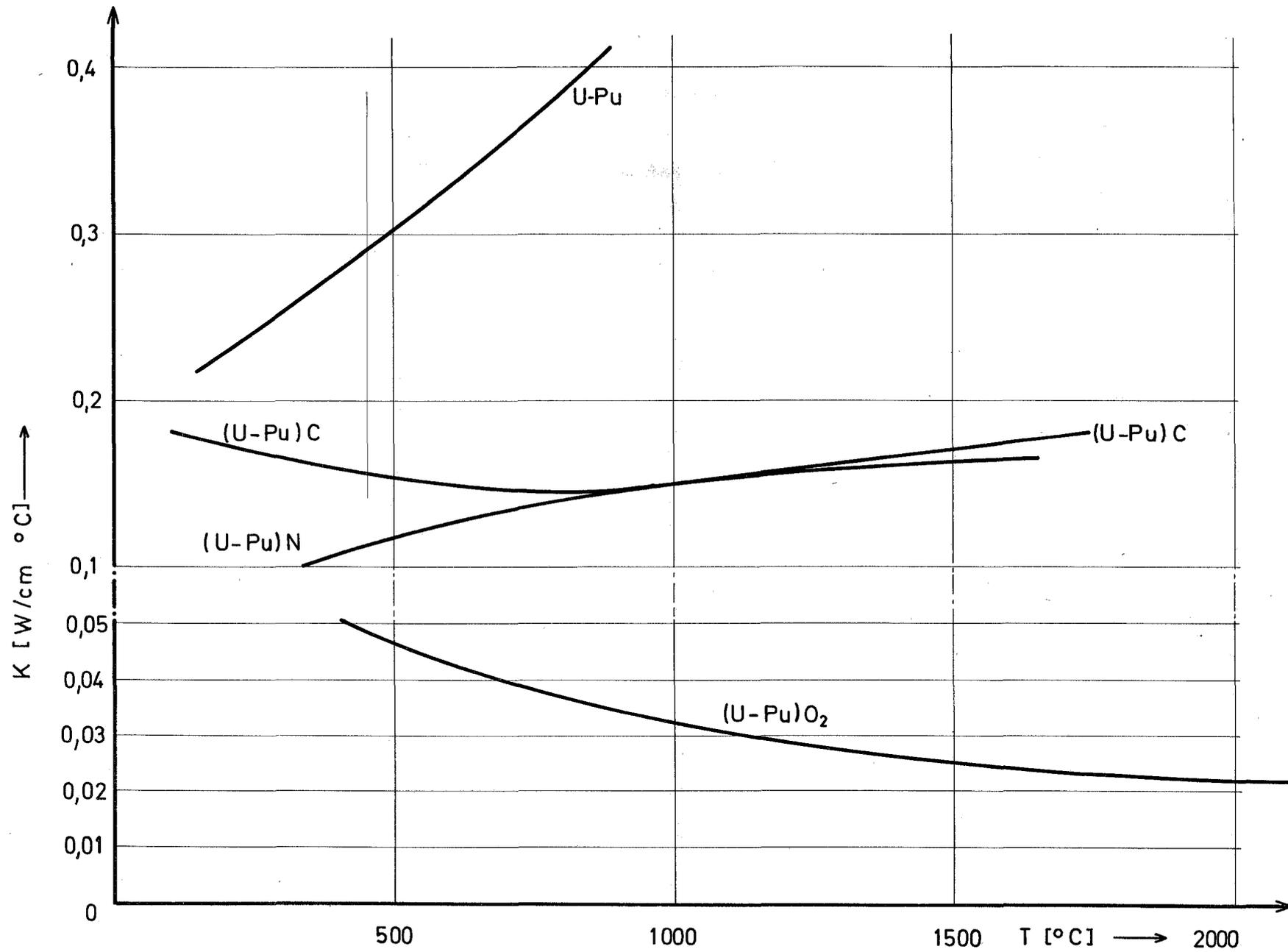
*) Die Wärmeleitfähigkeiten beziehen sich auf UO₂. Hinsichtlicher der keramischen Brennstoffe wurden 1500 °C, bei U-Pu 900 °C gewählt.

Tabelle 5 Kompatibilität keramischer Brennstoffe mit Luft, Wasser, Natrium bzw. NaK und austenitischem Stahl

Brennstoff	Luft (Reaktion)	H ₂ O (Reaktion)	Na oder NaK - Verträglichkeit	Stahl (Austenit) Verträglichkeit
UO ₂	U ₃ O ₈	U ₃ O ₈ ·H ₂ O	-	gut
PuO ₂	-	-	gut bis 680° [26]	gut bis 1400° [27]
PuC	langsam bis 300° [21]	heftig [21]	gut bis 430° [28]	beträchtliche Reaktion bei 1000° [28]
UC	langsam bis 300° [21]	langsam bei 20° heftig in siedendem H ₂ O [23]	gut bis 600° [23, 24, 25]	überstöchiometrisch und stöchiometrisch gut bis 800° [23, 29]
UN [5]	beständig bei 20°, einige Jahre	beständig in H ₂ O, 100° 400-700 h, Zerfall in Dampf bei 300°, 12 h	beständig bis 820°, 1000 h	keine Reaktion bis 1300°, 100 h
PuN [6]	beständig bei 20°, einige Monate	Zerfall in H ₂ O, 100°, 10 min, etwas beständiger bei 20°	gut bis 800°	
UPuN 20 % Pu	-	-	-	keine Reaktion bei 1000°, 1000 h, [11]

Abb.1 Herstellung keramischer Brennstoffe





Keramikdichte 95% th.D. Pu-Gehalt 20 Gew.-%

Fig.2 Wärmeleitfähigkeit von Misch-Oxyd-Nitrid-Karbid und -Metall

III. HÜLLMATERIALAUSWAHL

von

H.J. Laue

Inhalt:

1. Einleitung
2. Auswahlkriterien
 - 2.1 Neutronenphysikalische Eigenschaften
 - 2.2 Mechanische Eigenschaften
 - 2.3 Chemische Eigenschaften
 - 2.4 Änderung der Eigenschaften durch Neutronenbestrahlung
3. Legierungsauswahl
 - 3.1 Neutronenphysikalische Eigenschaften
 - 3.2 Mechanische Eigenschaften
 - 3.3 Chemische Eigenschaften
 - 3.4 Beeinflussung der Eigenschaften durch die Neutronenbestrahlung
4. Zusammenfassung
5. Literatur

1. Einleitung

Die Hüllmaterialauswahl für einen schnellen Brutreaktor muß unter ganz anderen Voraussetzungen als die Brennstoffauswahl erfolgen. Während beim vorgegebenen Brennstoff, z.B. ein Uran-Plutonium-Gemisch, durch die Art der Verbindung - Oxid, Karbid, Nitrid, Metall - die möglichen Herstellungsverfahren - Tabletten, einvibriertes Pulver - sowie die Brennelementauslegung - Durchmesser, Anreicherung, Abbrand, Dichte - eine große Variationsbreite möglich ist, muß man beim Hüllmaterial von vorgegebenen und nur geringfügig beeinflussbaren Eigenschaften ausgehen. Der jahrzehntelange Entwicklungsvorsprung auf dem Gebiet der Metallegierungen gegenüber den Erfahrungen der Uran-Plutonium-Keramik gibt nur noch wenig Spielraum für neue, herausragende Legierungen und setzt die Schwerpunkte auf die Anwendung vorhandener, vielfach erprobter Legierungen.

Die überragende Aufgabe der Brennelementhülle wird durch die in Tabelle 1 wiedergegebenen typischen Auslegungsparameter für einen natrium- und dampfgekühlten Brüter deutlich. Neben dem Temperaturbereich von 700-750 °C, der maximalen Lebensdauer eines Brennelements von 20 000 h, das bei einer Neutronenflußdichte von 10^{16} n/cm²sec einer Neutronendosis $> 10^{23}$ n/cm² entspricht, ist vor allem die mechanische Belastung herauszustellen. Diese wird beim natriumgekühlten Reaktor vom Innendruck, durch Spaltgas und Brennstoffschwellen, und beim dampfgekühlten Reaktor vom Kühlmitteldruck in der Größenordnung von 170 atm bestimmt.

2. Auswahlkriterien

Bei der Vielzahl der bekannten Metalle und Metallegierungen ist eine gewisse Vorauswahl unvermeidbar. Diese Einschränkung ist nur durch die Aufstellung von Mindestforderungen möglich, die sich zwangsläufig aus der gegebenen Zielsetzung ableiten lassen. Neben besonderen neutronenphysikalischen Eigenschaften sind die mechanischen und chemischen Beanspruchungen ausschlaggebend. Die Hüllmaterialauswahl im engeren Sinn setzt damit einen Reaktorent-

wurf, eine Studie voraus, da die Eigenschaften der in Frage kommenden Legierungen nur sehr geringe Unterschiede zeigen und entwurfsbezogen gegeneinander abgewogen werden müssen. Die Auswahl im weiteren Sinne kann dagegen von Mindestforderungen ausgehen, die auch auf bestimmten Vorstudien und Versuchen basieren müssen. In Tabelle 2 sind diese Mindestforderungen zusammenfassend dargestellt. Im einzelnen läßt sich dazu folgendes sagen:

2.1 Neutronenphysikalische Eigenschaften

Nach den bisherigen Erfahrungen und Berechnungen ist der Absorptionsquerschnitt für schnelle Neutronen ein gutes Maß für die geforderten neutronenphysikalischen Eigenschaften, die vor allem die Bruttoreate und die sog. inhärenten Sicherheitskoeffizienten, z.B. Doppler-Koeffizient, beeinflussen. Ausführliche Untersuchungen haben gezeigt, daß ein mikroskopischer Absorptionsquerschnitt von 20 mb für Hüllmaterialien mit guten Festigkeitseigenschaften eine obere Grenze darstellt.

2.2 Mechanische Eigenschaften

Auf Grund der Beanspruchung muß vor allem eine ausreichende Zeitstandfestigkeit bei hohen Temperaturen gewährleistet sein. Diese Forderung kann natürlich nur qualitativ gesehen werden. Wie bei allen Konstruktionselementen lassen sich fehlende Festigkeiten des verwendeten Werkstoffs durch geeignete konstruktive Maßnahmen in gewissen Grenzen kompensieren. Bei einem Brennelement-Hüllrohr sind dies größere Wandstärken, längere Gasräume und gegebenenfalls niedrigere Kühlmitteltemperaturen. Da jedoch die Wechselwirkung mit dem Brennstoff eine wichtige Rolle spielt, muß gerade bei den Festigkeitsforderungen das Brennelement als Einheit gesehen und die Wirtschaftlichkeit des Reaktors mit berücksichtigt werden.

Als sinnvolle Mindestforderung scheint trotzdem eine Zeitstandfestigkeit von 10 bis 15 kg/mm² bei 650 °C und 20 000 h angebracht.

2.3 Chemische Eigenschaften

Das wichtigste Kriterium ist hier die sog. allgemeine Korrosion bzw. Oxydation der Hülloberfläche, die sich durch eine Versprödung der Randzone durch Sauerstoffaufnahme bzw. durch die Bildung einer festhaftenden oder losen Oxidschicht bemerkbar macht. Als Korrosionsmaß wird die Eindringtiefe in μm bzw. die Gewichtsveränderung in $\frac{+}{-} \text{mg/cm}^2$ Fläche verwendet.

Hier eine zahlenmäßige Mindestforderung anzugeben, ist wenig sinnvoll, da die Wirkungen sehr unterschiedlich sein können. So werden Zirkonlegierungen erst durch die Bildung einer festhaftenden Oxidschicht, d.h. einer relativ hohen Gewichtszunahme korrosionsbeständig, während andere Legierungen durch laufendes Abplatzen der Oxidschicht bei relativ hoher Korrosionsgeschwindigkeit geringe Gewichtsveränderungen zeigen.

Allgemein läßt sich sagen, daß die Anfangswandstärke der Hüllrohre durch die Korrosion nur in dem Maß beeinflußt werden darf, daß dadurch keine Beeinträchtigung der mechanischen Eigenschaften erfolgt. So kann z.B. eine Legierung, deren Korrosionsgeschwindigkeit nach 20 000 h einem Abtrag von 0,3 mm bei 0,4 mm Ausgangswanddicke entspricht, gar nicht in die engere Wahl gezogen werden.

Als Kriterium in Natrium gilt ein geringer absoluter Korrosionsangriff bei Sauerstoffgehalten im Natrium von ca. 50 ppm sowie Unempfindlichkeit gegenüber Massetransport, d.h. Lösung von Legierungsbestandteilen und Ablagerung an anderen Teilen des Systems.

Wichtigste Forderung an das Hüllmaterial eines dampfgekühlten Brütters ist die Unempfindlichkeit gegenüber Spannungsrißkorrosion sowie gute Korrosionsbeständigkeit unter Wärmeübergangsbedingungen. Letztere Forderung ist jedoch bisher zu wenig erforscht, um nähere Angaben machen zu können.

2.4 Änderung der Eigenschaften durch Neutronenbestrahlung

Dieses Kriterium ist so spezifisch für den Reaktorbau und seine Untersuchung setzt so spezielle und damit teure Versuche voraus, daß eine Vorauswahl nur in sehr breitem Rahmen und in Kenntnis der notwendigen Grundlagen erfolgen kann.

Neben einer geringeren Beeinflussung der chemischen Eigenschaften werden durch die Bestrahlung vor allem die mechanischen Eigenschaften beeinflusst. In dem für Brutreaktoren interessierenden Temperaturbereich oberhalb 600 °C kommt es dabei vor allem zu einer starken Abnahme der Duktilität, die sich in einer Verminderung der Bruchdehnung und der Standzeit im Zeitstandversuch deutlich macht. Die Mindestforderung nach einer Bruchdehnung von $> 1 \%$ bei 750 °C im bestrahlten Zustand soll deshalb auch nur die Notwendigkeit einer Mindestduktilität wiedergeben.

3. Legierungsauswahl

Neben den bisher aufgeführten Mindestforderungen an das Hüllrohr eines Brutreaktors gibt es natürlich noch einige andere Kriterien, die letztlich die endgültige Auswahl beeinflussen können. Erwähnt seien nur die Verarbeitbarkeit zu dünnwandigen Rohren hoher Genauigkeit mit und ohne Rippen, wirtschaftliche Gesichtspunkte, d.h. der Materialpreis oder sicherheitstechnische Überlegungen, die z.B. bei Kobaltlegierungen durch die Systemkontamination Bedeutung erlangen können.

Die im vorhergehenden Kapitel aufgeführten Kriterien sind deshalb für eine Vorauswahl hinreichend, die letztliche Entscheidung bedarf natürlich tiefergehenden Überlegungen.

3.1 Neutronenphysikalische Eigenschaften

In der Tabelle 3 sind die Absorptionsquerschnitte der wichtigsten Metalle und Legierungselemente für schnelle und zum Vergleich für thermische Neutronen zusammengestellt, wobei eine Unterteilung in drei Gruppen vorgenommen wurde:

Gruppe 1: bis 10 mb; Gruppe 2: von 10 - 25 mb; Gruppe 3: > 25 mb.

In der 1. Gruppe ist eigentlich nur das Eisen als Basismetall für Legierungen von Bedeutung, da das Vanadin größenordnungsmäßig schon in die 2. Gruppe hineinreicht. Aluminium- und Titanlegierungen sind für einen Einsatz bei Temperaturen oberhalb 600 °C und den hohen Festigkeitsforderungen nicht geeignet, während Chrom bzw. Chromlegierungen neben der hohen Sprödigkeit nur sehr

mäßige Langzeiteigenschaften aufweisen. Versuche, durch geringe Yttriumzusätze die Sprödigkeit zu vermindern und durch Karbid-ausscheidungen der Langzeiteigenschaften zu verbessern, brachten bisher nicht den gewünschten Erfolg.

Eisenbasislegierungen stehen damit nach den neutronenphysikalischen Eigenschaften an erster Stelle, während die anderen Elemente der Gruppe 1 als Legierungspartner besonders geeignet sind.

In der Gruppe 2 sind trotz schlechterer neutronenphysikalischer Eigenschaften die Elemente Vanadin, Kobalt und Nickel als Basismetalle noch von Interesse, während alle anderen nur als Legierungspartner eine Rolle spielen. Die Entwicklung von Vanadinlegierungen steht dabei noch am Anfang, möglicherweise haben aber gerade Vanadinlegierungen, langfristig gesehen, gute Aussichten, als Hüllmaterial in natrium- und edelgasgekühlten Reaktoren verwendet zu werden. Kobalt- und Nickellegierungen werden dagegen heute bereits in größeren Mengen bei hohen Temperaturen und Belastungen verwendet. Für schnelle Brutreaktoren sind dagegen vor allem Nickellegierungen von Interesse, da bei Kobaltlegierungen das langlebige Co^{60} -Isotop neben der hohen Kühlmittel-Kontamination bei der Wiederaufbereitung bestrahlter Brennelemente große Schwierigkeiten bereitet.

Die Elemente der Gruppe 3 kommen dagegen als Legierungsbasis nicht in Frage. Selbst unter Berücksichtigung ihrer hohen Festigkeit, d.h. einem kleinen Strukturmaterialanteil im Core, werden nach den bisherigen Rechnungen die Brutrate und der Dopplerkoeffizient über das zulässige Maß hinaus beeinflusst. Aus diesem Grund ist auch die aus Festigkeitsgründen erwünschte Zugabe dieser Elemente zu anderen Legierungen nur in gewissen Grenzen möglich.

In Tabelle 4 sind die mikroskopischen Absorptionsquerschnitte der wichtigsten, in Frage kommenden Legierungen sowie ihre maximal möglichen Legierungsbestandteile wiedergegeben. Aus Festigkeitsgründen können von den Eisenbasislegierungen im Augenblick nur austenitische Stähle verwendet werden. Den günstigsten Absorptionsquerschnitt besitzt der Stahl 18/9 CrNi, auch als V2A oder Nirosta-Stahl bekannt. Mit steigendem Nickelgehalt bzw. Zulegierung von Niob und Molybdän steigt der Absorptionsquer-

schnitt geringfügig, ein deutlicher Sprung in die Größenordnung der hochwarmfesten Nickellegierungen setzt beim sog. Incoloy-Typ ein, einer 20/30 CrNi-Legierung mit maximal 5 % Mo, Nb und W. Neutronenphysikalisch entspricht sie damit den ungünstigeren Nickellegierungen, deren Verwendung eigentlich nur aus Festigkeitsgründen gerechtfertigt werden kann. Innerhalb dieser Legierungsgruppe zeigt sich nach den neutronenphysikalischen Eigenschaften bei vergleichbaren mechanischen Eigenschaften der Vorteil der aushärtbaren Legierungen, z.B. Inconel X750, gegenüber mischkristallhärtenden Legierungen, z.B. Inconel 625. Bekanntlich erfolgt die Aushärtung über die $Ni_3(Ti,Al)$ -Phase, d.h. Zulegierung von Elementen der Gruppe 1, während die Mischkristallhärtung Elemente der Gruppe 3 - Mo, Nb, W, erfordert.

Von den Nickellegierungen stehen damit aushärtbare Legierungen an erster Stelle, während Legierungen vom Typ Inconel 625 an der Grenze der Verwendbarkeit liegen.

Über Vanadinlegierungen sind nach dem heutigen Stand der Entwicklung noch keine endgültigen Aussagen möglich. Die auch international bekannte Standardlegierung V-20Ti hat einen vergleichbaren Absorptionsquerschnitt mit den aust. Stählen; die aus Festigkeitsgründen notwendige Zulegierung von Niob und Reduktion des Titan Gehaltes - z.B. V-3Ti-15Nb - führt zu einer Verdopplung des Absorptionsquerschnittes bis zur theoretisch möglichen Grenze. Neuere Entwicklungen auf der Basis von chrom- und aluminiumhaltigen Legierungen dürften jedoch innerhalb der hier angegebenen Grenzen liegen.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß austenitische Stähle eine bevorzugte Rolle spielen, Nickellegierungen nur von den Festigkeitsanforderungen her verwendet werden sollten, während Vanadinlegierungen bis zu maximalen Gehalten an Gruppe 3 - Elementen von 15 - 20 Gew.% keiner Beschränkung unterliegen.

3.2 Mechanische Eigenschaften

In Kenntnis der neutronenphysikalischen Eigenschaften gewinnt eine Gegenüberstellung der mechanischen Eigenschaften der in Frage kommenden Legierungen an Bedeutung. In Abbildung 1 sind die 1000- und 10 000 h Zeitstandfestigkeiten bei 650 °C aufgetragen, experimentelle Ergebnisse über die 20 000 h Zeitstandfestigkeiten liegen

bei den meisten Legierungen noch nicht vor.

Die beste Legierung der austenitischen Stähle ist der X8CrNiMoV Nb1613, ein nichtstabilisierter Vollaustenit mit Molybdän und Vanadin. Nach [3] beträgt die 25 000 h Zeitstandfestigkeit bei 650 °C 13 bis 15 kg/mm², er erfüllt damit die gestellten Mindestforderungen und gilt nach den bisher untersuchten Eigenschaften als erste Wahl. Mit Werten zwischen 9 und 12 kg/mm² dürfte ferner der Stahl X8CrNiNb1613 in Frage kommen. Als Hüllmaterial sind dagegen die Stähle X5CrNi189, X3NiCrNb2520 und X5CrNiMo1812 unter den gegebenen Festigkeitsforderungen nur bedingt verwendbar, die zum Teil sehr günstigen Absorptionsquerschnitte sprechen dagegen für eine Verwendung als Strukturmaterial im Corebereich. Weder das Incoloy-800 noch der Incoloy-Typ sind aus Festigkeitsgründen den sonstigen austenitischen Stählen überlegen, für ihre Verwendung müssen schon andere Gesichtspunkte und Eigenschaften ausschlaggebend werden.

Unter den Nickellegierungen stehen bei den Festigkeitseigenschaften die aushärtbaren Legierungen an der Spitze, von denen das Inconel X750 auch einen relativ günstigen Absorptionsquerschnitt besitzt. Die mischkristallgehärtete Legierung Inconel 625 zeigt bei einem relativ hohen jedoch noch vertretbaren Absorptionsquerschnitt ebenfalls sehr gute Langzeiteigenschaften, während die Legierungen Hastelloy X, Inconel 604 und Inconel 600 Festigkeiten in der Größenordnung der austenitischen Stähle besitzen.

Von den bisher bekannten Vanadinlegierungen besitzt die Legierung V-3Ti-15Nb herausragende Festigkeitseigenschaften, der Absorptionsquerschnitt entspricht jedoch dem des Inconel 625. Die physikalisch günstige Legierung V-20Ti bietet dagegen keinerlei Vorteile gegenüber den austenitischen Stählen, ihre Verwendung als Hüllmaterial erscheint damit wenig sinnvoll. Die Legierungsentwicklung ist hier jedoch noch nicht abgeschlossen, wahrscheinlich werden durch neue Gesichtspunkte, vor allem dem Korrosionsverhalten, völlig neue Legierungselemente an Bedeutung gewinnen.

Zusammenfassend läßt sich unter Berücksichtigung der neutronenphysikalischen und mechanischen Eigenschaften sagen, daß die hochwarmfesten austenitischen Stähle der 16/13-CrNi Gruppe als

Hüllmaterial am geeignetsten sind. Bei extrem hohen Festigkeitsbeanspruchungen, wie sie z.B. in dampfgekühlten Reaktoren vorliegen, sind dagegen die aushärtbaren und in zweiter Linie die mischkristallhärtenden Legierungen noch gut geeignet. Bei den Vanadinlegierungen hat vorerst die Legierung V-3Ti-15Nb die gegebenen Möglichkeiten aufgezeigt, alle weiteren Entwicklungen müssen sich an diesen Werten orientieren.

3.3 Chemische Eigenschaften

Ausschlaggebend ist hier das Korrosionsverhalten, wobei sich die Betrachtungen auf austenitische Stähle, Nickellegierungen beschränken können. Bei der Betrachtung der Korrosionseigenschaften ist eine Unterteilung nach den Reaktortypen, d.h. Dampf- und Natriumkühlung, sinnvoll.

3.3.1 Dampfkühlung

In dampfgekühlten Reaktoren kann man mit Sicherheit vollentsalztes Wasser verwenden, d.h. der Chloridgehalt beträgt max. 0,1 ppm. Durch die Radialyse entsteht ferner Sauerstoff und Wasserstoff, wobei man mit Sauerstoffgehalten von ca. 20 ppm rechnen muß, die jedoch durch Zugabe von Wasserstoff herabgesetzt werden können. Trotzdem sollte das allgemeine Korrosionsverhalten, d.h. die Abtragungsverluste, die Verwendung von austenitischen Stählen und Nickellegierungen nicht beeinträchtigen. Um ein ganz allgemeines Maß anzugeben, wird die Abtragung in Heißdampf ohne Wärmeübergang bei austenitischen Stählen ca. 5 - 10 $\mu\text{m}/\text{Jahr}$, die von Nickellegierungen ca. 2 $\mu\text{m}/\text{Jahr}$ betragen. Vanadinlegierungen sind auf Grund ihrer hohen Korrosionsempfindlichkeit in Wasser und Dampf für dampfgekühlte Reaktoren ohne Oberflächenschutz ungeeignet.

Ein wichtiges Kriterium ist dagegen die sog. selektive Korrosion, die ohne merklichen Abtrag durch Korngrenzen oder Spannungsrißkorrosion das Hüllrohr zerstören kann. Nach Abbildung 2 nimmt mit steigendem Nickelgehalt die Neigung zur Spannungsrißkorrosion stark ab. Nickellegierungen sind damit nahezu unempfindlich und die Vorteile von Incoloy 800 mit einem Nickelgehalt von 35 % in thermischen Heißdampfreaktoren werden durch dieses Bild deutlich. Für dampfgekühlte Brutreaktoren kommen jedoch vor allem Legierungen

mit einem Nickelgehalt größer 50 % und entsprechend hohen Festigkeiten in Frage. Die sogenannte Korngrenzenkorrosion tritt dagegen auch bei Nickellegierungen auf. Inconel 625 und Hastelloy X sind gegen diese Korrosionsart jedoch nahezu unempfindlich, während entsprechende Ergebnisse bei Inconel X750 und Inconel 718 nicht bekannt sind.

Zusätzliche Einschränkungen, z.B. Einfluß des Wärmeflusses auf die Korrosion, Verhalten von Wendelrippen und Turbulenzförderer in Dampf sind selbstverständlich möglich und werden unter Umständen Änderungen in der Legierungsauswahl in engen Grenzen notwendig machen. Entsprechende Versuche liegen bisher noch nicht vor.

Für den dampfgekühlten Brüter sollten damit auf Grund der hohen mechanischen und thermischen Belastung und aus Korrosionsgründen Nickellegierungen auf der Basis Inconel 625 bzw. Inconel X750 verwendet werden.

3.3.2 Natriumkühlung

Für die Hüllmaterialauswahl natriumgekühlter Brutreaktoren ist das Korrosionsproblem weniger schwerwiegend als bei dampfgekühlten Reaktoren. Bei einem technisch relativ einfach realisierbaren Sauerstoffgehalt des Natriums von 50 ppm zeigen austenitische Stähle und Nickellegierungen bei Temperaturen von 600 - 700 °C

Gewichtsabnahmen in der Größenordnung von 0,01 - 0,1 mg/cm²·Monat bzw. Abtragungen zwischen 0,01 und 0,04 µm/Jahr. Beide Legierungstypen sind damit in Natrium gut beständig. Die Korrosionsgeschwindigkeit wird dabei nur geringfügig von der Legierungszusammensetzung beeinflusst. Wichtige Parameter sind die Natriumtemperatur, -verunreinigungen und -geschwindigkeit, ferner Oberflächenbeschaffenheit und Zustand der Hüllrohre.

Ein wichtiges Auswahlkriterium wird dagegen durch Abbildung 3 verdeutlicht, es zeigt den Massetransport verschiedener Nickellegierungen in Abhängigkeit von der Versuchstemperatur. Mit steigendem Nickelgehalt kommt es zu einer Zunahme des Massetransports, wobei vor allem Nickel im kalten Teil des Systems abgelagert wird. Da es sich hier um eine russische Untersuchung handelt [4], stimmen die Legierungen nicht genau mit den bisher erwähnten überein, man kann jedoch sagen, daß Legierungen vom Typ Inconel 600 und

mischkristallhärtende Legierungen vom Typ Inconel 625 und Hastelloy X

besonders ungünstig sind, während in aushärtbaren Legierungen, z.B. Inconel X 750, das Aluminium einen den Massetransport reduzierenden Einfluß ausübt. Der Einfluß des Massetransports auf die Gewichtszunahme wird durch eine lineare Extrapolation besonders deutlich. Bei 750 °C liegt ein monatlicher Gewichtsverlust von 14 mg/cm² vor, während bei der allgemeinen Korrosion nur Beträge von <1 mg/cm² Monat auftreten.

Für natriumgekühlte Reaktoren kommen damit vor allem austenitische Stähle in Frage. Auf Grund der bisherigen Betrachtungen stehen an erster Stelle Legierungen der Zusammensetzung 16/13 CrNi. Aussagen über das Verhalten von Vanadinlegierungen sind im Augenblick noch sehr schwierig. Die bisher untersuchten Legierungen zeigen noch zu hohe Korrosionsgeschwindigkeiten. Durch entsprechende Oberflächenbehandlungen bzw. Variation der Legierungsbestandteile dürfte jedoch der schwerwiegendste Nachteil dieser Legierungen noch beeinflussbar sein.

3.4 Beeinflussung der Eigenschaften durch Neutronenbestrahlung

Die Beeinflussung der Eigenschaften durch die Bestrahlung ist ein für den Reaktorbau spezifisches Problem. Da obendrein die bei schnellen Reaktoren auftretenden hohen Beanspruchungen bei thermischen Reaktoren nicht erreicht werden, kann man nur begrenzt die Ergebnisse früherer Bestrahlungsversuche in die Betrachtungen einschließen. Nach dem heutigen Stand der Untersuchungen läßt sich etwa folgendes sagen: Die Strahlenversprödung kann in zwei Bereiche unterteilt werden. Erstens die sogenannte Tieftemperaturversprödung, d.h. die Beeinflussung der mechanischen Eigenschaften durch die über Stoßprozesse eingebrachten Gitterfehler, die sog. "defect clusters", die sich in einer allgemeinen Erhöhung der Streckgrenze und Zugfestigkeit und einer Abnahme der Dehnung bemerkbar machten [5,6]. Diese Strahlenschädigung ist jedoch nur unterhalb eines durch die Ausheilung der Gitterdefekte bestimmten Temperaturbereichs wirksam, d.h. solange die Konzentration der im dynamischen Gleichgewicht vorhandenen, durch Bestrahlung eingebrachten Fehlstellen in der Größenordnung der im thermischen Gleichgewicht vorhandenen Leerstellen liegt. Nach den bisherigen

Bestrahlungsergebnissen ist damit zu rechnen, daß bei austenitischen Stählen und Nickellegierungen bei Temperaturen oberhalb 600 °C diese Voraussetzung nicht mehr erfüllt wird, die Tieftemperaturversprödung somit nahezu ohne Einfluß auf das Hüllmaterial eines Brutreaktors ist [7]. Weit wichtiger ist damit der zweite Bereich, der Einfluß der Kernumwandlungen auf die mechanischen Eigenschaften bei hohen Temperaturen, der sog. Hochtemperaturversprödung. Die bisher aus der Literatur bekannten Ergebnisse [8] sowie eigene Versuche [7,9] zeigten, daß Kernumwandlungen bei den interessierenden Werkstoffen erst oberhalb 500 °C die mechanischen Eigenschaften beeinflussen. Ausschlaggebend für die Versprödung ist die Bildung von Helium durch (n,α)-Reaktionen. Das Helium lagert sich im Temperaturbereich merklicher Diffusion bevorzugt an den Korngrenzen in Form von Blasen ab, wodurch die Korngrenzenfestigkeit stark herabgesetzt wird und der Bruch interkristallin bei sehr geringen Verformungen einsetzt. Es wird somit weder die Streckgrenze noch die Zugfestigkeit wesentlich beeinflusst, es kommt lediglich zu einem starken Abfall der Bruchdehnung. Unter den möglichen Kernumwandlungen ist die Reaktion $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ mit thermischen Neutronen mit einem Wirkungsquerschnitt von 3835 b am bekanntesten. In schnellen Reaktoren spielen aber auch zahlreiche (n,α)-Reaktionen mit schnellen Neutronen und Wirkungsquerschnitten oberhalb 1 mb eine Rolle (Tab.5).

Damit kann man relativ einfach ausrechnen, daß die gleiche Heliummenge, die über die ^{10}B -Reaktion bei Borgehalten von 10^{23} % in einem thermischen Reaktor nach einer Dosis von 10^{21} cm⁻² gebildet wird, in einem schnellen Reaktor ohne Berücksichtigung der ^{10}B -Reaktion nach einer Dosis von $2 \cdot 10^{22}$ cm⁻² entsteht. Diese Tatsache zeigt die Bedeutung von Bestrahlungsversuchen in thermischen Reaktoren für die Auswahl geeigneter Brüterhüllrohre und zur Klärung der grundsätzlichen Fragen der Hochtemperaturversprödung.

Auf der Abbildung 4 ist die Bruchdehnung, im Kurzzeitversuch entscheidendes Kriterium für die Hochtemperaturversprödung, von bestrahlten austenitischen Stählen, Nickellegierungen und Vanadinlegierungen (Mittelwert aus verschiedenen Legierungen) aufgetragen. Deutlich wird vor allem die bereits bei 500 °C einsetzende starke Versprödung von Inconel X 750, wobei die Dehnungen bei 750 °C bis

auf 1 % zurückgehen. Neben der Bruchdehnung geht auch die Standzeit und Zeitstandfestigkeit im Langzeitversuch zurück. Daher sind aushärtbare Legierungen, trotz günstiger neutronenphysikalischer und ausgezeichneter Festigkeitseigenschaften im unbestrahlten Zustand, als Hüllrohre für Brutreaktoren nicht geeignet.

Mischkristallgehärtete Legierungen vom Typ Inconel 625, das gleiche gilt wohl auch für Hastelloy X, zeigen dagegen ebenfalls ab 500 °C einen starken Abfall der Bruchdehnung. Bei 750 °C wurden jedoch noch Werte von ca. 10 % gemessen, die sich möglicherweise durch entsprechende Vorbehandlung der Legierungen noch verbessern lassen. Ähnliches gilt für austenitische Stähle, deren Versprödung unter gleichen Bedingungen erst ab 600 - 650 °C einsetzt. Als bisher duktilste Legierung, selbst unter mehraxialer Belastung, erwies sich bisher das Incoloy 800, das jedoch auf Grund der geringen Festigkeitseigenschaften für das bisher verfolgte Konzept der sog. "freistehenden Hülle" nicht geeignet ist.

Endgültige Aussagen über die sowohl aushärtbare als auch mischkristallhärtende Legierung Inconel 718 sind im Augenblick noch nicht möglich, da zu wenig Bestrahlungsergebnisse vorliegen, das Maß der Versprödung dürfte jedoch geringer sein als bei rein aushärtbaren Legierungen.

Der Vorteil der Vanadinlegierungen wird in Abb.4 dagegen besonders deutlich. Nach den bisherigen Untersuchungen [11] zeigten Vanadinlegierungen keine Hochtemperaturversprödung, deutlich durch die Zunahme der Dehnung mit steigender Versuchstemperatur. Die Ursachen sind bisher noch nicht eindeutig geklärt, jedoch dürfte die Neigung k.r.z.-Metalle zum transkristallinen Bruch, selbst bei sehr hohen Temperaturen, im Gegensatz zu k.f.z. aust. Stählen und Nickellegierungen, eine Rolle spielen.

Neben den erreichbaren hohen Zeitstandfestigkeiten liegt hier das wichtigste Argument für die Entwicklung von Vanadinlegierungen als Hüllmaterial für natriumgekühlte Brutreaktoren. Während die Verwendung in edelgasgekühlten Brutreaktoren sicher zu sein scheint, muß für natriumgekühlte Reaktoren die Korrosionsbeständigkeit noch verbessert werden.

Über den Einfluß der Bestrahlung auf das Korrosionsverhalten sowohl in Natrium als auch Dampf liegen bisher nur wenig Ergebnisse

vor. Auf Grund des Mechanismus der Strahlenbeeinflussung, Veränderung der Leerstellenkonzentration, dürfte die Diffusionsgeschwindigkeit und damit die Korrosionsrate beeinflusst werden. Da dies sicher nicht im gleichen Maß wie bei den mechanischen Eigenschaften geschieht, dürfte das Problem für die Materialauswahl geringe Bedeutung haben.

Das in [12] näher beschriebene Karlsruher Hüllmaterialentwicklungsprogramm wird aber auch diese Frage durch entsprechende Versuche klären.

4. Zusammenfassung

An Hand der vier wichtigsten Auswahlkriterien für Brüterhüllrohre - neutronenphysikalische, mechanische, chemische Eigenschaften und deren Beeinflussung durch Neutronenbestrahlung - wurden geeignete Legierungen sowohl für den natrium- als auch dampfgekühlten Brutreaktor ermittelt. Bei Zugrundelegung der neutronenphysikalischen Eigenschaften sind Eisenbasislegierungen den Nickellegerungen eindeutig überlegen. Für eine gute Brutrate bzw. Verdopplungszeit müssen damit austenitische Stähle als Hüllwerkstoffe verwendet werden.

Die gestellten Festigkeitsforderungen engen jedoch dieses Kriterium stark ein. Neben sogenannten vollaustenitischen 16/13 CrNi-Stählen mit entsprechenden festigkeitssteigenden Legierungsbestandteilen müssen auch physikalisch ungünstigere hochwarmfeste Nickellegierungen in die Betrachtung einbezogen werden. Neben aushärtbaren Legierungen sind sog. mischkristallhärtende noch interessant.

Das Korrosionsverhalten macht eine getrennte Betrachtung der beiden Reaktortypen notwendig. Für natriumgekühlte Reaktoren spielt der Massetransport eine wichtige Rolle. Da sich bei hohen Temperaturen vor allem Nickel an den kalten Stellen des Systems ablagert, stehen austenitische Stähle, sofern ihre Festigkeiten ausreichend sind, an erster Stelle. Für dampfgekühlte Reaktoren muß neben der selektiven auch die allgemeine Korrosion beachtet werden.

Darüber hinaus machen die hohen Festigkeitsforderungen die Verwendung von Nickellegierungen notwendig. Da diese Legierungen unter Wärmeübergangsbedingungen eine höhere Korrosionsbeständigkeit als

austenitische Stähle zeigen, müssen die ungünstigen physikalischen Eigenschaften in Kauf genommen werden bzw. muß durch Verminderung von Druck und Temperatur die Verwendung von korrosionsbeständigen Incoloy-Legierungen ermöglicht werden.

Der Einfluß der Strahlenversprödung muß unter den bereits erwähnten Gesichtspunkten erfolgen. Bei den vorgegebenen Reaktortemperaturen spielt die sog. Hochtemperaturversprödung durch (n, α)-Reaktionen die wichtigste Rolle.

Bei entsprechender Vorbehandlung, d.h. Kaltverformung + Wärmebehandlung, dürften stabilisierte austenitische Stähle selbst bei 750 °C noch vertretbare Bruchdehnungen und Zeitstandfestigkeiten erreichen. Für natriumgekühlte Reaktoren stehen damit Stähle vom Typ

X8CrNiNb1613 - X8CrNiMoVNb1613

an erster Stelle. Durch geringe Variation der Zusammensetzung bzw. Vorbehandlung dürften weitere, jedoch geringfügige Verbesserungen möglich sein.

Die hohe Strahlenversprödung von aushärtbaren Nickellegierungen vom Typ Inconel X750 schließt, trotz sonstiger guter Eigenschaften, ihre Verwendung im Reaktorbau aus. Mischkristallgehärtete Legierungen mit spezifizierter Zusammensetzung und Vorbehandlung vom Typ

Inconel 625 - Hastelloy X

stehen für den dampfgekühlten Brutreaktor damit z.Zt. an erster Stelle.

Da die Entwicklung von Vanadinlegierungen noch am Anfang ist, sind endgültige Aussagen noch nicht möglich. Neben edelgasgekühlten Reaktoren kommen sie aus Korrosionsgründen nur für natriumgekühlte Reaktoren in Frage. Neben ausgezeichneten Festigkeitseigenschaften einiger Legierungen zeigen nach den bisherigen Versuchen Vanadinlegierungen keine Hochtemperaturversprödung durch Neutronenbestrahlung. Das Hauptaugenmerk muß jedoch in Zukunft auf die Verbesserung der Korrosionseigenschaften in Natrium gelegt werden.

5. Literatur

[1] Schneller natriumgekühlter Reaktor Na2, KFK-660 (1967)

[2] MÜLLER, A. u.a.: Referenzstudie für den 1000 MWe dampfgekühlten schnellen Brüter (D1), KFK-392 (1966)

- [3] A. VON DEN STEINEN: Langzeiteigenschaften austenitischer Stähle, Archiv Eisenhüttenw. 33 (1962) S.49/60
- [4] B.A. NEVSOROV u.a.: Corrosion Resistance of Constructional Materials in Alkali Metals, 3. Genfer Konferenz 1964 - A/Conf.28/P/343
- [5] BALDWIN, E.E. und E.A. DINERWAN: Bericht KAPL-M-EED-17 (1961)
- [6] TOBIN, J.C., M.S. WECHSLER und A.D. ROSSIN: Proc. 3rd U.N. Int. Conf. Peaceful Uses of Atomic Energy 9, 23 (1965)
- [7] BÖHM, H., W. DIENST, H. HAUCK und H.J. LAUE: J.Nucl. Materials 20, 87 (1966), KFK-478 (1966)
- [8] HARRIES, D.R.: Brit. Nucl. Energy Soc. 5, 74 (1966)
- [9] BÖHM, H., W. DIENST, H. HAUCK und H.J. LAUE: J. Nucl. Materials 19, 59 (1966)
- [10] ALTER, H. und C.E. WEBER: J. Nucl. Materials 16, 68 (1965)
- [11] BÖHM, H., W. DIENST, H. HAUCK und H.J. LAUE: Irradiation Effects on the Mechanical Properties of Vanadium Alloys, ASTM, Annual Meeting 1966, Atlantic City, 27.6. - 1.7. 1966, Paper No. 75
- [12] H.J. LAUE: Hüllmaterialentwicklung für schnelle Brutreaktoren, Kerntechnik 9 (1967) S.125/128

Tab. 1 Auslegungsparameter für ein Brennelement
natrium- und dampfgekühlter Brutreaktoren

		Natriumkühlung (1)	Dampfkühlung (2)
Länge	mm	2675	2155
Außendurchmesser	mm	6,0	7,0
Wandstärke	mm	0,38	0,37
Max. Hüllwand - außentemperatur	°C	696	747
Kühlmitteldruck	atm	6	170
Betriebszeit pro Brennelement	h	20 000	10 000
Neutr.-flußdichte	cm ⁻² s ⁻¹	10 ¹⁶	1,7 · 10 ¹⁵
Mechanische Haupt- beanspruchung		Innendruck etwa 100 atm	Außendruck 170 atm

Tab.2 Mindestforderungen für die Auswahl von Brüter-Hüllmaterial

Kriterien	Eigenschaften	Mindestforderungen	Bemerkungen
Neutronen - physikalische Eigenschaften	Absorptions - querschnitt für schnelle Neutronen [100 keV]	$\sigma_{n,\gamma} \cong 20 \text{ mb}$	Gilt für einen Strukturmaterial - anteil im Core von 15 - 25 %
Hochtemperatur - Festigkeit	Zeitstand - und Kriecheigenschaften bei 650°C	$\sigma_{B/20000} = 10-15 \frac{\text{kg}}{\text{mm}^2}$	Festigkeit abhängig von der Auslegung und konstruktiven Gestaltung
Chemische Eigenschaften	Korrosionsgeschwin- digkeit in Natrium und Dampf	Abtragung $\cong 0,04 \mu\text{m}/\text{Jhr.}$ in Dampf: keine Spann- nungsrißkorrosion, Natrium: vernachläss- sigbarer Massetransport	Abtragung kein Abso- lutmaß! Abhängig von der Wanddicke und Festigkeit
Änderung der Eigenschaften durch Neutronen- bestrahlung	Hochtemperaturver- sprödung durch (n, α)-Reaktionen	Bruchdehnung bei 750°C $> 1\%$	$\delta > 1\%$ nur für die erste Vorauswahl ge- eignet

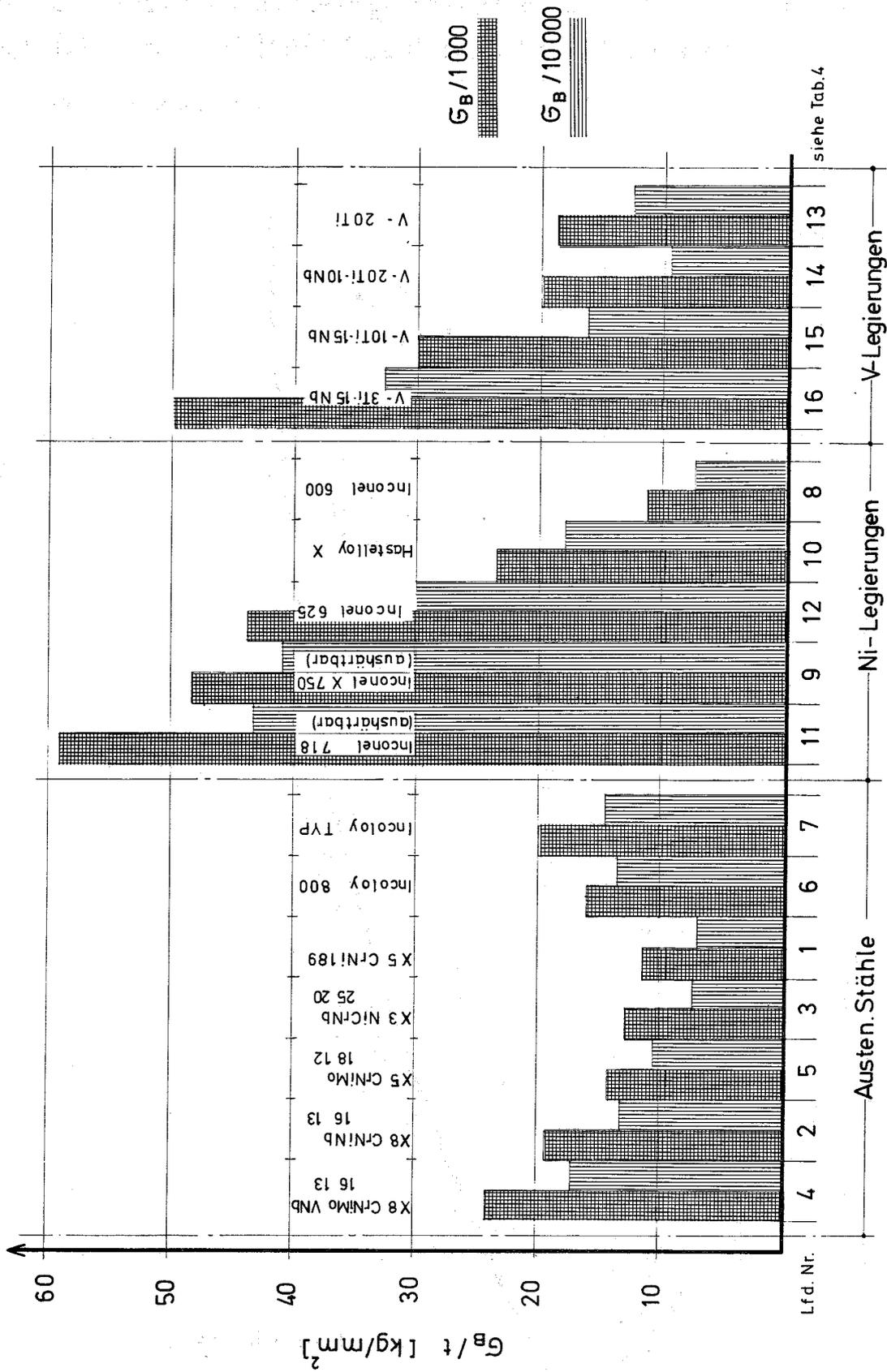
Tab.3 Absorptionsquerschnitte der
wichtigsten Metalle

Gruppe	Metall	$\sigma_{n\gamma}$ (100keV) [mb]	$\sigma_{n\gamma}$ (therm) [barn]
1	Al	4	0.230
	Ti	6	5.8
	Fe	6.1	2.53
	Cr	6.8	3.1
	V	9.5	15.1
2	Si	10.0	0.16
	Co	11.5	37.0
	Ni	12.6	4.8
	Zr	15.1	0.18
	Cu	24.9	3.77
	Mn	25.6	13.2
3	Mo	71.0	2.7
	Nb	100.0	1.15
	W	178.0	19.2
	Ta	325.0	21.0

Tab.4 Max. Gehalte an Leg.-Elementen und Absorptionsquerschnitt
für schnelle Neutronen

Legierung	Lfd. Nr.	Max. Legierungsgehalte in [Gew.-%]													Absorptionsquerschnitte für schnelle Neutr. [100keV] in mb
		C	Fe	Cr	Al	Ti	V	Si	Ni	Mn	Mo	Nb	W		
Austen.-Stähle	X5 CrNi 189 / W.Nr. 4301 / AISI 304	1	0,05	Rest	18,0				1,0	9,0	2,0				7,25
	X8 CrNi Nb16 13 / 4961	2	0,08	Rest	16,0				0,5	13,0	1,0		1,2		7,95
	X3 Ni Cr Nb 25 20	3	0,03	Rest	20,0				0,5	25,0	1,0		0,5		8,22
	X8 CrNi MoV Nb 16 13 / 4988	4	0,08	Rest	16,0			0,75	0,5	13,0	1,0	1,2	1,2		8,34
	X5 CrNi Mo 18 12 / 4436 / 316	5	0,05	Rest	18,5				1,0	14,0	2,0	3,0			8,50
	Incoloy 800	6	0,1	Rest	23,0	0,6	0,6		1,0	35,0	1,5				8,73
	Incoloy TYP	7	0,1	Rest	23,0	0,6	0,6		1,0	35,0	1,5	5,0	5,0	5,0	15,49
Ni-Legierung.	Inconel 600	8	0,15	10,0	17,0				0,5	Rest	1,0				10,94
	Inconel X 750	9	0,08	9,0	17,0	1,0	2,75		0,5	Rest	1,0		1,2		11,41
	Hastelloy X	10	0,1	18,5	22,0				0,75	Rest	1,0	9,0		0,6	13,22
	Inconel 718	11	0,1	Rest	21,0	0,8	1,15		0,35	55,0	0,35	3,3	5,5		14,14
	Inconel 625	12	0,1	5,0	23,0	0,4	0,4		0,5	Rest	0,5	10,0	4,15		17,06
V-Legier.	V-20 Ti	13					20	Rest							8,71
	V-20 Ti-10Nb	14					20	Rest					10		14,48
	V-10 Ti-15Nb	15					10	Rest					15		17,10
	V-3 Ti-15Nb	16					3	Rest					15		17,60

Abb.1 Zeitstandfestigkeit $\sigma_B / 1000$ und $\sigma_B / 10000$ bei 650°C



siehe Tab.4

Abb.2 Einfluß des Nickelgehalts auf die Spannungs-
risskorrosion von aust.Stählen und Ni-Legierungen

[42%-kochende MgCl₂-Lösung]

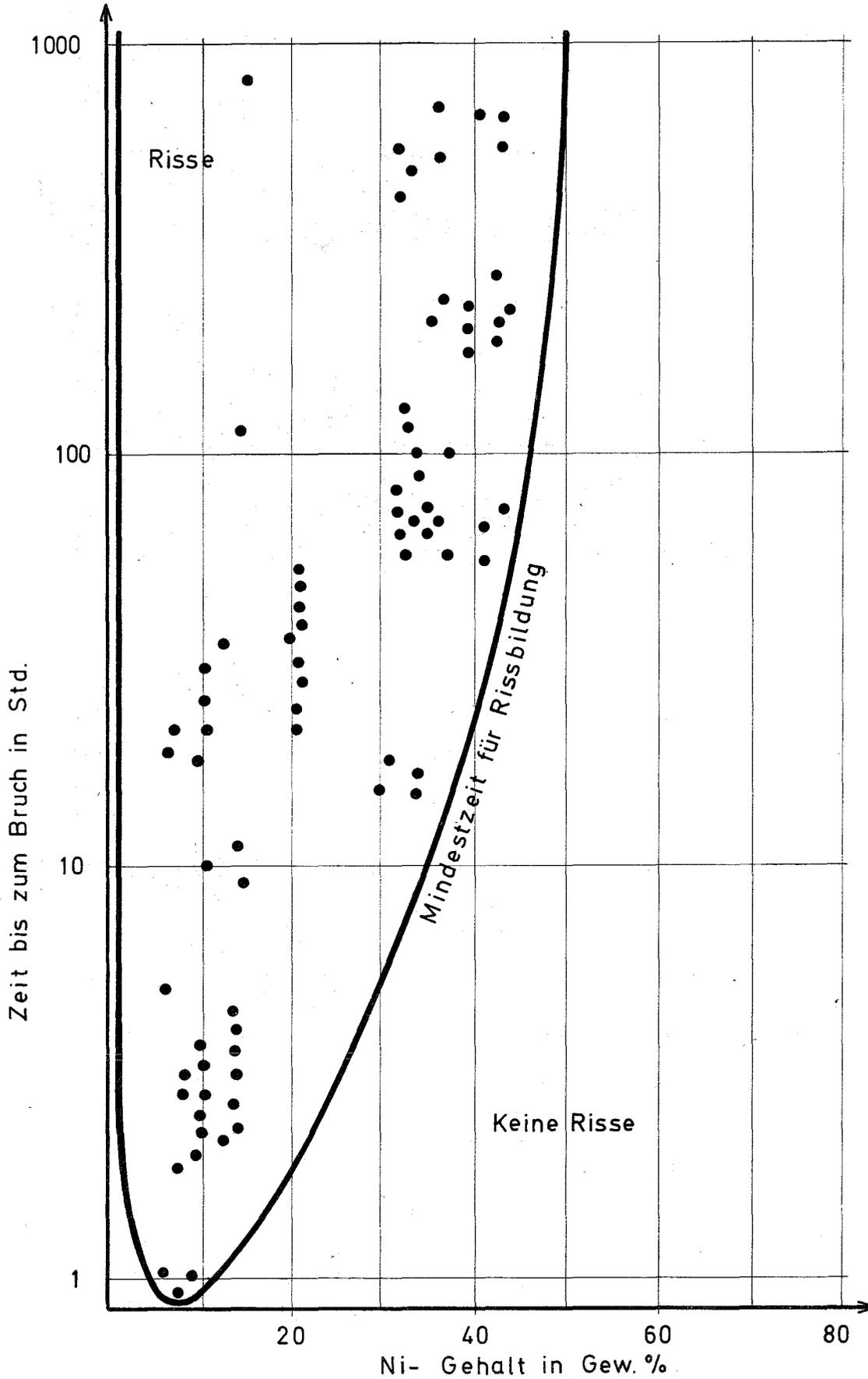
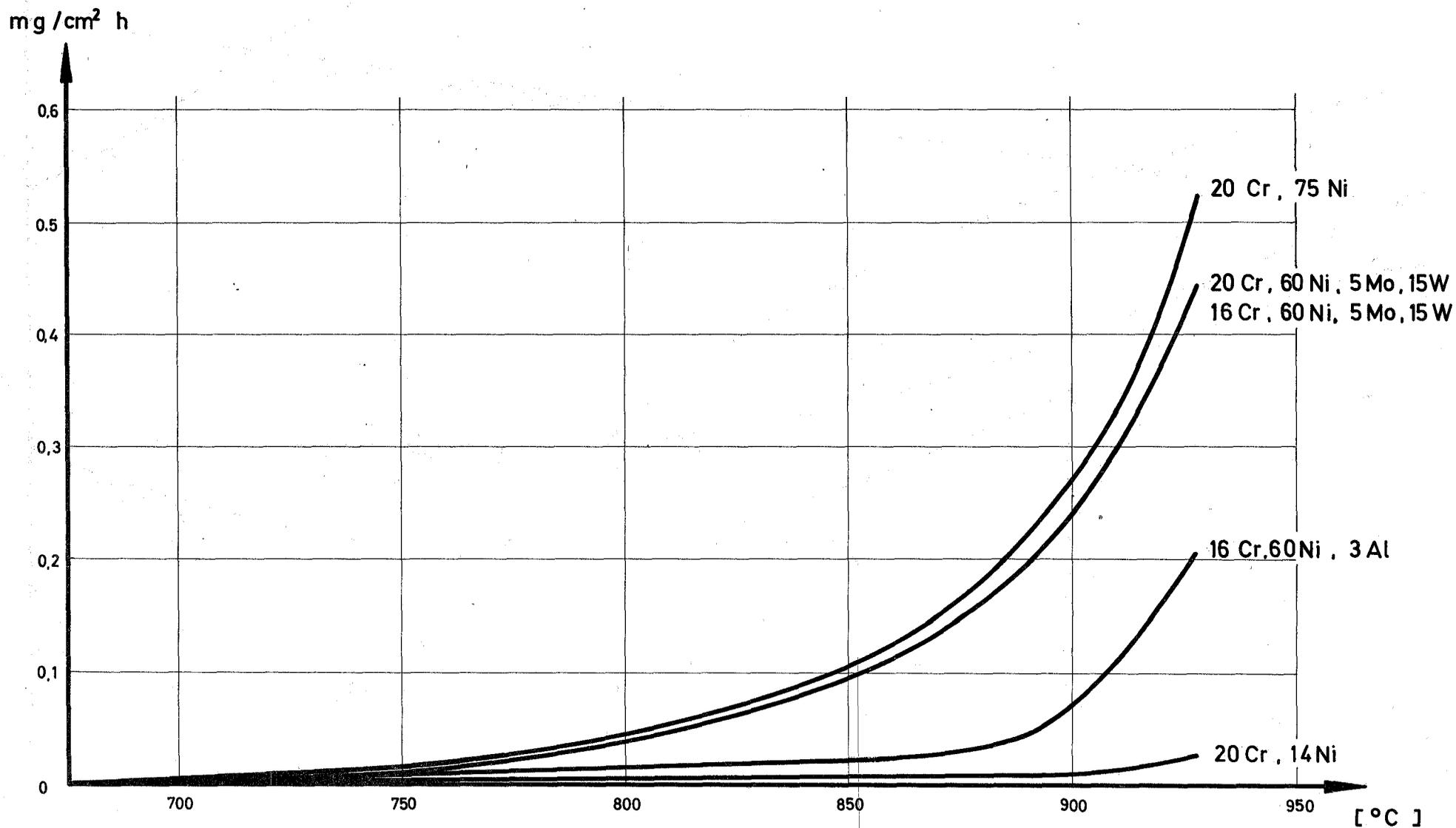


ABB.3 MASSE -TRANSPORT VERSCHIEDENER Ni-LEGIERUNGEN
IN NATRIUM [NACH (4)]



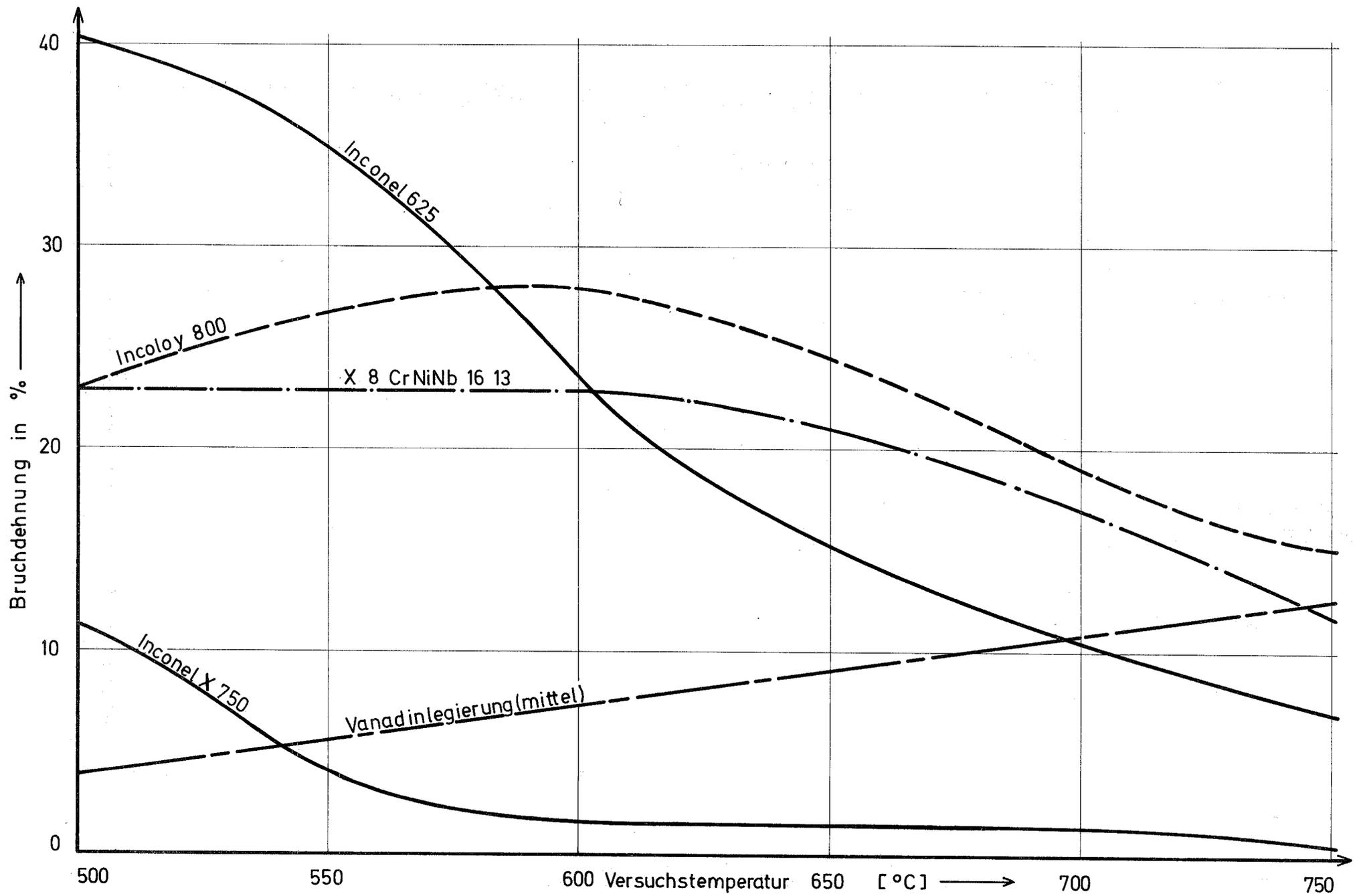


Abb.4 Bruchdehnung verschiedener Legierungen nach Bestrahlungen bei $\approx 10^{21} n_s/cm^2$

Tab. 5 Wirkungsquerschnitte der häufigsten stabilen Isotope verschiedener Elemente für (n, α)-Reaktionen mit schnellen Neutronen

Nuklid		N 14	Al 27	Ti 46	Ti 47	Ti 48
Wirkungsquerschnitt	mb	41	0,65	0,66	5,5	0,011
Nuklid		V 51	Cr 52	Cr 53	Fe 54	Fe 56
Wirkungsquerschnitt	mb	0,035	0,073	3,0	0,74	0,35
Nuklid		Co 59	Ni 58	Nb 60	Nb 93	Mo 92
Wirkungsquerschnitt	mb	0,23	0,5	0,8	0,04	0,035
Nuklid		Mo 94	Mo 95	Mo 96	Mo 97	Mo 98
Wirkungsquerschnitt	mb	0,66	3,7	0,3	1,3	0,066

IV. DIE TEMPERATURVERTEILUNG IM BRENNELEMENT

von

H. Kämpf

Inhalt:

1. Einleitung
2. Quantitative Behandlung der Temperaturverteilung im Brennelement auf der Basis empirischer Materialgrößen
 - 2.1 Voraussetzungen und Grundbegriffe
 - 2.2 Radiale Temperaturverteilung
 - 2.3 Axiale Temperaturverteilung
 - 2.4 Abhängigkeit der Stabileistung, der Wärmeleistungsdichte und der zugehörigen elektrischen Leistungsdichte von der Kühlmitteltemperatur bei fester Zentraltemperatur und festem Hüllradius
 - 2.5 Hüllradiusabhängigkeit der thermischen Größen bei fester Zentral- und Kühlmitteltemperatur
3. Qualitative Behandlung der Änderung der Temperaturverteilung während des Reaktorbetriebes
 - 3.1 Thermisch relevante makroskopische Veränderungen innerhalb der Hülle
 - 3.2 Thermisch relevante mikroskopische Brennstoffveränderungen
4. Spalt-Modell
 - 4.1 ~~Ideales Spalt-Modell~~
 - 4.2 Reales Spalt-Modell
5. Zusammenfassung

1. Einleitung

Die Kenntnis der Temperaturverteilung im Brennelement (BE) ist für die Beherrschung des BE-Reaktorverhaltens von entscheidender Bedeutung, da die bestimmenden Vorgänge und Eigenschaften im Brennstoff wie das Spektrum der mechanischen Eigenschaften, die thermische Ausdehnung, das Schwellen, die Porenwanderung, die Spaltgasfreisetzung, Strukturänderungen, Diffusionsvorgänge wie Sauerstoffwanderung usw. relativ stark temperaturabhängig sind.

Unter Zugrundelegung der für Schnelle Brüter spezifischen Voraussetzungen und auf der Basis von im wesentlichen 4 konstanten Materialgrößen wird die Temperaturverteilung im BE berechnet und diskutiert. Die Problematik der Berechnung der Temperaturverteilung innerhalb der Hülle und ihre Veränderung während des Reaktorbetriebes auf der Basis der Brennstoffwärmeleitfähigkeit und der Wärmedurchgangszahl Brennstoff - Hülle wird behandelt. Dabei wird der Wärmedurchgang durch die Übergangszone Brennstoff - Hülle auf der Basis eines idealen und realen Spaltmodells genau untersucht.

2. Quantitative Behandlung der Temperaturverteilung im BE auf der Basis empirischer Materialgrößen

Im folgenden Kapitel werden nach der Darlegung der Grundbegriffe und der Festlegung der Voraussetzungen die Temperaturverteilung im BE auf der Basis konstanter Materialgrößen abgeleitet und einige Parameteruntersuchungen durchgeführt.

2.1 Voraussetzungen und Grundbegriffe

Die Schnellbrüter-Brennelemente besitzen Zylindergeometrie (r, z) . Die Radialabhängigkeit der Wärmeleistungsdichte q kann vernachlässigt werden, die z -Abhängigkeit muß in Rechnung gestellt werden. Wegen Brennstofflänge \gg Brennstoffradius und der relativ schwachen z -Abhängigkeit von q ist die z -Komponente der Wärmestromdichte \dot{j} gegen die r -Komponente zu vernachlässigen, d.h. die Wärme strömt im Brennstoff bzw. im BE radial nach außen zur Brennelementoberfläche. Dort wird die Wärme von dem das BE umgebenden axial strömenden Kühlmittel abgeführt. Durch diese

Voraussetzungen wurde das Problem separiert in der Weise, daß die Radial- und die Achsialabhängigkeit unabhängig voneinander behandelt werden können. Wir interessieren uns im folgenden für die stationären Verhältnisse.

Bei stationären Verhältnissen gilt:

$$\iiint_V q \, dV = \oint_F j \, dF_n \quad (1)$$

Die in einem Volumen V mit der Wärmeleistungsdichte q erzeugte Wärme muß im stationären Zustand durch die Oberfläche F des Volumens mit der Wärmestromdichte j abfließen.

Definitionsgemäß gilt:

Hat das (wärmeproduzierende) Brennstoffvolumen V die Länge L , so gilt für die Stabileistung χ

$$\chi = \frac{1}{L} \iiint_V q \, dV \quad (2)$$

Das Wärmeleitintegral ω ist wie folgt definiert

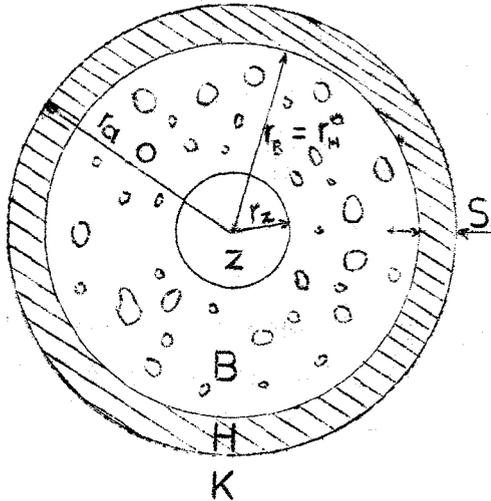
$$\omega = \int_{T_B}^{T_0} k_B(T) \, dT \quad (3)$$

T_0 = Maximaltemperatur (Bei zentrierten Vollzylindern gleichbedeutend mit Zentraltemperatur, bei zentrierten Hohlzylindern gleichbedeutend mit der Innenoberflächentemperatur.)

T_B = Brennstoffoberflächentemperatur

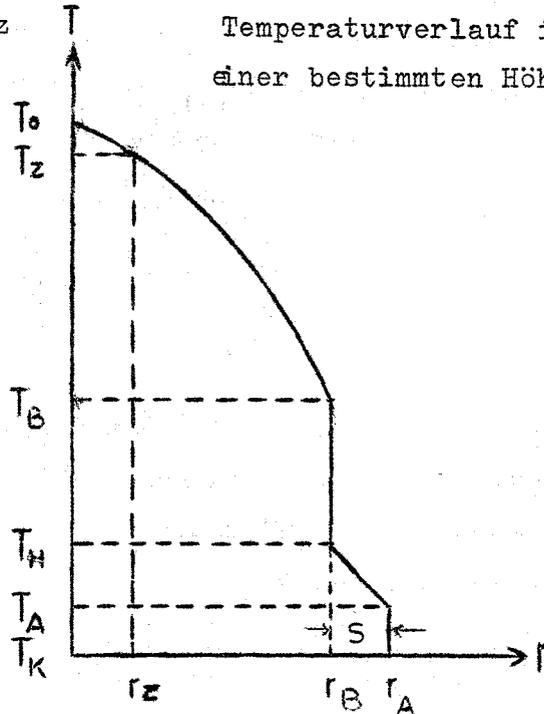
In Fig.1 ist ein Querschnitt durch das BE dargestellt. Wir vernachlässigen in diesem Kapitel den Spalt zwischen Brennstoff und Hülle und ersetzen den endlichen Temperaturabfall im Spalt durch einen Temperatursprung an der Hüllinnenoberfläche. Entsprechend verfahren wir mit der Übergangzone Hülle-Kühlmittel. In Kapitel 4 wird der Temperaturabfall in der Übergangzone Brennstoff-Hülle detailliert behandelt. In Fig.2 ist qualitativ der radiale Temperaturverlauf im BE dargestellt.

Fig.1 Querschnitt durch das BE in einer bestimmten Höhe z



- Z = Zentralkanal
- B = (poröser) Brennstoff
- H = Hülle
- K = Kühlmittel
- r_Z = Zentralkanalradius
- r_H = Hüllinnenradius
- r_A = Hüllaußenradius
- $s = r_A - r_H =$ Hülldicke

Fig.2 (Qualitativer) radialer Temperaturverlauf in einer bestimmten Höhe z



- T_0 = Zentraltemperatur
- T_Z = Zentralkanaltemperatur
- T_B = Brennstoffoberflächentemperatur
- T_H = Hüllinnentemperatur
- T_A = Hüllaußentemperatur
- T_K = Kühlmitteltemperatur

Wir betrachten im folgenden ein infinitesimales Brennstoffvoll- oder allgemeiner Hohlzylinderelement (damit werden Brennstoffe mit zentralem Kanal, der herstellungs- oder betriebsbedingt sein kann, eingeschlossen) der Dicke dz in der Höhe z bzw. im Abstand z von der Zentralebene. Die Wärme entsteht im Brennstoff voraussetzungsgemäß homogen entsprechend $q(z)$ und fließt mit der Wärmestromdichte $j(r, z)$ radial nach außen ins Kühlmittel.

Für die angegebenen Voraussetzungen erhält man aus (1) mit der Fourierschen Gleichung für die radiale Strömung

$$j = -k \frac{dT}{dr} \quad (4)$$

k = Wärmeleitfähigkeit

für den Vollzylinder:

$$\chi_o(z) = q_o(z) r_B^2 \pi = 4 \pi \int_{T_B(z)}^{T_o(z)} k_B(T) dT \quad (5)$$

für den Hohlzylinder:

$$\chi_Z(z) = q_Z(z) \pi (r_B^2 - r_Z^2) = \frac{4 \pi}{1 - \frac{2\beta^2}{1+\beta^2} \ln \frac{1}{\beta}} \int_{T_B(z)}^{T_Z(z)} k_B(T) dT \quad (6)$$

$$\text{mit } \beta = \frac{r_Z}{r_B}$$

Index o für Vollzylinder

Index Z für Hohlzylinder

Man erkennt aus (5) und (6), daß bei fester Stableistung χ , fester Brennstoffoberflächentemperatur T_B und festem Brennstoffradius r_B mit wachsendem Zentralkanalradius r_Z eine gravierende Erniedrigung der Maximaltemperatur erfolgt (Thermischer Zentralkanaleffekt [1]).

Weiterhin erhält man aus (1) und (2) folgende sowohl für Brennstoffvoll- als auch Hohlzylinder gültige Beziehung

$$\chi(z) = 2 \pi r \dot{q}(z, r) \quad r \geq r_B \quad (7)$$

In [2] und in Beitrag XI wurde die Temperaturverteilung für radialabhängige Wärmequellendichte $q(r)$ behandelt. Dieser Fall ist in thermischen Reaktoren realisiert.

Die Wärmeleistungsdichte q ist reaktorphysikalisch wie folgt gegeben:

$$q = e N_{\text{fiss}} \cdot \sigma_{\text{fiss}} \cdot \phi \quad (8)$$

N_{fiss} = Anzahl der spaltbaren Kerne pro Voleinheit

σ_{fiss} = Mikroskopischer Spaltquerschnitt (gemittelt)

ϕ = Neutronenfluß

e = 200 MeV = die pro Spaltung erzeugte thermische Energie

Je nachdem, ob es sich um BE eines kritischen Reaktors handelt oder um Bestrahlungsproben, muß man 2 Fälle unterscheiden. Im Falle der BE eines Reaktors liegt N_{fiss} und σ_{fiss} durch Reaktorgröße, Brutrate u.ä. fest. Durch Variieren von ϕ kann man q variieren. Im Falle von Bestrahlungsproben liegt in 1. Näherung ϕ fest. Hier kann man q durch den Brennstoff (σ_{fiss}) und durch die Anreicherung N_{fiss} variieren.

2.2 Radiale Temperaturverteilung

Für den Brennstoffvollzylinder, d.h. für $0 \leq r \leq r_B$ erhält man aus (1), (4) und (5) unter Verwendung der temperaturgemittelten Wärmeleitfähigkeit \bar{k}

$$\bar{k} = \frac{1}{T_1 - T_2} \int_{T_2}^{T_1} k(T) dT \quad (9)$$

folgenden Temperaturverlauf

$$T(z,r) = T_o(z) - \frac{\chi(z)}{4\pi\bar{k}_B} \frac{r^2}{r_B^2} \quad 0 \leq r \leq r_B \quad (10)$$

Für die Hülle, d.h. für $r_B \leq r \leq r_A$ folgt aus (4) und (7) folgender Temperaturverlauf

$$T(z,r) = T_H(z) - \frac{\chi(z)}{2\pi\bar{k}_H} \ln \frac{r}{r_B} \quad r_H \leq r \leq r_A \quad (11)$$

Die Temperatursprünge an den Übergängen Brennstoff-Hülle (Index BH) und Hülle-Kühlmittel (Index HK) sind durch die Wärmedurchgangszahlen β_{BH} und β_{HK} wie folgt gegeben:

$$\dot{j}(z, r_H) = \beta_{\text{BH}} (T_B - T_H) \quad (12)$$

$$\dot{j}(z, r_A) = \beta_{\text{HK}} (T_A - T_K) \quad (13)$$

Aus (7), (10), (11), (12) und (13) folgt für die Temperaturdifferenzen:

$$T_O(z) - T_B(z) = \frac{\chi(z)}{4 \pi \overline{k_B}} \quad (14)$$

$$T_B(z) - T_H(z) = \frac{\chi(z)}{2 \pi r_H \beta_{BH}} \quad (15)$$

$$T_H(z) - T_A(z) = \frac{\chi(z)}{2 \pi \overline{k_H}} \ln \frac{r_A}{r_H} \quad (16)$$

$$T_A(z) - T_K(z) = \frac{\chi(z)}{2 \pi r_A \beta_{HK}} \quad (17)$$

Durch die stationäre Leistungserzeugung kommt die Temperaturdifferenz $T_O - T_B$ im Brennstoff zustande. Die anderen Temperaturdifferenzen (15), (16) und (17) sind gewissermaßen die physikalisch bedingten nutzlosen Temperaturdifferenzen, die die Leistungserzeugung auf ein entsprechend hohes Temperaturniveau heben.

Wir definieren folgende Verhältnisse:

$$X(r_A) = \frac{T_B(z) - T_H(z)}{T_O(z) - T_B(z)} = \frac{2 \overline{k_B}}{\beta_{BH} (r_A - s)} \quad (18)$$

$$Y(r_A) = \frac{T_H(z) - T_A(z)}{T_O(z) - T_B(z)} = \frac{2 \overline{k_B}}{k_H} \ln \left(\frac{r_A}{r_A - s} \right) \quad (19)$$

$$Z(r_A) = \frac{T_A(z) - T_K(z)}{T_O(z) - T_B(z)} = \frac{2 \overline{k_B}}{\beta_{HK} r_A} \quad (20)$$

Dabei haben wir $r_H + s = r_A$ verwendet. s = Hülldicke. X , Y und Z sind sozusagen die Verhältnisse der betreffenden nutzlosen Temperaturunterschiede zu dem nutzbaren Temperaturunterschied $T_O - T_B$.

2.3 Axiale Temperaturverteilung

Die radial durch das BE zur Brennelementoberfläche strömende Wärme wird von dem das BE umgebenden axial strömenden Kühlmittel abgeführt.

Wir betrachten in Höhe z ein infinitesimales Zylinderelement

der Dicke dz des BE-Zylinders mit Radius r_A . Aus diesem fließt die Wärmeleistung $dW(z)$.

$$dW(z) = \chi(z) dz = 2\pi r_A j(z, r_A) dz \quad (21)$$

Diese Leistung muß im stationären Zustand von dem an der Fläche $2\pi r_A dz$ achsial vorbeiströmenden Kühlmittel abgeführt werden. Während der Zeit dt fließt die Kühlmittelmasse dm_K an der BE-Oberfläche vorbei. Dabei erhöht sich T_K am Ort z um $dT_K(z)$ nach Maßgabe der spezifischen Wärme c_p .

Wir erhalten:

$$\chi(z) dz = \frac{dm_K}{dt} c_p dT_K(z) \quad (22)$$

mit

$$\dot{m}_K = \frac{dm_K}{dt} = \rho_K \frac{dV}{dt} = \rho_K F \frac{dz}{dt} = \rho_K F w \quad (23)$$

V = Volumen

F = Querschnittsfläche

w = Kühlmittelgeschwindigkeit

Wir integrieren (22) für konstante Kühlmitteltemperatur T_K über den Querschnitt, temperaturunabhängige spezifische Wärme c_p und konstante zeitliche Durchflußmenge m entlang der BE-Länge. Weiterhin legen wir zugrunde:

$$\chi = \chi_{\max} \cdot \cos\left(\frac{\pi}{\ell_{\text{ex}}} \cdot z\right) \quad (24)$$

ℓ_{ex} = extrapolierte Länge

Wir erhalten:

$$T_K(z) - T_{\text{Ein}} = \frac{\chi_{\max} \ell_{\text{ex}}}{m_K c_p \pi} \left[\sin\left(\frac{\pi}{2} \frac{\ell}{\ell_{\text{ex}}}\right) + \sin\left(\frac{\pi}{\ell_{\text{ex}}} z\right) \right] \quad (25)$$

T_{Ein} = Kühlmittelintrittstemperatur

ℓ = BE-Länge $\left(-\frac{\ell}{2} \leq z \leq \frac{\ell}{2}\right)$

Aus (25) folgt für die Aufheizspanne $T_{\text{Aus}} - T_{\text{Ein}}$, wobei T_{Aus} = Kühlmittelaustrittstemperatur ist

$$T_{\text{Aus}} - T_{\text{Ein}} = \frac{2 \chi_{\text{max}} \ell_{\text{ex}}}{m_K c_p \pi} \sin\left(\frac{\pi \ell}{2 \ell_{\text{ex}}}\right) \quad (26)$$

Für die axial gemittelte Kühlmitteltemperatur T_K folgt aus (25) und (26)

$$\overline{T_K} = T_K(0) = \frac{T_{\text{Aus}} + T_{\text{Ein}}}{2} \quad (27)$$

Mit (26) und (27) wird aus (25)

$$T_K(z) = T_K(0) + g (T_{\text{Aus}} - T_{\text{Ein}}) \sin\left(\frac{\pi}{\ell_{\text{ex}}} z\right) \quad (28)$$

mit

$$g = \frac{1}{2 \sin\left(\frac{\pi}{2} \frac{\ell}{\ell_{\text{ex}}}\right)} \quad (29)$$

Aus (14) bis (17) folgt, daß beliebige radiale Temperaturdifferenzen $\chi(z)$, d.h. wegen (24) $\cos\left(\frac{\pi}{\ell_{\text{ex}}} z\right)$ proportional sind. Das bedeutet, daß die betreffenden Temperaturdifferenzen in der Core-Zentralebene ($z = 0$) maximal sind.

Bei den Absoluttemperaturen kommt es zu einer Überlagerung des dem $\cos\left(\frac{\pi}{\ell_{\text{ex}}} z\right)$ proportionalen $\chi(z)$ -Gliedes und des dem $\sin\left(\frac{\pi}{\ell_{\text{ex}}} z\right)$ proportionalen $T_K(z)$ -Gliedes. Je nachdem, welches Glied überwiegt, hat man einen monoton ansteigenden Temperaturverlauf oder einen Verlauf mit einem zum Kühlmittelaustritt verschobenen Maximum.

Aus (14) bis (17) und (28) folgt für den axialen Verlauf der Hüllaußen- T_A und der Zentraltemperatur T_o :

$$T_A(z) = T_K(0) + A \left[\sin\left(\frac{\pi}{\ell_{\text{ex}}} z\right) + B \cos\left(\frac{\pi}{\ell_{\text{ex}}} z\right) \right] \quad (30)$$

$$T_o(z) = T_K(0) + A \left[\sin\left(\frac{\pi}{\ell_{\text{ex}}} z\right) + \Gamma \cos\left(\frac{\pi}{\ell_{\text{ex}}} z\right) \right] \quad (31)$$

wobei $A = g (T_{\text{Aus}} - T_{\text{Ein}})$ (32)

$$B = \frac{T_A(0) - T_K(0)}{g (T_{\text{Aus}} - T_{\text{Ein}})} \quad (33)$$

$$\Gamma = \frac{T_o(0) - T_K(0)}{g (T_{\text{Aus}} - T_{\text{Ein}})} \quad (34)$$

Da $l \approx l_{ex}$ erhält man für $\xi \approx \frac{1}{2}$. Je nachdem, ob B bzw. $\Gamma \ll 1$ oder $\gg 1$ ist, überwiegt das sin- bzw. das cos-Glied und man hat einen monoton ansteigenden Verlauf von T_A bzw. T_0 oder einen Verlauf mit einem zum Kühlmittelaustritt hin verschobenen Maximum.

Im allgemeinen, d.h. bei hinreichend großen Stableistungen χ gilt $\Gamma \gg 1$, d.h. die Aufheizspanne ist gegen die maximale Temperaturdifferenz Brennstoffzentrum-Kühlmittel vernachlässigbar. Das heißt für die Zentraltemperatur ergibt sich im allgemeinen ein Verlauf mit einem Maximum, das relativ nahe an der Core-Zentralebene liegt.

Anders ist es mit B . Bei Natrium-Kühlung ist der Temperatursprung Hülle-Kühlmittel relativ klein und das sin-Glied überwiegt, so daß die Hüllenoberflächentemperatur monoton steigt und ihr Maximum am Kühlmittelaustritt hat. Bei Dampfkühlung dagegen ist der betreffende Temperatursprung relativ groß, so daß insbesondere bei kleiner Aufheizspanne der Verlauf der Hülloberflächentemperatur ein Maximum in der Nähe der Core-Zentralebene besitzen kann.

In Fig.3 ist der achsiale Verlauf der Hülloberflächentemperatur $T_A(z)$ und der Zentraltemperatur $T_0(z)$ für einen Natrium- und einen Dampfbrüter graphisch dargestellt. Dabei wurden die in der Na2- und D2-Studie [3,4] angegebenen Daten zugrundegelegt.

2.4 Abhängigkeit der Stableistung, der Wärmeleistungsdichte und der zugehörigen elektrischen Leistungsdichte von der Kühlmitteltemperatur bei fester Zentraltemperatur und festem Hüllradius

Man muß klar sehen, daß für ökonomische Betrachtungen die Wärmeleistungsdichte q (d.h. Wärmeleistung pro Brennstoffvolumeneinheit) oder auch die spezifische Leistung b (d.h. Wärmeleistung pro Einheit der spaltbaren Masse) maßgebend sind und nicht etwa die Stableistung.

Man erkennt aus (5), daß mit wachsender Zentraltemperatur T_0 die Stableistung χ zunimmt und bei festem Brennstoffradius r_B ebenso die Wärmeleistungsdichte q . Als obere Grenze von T_0 wird zur Zeit bei praktisch allen BE-Konzepten die Schmelztemperatur

des Brennstoffes zugrundegelegt. χ und damit bei festem r_B auch q wächst weiterhin mit abnehmender Brennstoffoberflächentemperatur T_B . Nach (15) bis (17) nimmt damit auch die Kühlmitteltemperatur T_K ab und damit auch der Wirkungsgrad der umzuwandelnden Wärme. Dies wollen wir im folgenden quantitativ fassen.

Die produzierte Wärmeleistung wird praktisch nie zu Heizzwecken verwendet, sondern immer in mechanische oder elektrische Arbeitsleistung umgewandelt entsprechend des Wirkungsgrades η . Dabei entspricht dann der Wärmeleistungsdichte q die elektrische Leistungsdichte E (d.h. elektrische Leistung pro Brennstoffvolumeneinheit).

Wir interessieren uns jetzt für die maximal mögliche Umwandlung der bei der Kühlmitteltemperatur T_K anfallenden Wärmeleistungsdichte q in elektrische Leistungsdichte E . Das heißt wir legen einen Carnotprozess zugrunde, bei dem die nicht umgewandelte Wärme bei Raumtemperatur T_R abgegeben wird.

Damit gilt:

$$\frac{E}{q} = \frac{T_K - T_R}{T_K} = \eta \quad (35)$$

T_R = Temperatur im Carnotprozess, bei der die nicht umgewandelte Wärme abgegeben wird

η = Wirkungsgrad

Aus (5), (14) bis (20) und (35) folgt

$$E = \left(\frac{T_0}{T_K} - 1 \right) (T_K - T_R) \frac{4 \overline{k_B}}{(r_A - s)^2 [1 + X(r_A) + Y(r_A) + Z(r_A)]} \quad (36)$$

Wir haben bereits gesehen, daß mit wachsender Zentraltemperatur T_0 die elektrische Leistungsdichte E zunimmt. Wir betrachten im folgenden die Abhängigkeit von der Kühlmitteltemperatur T_K .

Für $T_K = T_R$ folgt $E = 0$. Das bedeutet, daß zwar q maximal ist, daß aber wegen des verschwindenden Wirkungsgrades η keine elektrische Leistung erhalten werden kann.

Für $T_K = T_0$ folgt $E = 0$. Das bedeutet, daß zwar der Wirkungsgrad maximal ist, daß aber wegen der verschwindenden thermischen Leistung keine elektrische Leistung erhalten werden kann.

Für eine bestimmte Kühlmitteltemperatur $T_{K \max}$ muß daher die elektrische Energiedichte E maximal sein. Durch Differentiation erhält man:

$$T_{K \max} = \sqrt{T_0 \cdot T_R} \quad (37)$$

Numerisch ergibt sich für

$$T_0 = 2800^\circ\text{K} \quad (\text{Schmelztemperatur von } \text{UO}_2)$$

$$T_R = 300^\circ\text{K} \quad (\text{Raumtemperatur als kleinste in Betracht kommende Temperatur})$$

$$T_{K \max} = 915^\circ\text{K} \hat{=} 642^\circ\text{C}$$

Wenn also eine maximale elektrische Leistungsdichte bei festem r_A gefordert wird, müssen Zentraltemperatur T_0 und Kühlmitteltemperatur $T_{K \max}$ entsprechend (37) aufeinander abgestimmt werden. Das heißt Brennstoffe (hinsichtlich der maximal zulässigen Zentraltemperatur) und Hüllmaterial (hinsichtlich mechanischer Festigkeitseigenschaften und Korrosionseigenschaften gegenüber dem betreffenden Kühlmittel bei der entsprechenden Hülltemperatur) müssen aufeinander abgestimmt werden. Bei fester Zentraltemperatur T_K etwa über T_K^{Max} zu steigern, wäre unter Zugrundelegung obiger Forderung Unsinn.

Es muß betont werden, daß obige Forderung maximaler elektrischer Leistungsdichte durchaus etwas willkürlich aufgestellt wurde. Die Größenfestlegung erfolgt tatsächlich nach anderen Gesichtspunkten. Hinsichtlich wirtschaftlicher Leistungsbrüter erfolgt sie im Hinblick auf eine Minimalisierung der Gesamtkosten. So wird z.B. im Beitrag VII aus der Minimalisierung der Brennstoffzykluskosten bei Konstanthaltung bestimmter Parameter eine optimale spezifische Leistung b bzw. ein optimaler Brennstoffradius r_B abgeleitet.

2.5 Hüllradiusabhängigkeit der thermischen Größen bei fester Zentral- und Kühlmitteltemperatur

Im vorhergehenden Abschnitt wurden im wesentlichen die Leistungen χ , q und E bei festem Hüllaußenradius r_A in Abhängigkeit von Zentraltemperatur T_o und Kühlmitteltemperatur T_K untersucht. Dabei ergab sich bei fester Zentraltemperatur T_o eine maximale elektrische Leistungsdichte E bei der durch (37) gegebenen Kühlmitteltemperatur.

In diesem Abschnitt wird bei vorgegebener Zentraltemperatur T_o und Kühlmitteltemperatur T_K als auch fester Hülldicke s die Abhängigkeit der thermischen Größen χ , q , j vom Hüllaußenradius r_A betrachtet und zwar für die Core-Zentralebene ($z = 0$).

Aus (14) bis (17) mit (18) bis (20) und (24) folgt

$$\chi_{\max} = \frac{4\pi k_B [T_o(0) - T_K(0)]}{1 + X(r_A) + Y(r_A) + Z(r_A)} \quad (38)$$

In (38) ist χ bei festem $T_o(0) - T_K(0)$ in Abhängigkeit von r_A dargestellt. Durch (5) ist dann die Wärmeleistungsdichte q und durch (7) die Wärmestromdichte j_A an der Hülloberfläche jeweils in Abhängigkeit vom Hüllaußenradius r_A bei festem $T_o - T_K$ gegeben.

Es muß auch hier betont werden, daß diese Untersuchungen nicht im Hinblick auf eine Spezifikation des Hüllradius r_A erfolgt sind.

In Fig. 4 sind die durch (18) bis (20) definierten Temperaturverhältnisse X , Y , Z in Abhängigkeit des Hüllradius r_A für Na2-Bedingungen [3] graphisch dargestellt.

In Fig. 5 sind χ , q und j in Abhängigkeit vom Hüllradius r_A bei fester Temperaturdifferenz $T_o - T_K$ für Na2-Bedingungen [3] graphisch dargestellt.

3. Qualitative Behandlung der Änderung der Temperaturverteilung während des Reaktorbetriebes

Die in Kapitel 2 berechnete Temperaturverteilung gründete sich im wesentlichen auf die Verwendung von 4 konstanten Materialgrößen: die temperaturgemittelten Wärmeleitfähigkeiten des Brennstoffs $\overline{k_B}$ und des Hüllmaterials $\overline{k_H}$ und die Wärmedurchgangszahlen für den Übergang Brennstoff-Hülle β_{BH} und Hülle-Kühlmittel β_{HK} .

Wegen der geringen Hülldicke ist der Temperaturabfall in der Hülle relativ klein, so daß der genaue Wert der Wärmeleitfähigkeit des Hüllmaterials $\overline{k_H}$ und seine eventuelle Veränderung während des Reaktorbetriebes von untergeordneter Bedeutung ist.

Ähnlich ist es mit der Wärmedurchgangszahl β_{HK} bei Natrium-Brütern. Bei Dampfbrütern ist zwar der Temperaturabfall von der Hülle zum Kühlmittel mit einigen 100°C erheblich, aber β_{HK} ist gut bekannt und seine eventuelle Veränderung beim Reaktorbetrieb ist überschaubar. Zusammenfassend kann gesagt werden, daß die Berechnung der Hülloberflächentemperatur, der Temperaturen innerhalb der Hülle und ihre eventuellen Veränderungen im Reaktorbetrieb auf der Basis von $\overline{k_H}$ und β_{HK} als relativ unproblematisch anzusehen ist.

Anders ist es mit der Berechnung der Temperaturverteilung innerhalb der Hülle auf der Basis der 2 konstanten Materialgrößen $\overline{k_B}$ und β_{BH} . Im folgenden wird in qualitativer Weise gezeigt, inwieweit es problematisch ist, die Temperaturverteilung innerhalb der Hülle auf 2 konstante Materialgrößen zu gründen. Weiterhin wird ersichtlich, auf welche Weise sich die Temperaturverteilung während des Reaktorbetriebes ändert.

3.1 Thermisch relevante makroskopische Veränderungen innerhalb der Hülle

Als Bezugszustand wählen wir ein Tabletten- oder ein Hohletabletten-Brennelement mit einer bestimmten Spaltbreite σ , einer homogenen Tablettenporosität P und gegebenenfalls einem Zentralkanalradius r_Z .

Während des Reaktorbetriebes kommt es zu Änderungen der inneren

Geometrie, d.h. der Spaltbreite δ , der Porosität P und des Zentralkanalradius r_z , die mit gravierenden thermischen Auswirkungen verbunden sind, wie in [1] quantitativ gezeigt wird. So verkleinert sich die ursprünglich vorhandene Spaltbreite durch Volumenvergrößerungen infolge thermischer Ausdehnung und Brennstoffschwellen (Kapitel 4). Ein Zentralkanalradius entsteht bzw. ein ursprünglich vorhandener vergrößert sich durch Porenwanderung im "heißen" Brennstoffbereich [5], d.h. ab ca. 1700°C . Dabei verdichtet sich dieser "heiße" Bereich zu nahezu 100 % d.th.D. wobei die Wärmeleitfähigkeit zunimmt [6]. Gleichzeitig bilden sich aus der ursprünglichen polykristallinen Struktur Einkristalle, was zu einem weiteren Anstieg der Wärmeleitfähigkeit führt. Falls ein Zentralkanalradius vorhanden ist, führt ein inhomogenes Schwellen in dem Sinne, daß der Zentralkanalradius sich relativ stärker vergrößert als der Brennstoffradius, zu einer weiteren Temperaturabsenkung [1] und (Kapitel 2.1).

Von deutlicher thermischer Auswirkung sind auch die während des Abbrandes produzierten Spaltgase Xe und Kr, deren Wärmeleitfähigkeiten erheblich kleiner sind als die von He, das im allgemeinen als Füllgas verwendet wird. Hinsichtlich der Auswirkungen auf die Porositätsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit wird dieser Effekt in [6] untersucht; hinsichtlich des Temperaturabfalls im Spalt Brennstoff-Hülle wird dieser Einfluß in Kapitel 4 behandelt.

Schließlich sind die infolge innerer Spannungen auf Grund von inhomogener thermischer Ausdehnung und inhomogenen Schwellens sich bildenden Risse mit thermischen Veränderungen verbunden. Risse in Wärmeflußrichtung sind dabei verglichen mit denen senkrecht zur Wärmeflußrichtung von untergeordneter Bedeutung. Man kann davon ausgehen, daß Risse vorwiegend in der äußeren spröden "kalten" Brennstoffzone vorhanden sind. Zwar hatten sich bei Inbetriebnahme des Brennelements, als der gesamte Brennstoff noch spröde war, durchgehende Risse in der gesamten Tablette bzw. Hohltablette gebildet. Diese haben sich aber u.U. noch während der Anfahrphase in den zentralen Zonen mit vorwiegend plastischen und Kriecheigenschaften auf Grund des zusätzlichen Raumbedarfs durch thermische Ausdehnung geschlossen.

3.2 Thermisch relevante mikroskopische Brennstoffveränderungen

Hier handelt es sich um Veränderungen im Brennstoffgitter, die mit Wärmeleitfähigkeitsänderungen verbunden sind. Als wichtigste Gitteränderungen kommen in Betracht:

- a) Erzeugung von Defekten, d.h. im wesentlichen Erzeugung von Leerstellen und Besetzung von Zwischengitterplätzen
- b) Erzeugung von Spaltprodukten
- c) Veränderung der Stöchiometrie durch die Vernichtung von spaltbaren Atomen
- d) Diffusion und Thermodiffusion von Defekten, Spaltprodukten, Sauerstoff und schweren Atomen

Diese Einflüsse sind in [7] bis [11] untersucht worden.

4. Spalt-Modell

Wir untersuchen im folgenden den Temperaturabfall ΔT in der Übergangszone Brennstoff-Hülle in Abhängigkeit der vorliegenden Bedingungen. Bei Tabletten-Brennelementen ist die Übergangszone durch folgende Tatsachen charakterisiert: Die Oberflächen des Brennstoffvoll- bzw. Hohlzylinders und des Hüllhohlzylinders besitzen eine bestimmte Rauigkeit. Zwischen diesen rauhen Oberflächen befinden sich Gase, wobei praktisch nur die Edelgase von Bedeutung sind. He und Ar werden als Füllgase verwendet, Kr und Xe treten als Spaltgase auf. Weiterhin kann diese Zwischenzone, insbesondere während des Reaktorbetriebes Brennstofftrümmer enthalten. Falls die Tablette innerhalb der Hülle radial verschiebbar ist, wird man mit einer exzentrischen Lage der Tablette bezüglich der Hülle rechnen müssen.

Man kann 2 Fälle unterscheiden:

- a) Die Spaltbreite ist größer als die Summe der maximalen Rauigkeiten der beiden Oberflächen:

Falls keine Brennstoffbruchstücke vorhanden sind, wird, abgesehen von einem eventuellen Kontaktbereich auf Grund der Exzentrizität ein Gasspalt vorliegen. Die Spaltbreite wird wegen der Exzentrizität und der Rauigkeiten azimuthal veränderlich sein.

- b) Die Spaltbreite ist kleiner als die Summe der maximalen Rauigkeiten:

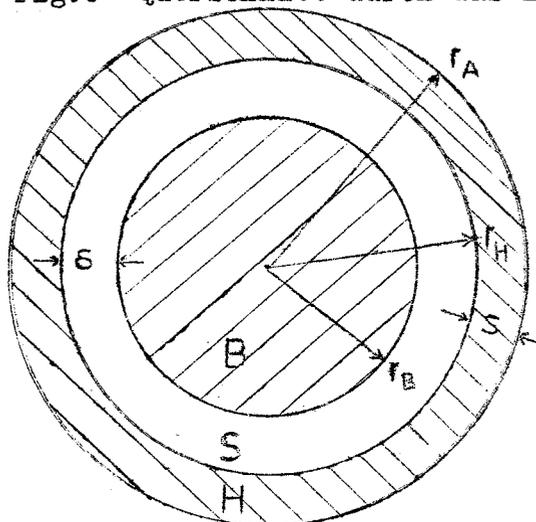
In diesem Fall wird ein "Eigenkontakt" an einer endlichen Anzahl von Kontaktpunkten vorliegen. Zusätzlich können Kontakte durch Brennstofftrümmer erfolgen. Im Gegensatz zum Fall a) wird hier eine relativ gute Zentrierung vorliegen.

Diese komplexen Verhältnisse in der Übergangszone werden durch folgende Idealisierung der quantitativen Fassung zugänglich.

4.1 Ideales Spalt-Modell

Das ideale Spalt-Modell ist dadurch ausgezeichnet, daß ein Spalt konstanter Spaltbreite δ entlang des Umfanges vorliegt. D.h. der Brennstoff besteht aus einem idealen Voll- bzw. Hohlzylinder und die Hülle aus einem bezüglich des Brennstoffs zentrierten idealen Hohlzylinder.

Fig.6 Querschnitt durch das ideale Spalt-Modell



- B = Brennstoffzylinder
- S = Spalthohlzylinder
- H = Hüllhohlzylinder
- r_B = Brennstoffradius
- r_H = Hüllinnenradius
- r_A = Hüllaußenradius
- δ = Spaltbreite

4.1.1 Wärmedurchgang für den Fall, daß die mittlere freie Weglänge $\Lambda < \text{Spaltbreite } \delta$ ist

In [12] wurde unter Zugrundelegung der für den Wärmetransport durch Wärmeleitung und Temperaturstrahlung gültigen Beziehungen die folgende "Allgemeine Spaltgleichung" abgeleitet. Dabei wurde bei der Wärmeleitung der Fall: mittlere freie Weglänge $\Lambda < \text{Spaltbreite } \delta$ vorausgesetzt. In dieser Gleichung ist der Temperaturabfall ΔT im Gasspalt in Abhängigkeit der Spaltbreite δ , der Hüllinnentemperatur T_H , des Hüllinnenradius r_H , der Stableistung χ , der Gasart (C_I) und des Absorptionsvermögens der Oberflächen (C_{St})

dargestellt.

$$\delta_{\text{tot}} = \frac{C_I T_H^3 \left[\left(1 + \frac{\Delta T}{T_H} \right)^3 - 1 \right]}{\frac{\chi}{2\pi r_H} - C_{\text{St}} T_H^4 \left[\left(1 + \frac{\Delta T}{T_H} \right)^4 - 1 \right]} \quad (39)$$

"Allgemeine Spaltgleichung"

Index I kennzeichnet den Wärmetransport durch -Leitung (Fall mittlere freie Weglänge $\lambda <$ Spaltbreite δ), Index St den durch Strahlung und Index tot den gesamten Wärmetransport.

Für die Materialgrößen C_I und C_{St} wurden die folgenden Beziehungen erhalten:

$$C_I = \frac{4 \xi \sqrt{K} c_v}{3\pi^2 \sqrt{m_H} N_L d^2 \sqrt{M}} \quad (40)$$

- ξ = Molekülfaktor
- K = Boltzmannkonstante
- c_v = Molwärme bei $V = \text{const}$
- m_H = Masse des H-Atoms
- M = Atom- bzw. Molekulargewicht
- N_L = Loschmidtzahl
- d = Moleküldurchmesser

$$C_{\text{St}} = \frac{\sigma}{\frac{1}{\epsilon_1} + \frac{1}{\epsilon_2} - 1} \quad (41)$$

- σ = Stefan-Boltzmannsche Konstante
- $\epsilon_{1,2}$ = Absorptionsvermögen der Brennstoff- bzw. der Hüllinnenoberfläche

Mit wachsender Spaltbreite nimmt der Wärmeleitungswiderstand zu, während der Temperaturstrahlungswiderstand von der Spaltbreite δ unabhängig ist. D.h. mit wachsender Spaltbreite nimmt der Wärmeleitungsanteil der Wärmestromdichte ab. Der maximale Temperaturabfall

$(\Delta T)_{\max}$ ist erreicht, wenn für $\delta \rightarrow \infty$ der gesamte Wärmetransport durch Temperaturstrahlung zustandekommt. Aus (39) erhält man:

$$(\Delta T)_{\max} = T_H \left[\sqrt[4]{\frac{\chi}{2 \pi r_H c_{St} T_H^4} + 1} - 1 \right] \quad (42)$$

Für den Grenzfall $\Delta T \ll T_H$, $(\Delta T)_{\max}$ ergibt sich, daß die Wärmedurchgangszahl β_{BH} unabhängig von ΔT ist und damit ihre Verwendung gerechtfertigt ist. Wir lassen im folgenden den Index BH weg. Man erhält:

$$\beta_{\text{tot}} = \beta_I = \frac{3}{2} c_I \frac{1}{\delta} \sqrt{T_H} \quad \Delta T \ll T_H, (\Delta T)_{\max} \quad (43)$$

In Fig.7 sind der ΔT - δ -Verlauf entsprechend (39) und bestimmte Näherungen für die Daten der Na2-Studie [3], für He und schwarze Oberflächen graphisch dargestellt. In Fig.8 ist β gegen δ entsprechend (43) für die Edelgase jeweils für 1000°K und 1500°K graphisch dargestellt. Diese Kurven sind auch in [12] mit näheren Ausführungen angegeben.

Bei der Ableitung der Beziehungen wurde beim Wärmeleitungsanteil der Fall, daß die mittlere freie Weglänge $\Lambda < \text{Spaltbreite } \delta$ ist, zugrundegelegt. Aus der Beziehung für die mittlere freie Weglänge Λ

$$\Lambda = \frac{K T}{\sqrt{2} d^2 \pi p} \quad (44)$$

T = Gastemperatur (°K)

p = Gasdruck

erhält man für He ($d = 2,30 \text{ \AA}$) und $T = 1000^\circ\text{K}$

$$\Lambda = \frac{0,6}{p \text{ (at)}} \mu \quad (44a)$$

Für $p > 1 \text{ at}$ folgt $\Lambda < 0,6 \mu$. Für die anderen Edelgase ist Λ noch kleiner. Nur bei extrem kleinen Spaltbreiten und Porengrößen (die Oberflächenrauigkeiten liegen in der Gegend um 10μ) und in der Nähe von Kontaktstellen tritt der Fall $\Lambda > \delta$ auf. Während bei Sinterbrennstoff letzterer Fall nur von untergeordneter Bedeutung ist, dürfte er bei Pulverbrennstoff in größerem Maße realisiert sein.

Streng genommen darf in Fig.7 für $\delta \rightarrow 0$ der Grenzübergang $\Delta T \rightarrow 0$ nicht durchgeführt werden, da die Kurven z.B. für $p = 1 \text{ at}$ nur bis $\delta = 0,6 \mu$ gültig sind.

Wir werden im folgenden den Wärmetransport unter Zugrundelegung der Wärmeleitung für $\Lambda > \delta$ behandeln.

4.1.2 Wärmedurchgang für den Fall, daß die mittlere freie Weglänge $\Lambda >$ Spaltbreite δ ist

Wir behandeln zunächst die Wärmeleitung für den Fall $\Lambda > \delta$. Entsprechend der eindimensionalen Voraussetzung treffen alle von einem Flächenelement der einen Oberfläche ausgehenden Moleküle auf die andere Oberfläche. Dabei wird angenommen, daß die Moleküle, die die Brennstoffoberfläche verlassen eine Geschwindigkeitsverteilung besitzen, die der Temperatur T_B entspricht. Ähnliches gilt für die Hüllinnenoberfläche. Durch Berechnung der Zahl der Moleküle, die pro Zeit und pro Flächeneinheit ausgehen, Multiplikation mit der mittleren Molekülenergie, entsprechende Differenzbildung und Berücksichtigung der Tatsache, daß die Zahl der ankommenden Moleküle gleich der Zahl der wegfliegenden ist (keine Adsorption und Chemisorption) erhält man nach [13] einen direkten Ausdruck für die Wärmestromdichte \dot{j} bzw. gemäß $\dot{j} = \beta \Delta T$ für die Wärmedurchgangszahl β_{II}

$$\beta_{II} = N \frac{c_v}{N_L \sqrt{M}} \sqrt{\frac{2K}{\pi m_H}} \frac{\sqrt{T_B T_H}}{\sqrt{T_B} + \sqrt{T_H}} \quad (45)$$

N = Anzahl der Moleküle pro Volumeinheit

Index II kennzeichnet im folgenden den Wärmetransport durch -leitung, wobei die mittlere freie Weglänge $\Lambda >$ Spaltbreite δ ist.

Wir eliminieren N durch den Druck p . Das Gas besteht gewissermaßen aus 2 Sorten, den kalten der Temperatur T_H und der Dichte n_H und den heißen der Temperatur T_B und der Dichte n_B . Zu einem Temperatur- bzw. Dichteausgleich kann es nicht kommen, da ja diese beiden Sorten untereinander nicht wechselwirken. Um den Gesamtdruck zu erhalten, müssen wir die betreffenden Partialdrucke addieren.

Nach kurzer Rechnung erhält man:

$$p = N K \sqrt{T_B T_H} \quad (46)$$

Eingesetzt in (45) ergibt sich

$$\beta_{II} = p C_{II} \frac{1}{\sqrt{T_B} + \sqrt{T_H}} \quad (47)$$

mit

$$C_{II} = \frac{c_v}{N_L \sqrt{M}} \sqrt{\frac{2}{\pi m_H K}} \quad (48)$$

Für $\Delta T \ll T_H$ erhält man

$$\beta_{II} = \frac{1}{2} C_{II} p \frac{1}{\sqrt{T_H}} \quad (49)$$

Bei der Ableitung von (45) wurde vorausgesetzt, daß bei jedem Wandstoß die Moleküle die Geschwindigkeitsverteilung annehmen, die der Temperatur der Wand entspricht. Diese Voraussetzung ist keinesfalls mit Notwendigkeit erfüllt, da dies davon abhängt, mit einer wie großen Masse der Oberfläche die Gasmoleküle während des Stoßes wechselwirken. Zur Berücksichtigung dieser Tatsache führen wir summarisch einen Akkomodationskoeffizienten τ derart ein, daß die bei vorgegebener Temperaturdifferenz $T_B - T_H$ übertragenen Wärmestromdichten um den Faktor τ verkleinert sind.

Für die gesamte Wärmedurchgangszahl β_{tot} erhält man für $\Delta T \ll T_H$ aus (49) unter Berücksichtigung des Akkomodationskoeffizienten und des Strahlungsanteils [12]

$$\beta_{tot}^{II} = \frac{1}{2} C_{II} \tau p \frac{1}{\sqrt{T_H}} + 4 C_{St} T_H^3 \quad (50)$$

Wir berechnen λ gemäß (44), $\frac{\beta_{St}}{\beta_{II}}$ und β_{tot}^{II} gemäß (50) und $(\Delta T)_{II}$ gemäß (7) und (12) jeweils in Abhängigkeit des Gasdruckes für die folgenden Daten:

a) Na-2-Bedingungen [3]

$$\chi = 490 \text{ W/cm}$$

$$r_H = 2,62 \text{ mm}$$

$$T_H = 1000^\circ \text{K}$$

b) He als Gas: $d = 2,30 \text{ \AA}$, d.h.

$$C_{II} = 5,44 \cdot 10^3 \frac{\text{cm}}{\text{s} \sqrt{\text{°K}}}$$

c) vollständige Akkomodation, d.h. $\tau = 1$

d) schwarze Flächen, d.h.

$$C_{St} = 5,67 \cdot 10^{-12} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2 (\text{°C})^4}$$

Durch b) bis d) ist β_{II} und β_{St} hinsichtlich der Materialgrößen C_{II} und C_{St} maximal bzw. die entsprechenden Temperaturdifferenzen sind minimal.

Die erhaltenen Ergebnisse sind in Tabelle 1 dargestellt.

Tabelle 1 Abhängigkeit von Λ , $\frac{\beta_{St}}{\beta_{II}}$, β_{tot} und $(\Delta T)_{II}$ vom Gasdruck p für die Bedingungen der Na2-Studie [37], He als Gas, schwarze Oberflächen und vollständige Akkomodation

p (at)	Λ (μ)	$\frac{\beta_{St}}{\beta_{II}}$	$\beta_{tot} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2 \text{°C}}$	$(\Delta T)_{II}$ (°C)
0,1	6	$2,7 \cdot 10^{-2}$	0,87	350
1	$6 \cdot 10^{-1}$	$2,7 \cdot 10^{-3}$	8,5	35
10	$6 \cdot 10^{-2}$	$2,7 \cdot 10^{-4}$	85	3,5
100	$6 \cdot 10^{-3}$	$2,7 \cdot 10^{-5}$	850	0,35

In Fig.9 ist der ΔT - δ -Verlauf für kleine δ auf der Basis der Na2-Bedingungen, He, vollständige Akkomodation und schwarzen Oberflächen dargestellt. Beim schematischen durchgezogenen Verlauf erfolgt der Umschlag vom Wärmeleitungsfall I zum Fall II bei $\delta = \Lambda$. Der gestrichelte Verlauf kennzeichnet etwa die wahren Verhältnisse. Der punktierte Verlauf stellt die Extrapolation des Falles I für $\delta \rightarrow 0$ dar. Die angegebenen Zahlen gelten für $p = 1$ at.

4.2 Reales Spalt-Modell

In Kap. 4.1 wurden die realen Verhältnisse in der Übergangszone Brennstoff-Hülle durch einen Gasspalt konstanter Spaltbreite entlang des Umfanges idealisiert. Durch eine solche Idealisierung ist es möglich, einen komplexen Sachverhalt auf das Wesentliche zu reduzieren, wodurch er durchsichtig und quantitativ faßbar wird. Man erhält gleichzeitig den Rahmen und die Basis für die Behandlung des betreffenden komplizierten Sachverhaltes.

Die realen Verhältnisse, in der Übergangszone Brennstoff-Hülle sind, wie wir bereits gesehen haben, durch die Fakten der Oberflächenrauigkeiten, der Brennstoffbruchstücke und der exzentrischen Tablettenlage charakterisiert. Bei hinreichend kleiner Spaltbreite, d.h. wenn die Spaltbreite kleiner als etwa die Summe der mittleren Rauigkeiten der beiden Oberflächen ist, hat man als Konsequenz einen Festkörperkontakt an einer endlichen Anzahl von Orten.

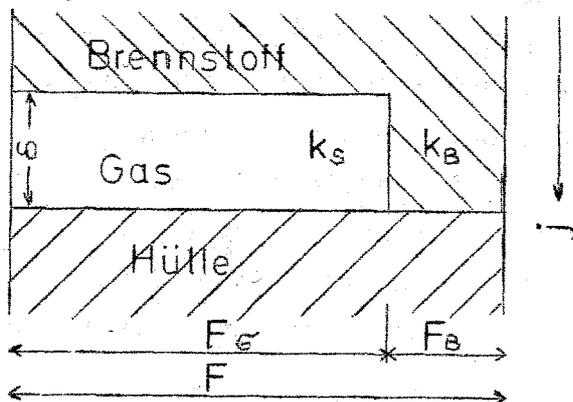
Man kann 2 wichtige Grenzfälle unterscheiden:

- a) Die Tablette liegt bezüglich der Hülle zentriert. Es liegt eine größere Anzahl von Festkörperkonstanten entlang des Umfangs vor bzw. ein bestimmter Bruchteil der Hüllinnenoberfläche ist in periodischer Anordnung entlang des Umfangs mit Brennstoff besetzt.
- b) Es liegt eine exzentrische Lage der Tablette bezüglich der Hülle vor. Es wird vorausgesetzt, daß höchstens ein Festkörperkontakt durch Berührung der Tablette mit der Hülle vorhanden ist. Aus der exzentrischen Lage resultiert ein variabler Temperaturabfall im Gasspalt entlang des Umfangs mit der Konsequenz einer exzentrischen Temperaturverteilung. Weiterhin resultiert eine azimuthal variable Wärmestromdichte, d.h. es liegt ein "makroskopischer hot-spot" vor. Dieser durch die asymmetrische Art der Wärmeproduktion bedingte "makroskopische hot-spot" steht dem wohlbekanntem durch asymmetrische Kühlung bedingten "makroskopischen hot-spot" gegenüber. Streng genommen gibt es noch die "mikroskopischen hot-spots", die sich auf Fall a) gründen. An den Festkörperkontakten ist eine relativ größere Wärmestromdichte als an den Gasbrücken. Wegen der

relativ geringen Entfernungen dieser hot-spots und der relativ guten Wärmeleitfähigkeit des Hüllmaterials führt diese azimuthal periodisch variable Wärmestromdichte zu keinen größeren Temperaturunterschieden im Hüllmaterial.

Wir behandeln im folgenden nur den Fall a). Wir legen folgendes Modell zugrunde:

Fig.10 Querschnitt durch das reale Spalt-Modell



F_G = Hüllinnenfläche, die mit Gas in Kontakt ist
 F_B = Hüllinnenfläche, die mit Brennstoff in Kontakt ist

Diese Anordnung wiederholt sich periodisch entlang des Umfangs. Für die Wärmeleitfähigkeit des realen parallel geschalteten Brennstoff-Gas-Systems gilt [13]

$$k_{\text{real}} = k_s \left[1 + f_B \left(\frac{k_B}{k_s} - 1 \right) \right] \quad (51)$$

k_s = Wärmeleitfähigkeit im Gasspalt

k_B = Brennstoffwärmeleitfähigkeit

$f_B = \frac{F_B}{F}$ Relativer Brennstoff-Flächenanteil

Da dieser Fall nur im Bereich der Oberflächenrauigkeiten, d.h. für Spaltbreiten kleiner als etwa 50μ realisiert ist, ist im Spalt der Strahlungsanteil gegen den Wärmeleitungsanteil vernachlässigbar [12], so daß die Spaltwärmeleitfähigkeit k_s gleich der Gaswärmeleitfähigkeit k_G gesetzt werden kann.

Wegen [12]

$$\beta_{\text{real}} = \frac{k_{\text{real}}}{\delta} \quad \beta_{\text{ideal}} = \frac{k_G}{\delta} \quad (52)$$

β_{real} = Wärmedurchgangszahl des realen Spalt-Modells

β_{ideal} = Wärmedurchgangszahl des idealen Spalt-Modells

erhält man aus (51)

$$\frac{\beta_{\text{real}}}{\beta_{\text{ideal}}} = 1 + f_B \left(\frac{k_B}{k_G} - 1 \right) \quad (53)$$

Bei vorgegebener Gasart, Spalttemperatur und Spaltbreite ist durch (43) und (52) bzw. durch Fig. 8 k_G und β_{ideal} gegeben. Ist weiterhin der relative Brennstoff-Flächenanteil f_B bekannt, so kann man nach (53) β_{real} ausrechnen.

Da $\frac{k_B}{k_G} \gg 1$ (bei He ≈ 10 , mit zunehmender Betriebszeit wird das Verhältnis durch produziertes Kr und Xe noch größer) erhält man nach Umformung von (53)

$$\beta_{\text{real}} = \frac{k_G}{\delta} + \frac{f_B}{\delta} \cdot k_B \quad (54)$$

Wir diskutieren im folgenden qualitativ die Veränderung von β_{real} im Reaktorbetrieb bzw. die Abbrandabhängigkeit von β_{real} auf der Basis von (54). In (54) ist β_{real} durch 2 Terme gegeben. Wir betrachten zunächst den ersten Term. Die Gaswärmeleitfähigkeit zu Beginn ist durch das Füllgas, im allgemeinen He, gegeben. Proportional dem Abbrand werden die Spaltgase Kr und Xe produziert und zu einem bestimmten Anteil, der im wesentlichen von der Temperaturverteilung abhängt, in den Spalt freigesetzt, so daß eine Gasmischung mit den relativ schlecht wärmeleitenden Komponenten Kr und Xe entsteht. In dieser Gasmischung nehmen die Konzentrationen von Kr und Xe abbrandproportional zu, die von He entsprechend ab. Zur quantitativen Erfassung muß man von der Wärmeleitfähigkeit von Gasmischungen ausgehen. Wir erhalten

$$k_G = k_G(P_{\text{He}}, A, \chi, T_K) \quad (55)$$

P_{He} = Herstellungsbedingter Anfangs-He-Druck

A = Abbrand

χ, T_K = Stabileistung und Kühlmitteltemperatur, die die Temperaturverteilung bestimmen.

Weiterhin verkleinert sich während des Reaktorbetriebes die ursprünglich vorhandene Spaltbreite δ_0 durch die Differenz der thermischen Ausdehnungen von Brennstoff und Hülle und durch

Schwellen. Die Änderung durch thermische Ausdehnung $\delta_{Th.A.}$ ist im wesentlichen durch die Temperaturverteilung, die Änderung durch Schwellen δ_{Sch} im wesentlichen durch Temperaturverteilung und Abbrand bestimmt. Wir erhalten:

$$\delta = \delta_0 - \delta_{Th.A.} (\chi, T_K) - \delta_{Sch} (\chi, T_K, A) = \delta (\chi, T_K, A) \quad (56)$$

Wir betrachten nun den zweiten Term $\frac{f_B}{\delta} \cdot k_B$ in (54). Der Quotient $\frac{f_B}{\delta}$ läßt sich direkt mit dem Kontaktdruck $P_{Kontakt}$ an den Kontaktstellen zwischen Brennstoff und Hülle in Verbindung bringen. Es ist anschaulich klar, daß ein zunehmender Kontaktdruck in Richtung einer Zunahme von f_B und einer Abnahme von δ wirkt, d.h. der Quotient $\frac{f_B}{\delta}$ hat bei wachsendem Kontaktdruck die Tendenz sowohl hinsichtlich des Zählers als auch des Nenners zuzunehmen. Wir erhalten das sehr wichtige qualitative Ergebnis, daß der für die Lebensdauer bzw. den maximalen Abbrand entscheidende Kontaktdruck durch die rein thermische Größe der realen Wärmedurchgangszahl mitbestimmt ist. Man muß sich vergegenwärtigen, daß die Lebensdauer eines Brennelements nicht eine Frage des vollständigen Auffüllens des Hüllinnenvolumens ist, sondern eine Frage der Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle, die sich im Kontaktdruck manifestiert.

Abschließend werden einige Bemerkungen zu der Dauerbetriebswärmedurchgangszahl angeführt. Man arbeitet bei den BE-Konzepten üblicherweise mit dem konstanten Wert von $\beta_{real} = 1 \frac{W}{cm^2 \cdot ^\circ C}$. Die angenäherte Konstanz ist anschaulich klar.

Nach einer bestimmten Zeit, die allerdings deutlich länger ist als die Dauer der Anfahrphase, kommt es zu einem Kontakt über endlich viele Festkörperstellen derart, daß hinsichtlich δ und f_B eine zumindest angenähert stabile Anordnung vorliegt. Weiterhin hat die Wärmeleitfähigkeit der Gasmischung k_G angenähert den durch Kr und Xe bestimmten Endwert angenommen. Damit liegt k_G fest, weiterhin ist die Spaltbreite δ durch die Summe der mittleren Rauigkeiten der beiden Oberflächen gegeben. Aus dem bisher ausschließlich empirisch bestimmten Wert von $\beta_{real} = 1 \frac{W}{cm^2 \cdot ^\circ C}$ kann man mit (54) den relativen Brennstoff-Flächenanteil f_B berechnen.

5. Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde die Temperaturverteilung im Brennelement behandelt.

In Kapitel 2 wurde die radiale und axiale Temperaturverteilung im Brennelement bei vorgegebenen Wärmeerzeugungs- und Kühlungsbedingungen mit Hilfe der 4 konstanten Materialgrößen: Brennstoff- und Hüllwärmeleitfähigkeit, Wärmedurchgangszahl Brennstoff-Hülle und Hülle-Kühlmittel allgemein berechnet. Parameterstudien der thermischen Größen hinsichtlich Kühlmitteltemperatur und Hüllaußenradius bei fester Zentraltemperatur wurden durchgeführt. Der achsiale Verlauf der Hülloberflächen- und der Zentraltemperatur wurde für Na₂- und D₂-Daten berechnet.

In Kapitel 3 wurde die Veränderung der Temperaturverteilung während des Reaktorbetriebes auf Grund von makroskopischen und mikroskopischen Brennstoffveränderungen diskutiert. Man erkennt inwieweit es problematisch ist, die Berechnung der Temperaturverteilung innerhalb der Hülle auf die 2 konstanten Materialgrößen Brennstoffwärmeleitfähigkeit und Wärmedurchgangszahl Brennstoff-Hülle zu gründen. Von entscheidender Bedeutung ist dabei die Übergangszone Brennstoff-Hülle und ihre Veränderung während des Reaktorbetriebes, die in Kapitel 4 detailliert behandelt wurde.

Diese Übergangszone ist durch die Fakten der Oberflächenrauigkeiten, der Brennstoffbruchstücke und der exzentrischen Tablettenlage charakterisiert. Dieser komplexe Sachverhalt wurde durch die Einführung des idealen Spaltmodells, das durch einen Spalt konstanter Spaltbreite entlang des Umfangs ausgezeichnet ist, durchsichtig. Hier werden 2 Fälle behandelt, je nachdem ob die freie Weglänge kleiner oder größer als die Spaltbreite ist. Der erste Fall wird durch die "Allgemeine Spaltgleichung" beherrscht, durch die der Temperaturabfall im Gasspalt in Abhängigkeit der Spaltbreite, der Hüllinnentemperatur, des Hüllinnenradius, der Stableistung, der Gasart und des Absorptionsvermögens der Oberflächen gegeben ist. Der Fall, daß die mittlere freie Weglänge größer als die Spaltbreite ist, wurde ebenfalls detailliert behandelt. Dieser Fall ist für Sinterbrennstoff im Gegensatz zu

Pulverbrennstoff nur von untergeordneter Bedeutung, da bei den in Kernbrennelementen auftretenden Gasdrücken dieser Fall nur für Spaltbreiten realisiert ist, die kleiner als $1/\mu$ sind. Hinsichtlich der realen Verhältnisse lassen sich 2 Grenzfälle unterscheiden:

- a) Exzentrische Tablettenlage: Daraus folgt eine asymmetrische Temperaturverteilung bzw. eine azimuthal variable Wärmestromdichte, d.h. man erhält einen "makroskopischen hot-spot", der dem wohlbekanntem durch asymmetrische Kühlung bedingten "hot-spot" gegenüber steht.
- b) Konzentrische Tablettenlage mit azimuthal periodisch angeordneten Festkörperbrücken: Dieser Fall, der nach einer bestimmten Betriebszeit realisiert ist, wurde quantitativ gefaßt und hinsichtlich der Abbrandabhängigkeit diskutiert.

Literatur

- [1] H. Kämpf: Einfluß der inneren Geometrie auf die Temperaturverteilung von Schnellbrüter-Brennelementen, KFK-Bericht in Vorbereitung
- [2] H. Beißwenger: Berechnung der Stabileistung des Wärmeleitintegrals und des Temperaturverlaufs bei zylindrischen Brennstoffproben mit Folgerungen für Bestrahlungsversuche, PSB-Bericht Nr. 83/1964
- [3] Schneller natriumgekühlter Reaktor (Na₂), KFK-660
- [4] 300 MWe-Reaktor, 150 at Systemdruck (D2), KFK-Bericht in Vorbereitung
- [5] J. Biersack: Blasenwanderung und Spaltgasabgabe aus UO₂, Nukleonik Bd.8, Heft 8, 1966
- [6] H. Kämpf: Porositätsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit keramischer Brennstoffe, KFK-Bericht in Vorbereitung
- [7] J. Belle: Uranium Dioxide: Properties and Nuclear Applications, 1961 p.460

- [8] A.M. Ross: The Dependence of the Thermal Conductivity of Uranium Dioxide on Density, Microstructure, Stoichiometry, and Thermal Neutrons Irradiation, AECL-1096 (1960)
- [9] W.W. Roake: Irradiation Alteration of Uranium Dioxide, HW 73072 (1962)
- [10] R.C. Mawkins, I.A.L. Robertson: Thermal Conductivity of UO_2 under Irradiation: Some Early Results, AECL-1733 (1963)
- [11] M.L. Bleiberg: WAPD-MRP-92 (1961)
- [12] H. Kämpf: "Allgemeine Spaltgleichung" für den Wärmedurchgang Brennstoff-Hülle in Kernbrennelementen mit Tablettenbrennstoff, KFK-604, Juni 1967
- [13] H. Kämpf: Theorie der Wärmedurchgangszahl für den Gas-spalt Brennstoff-Hülle, PSB-Bericht Nr. 248/67

Symbolverzeichnis

Wir geben im folgenden die verwendeten lateinischen und griechischen Symbole und Indizes an. Obwohl in der Arbeit ausschließlich Größengleichungen auftreten, werden zur Verdeutlichung zusammen mit den Größen Maßeinheiten angegeben.

a) Lateinische Symbole

A	=	Abbrand	$\left[\frac{MWd}{t} \right]$
C_I	=	Materialgröße, die zum Wärmeleitungsfall I gehört	$\left[\frac{W}{cm \cdot ^\circ C \sqrt{^\circ C}} \right]$
C_{II}	=	Materialgröße, die zum Wärmeleitungsfall II gehört	$\left[\frac{cm}{s \sqrt{^\circ C}} \right]$
C_{St}	=	Materialgröße, die zur Temperaturstrahlung gehört	$\left[\frac{W}{cm^2 (^\circ C)^4} \right]$
c_p	=	Spez. Wärme (p = const)	$\left[\frac{J}{g \cdot ^\circ C} \right]$

c_v = Molwärme ($v = \text{const}$)	$\left[\frac{\text{J}}{\text{mol } ^\circ\text{C}} \right]$
d = Moleküldurchmesser	$\left[\text{Å} \right]$
E = elektrische Leistungsdichte	$\left[\frac{\text{W}}{\text{cm}^3} \right]$
e = die pro Spaltung erzeugte thermische Energie	$\left[\text{MeV} \right]$
F = Fläche	$\left[\text{cm}^2 \right]$
f = Relativer Flächenanteil	$\left[1 \right]$
g = Reaktorkonstante	$\left[1 \right]$
j = Wärmestromdichte	$\left[\frac{\text{W}}{\text{cm}^2} \right]$
K = Boltzmannkonstante	$\left[\frac{\text{erg}}{^\circ\text{K}} \right]$
k = Wärmeleitfähigkeit	$\left[\frac{\text{W}}{\text{cm } ^\circ\text{C}} \right]$
L = Länge	$\left[\text{cm} \right]$
ℓ = Brennelementlänge	$\left[\text{cm} \right]$
ℓ_{ex} = extrapolierte Länge	$\left[\text{cm} \right]$
M = Atom- bzw. Molekulargewicht	$\left[1 \right]$
m = Masse	$\left[\text{g} \right]$
m_{H} = Masse des H-Atoms	$\left[\text{g} \right]$
N = Teilchendichte	$\left[\frac{1}{\text{cm}^3} \right]$
N_{L} = Loschmidtzahl	$\left[\frac{1}{\text{mol}} \right]$
P = Porosität	$\left[1 \right]$
p = Druck	$\left[\text{at} \right]$
q = Wärmeleistungsdichte	$\left[\frac{\text{W}}{\text{cm}^3} \right]$
r = Radius	$\left[\text{cm} \right]$
s = Hülldicke	$\left[\text{cm} \right]$

T = Temperatur	$[\text{ } ^\circ\text{K} \text{ }]$
T_{EIN} = Kühlmittelintrittstemperatur	$[\text{ } ^\circ\text{C} \text{ }]$
T_{AUS} = Kühlmittelaustrittstemperatur	$[\text{ } ^\circ\text{C} \text{ }]$
V = Volumen	$[\text{ cm}^3 \text{ }]$
W = Wärmeleistung	$[\text{ W } \text{ }]$
w = Geschwindigkeit	$[\frac{\text{cm}}{\text{s}} \text{ }]$
X, Y, Z = Temperaturverhältnisse	$[\text{ } 1 \text{ }]$
z = Zylinderkoordinate	$[\text{ cm } \text{ }]$
 b) <u>Griechische Symbole</u>	
A = Reaktorkonstante	$[\text{ } ^\circ\text{C} \text{ }]$
$B, \sqrt{1}$ = Reaktorkonstanten	$[\text{ } 1 \text{ }]$
β = Wärmedurchgangszahl	$[\frac{\text{W}}{\text{cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}} \text{ }]$
δ = Spaltbreite	$[\mu \text{ }]$
ϵ = Absorptionsvermögen	$[\text{ } 1 \text{ }]$
f = Radienverhältnis	$[\text{ } 1 \text{ }]$
η = Wirkungsgrad	$[\text{ } 1 \text{ }]$
λ = Mittlere freie Weglänge	$[\mu \text{ }]$
ξ = Molekülfaktor	$[\text{ } 1 \text{ }]$
ρ = Dichte	$[\frac{\text{g}}{\text{cm}^3} \text{ }]$
σ = Stefan-Boltzmannsche-Konstante	$[\frac{\text{W}}{\text{cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}^4} \text{ }]$
σ_{fiss} = Mikroskopischer Spaltquerschnitt	$[\text{ barn } \text{ }]$
τ = Akkomodationskoeffizient	$[\text{ } 1 \text{ }]$
ϕ = Neutronenfluß	$[\frac{1}{\text{cm}^2 \text{ s}} \text{ }]$
χ = Stableistung	$[\frac{\text{W}}{\text{cm}} \text{ }]$
ω = Wärmeleitintegral	$[\frac{\text{W}}{\text{cm}} \text{ }]$

e) Indizes

- A = Hüllaußen-
- B = Brennstoff-, Brennstoffoberflächen-
- BH = Brennstoff-Hülle
- H = Hüll-, Hüllinnen-
- HK = Hülle-Kühlmittel
- K = Kühlmittel
- O = Zentral-, Vollzylinder
- R = Raum-
- S = Spalt-
- Z = Zentralkanal-, Hohlzylinder

Fig.3 Achsialer Verlauf der Zentraltemp. T_0 und der Hüllaußentemp. T_A für Na 2<3>- und D2<4>-Daten

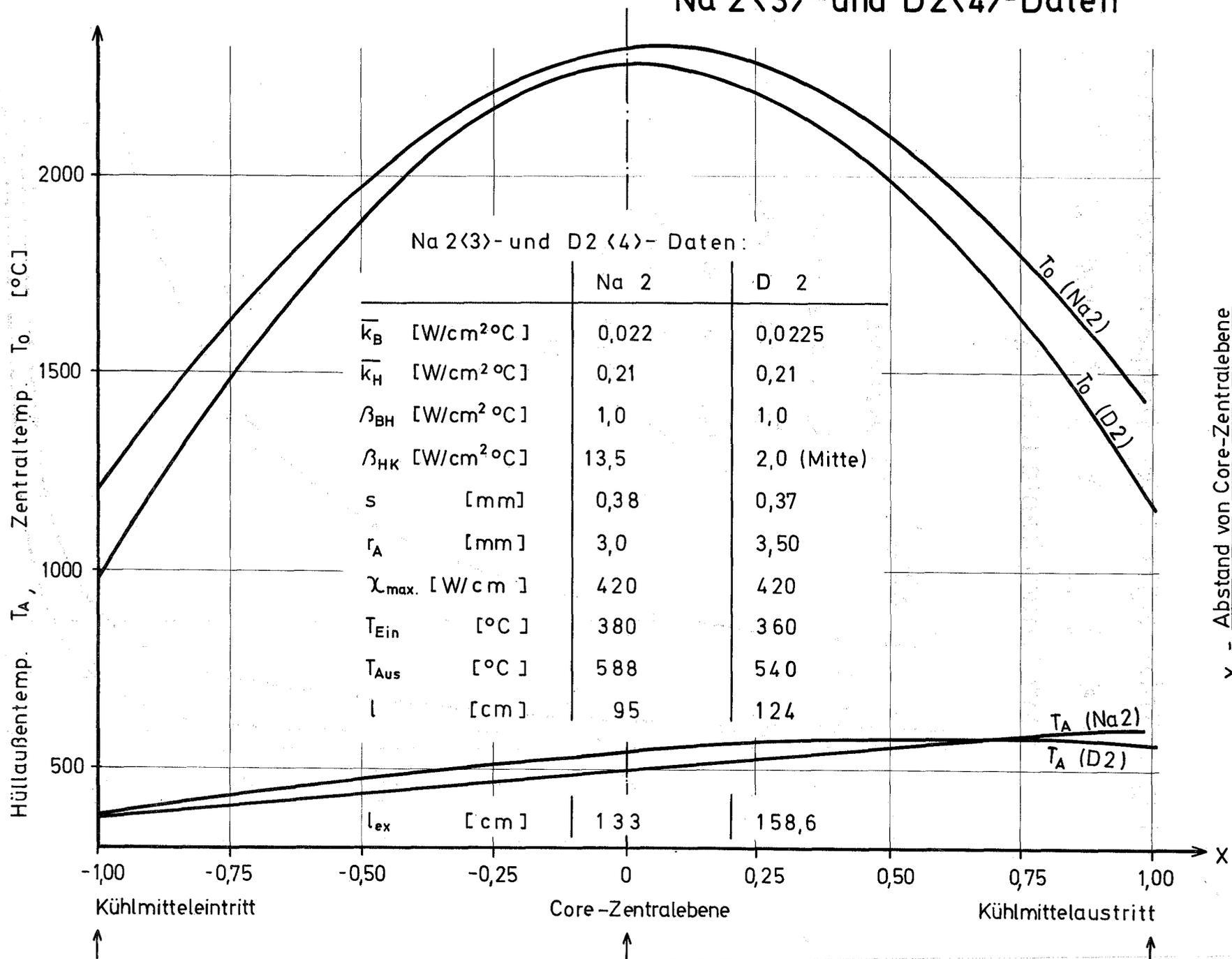


Fig.4 Abhängigkeit der Temperaturverhältnisse

$$X = \frac{T_B - T_H}{T_0 - T_B} ; \quad Y = \frac{T_H - T_A}{T_0 - T_B} ; \quad \text{und} \quad Z = \frac{T_A - T_K}{T_0 - T_B} ;$$

vom Hüllaußenradius r_A

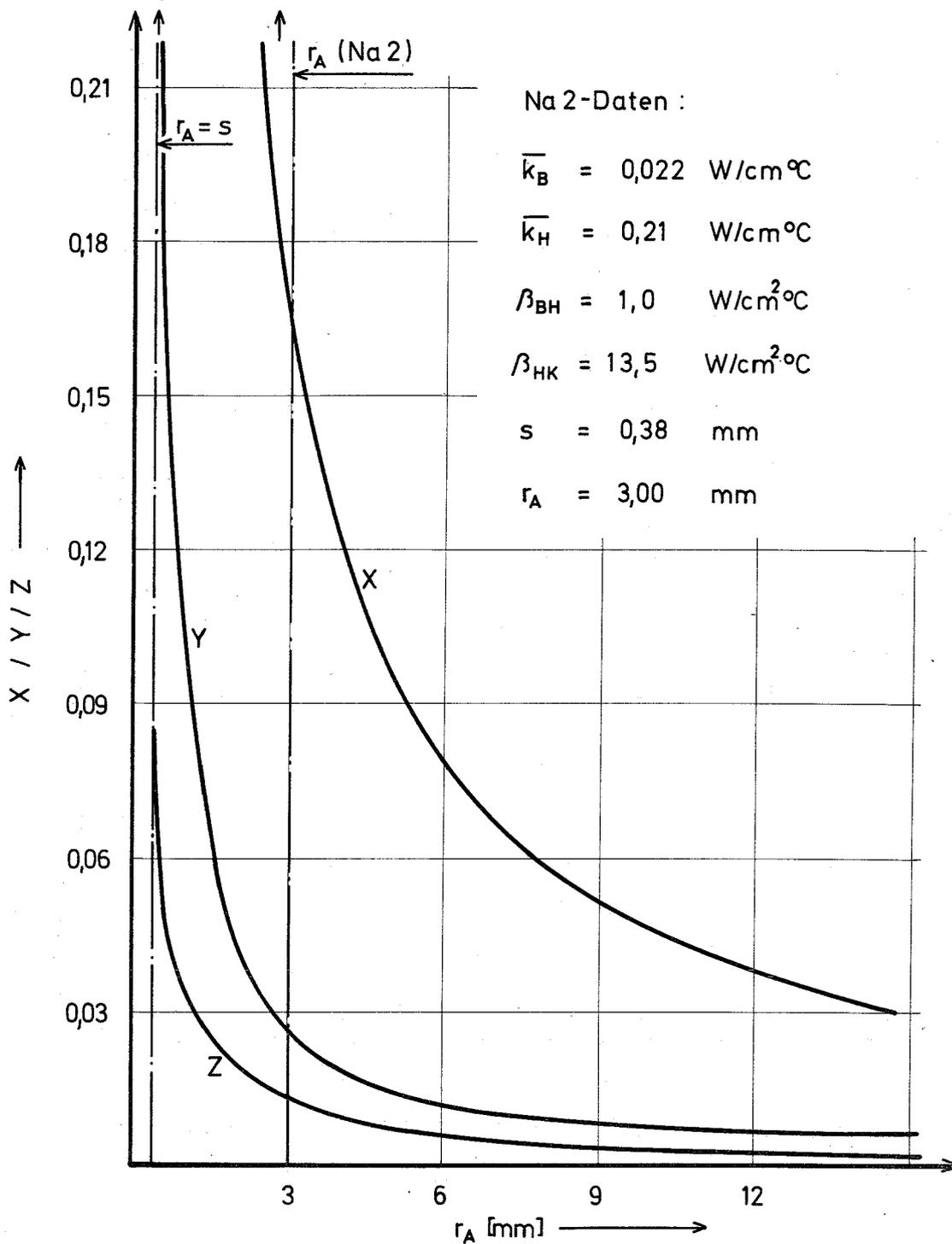


Fig.5 Abhängigkeit der Stabileistung χ , der Wärmeleistungsdichte q , und der Wärmestromdichte j an der Hülloberfläche vom Hüllaußenradius r_A bei fester Zentraltemperatur T_0 und fester Kühlmitteltemperatur T_K

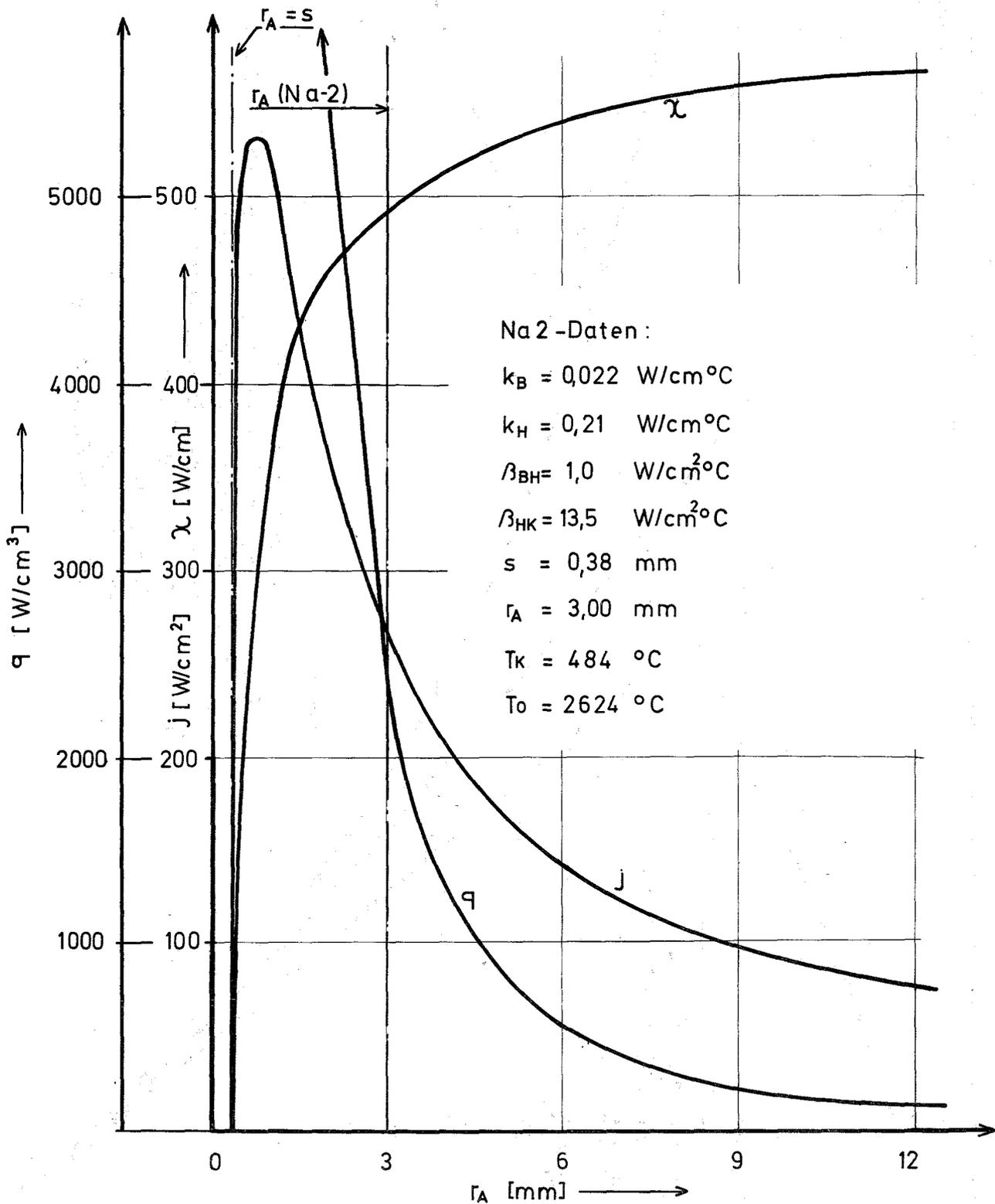


Fig. 7 Spaltbreitenabhängigkeit des Temperaturabfalls im Gasspalt Brennstoff-Hülle für verschiedene Fälle und von $\frac{j_L}{j_{tot}}$

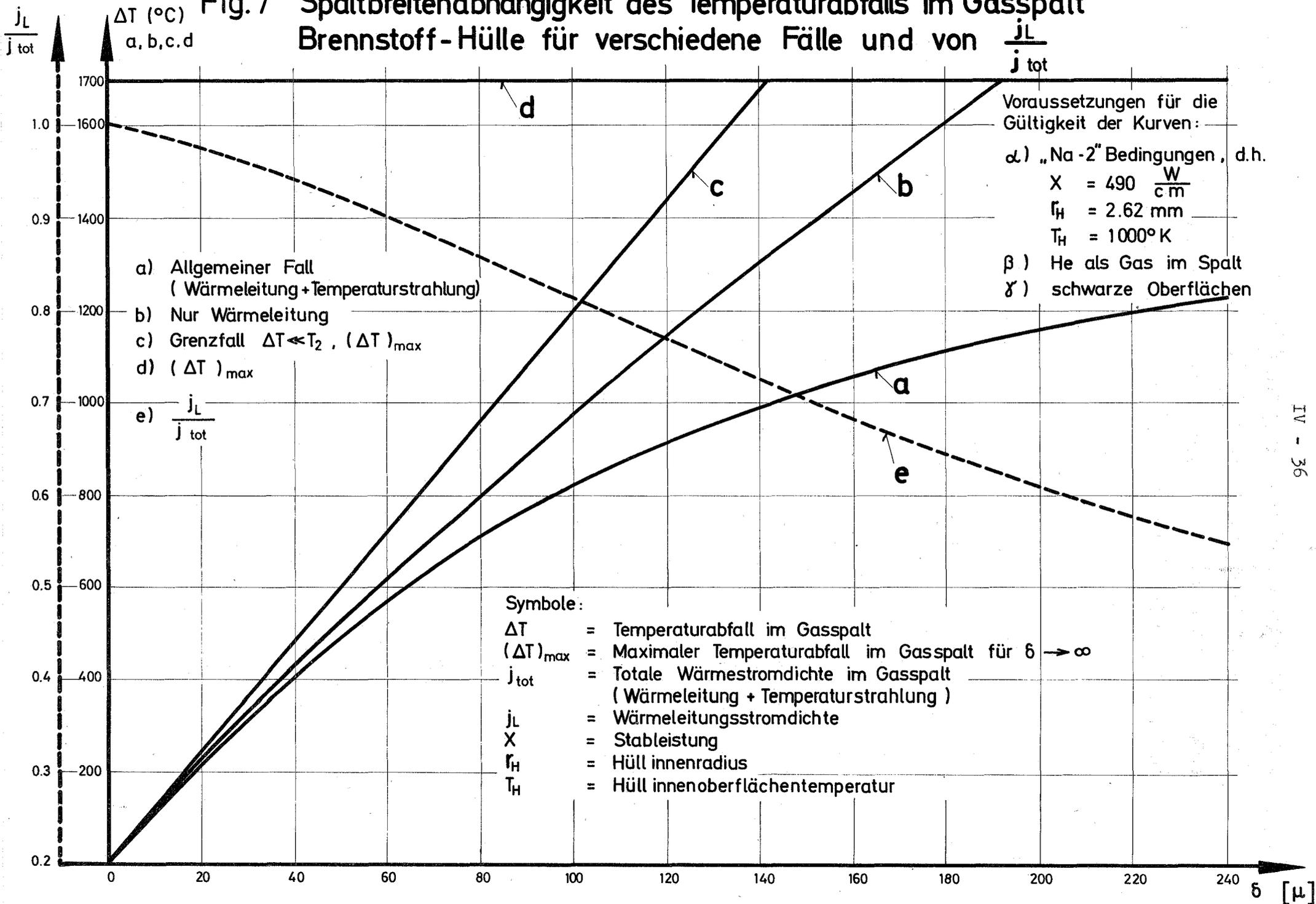


Fig.8 Abhängigkeit der Wärmedurchgangszahl β für den Spalt Brennstoff-Hülle von der Spaltbreite δ mit Gasart (He, Ar, Kr, Xe) und Gastemperatur (1000°K und 1500°K) als Parameter.

Gültigkeitsbereich der Kurven: $\Delta T \ll T, (\Delta T)_{\max}$

ΔT = Temperaturabfall im Gasspalt

T = Gastemperatur

$(\Delta T)_{\max}$ = Maximaler Temperaturabfall

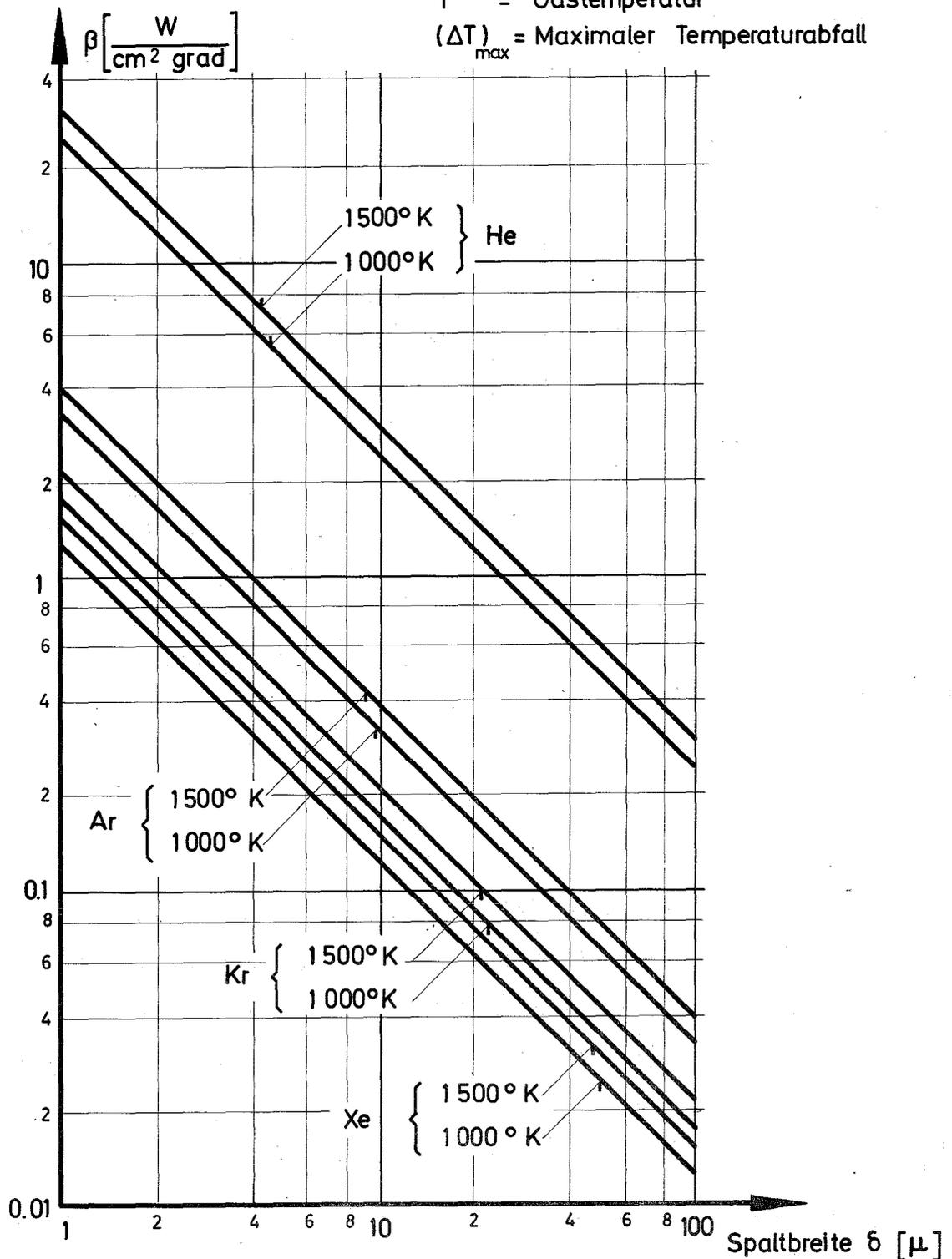
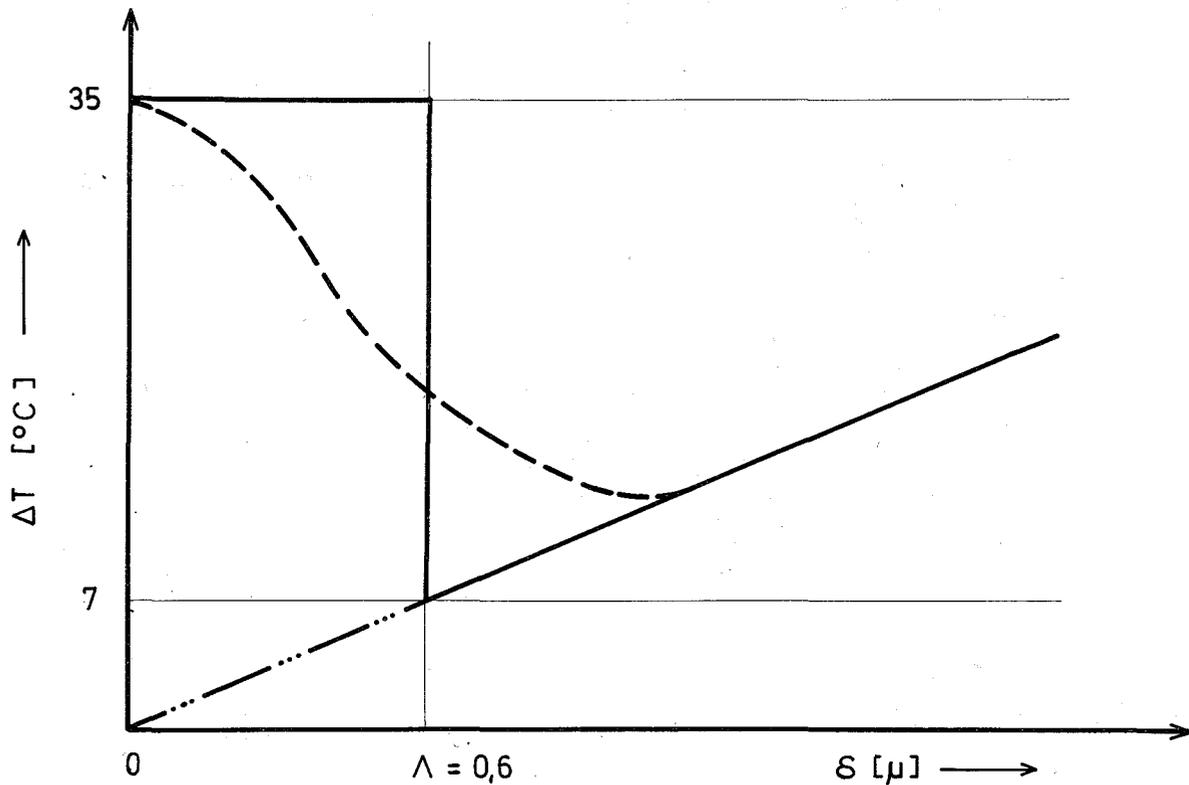


Fig.9 Spaltbreitenabhängigkeit des Temperaturabfalls im Gasspalt Brennstoff-Hülle für kleine Spaltbreiten, d.h. für den Übergangsbereich $\Lambda \approx \delta$



Die angegebenen Zahlen gelten für die folgenden Voraussetzungen :

α) Na-2-Bedingungen

$$\chi = 490 \text{ W/cm}$$

$$r_H = 2,62 \text{ mm}$$

$$T_H = 1000 \text{ °K}$$

β) He als Gas im Spalt

γ) schwarze Oberflächen

δ) vollständige Akkomodation

ε) Gasdruck $p = 1 \text{ at}$

Symbole :

ΔT = Temperaturabfall

δ = Spaltbreite

Λ = Mittl. freie Weglänge

V. DAS BETRIEBSVERHALTEN EINES Brennelementstabes

von

G. Karsten

Inhalt:

1. Einleitung
2. Veränderungen des Brennstoffs beim Betrieb
 - 2.1 Ausgangszustand
 - 2.2 Anfahrvorgang
 - 2.3 Einfahrvorgang
3. Das thermische Verhalten eines Brennstabes
 - 3.1 Temperaturabfall im Spalt
 - 3.2 Wärmeleitfähigkeit
 - 3.3 Thermische Ausdehnung
 - 3.4 Ausdehnung durch zentrales Schmelzen
4. Das Abbrandverhalten des Brennstoffs
 - 4.1 Schwellvolumen
 - 4.2 Schwellrate
 - 4.3 Abbrandformel
 - 4.4 Spaltgasfreisetzung
5. Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle
 - 5.1 Brennstoffdruck
 - 5.2 Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle
6. Literatur

1. Einleitung

Bei der Auslegung eines Brennelementstabes sind die Betriebsdaten eines Reaktors gegeben. Von dieser Seite her ist der große Rahmen des Brennstabkonzeptes gegeben. In diesen Rahmen hinein muß sich der Brennstab beim Betrieb fügen. Um das zu gewährleisten, muß bei der Auslegung nicht nur das Kriterium der Technik, sondern auch das der Sicherheit berücksichtigt werden. Hierzu gehört eine umfassende Kenntnis des Betriebsverhaltens solcher Brennstäbe. Sie muß alle Daten der Brennstabmechanik und der Physik der Brennstabkomponenten beinhalten. Die reine Kenntnis der Daten genügt jedoch nicht, vielmehr muß es das Ziel der Brennstabauslegung sein, die Daten in sinnvoller Weise miteinander zu verknüpfen, um das Brennstabverhalten nicht nur allgemein zu beschreiben, sondern auch weitgehend detailliert voraussagen zu können.

Hier wird nun der Versuch gemacht, den Betriebsverlauf, der in 3 Phasen eingeteilt wird, zunächst einmal auszuleuchten. In Kapitel 2 wird der Ausgangszustand charakterisiert, an den sich über den Anfahrvorgang der Einfahrvorgang anschließt. Bevor die dritte Phase, nämlich die Abbrandphase in Kapitel 4 und 5 analysiert wird, lernen wir in Kapitel 3 das thermische Verhalten kennen. Hier werden Fragen des Temperaturabfalls im Spalt, der Wärmeleitfähigkeit, der thermischen Ausdehnung und der Ausdehnung durch zentrales Schmelzen behandelt. Der Ablauf der Abbrandphase ist durch die Auslegung des Brennstabes weitgehend festgelegt, was aus den beiden folgenden Kapiteln hervorgeht. In Kapitel 4 wird im wesentlichen die Rolle des Brennstoffschwellens und der Brennstoffdichte bei der Berechnung des maximal erzielbaren Abbrandes mit Hilfe einer Abbrandformel beschrieben. Als Nebenprodukt der Betrachtungen wird auch eine Formel über die Spaltgasfreisetzung angegeben. In Kapitel 5 wird dann das Bild des Brennstabverhaltens im Dauerbetrieb abgerundet durch eine vereinfachte Betrachtung über die Wechselwirkungen zwischen Brennstoff und Hülle.

2. Veränderungen des Brennstoffs beim Betrieb

2.1 Ausgangszustand

Die Ausgangsform des Brennstoffes sind Tabletten als Voll- oder Hohlzylinder von homogener Dichteverteilung mit geschliffener oder ungeschliffener Oberfläche und einvibrierter Partikelbrennstoff. Die Stirnflächen der Tabletten können außerdem noch Einsenkungen (Dishing) haben. Die Durchmessertoleranzen der Tabletten werden so gewählt, daß ein Einfüllen des Brennstoffes in die Hülle mühelos möglich ist und genügend Ausdehnungsraum für die thermische Ausdehnung vorhanden ist. Bei vibrierten Brennstoffsäulen hat die Erfahrung gelehrt, daß die thermische Ausdehnung keine deutlich nachweisbare Einwirkung auf das Hüllmaterial hat. Insgesamt gesehen gibt es innerhalb des Hüllinnenvolumens vorgefertigte Leerräume, welche Volumenvergrößerungen aufnehmen können. Außerdem liegen die eigentlichen Brennstoffdichten immer unterhalb der theoretischen Dichte. Wenn man den Brennstoff im Hüllinnenvolumen homogen verteilt, erhält man die Schmierdichte. Über die Lokalisierung von Leervolumina jeglicher Art läßt sich sagen, daß das Ausdehnungsvolumen für die thermische Ausdehnung, außer bei sehr hohen Stabileistungen, bevorzugt am Brennstoffrand vorhanden sein sollte, während die notwendigen Auffangvolumina für das durch Spaltprodukte verursachte Brennstoffschwellen der Erfahrung nach über den Querschnitt beliebig angebracht werden können. Hier ist jedoch dem Einbringen solcher Volumina in Form von Einsenkungen oder Spalten der Vorzug gegenüber erhöhter Porosität des Brennstoffs zu geben.

2.2 Anfahrvorgang

Sobald der Brennstab in Betrieb genommen ist, erreicht er auf Grund seiner Auslegung eine Temperaturverteilung und eine zugehörige therm. Ausdehnung. Dabei treten unterhalb einer bestimmten Temperatur in dem betreffenden äußeren Brennstoffring auf Grund der thermischen Spannungen und der spröden Eigenschaften radiale und Ringrisse auf, die mit Brennstoffabsprengungen verbunden sind. Proportional zum Ansteigen des Neutronenflusses wird die Brennstofftemperatur zunächst ansteigen, um fast gleichzeitig

wieder abzunehmen in dem Maße wie die thermische Ausdehnung den Wärmeübergang zwischen Brennstoff und Hülle verbessert. Eine temperaturerhöhende Komponente wiederum wird durch thermische Ringspannungsrisse eingebracht, die den Wärmeübergang verschlechtern.

2.3 Einfahrvorgang

Zeitlich schließt sich an die eben beschriebenen Vorgänge, die im wesentlichen proportional zur Zunahme des Neutronenflusses verlaufen, ein zum Anfahrvorgang relativ lang dauernder Einfahrvorgang an. Sein charakteristisches Kriterium ist die temperaturabhängige Veränderung der Brennstoffstruktur infolge von (thermisch aktivierten) Diffusions- und Kriechvorgängen. Die Dauer des Einfahrvorganges ist u.a. über den Boltzmannfaktor von der Temperatur stark abhängig. Wie Experimente [1] zeigen, kann die Umwandlung bei 750 W/cm Stabileistung und ca. 1000 °C Brennstoffoberflächentemperatur nach 10 Minuten abgelaufen sein, während es bei mittleren Stabileistungen um 400 W/cm einige Wochen dauern kann [2,3]. Nach Ablauf der Umwandlungsvorgänge zeigt die Struktur ein völlig anderes Bild: Es gibt je nach Ausgangsdichte des Brennstoffs und der Temperaturverteilung einen mehr oder weniger großen Zentralkanal, der durch Porenwanderung und Brennstoffsublimation entstanden ist. Der Brennstoff enthält Temperaturzonen verschiedener Kristallgefüge, Porosität und mechanischer Eigenschaften. So bilden sich ab etwa 1700 °C sog. columnar grains [5], die als plastisches Material anzusehen sind (Kapitel 5.1).

Im Temperaturbereich von 1300-1700 °C, wo Kriech- und Diffusionsvorgänge eine wesentliche Rolle spielen [6,7], finden sich verschiedene Typen von Kristallformen [4]. Für Bereiche unterhalb dieser Temperaturen ist am Anfang der Betriebszeit des Brennstoffs nicht mit strukturellen oder Eigenschaftsänderungen zu rechnen, wohl aber nach längerer Betriebszeit; dann wird der Brennstoff auch bei Temperaturen unter 1000 °C echte Kriecheigenschaften zeiten [8,9], die eine Strukturänderung zur Folge haben. Die beschriebenen Vorgänge des Einfahrvorgangs sind mit einem Zusammensintern des Brennstoffs und einer entsprechenden Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit verbunden. Damit sinkt seine mittlere Temperatur

ständig. Dieser Effekt wird noch verstärkt durch kontinuierliche Annäherung des Brennstoffs an die Hülle in dem Maße, wie das Volumen durch Spaltprodukte vergrößert wird und wie durch Leistungsschwankungen des Reaktors oder zyklische Betriebsweise infolge thermischer Spannungen Bruchstücke entstehen (Kapitel 2.2). Auf diese Weise wird der nach abgelaufener thermischer Ausdehnung vorhandene Restspalt in den Brennstoff aufgenommen und zum Teil bis in den Zentralkanal transportiert. Außerdem wird die mittlere Brennstofftemperatur erniedrigt durch die Bildung eines Zentralkanals [10]. Zu erwähnen ist noch, daß bei Beginn des Einfuhrvorgangs die Brennstofftemperatur zunächst ansteigt, um erst dann aus den eben beschriebenen Gründen abzusinken. Als Ursache für den Anstieg könnte freigesetztes Spaltgas, welches die Leitfähigkeit des zu Anfang meist mit Helium gefüllten Spaltes zwischen Brennstoff und Hülle stark herabsetzt, in Frage kommen [12, 14]. Dann erst nimmt die Brennstofftemperatur kontinuierlich ab, Fig. 1 [11], um in den Zustand mit relativ beständigen Verhältnissen im Brennstoff einzulaufen (siehe Kapitel 4).

3. Das thermische Verhalten eines Brennstabes

3.1 Temperaturabfall im Spalt

Zwischen der Innenwand der Hülle und der Oberfläche des Brennstoffes befindet sich im allgemeinen ein Spalt. Bei vorgegebener Stableistung χ , Brennstoffradius R_B und Wärmedurchgangszahl β ist der Temperaturabfall ΔT im Spalt wie folgt gegeben (siehe Beitrag IV).

$$\Delta T = \frac{\chi}{2\pi R_B \beta} \quad (1)$$

χ = Stableistung (W/cm)

R_B = Brennstoffradius (cm)

β = Wärmedurchgangszahl (W/cm² °K)

Die Wärmedurchgangszahl β hängt von der Gasart, der Spaltbreite δ und den Oberflächentemperaturen ab. Sie ist rechnerisch exakt zu beschreiben [12, 13, 14]. Aus diesen Rechnungen ergibt sich,

daß bei einem Anfangsspalt von 75μ , Heliumfüllung und einer mittleren Spalttemperatur von 1000°C mit einem Wert von $\beta = 0,35 \text{ W/cm}^2 \text{ }^\circ\text{K}$ zu rechnen ist. Berücksichtigt man jedoch z.B. die thermische Ausdehnung eines Stabes mit 5 mm Brennstoffdurchmesser und 450 W/cm Stableistung, so reduziert sich der Spalt auf 40μ Weite entsprechend $\beta = 0,75 \text{ W/cm}^2 \text{ }^\circ\text{K}$. Das entspricht einem ΔT von 380°C oder 2700°C Zentraltemperatur für eingefahrenen Brennstoff. Beim Dauerbetrieb jedoch sinkt die Wärmedurchgangszahl durch Spaltgasfreisetzung auf etwa $1/10$ ihres ursprünglichen Wertes [12,13]. Damit müßten die Brennstofftemperaturen stark ansteigen und den Spalt allein durch thermische Ausdehnung schließen. Das wird wegen der Oberflächenrauigkeit jedoch nicht möglich sein. Sie dürfte beim ungeschliffenen Tablettenbrennstoff etwa 20μ betragen. Hierfür läßt sich ein Wert für $\beta = 0,1 \text{ W/cm}^2 \text{ }^\circ\text{C}$ finden. Dieser Wert würde Zentraltemperaturen weit über den Schmelzpunkt verursachen. Tatsächlich lassen sich für den eben definierten Kontaktfall solche Temperaturen aber nicht nachweisen [1]. Vielmehr ergibt sich aus solchen Experimenten ein Wert von $\beta = 1 - 1,5 \text{ W/cm}^2 \text{ }^\circ\text{C}$. Daraus läßt sich schließen, daß der Brennstoff-Flächenanteil bis zu 10% [14] im Kontakt mit der Hülle betragen muß. Dies wiederum stützt die These, daß eine völlige Annäherung des Brennstoffs an die Hülle nicht möglich ist und der teilweise vorhandene Kontakt über die Brennstoffrauigkeit erfolgt. Für den Anfahr- und Einfahrvorgang kann also mit $\beta = 0,75 \text{ W/cm}^2 \text{ }^\circ\text{C}$ gerechnet werden, für den Dauerbetrieb etwa mit $\beta = 1,3 \text{ W/cm}^2 \text{ }^\circ\text{C}$. Das entspricht im wesentlichen den in Fig.1 wiedergegebenen experimentellen Erfahrungen.

3.2 Wärmeleitfähigkeit

Die Wärmeleitfähigkeit k von oxidischem Brennstoff ist in letzter Zeit mehrfach untersucht worden [15-20]. Aus diesen Daten sind die Fig.2 und 3 entstanden. Hier werden die Wärmeleitfähigkeiten für UO_2 - PuO_2 -Brennstoff angegeben, und zwar für Ausgangsbrennstoffdichten von 85 und 95 % theoretischer Dichte. Die meist bei 90 % th.D. gemessenen Werte wurden mit Hilfe der bekannten Loeb-Formel (2) auf 95 % und 85 % th.D. umgerechnet.

$$k = k_{\text{max}} (1-nP) \quad (2)$$

- k = Wärmeleitfähigkeit bei Porosität P
 k_{\max} = Wärmeleitfähigkeit des 100 % dichten Brennstoffs
 P = Porosität, d.h. relativer Volumenanteil des Porenvolumens
 n = empirischer Wert

Dabei wurde in dem auftretenden Dichtebereich für n der empirische Wert 1,5 benutzt. Ferner wurde für 85 % th.D. berücksichtigt, daß ab etwa 1000 °C Verdichten durch Sintern einsetzt, das bei etwa 1700 °C mit Dichten um 95 % th.D. abgeschlossen ist. Da dies auch bei vibriertem Brennstoff geschieht, sind Fig.2 und 3 repräsentativ für die Reaktorbetriebs-Wärmeleitfähigkeit.

In Tabelle 1 ist eine Differenzierung des Faktors n entsprechend [21] wiedergegeben. Im Vergleich mit experimentellen Daten erscheinen die Werte jedoch etwas hoch. Deshalb wurde hier der Erfahrung folgend der Wert $n = 1,5$ verwendet.

Tabelle 1 Faktor n der Loeb-Formel in Abhängigkeit der Porosität

P	n
< 0,1	1,5
0,10 - 0,15	2,0
0,15 - 0,20	2,4
0,20 - 0,25	2,6

In der Praxis wird häufig die mittlere Wärmeleitfähigkeit eines Brennstoffquerschnitts gesucht. Dabei wird der Querschnitt in 2 Zonen, die durch 1700 °C getrennt sind, eingeteilt. In der Zone mit einer Temperatur über 1700 °C der hochdichten Säulenkristalle wird mit $P = 1$ gerechnet. Unterhalb 1700 °C wird die Fabrikationsporosität verwendet. Durch eine lineare Mittelung erhält man:

$$k = k_{\max} \left[1 - n P \left(1 - \frac{r_{1700}}{r_B} \right) \right] \quad (3)$$

r_{1700} = Radius, bei dem $T = 1700$ °C ist

r_B = Brennstoffradius

r_{1700} berechnet sich aus folgender Beziehung (Beitrag IV und X):

$$r^2 = r_B^2 - \frac{4\pi r_B^2}{\chi} w(T, T_a) \quad (4)$$

mit

$$w(T, T_a) = \int_{T_a}^{T(r)} k(T) dT = \int_0^T k(T) dT - \int_0^{T_a} k(T) dT = w(T) - w(T_a) \quad (5)$$

$T(r)$ = Brennstofftemperatur beim Radius r

T_a = Brennstoffoberflächentemperatur

χ = Stabileistung

$w(T)$ = Wärmeleitintegral, das durch Fig.3 gegeben ist.

3.3 Thermische Ausdehnung

Die thermische Ausdehnung von Oxydbrennstoff ist an UO_2 mehrfach, an UO_2 - PuO_2 -Mischbrennstoff weniger untersucht worden. Für UO_2 lassen sich repräsentativ folgende empirische Formeln angeben [22]:

$$\frac{\Delta l}{l} = 2,1 \cdot 10^{-9} T^2 + 8,4 \cdot 10^{-6} T - 3,0 \cdot 10^{-4} \quad (6)$$

$$27^\circ C \leq T(^{\circ}C) \leq 1260^\circ C$$

und

$$\frac{\Delta l}{l} = 2,9 \cdot 10^{-9} T^2 + 6,8 \cdot 10^{-6} T \quad [23] \quad (7)$$

$$1000^\circ C \leq T(^{\circ}C) \leq 2250^\circ C$$

Dabei bedeutet $\frac{\Delta l}{l}$ die relative Längenänderung bei einer Temperaturerhöhung von $27^\circ C$ bis $T(^{\circ}C)$.

Für UO_2 - PuO_2 -Brennstoff mit 20 % PuO_2 kann für den linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten $\alpha \frac{1}{^{\circ}C}$ folgende empirische Formel angegeben werden [24]:

$$\alpha = 7,87 \cdot 10^{-6} + 3,90 \cdot T \left[\frac{1}{^{\circ}C} \right] \quad (8)$$

$$0 \leq T(^{\circ}C) \leq 1200^\circ C$$

Diese Angaben werden noch durch neuere Daten ergänzt [25], die generell darauf hinweisen, daß PuO_2 -haltiger Brennstoff eine etwas höhere thermische Ausdehnung haben könnte als UO_2 .

Bei der Berechnung der thermischen Brennstoffausdehnung bei vorgegebener Stableistung und Kühlmitteltemperatur ist die Kenntnis der Temperaturverteilung erforderlich. Da die Temperatur materiegebunden ist, wird am Ort r vor und nach der thermischen Ausdehnung eine andere Temperatur herrschen bzw. die Temperatur wird nicht ortsfest sein. Weiterhin ist die Veränderung der Wärmeleitfähigkeit während der thermischen Ausdehnung durch entstehende Ringrisse zu berücksichtigen [26]. Zu beachten ist, daß die thermische Ausdehnung von den mechanischen Brennstoffeigenschaften abhängt.

Für die relative Radiusänderung eines spröden Zylinders gilt [26]

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{2}{3} \alpha (T_i - T_a) \quad (9)$$

und eines plastischen Zylinders gilt [26]

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{1}{2} \alpha (T_i - T_a) \quad (10)$$

- $\frac{\Delta R}{R}$ = relative Radiusänderung
 T_i = Zentraltemperatur
 T_a = Brennstoffoberflächentemperatur
 α = therm. Ausdehnungskoeffizient

3.4 Ausdehnung durch zentrales Schmelzen

Beim Schmelzen nimmt das Brennstoffvolumen V_B um [27]

$$\eta = 100 \frac{\Delta V_{\text{sch}}}{V_{\text{th}}} = 10 \% \quad (11)$$

zu.

- ΔV_{sch} = Volumänderung beim Schmelzen
 V_{th} = Das zu dem vorgegebenen Brennstoffvolumen V_B der Dichte ρ gehörende Volumen des 100 % dichten Brennstoffs der Dichte ρ_{th} .

Gleichzeitig entsteht jedoch ein Volumengewinn durch verschwindendes Porenvolumen. Durch eine einfache Überlegung erhält man für die insgesamt auftretende relative Volumenänderung:

$$\frac{\Delta V_{\text{tot}}}{V_B} = 1,4 \cdot d - 1 \quad (12)$$

wobei $d = \frac{\rho_{\text{th}}}{\rho_B} = \frac{V_{\text{th}}}{V_B}$ = relative Brennstoffdichte

- Aus (12) folgt, daß für Dichten kleiner als 91 % th.D. $\frac{\Delta V}{V_B}$ negativ ist, d.h. daß sich das Schmelzen nicht durch eine äußere Volumzunahme bemerkbar macht.

4. Das Abbrandverhalten des Brennstoffs

4.1 Schwellvolumen

Durch die bei der Spaltung erzeugten festen und gasförmigen Spaltprodukte schwillt das Brennstoffvolumen an, und das zur Verfügung stehende Volumen wird aufgefüllt. Dieses Volumen innerhalb der Hülle besteht ggf. aus dem Spaltvolumen V_{sp} zwischen Brennstoff und Hülle, dem Volumen einer Stirnflächeneinsenkung V_D und dem Porenvolumen V_P . Das Porenvolumen darf allerdings nicht voll in Rechnung gesetzt werden. Quantitative Angaben zu machen, ist wegen der dauernden Veränderungen im Brennstoff schwierig, und es gibt sehr wenig Angaben dieser Art. Sie zeigen jedoch, daß die Porosität den Volumenvergrößerungen durch Schwellen und thermische Ausdehnung oberhalb 1700 °C zu 80 % [1], von 1300 - 1700 °C zu 50 % [28,29,30] und rechnerisch ermittelt unterhalb 1300 °C zu 30 % zur Verfügung steht. Diese Angaben können bei Dauerbetrieb etwas ansteigen in dem Maße wie der Brennstoff plastischer wird [9,10].

4.2 Schwellrate

Die Schwellrate η ist wie folgt definiert:

$$\eta = \frac{100 \frac{\Delta V_{\text{sw}}}{V_{\text{th}}}}{A_{\text{HS}} \left[\frac{\%}{10.000 \frac{\text{MWd}}{t} \text{ schwere Elemente}} \right]} \quad (13)$$

ΔV_{sw} = Volumenänderung beim Schwellen

V_{th} = Volumen von 100 % dichtem Brennstoff

A = Abbrand $\left[\frac{\text{Mwd}}{t \text{ schwere Elemente}} \right]$

Es ist zweckmäßig, zwischen der durch feste und durch gasförmige Spaltprodukte zustandekommenden Schwellrate zu unterscheiden. Danach liegt die berechnete Schwellrate für feste Spaltprodukte zwischen 0,3 und 1,25 % je 10 000 Mwd/t [31] bzw. 0,45 % je 10 000 Mwd/t [32], wobei im letzten Fall die Gültigkeit auf mittlere Temperaturen unter 1000° beschränkt wird [33]. Für das Spaltgasschwellen wird 0,55 % - 0,8 % je 10 000 Mwd/t angegeben [32]. Für den Bereich, in welchem dem Brennstoff nennenswerte Kriech-eigenschaften zugeschrieben werden, s. 5.1, nämlich von 1300 °C bis 1700 °C, lassen sich rechnerisch für das Spaltgasschwellen Werte von 0,6 - 0,8 % Volumenzunahme je 10 000 Mwd/t ermitteln [6,7,34]. Aus Bestrahlungsexperimenten lassen sich in zahlreichen Fällen Gesamtschwellwerte zwischen 1 % und 2 % je 10 000 Mwd/t herleiten [9,3,31,35,36]. Eine Analyse dieser im einzelnen spezifischen Angaben führt dazu, daß man für technische Anwendungszwecke eine generelle Schwellrate von

$$v_{tot} = 1,6 \frac{\%}{10\,000 \frac{\text{Mwd}}{t \text{ schwere Elemente}}} \quad (14)$$

benutzt und speziell für den Kriechbereich von 1300°C bis 1700°C einen zusätzlichen Betrag von

$$v_{gas} = 0,4 \frac{\%}{10\,000 \frac{\text{Mwd}}{t \text{ schwere Elemente}}} \quad (15)$$

addiert.

4.3 Abbrandformel

Auf Grund der Ausführungen in Kapitel 4.1 und 4.2 soll nun eine Formel hergeleitet werden, die es erlaubt, den maximal erreichbaren Abbrand A_{max} eines Brennstabes zu berechnen. Wir definieren, daß dieser dann erreicht ist, wenn der Brennstoff das gesamte zur Verfügung stehende Leervolumen durch Schwellen

verbraucht hat. Das Brennstoffvolumen V_B wird in 3 Zonen eingeteilt, nämlich in eine mit Temperaturen über 1700°C mit dem Volumen V_{pl} , in der der Brennstoff weitgehend plastische Eigenschaften hat, eine zweite Zone mit Temperaturen zwischen 1300°C und 1700°C mit dem Volumen V_{kr} , in der Kriecheigenschaften vorliegen und in eine Tieftemperaturzone unter 1300°C mit dem Volumen V_{TT} .

Entsprechend den in Kapitel 4.1 angegebenen Werten der dem Schwellen in den 3 Zonen zur Verfügung stehenden Porenvolumenanteilen erhält man für das gesamte dem Schwellen zur Verfügung stehende Porenvolumen

$$V_P = P(0,8 V_{pl} + 0,5 V_{kr} + 0,3 V_{TT}) \quad (16)$$

Weiteres Schwellvolumen bildet der Spalt zwischen Brennstoff und Hülle V_{sp} und evt. das Volumen einer Stirnflächeneinsenkung bei Tabletten V_D . Verringert wird diese Kapazität durch zentrales Schmelzen ΔV_{schm} und das in Kapitel 4.2 definierte Spaltgasschwellen. Dieses wird vereinfacht für 50 % Spaltgasfreisetzung und 100 000 MWd/t angesetzt und ergibt den Volumenbeitrag von $0,04 V_{kr}$.

Aus (14)(15)u.(16) und den angegebenen Voraussetzungen erhält man für den maximalen Abbrand A_{max}

$$A_{max} \left[\frac{\text{MWd}}{t \text{ schwere Elemente}} \right] = \frac{10^6}{1,6} \frac{1}{d} \frac{1}{V_B} \left[p(0,8 V_{pl} + 0,5 V_{kr} + 0,3 V_{TT}) + V_{sp} + V_D - \Delta V_{Sch} - 0,04 V_{kr} \right] \quad (17)$$

- d = Relative Brennstoffdichte
- V_B = (Vorliegendes) Brennstoffvolumen
- V_{pl} = Volumen, in dem $T > 1700^\circ\text{C}$
- V_{kr} = Volumen, in dem $1300^\circ\text{C} < T < 1700^\circ\text{C}$
- V_{TT} = Volumen, in dem $T < 1300^\circ\text{C}$
- V_{sp} = Spaltvolumen
- V_D = Volumen der Einsenkungen (Dishings)
- ΔV_{sch} = Volumenänderung beim Schmelzen

Die Volumina V_{pl} , V_{kr} und V_{TT} wurden mit (4) und (5) berechnet und sind in Abb.4 dargestellt. (17) ist in Abb.5 graphisch dargestellt. Unter Abschätzung der thermischen Ausdehnung von Pulver-Brennstoff wird auch für vibrierten Brennstoff eine Auswertung vorgenommen.

4.4 Spaltgasfreisetzung

Für die Beschreibung der Spaltgasfreisetzung wird der Brennstoff in die gleichen Temperaturzonen eingeteilt wie es für die Entwicklung der Abbrandformel in Kapitel 4.3 erfolgt ist. Es wird die Spaltgasfreisetzung für die drei Zonen wie folgt berechnet:

Zunächst wird berechnet, wieviel g Spaltgas bei 1 % Spaltung von $1 \text{ cm}^3 \text{ UO}_2\text{-PuO}_2$ -Brennstoff mit 100 % theoretischer Dichte = 11 g/cm^3 entsteht. 1 % Spaltung des metallischen Anteils in 1 cm^3 Brennstoff entspricht der Spaltung von

$$11 \times 0,88 \cdot 10^{-2} = 0,097 \text{ g}$$

Von diesen 0,097 g wiederum sind 13 At.% Spaltgas. Bei Anwendung eines mittleren Molekulargewichtes der Spaltgase von 124,8 ergibt sich, daß 13 At.% gleich 13,5 Gew.% sind. Damit ist die bei 1 % Spaltung je cm^3 Brennstoff entstandene Gasmenge

$$0,097 \times 13,5 \cdot 10^{-2} = 0,0131 \text{ g}$$

1 % Abbrand jedoch entspricht 9350 MWd/t schwere Elemente. Dann entsteht je MWd/t schwere Elemente Abbrand und cm^3 Brennstoff

$$\frac{1,31 \cdot 10^{-2} \cdot 22\,400}{9350} = 2,51 \cdot 10^{-4} \text{ Norm-cm}^3$$

Spaltgas. Um die nach dem Gesamtabbrand entstandene Menge Spaltgas zu berechnen, ist nun eine Multiplikation mit dem erreichten Abbrand in MWd/t und dem Brennstoffvolumen vorzunehmen.

Der Abbrand A ist wie folgt gegeben:

$$A = \frac{\chi \cdot t}{0,88 r_B^2 \pi g} \quad (18)$$

wobei folgendes gilt:

- χ = Stabileistung (W/cm)
 r_B = Brennstoffradius (cm)
 ρ = Brennstoffdichte (g/cm³)
 t = Zeit (Tage)

Durch Einsetzen der obigen Einheiten erhält man den Abbrand in Mwd/t.

Man erhält für die gesamte Spaltgasmenge V_{sp} , die von der Brennstoffmasse $m_B = \rho \cdot V$ während des Abbrandes A erzeugt wird.

$$V_{sp} = 2,51 \cdot 10^{-4} \cdot A \cdot V = \frac{2,51 \cdot 10^{-4}}{0,88} \frac{\chi \cdot t \cdot m_B}{r_B^2 \pi \rho^2} \text{ (Norm cm}^3\text{)} \quad (19)$$

Dabei sind die obigen Einheiten einzusetzen.

Um diese Rechnung von der anfangs eingeführten theoretischen Dichte 11 g/cm³ unabhängig zu machen und nur auf die wirkliche Brennstoffdichte zu beziehen, wird mit $\frac{\rho}{11}$ multipliziert; dann ist

$$V_{spg} = 7,3 \cdot 10^{-6} \frac{\chi \cdot t \cdot m_B}{r_B^2 \cdot \rho} \quad (20)$$

Nun ist diese Menge zu unterscheiden von der zu erwartenden freigesetzten Menge. Die Freisetzung in den in Kap. 4.3 definierten Zonen ist nach $\sqrt{6,377}$ zu berechnen mit dem Faktor C , wobei

$$C = \frac{0,95 V_{pl} + 0,5 V_{kr} + 0,1 V_{TT}}{V_{Br}} \quad (21)$$

ist. Dann ist die gesamte freigesetzte Menge Spaltgas am Ende der Betriebszeit, hier dargestellt in (cm³), bezogen auf den Normalzustand

$$V_{spg} = 7,3 \cdot 10^{-6} \frac{\chi \cdot t \cdot m}{r_B^2 \cdot \rho \cdot V_{Br}} (0,95 V_{pl} + 0,5 V_{kr} + 0,1 V_{TT}) \quad (22)$$

5. Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle

5.1 Brennstoffdruck

Wie bereits in Kap. 4 dargelegt, ist der Brennstoff unterhalb 1700 °C als nicht plastisch anzusehen. Im Bereich von 1300 - 1700 °C ist sein Verhalten durch Kriecheigenschaften bestimmt, während der Brennstoff unterhalb 1300 °C viskoelastische Eigenschaften besitzt. Viskoelastizität liegt vor, wenn im Norton'schen Kriechgesetz $\dot{\epsilon} = k \sigma^n$ der Exponent $n = 1$ ist. Man erhält dann

$$\sigma = \eta \cdot \dot{\epsilon} \quad (23)$$

σ = Spannung (kp/mm²)

η = Viskosität bzw. Viskoelastizität
(Poise = $\frac{1}{3,5} 10^{-11} \frac{\text{kp} \cdot \text{h}}{\text{mm}^2}$)

$\dot{\epsilon}$ = $100 \frac{\frac{\Delta l}{l}}{t}$ (%/h) Kriechrate
(r=Zeit)

Es läßt sich leicht zeigen, daß ein langsam schwellender Brennstoff mit Temperaturen über 1300 °C keine Gefahr für die Hülle bedeutet. Unterhalb von 1300 °C soll eine Analyse zeigen, ob nach Erschöpfung des Leervolumens innerhalb der Hülle bei einem Kontakt Brennstoff-Hülle mit Deformationen zu rechnen ist.

Wir betrachten einen Ring der Dicke d , der gegen die Hülle schwillt. Damit bei Kontakt mit der Hülle diese nicht verformt wird, muß der Brennstoff mit einer Kriechrate $\dot{\epsilon}$, die gleich der linearen auf die Zeit bezogenen Schwellrate ist, nach innen kriechen. Dann herrscht nach (23) entsprechend seiner Viskosität η im Ring eine Spannung σ . Dabei drückt der Brennstoff auf Grund der Kesselformel mit folgendem Druck p_B gegen die Hülle:

$$p_B = \sigma \frac{d}{r_M} \quad (24)$$

d = Brennstoffringdicke

r_M = Mittlerer Brennstoffringradius

(23) in (24) eingesetzt liefert:

$$p_B = \frac{\eta \cdot \dot{\epsilon} \cdot d}{r_M} \quad (25)$$

Bei Gleichsetzung von Kriechrate $\dot{\epsilon}$ mit der linearen auf die Zeit bezogenen Schwellrate erhält man mit (13) und (18)

$$\frac{\Delta V}{V} = 3 \frac{\Delta l}{l} \quad (26)$$

$$\dot{\epsilon} = \frac{\chi}{8,3 \cdot \rho r_B^2} \cdot \mathcal{J} \quad (27)$$

Mit folgenden Daten

$$\mathcal{J} = 1,6 \frac{\%}{10^4 \frac{\text{MWd}}{t(\text{schwere Elemente})}}$$

$$\rho = 11 \text{ g/cm}^3$$

$$r_B = 2,6 \text{ mm}$$

erhält man aus (27) folgende Werte:

Tabelle 2 Kriechrate $\dot{\epsilon}$ in Abhängigkeit der Stableistung

χ W/cm	$\dot{\epsilon}$ %/10 ⁴ h
200	2,2
300	3,2
400	4,3
500	5,4
600	6,5

Wir berechnen im folgenden den Brennstoffdruck p_B für $\chi = 450 \text{ W/cm}$: Der Ring hat dann eine mittlere Temperatur von 950°C . Aus Fig. 4 und Fig. 6 erhält man folgende Werte:

$$\frac{d}{r_M} = 0,3$$

$$\eta = 9 \cdot 10^5 \frac{\text{kp} \cdot \text{h}}{\text{mm}^2} \quad [38,39,40,41]$$

Diese Werte in (24) eingesetzt ergibt:

$$p_B = 1,35 \text{ kp/mm}^2$$

5.2 Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle

Um die Auswirkung dieses Druckes auf die Hülle zu erkennen, werden die $\sigma_{0,2/10\ 000}$ Zeitdehngrenzwerte des Hüllmaterials X8CrNiMoVNb1613 angewandt. $\sigma_{0,2/10\ 000}$ bedeutet die Spannung, die in 10 000 h eine Deformation von 0,2 % bewirkt.

Tabelle 3 $\sigma_{0,2}$ -Werte in Abhängigkeit der Temperatur für X8CrNiMoVNb1613

T (°C)	$\sigma_{0,2/10\ 000}$ (kp/mm ²)
550	19,4
600	15,4
650	10,0
700	4,0

Wir geben 550 °C Hülltemperatur, 2,8 mm mittlerer Hüllradius, 0,38 mm Wandstärke und 0,5 kp/mm² Spaltgasdruck vor, der eine Hüllrohrspannung von 3,7 kp/mm² bewirkt. D.h. die Hülle kann noch $(19,4 - 3,7)$ kp/mm² = 15,7 kp/mm² Spannung bis zur zulässigen Verformung von 0,2 % innerhalb von 10 000 h bzw. 2,1 kp/mm² Druck aushalten.

Wir berechnen im folgenden, welche Deformationen die Hülle mit einem konstanten Druck von 2,1 kp/mm² in Abhängigkeit der Stableistung im Brennstoffring verursacht. Dabei setzen wir voraus, daß der Brennstoff viskoelastische Eigenschaften mit der Viskosität $\eta = 9 \cdot 10^5 \frac{\text{kp} \cdot \text{h}}{\text{mm}^2}$ entsprechend einer mittleren Brennstoffringtemperatur von 950 °C hat. Aus Fig.4 erhält man die Ringdickenverhältnisse in Abhängigkeit der Stableistung und mit (27) berechnen wir die zugehörigen Deformationen. Die erhaltenen Ergebnisse sind in Tabelle 4 dargestellt.

Tabelle 4 Die vom Hülldruck von $p = 2,1$ kp/mm² im Brennstoffring verursachten Deformationen in Abhängigkeit der Stableistung

χ W/cm	$\frac{d}{r_M}$	$\dot{\epsilon} \text{ \%}/10^4 \text{ h}$
300	0,58	4,0
400	0,36	6,5
500	0,25	9,3
600	0,21	11,1

Trägt man die Daten der Tabelle 2 und 4 in Fig. 7 auf, so erkennt man, daß bei Brennstoff-Hüllrohrkonstanten unter 250 W/cm Stableistung der Brennstoffdruck die Hüllrohrkräfte übersteigt. Eine beschränkt gültige Aussage über die Möglichkeit einer Axialdeformation des Hüllrohres läßt sich wie folgt machen: Es wird eine Kontaktlänge L zwischen Brennstoff und Hülle definiert, oberhalb welcher eine Deformation der Hülle in Achsialrichtung auftritt. Es ist gemäß [42]

$$L = \frac{\sigma_y \cdot s}{\mu \cdot p_B} \quad (28)$$

σ_y = Streckgrenze des Hüllmaterials

s = Wandstärke der Hülle

μ = Reibungskoeffizient

p_B = Anpreßdruck des Brennstoffs

Mit

$$\begin{aligned} \sigma_y &= 16 \text{ kp/mm}^2 \\ \mu &= 0,5 \quad [43] \\ s &= 0,38 \text{ mm} \\ p_B &= 1,35 \text{ kp/mm}^2 \end{aligned}$$

erhält man aus (28) $L = 9 \text{ mm}$.

Das würde bedeuten, daß bei einem kraftschlüssigen Kontakt von 9 mm Länge bereits eine achsiale Deformation auftreten könnte. Nun wird der Brennstoffkontakt infolge der Oberflächenrauigkeit des Brennstoffs nicht kontinuierlich sein, so daß das wirkliche L wesentlich größer ist.

6. Literatur

[1] GfK-Bestrahlungen

[2] Mustelier, J.P.: Quelques Résultats d'Irradiations sur les Combustibles envisagés pour Rapsodie.
Agence Internationale de l'Energie Atomique, SM.2581 (1962)

[3] Lawton, H. et al.: The Irradiation Behaviour of Plutonium-Bearing Ceramic Fuel Pins, London Conference on Fast Breeder Reactors 1966, 4B/4

- [4] Bates, J.L.: Voids in Irradiated UO_2 , ASTM Spec. Techn. Publ. No. 306 (1961)
- [5] Robertson, J.A.L. et al.: Temperature Distribution in UO_2 Fuel Elements, J. Nuc. Mat. 7, 225-262 (1962)
- [6] Lewis, W.B.: Engineering for the Fission Gas in UO_2 Fuel, Nuclear Applications 2, 171 (1966)
- [7] Greenwood, G.W., Speight, M.V.: J. Nuc. Mat. 10, 1963
Berkeley Nuc. Lab. Rep. No. RD/B/IV 136 (1963)
Phil. Mag. 9, 683 (1964)
- [8] Notley, M.J.: The Length Changes of Zr-Sheathed Fuel Elements during Irradiation, AECL-1846 (1963)
- [9] Zebroski, E. et al.: Irradiation Behaviour of Hyper- and Hypo-Stoichiometric Plutonia Urania Fuel at 70 000 MWd/t, GEAP-4897 (1965)
- [10] Kämpf, H.: Einfluß der radialen Brennstoffdichteverteilung auf die Temperaturverteilung im Brennstoff, PSB-Bericht in Vorbereitung
- [11] Fisher, L. et al.: Fuel Temperature Measurements in Mixed Oxide Elements, Nuclear Engineering (August 1966) 600-602
- [12] Kämpf, H.: Allgemeine Spaltgleichung für den Wärmedurchgang Brennstoff-Hülle in Kernbrennelementen mit Tablettenbrennstoff, KFK-Bericht Nr. 604
- [13] GE-1000-MW-Studie, GEAP-4418
- [14] Kämpf, H.: Theorie der Wärmedurchgangszahl für den Gasspalt Brennstoff-Hülle, PSB-Bericht Nr.248
- [15] Hetzler, J., Zebroski, E.: Thermal Conductivity of Stoichiometric and Hypostoichiometric Uranium Oxide at High temperatures, Trans. ANS 7, 2 p.392 (1964)
- [16] Patrassi, E.: Die Wärmeleitfähigkeit von Urandioxyd bei sehr hohen Temperaturgradienten, J. Nuc. Mat. 22, 3 (1967)
- [17] Coplin, D.M. et al.: In-Pile Direct Measurement of UO_2 Thermal Conductivity, Trans. ANS 8, 1 (1965) 35
- [18] Hetzler, F.J. et al.: Thermal Conductivity of 20:80 (Pu:U) O_2 , Trans. ANS. 8, 1 (1965) 36

- [19] Baily, W.E. et al.: In-Pile Thermal Conductivity of UO_2 and 20:80 (Pu:U) O_2 Specimens, Trans. ANS 8, 1 (1965) 39
- [20] Schmidt, H.E.: Basic Studies on Plutonium Compounds, Heat Conductivity, Progress Report No.1, 21, 1967, Institute of Transuranium Elements, Karlsruhe
- [21] Biancheria, A.: The Effect of Porosity on Thermal Conductivity of Ceramic Bodies, Trans. ANS 9, 1 (1966) 15
- [22] Burdick, Parker: UO_2 -Properties and Nuclear Applications, USAEC (1961) 193
- [23] Conway, J.B.: The Thermal Expansion and Heat Capacity of UO_2 to 2200 °C, Trans. ANS 6, 1 (1963)
- [24] Roth, J. et al.: Development and Testing of PuO_2-UO_2 Fast Reactor Fuels, Numec 2389-4 (1964) 35
- [25] Puechl, K.H. et al.: Development and Testing of PuO_2-UO_2 Fast Reactor Fuels, Numec 3524-27 (1967)
- [26] Kämpf, H.: Persönliche Mitteilung GfK
- [27] Christensen, J.A.: Thermal Expansion and Change in Volume on Melting for Uranium Dioxide, HW-75148 (1962)
- [28] GE - persönliche Mitteilung
- [29] Lyons, M.F. et al.: UO_2 Fuel Rod Operation with Gross Central Melting, GEAP-4264
- [30] Notley, M.J.F. et al.: The Effect of UO_2 Density on Fission Product Gas Release and Sheath Expansion, AECL-2230 (1965)
- [31] Zebroski, E.L., et al.: Reviews of Status of Technology of Fast Reactor Fuels, ANS 101 (1967) 63-80
- [32] Frost, B.R.T., Wait, E.: Irradiation Experiments on Plutonium Fuels for Fast Reactors, Symposium on the Use of Plutonium as a Reactor Fuel, 1967 Brüssel, SM-88/25
- [33] Frost, B.R.T.: persönliche Mitteilung
- [34] Koenig, E.F. et al: JEFF - A Program for Analysis of Swelling of Porous Oxide Fuels, Trans. ANS 9, 2 (1966)

- [35] Bishop, J.F.W. et al.: Design and Development of Fuel and Fuel Elements for Prototype Fast Reactor, London Conference on Fast Breeder Reactors 1966, 4B/1
- [36] Leipunski, V.V.O. et al.: Experience Gained from the Operation of the BR-5 Reactor, London Conference on Fast Breeder Reactors, 1960, 2/3
- [37] Freshley, M.D. et al.: UO_2 - PuO_2 -High-Power-Density-Fuel-Element Experience in PRTR, Trans. ANS 9, 2 (1966) 397
- [38] Scott, R. et al.: The Plastic Deformation of Uranium Oxides above 800 °C, J. Nuc. Mat. 1 (1959) 39-48
- [39] Armstrong, W.M. et al.: Creep Deformation of Stoichiometric Uranium Dioxide, J. Nuc. Mat. 7 (1962) 133-141
- [40] Armstrong, W.M. et al.: Creep Deformation of Non-Stoichiometric Uranium Dioxide, J. Nuc. Mat. 9 (1963) 121-127
- [41] Wisnyi, L.G. et al.: In-Pile Mechanical Properties of Nuclear Fuels, Trans. ANS 9, 2 (1966) 393
- [42] Notley, M.J.F. et al.: The Longitudinal and Diametral Expansions of UO_2 Fuel Elements, AECL-2143 (1964)
- [43] Martin, W.R.:
ORNL-3103 (1961)

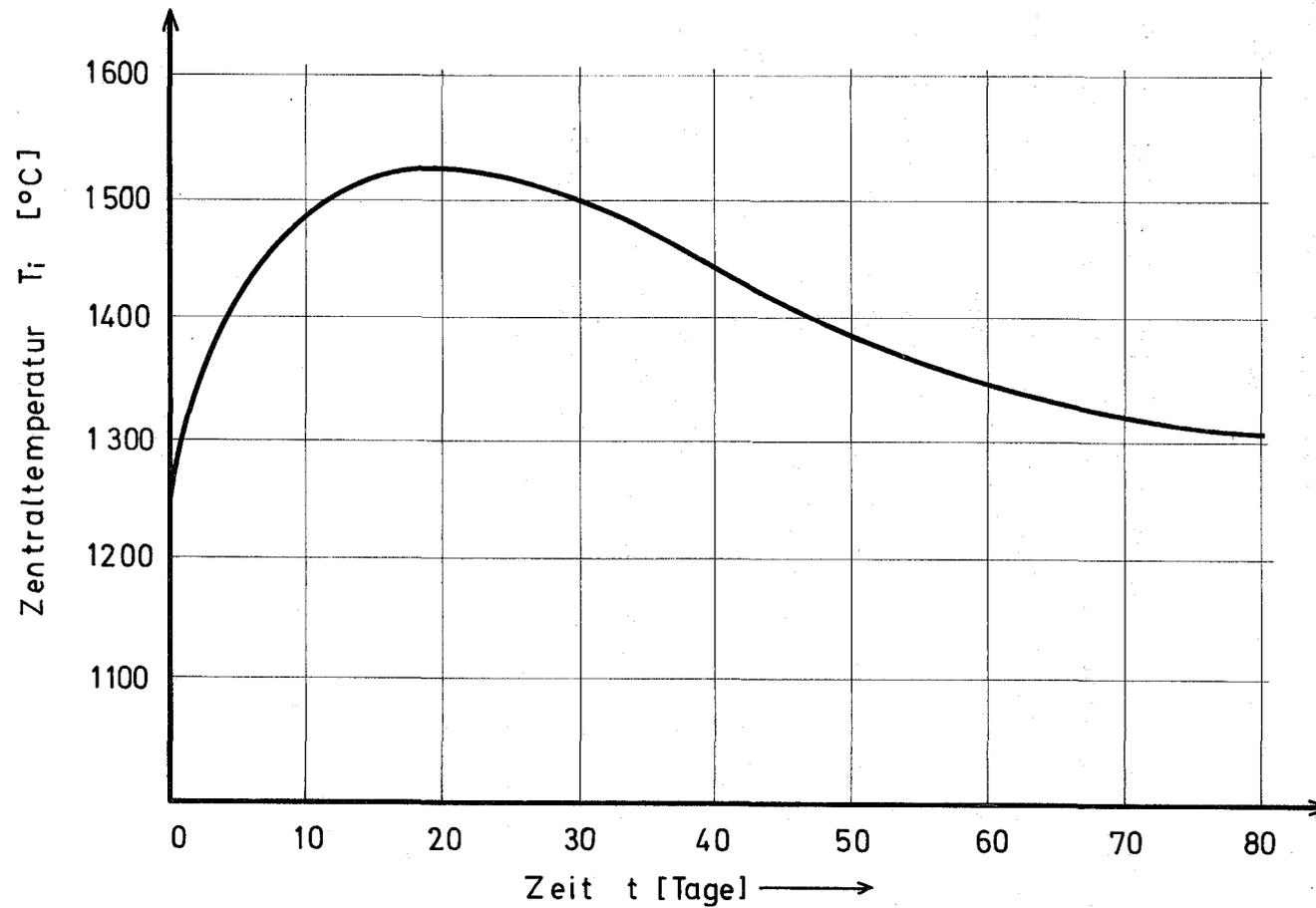


Fig.1 Zeitlicher Verlauf der Zentraltemperatur während des Einfahrvorgangs <11>

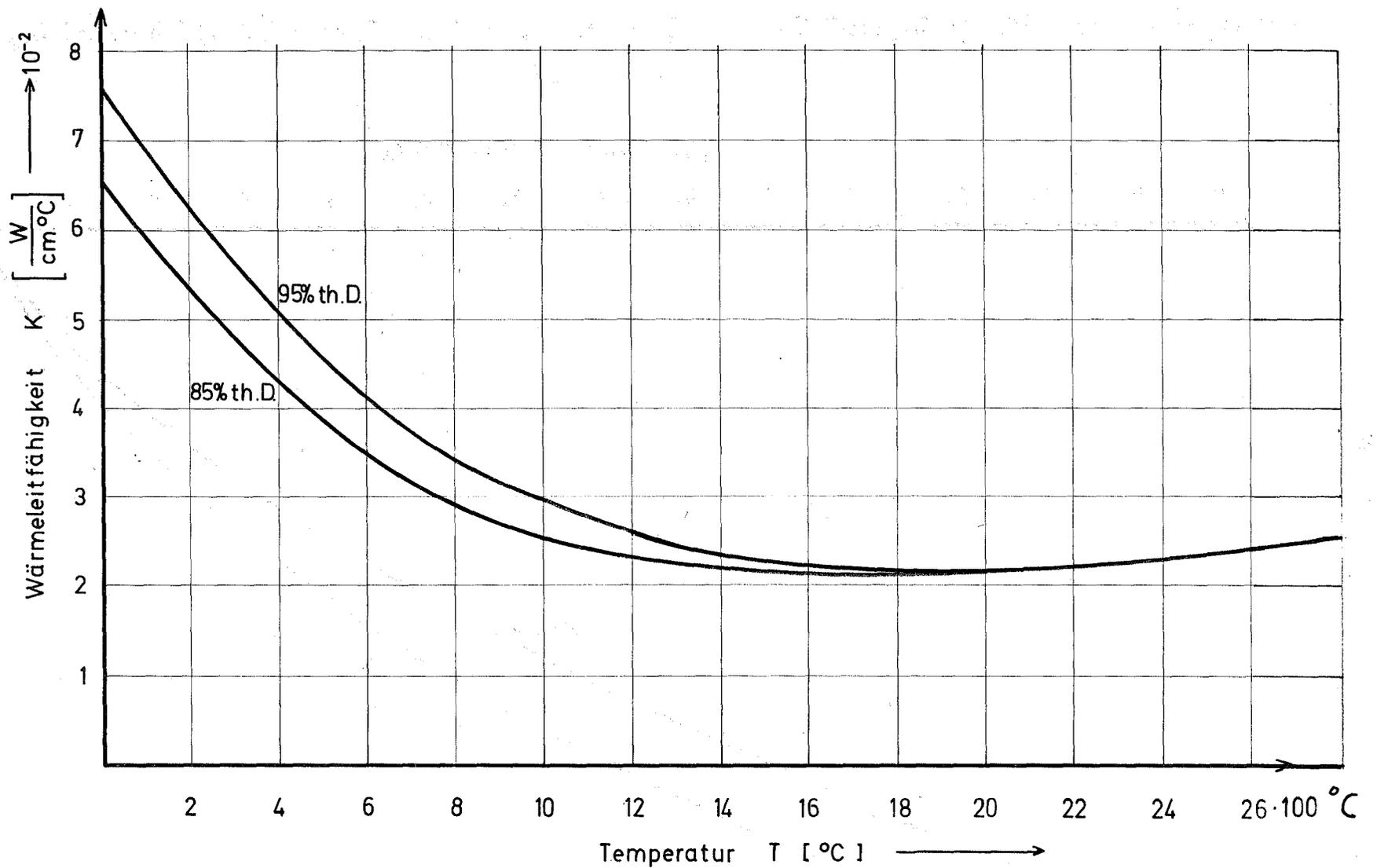


Fig. 2 Reaktorbetriebs-Wärmeleitfähigkeit für 85 und 95% dichte UO_2 - PuO_2 -Tabletten (15-20 gew.% PuO_2) in Abhängigkeit der Temperatur

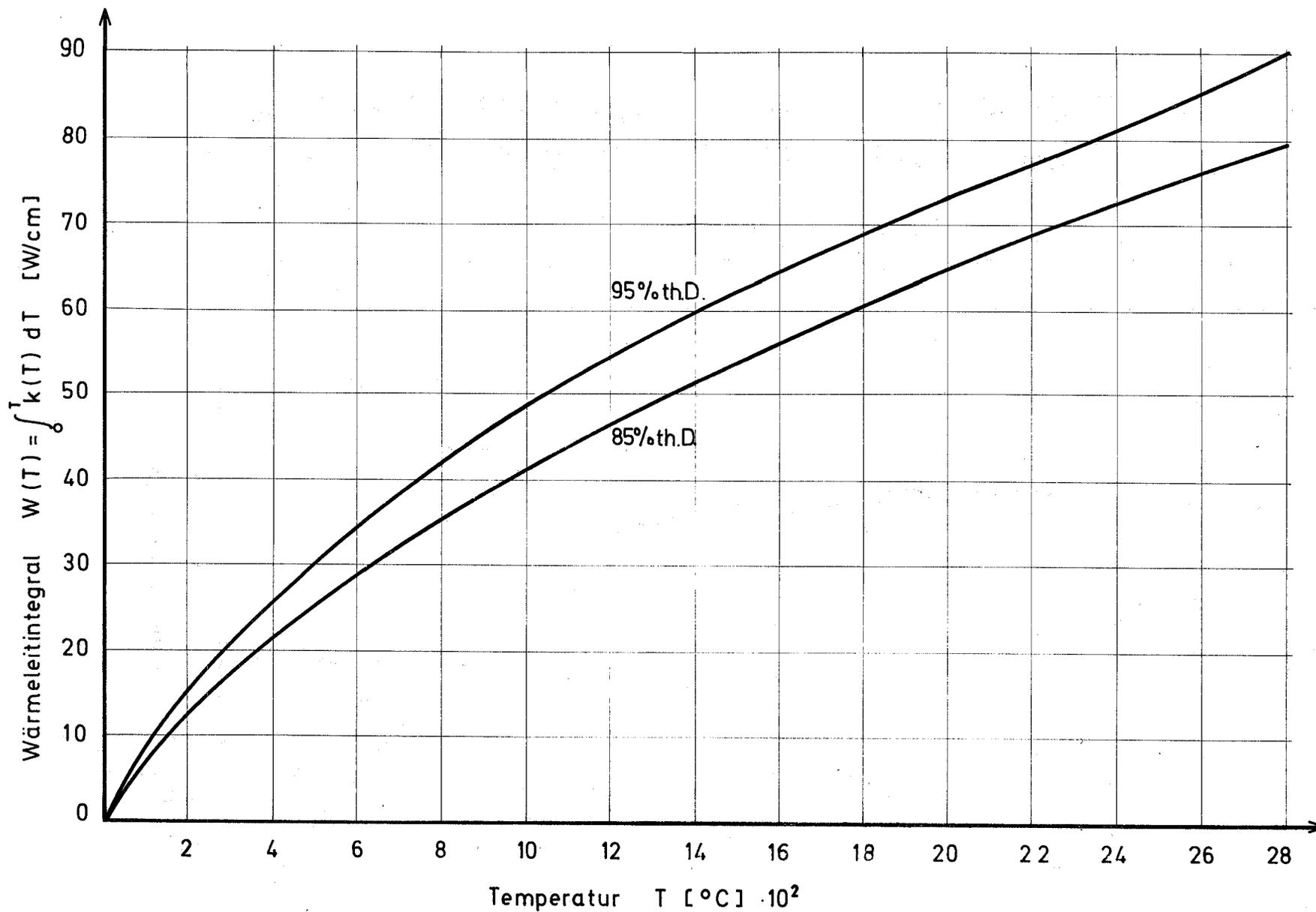


Fig.3 Reaktorbetriebs-Wärmeleitintegral für 85 und 95% dichte UO_2 - PuO_2 -Tabletten (15-20Gew.% PuO_2) in Abhängigkeit der Temperatur

r_B, F_B = Brennstoffradius, Querschnittsfläche

r_i, F_i = Radius bzw. Querschnittsfläche der plastischen-,
Kriech- und Tieftemperaturzone ($i = p, k, t$)

ϱ = Stableistung

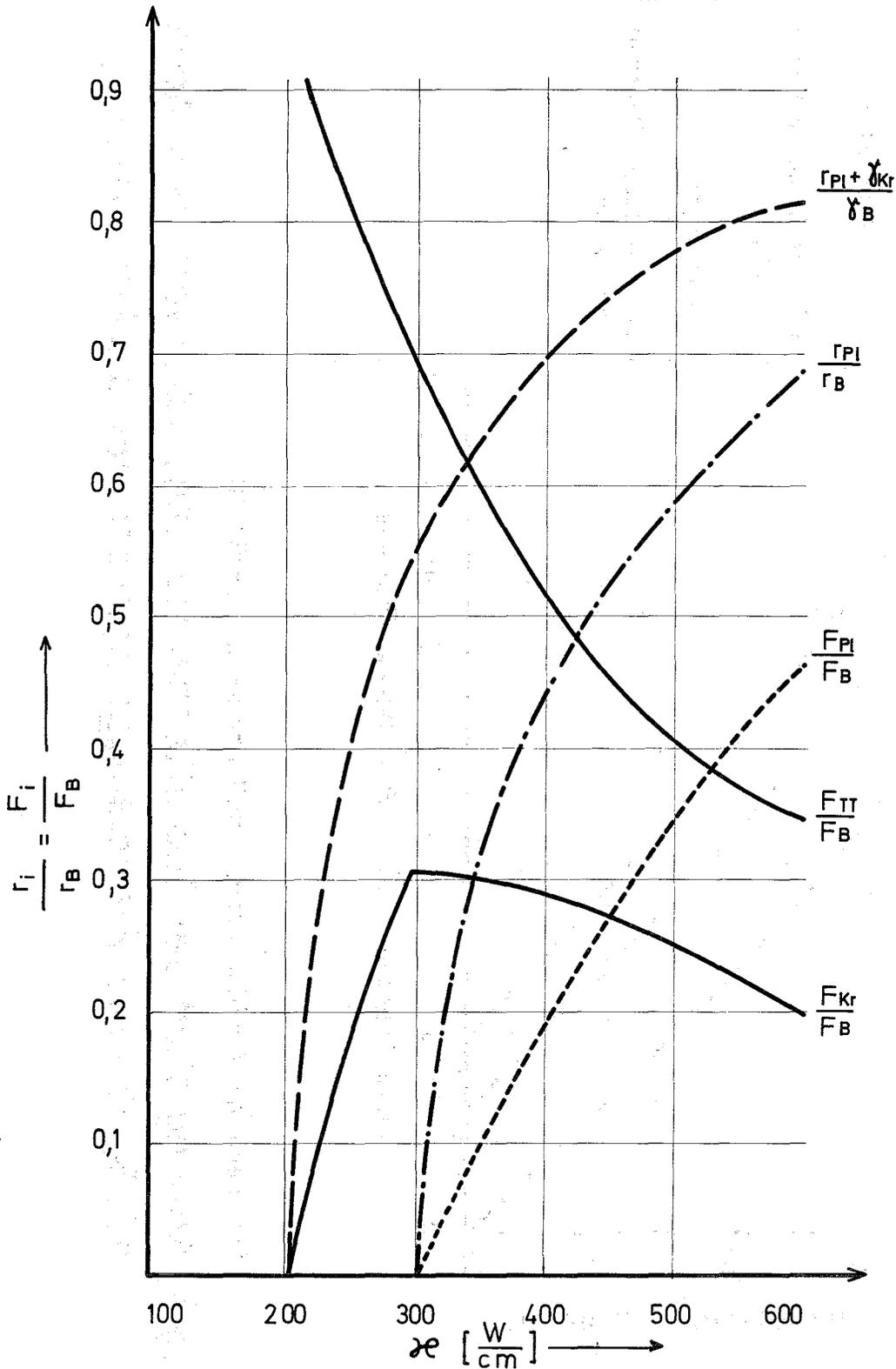
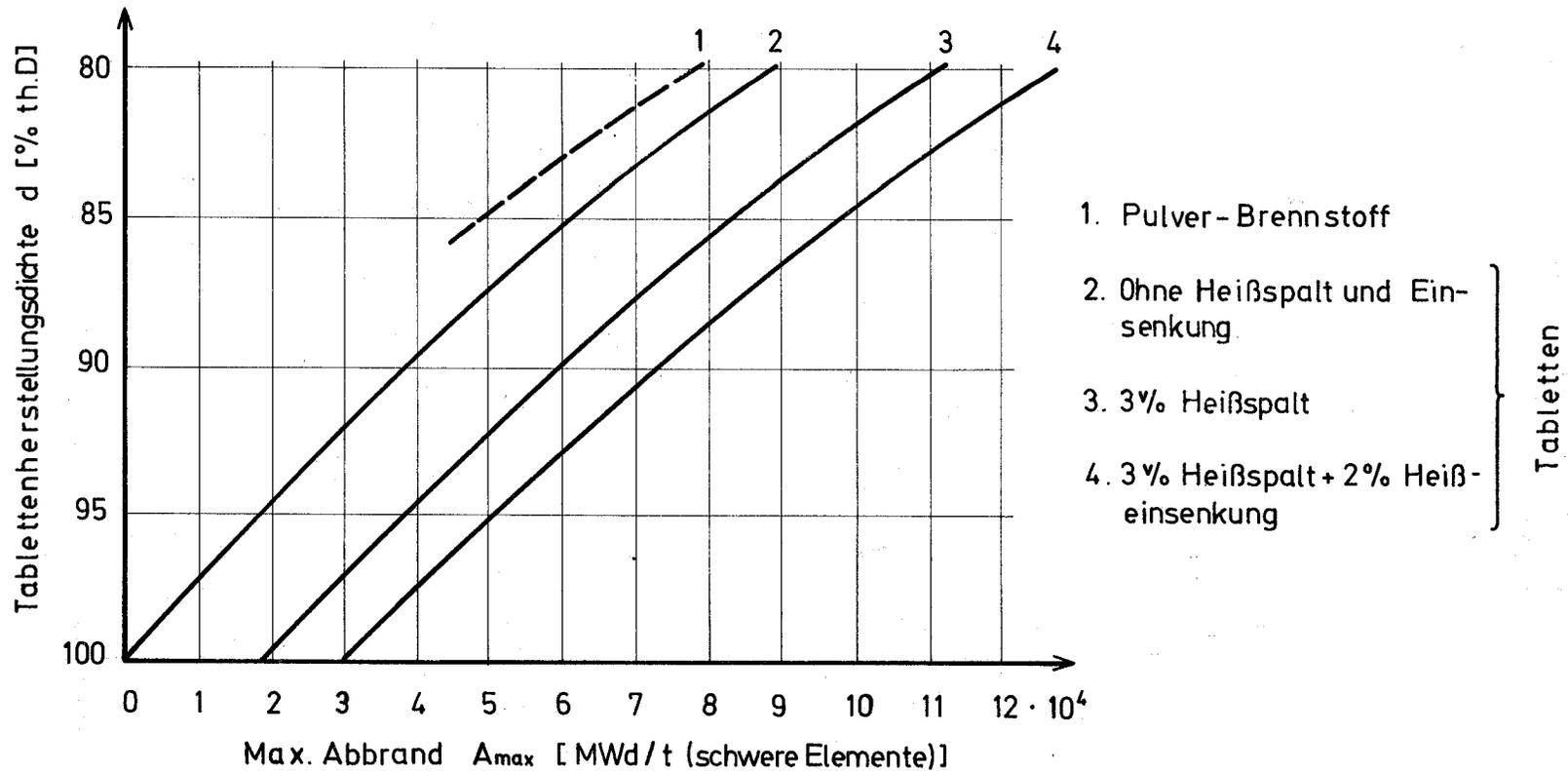


Fig.4 Abhängigkeit der Radien- und Querschnittsflächen-
anteile der plastischen-, Kriech- und Tieftemperatur-
zone von der Stableistung
(Brennstoffoberflächentemperatur $T_a = 700^\circ\text{C}$)



(Stableistung $\alpha = 500$ W/cm Hülltemperatur $T_H = 550^\circ\text{C}$)

Fig.5 Abhängigkeit der Tablettenherstellungsdichte vom max. Abbrand mit Spalt- und Einsenkungsvolumenanteil als Parameter

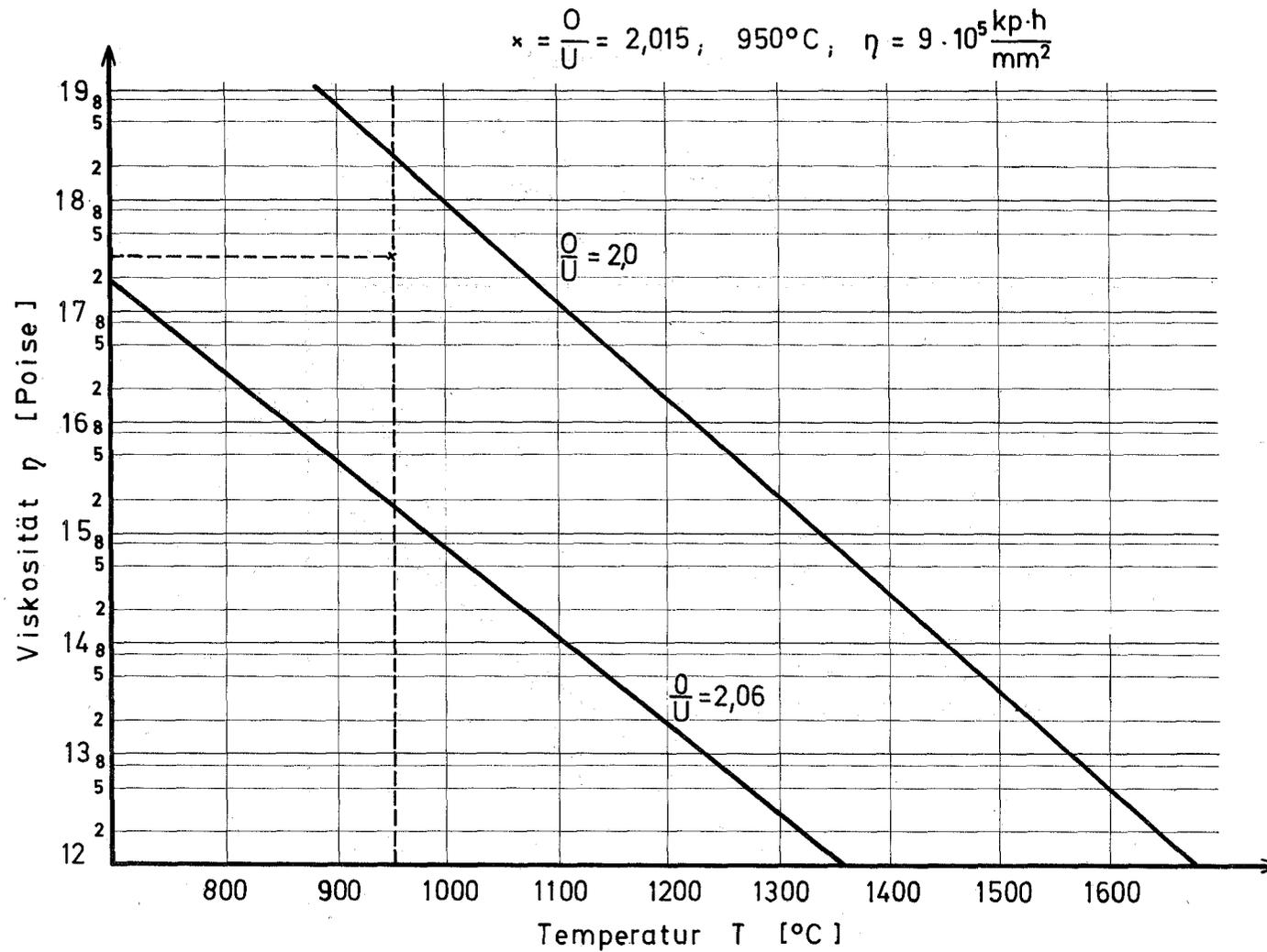


Fig. 6 Viskositäten von UO_2 in Abhängigkeit der Temperatur mit der Stöchiometrie als Parameter

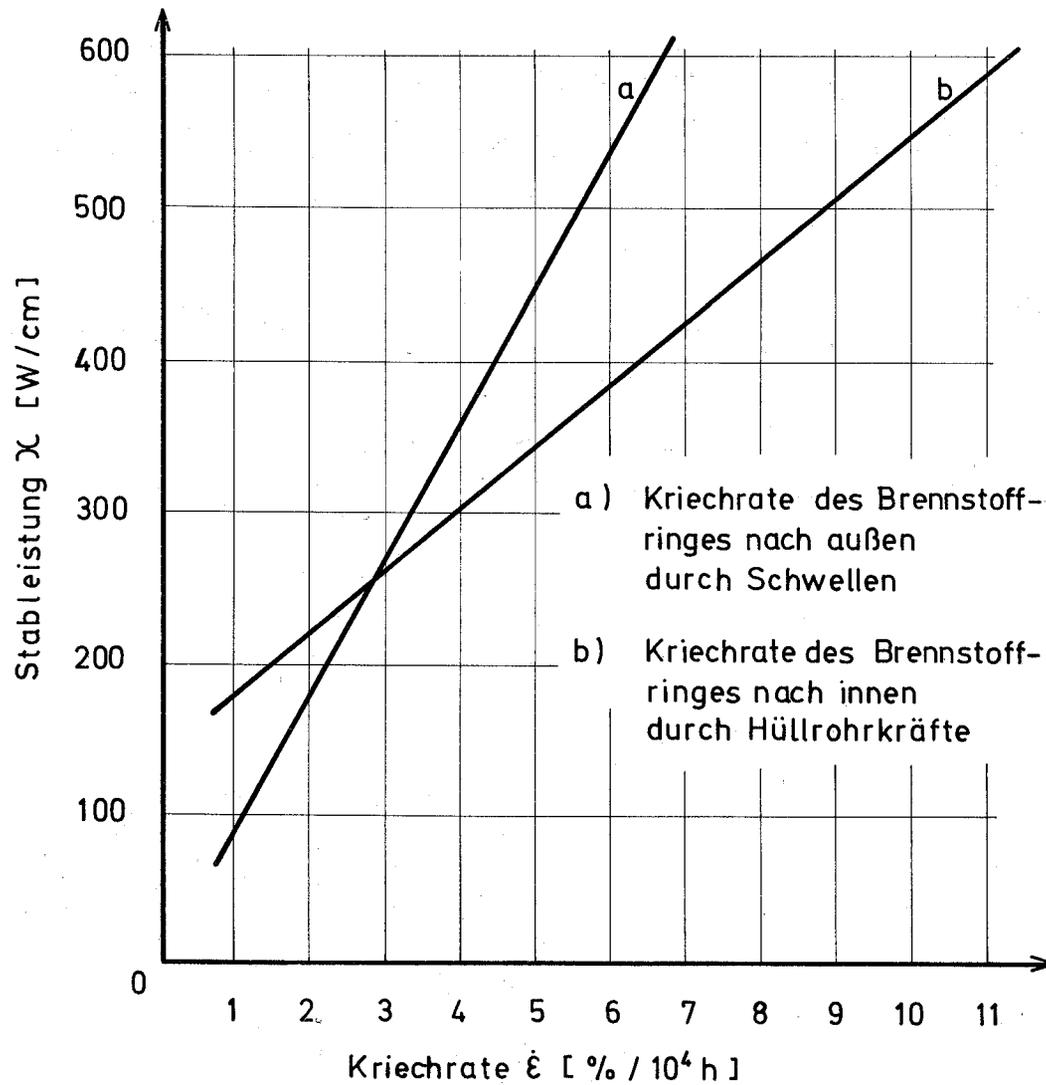


Fig.7 Abhängigkeit der entgegengerichteten Brennstoffkriechraten $\dot{\epsilon}$ von der Stableistung \mathcal{X} (Brennstoffoberflächentemperatur $T_a = 700$ °C)

VI. TRANSPORTERSCHEINUNGEN IM OXIDISCHEN BRENNSTOFF

von

H. Blank

Inhalt:

1. Einleitung
2. Zustand des Brennstoffes unter Bestrahlung
3. Kationendiffusion unter Bestrahlung
4. Einfluß der Spaltrate auf die Leerstellendiffusion
5. Einige Bemerkungen zur plastischen Verformung ohne Bestrahlung
6. Tieftemperaturplastizität unter Bestrahlung
7. Der Einfluß gelöster Gasatome auf die Defektkonzentrationen
8. Literatur

1. Einleitung

Das Ausmaß des Materietransportes im oxidischen Kernbrennstoff unter Betriebsbedingungen bestimmt weitgehend die Funktionsfähigkeit, d.h. die Lebensdauer, des Brennstabes. Dabei kann man zwei Transportarten unterscheiden:

- a) Materietransport, der zur Änderung der Geometrie des Brennstabes führt,
- b) Materietransport, der innerhalb des Brennstoffes zu Konzentrationsverschiebungen von Spalt- und Brutstoff und von Spaltprodukten führt, ohne daß die Geometrie geändert wird.

Tatsächlich sind beide Transportarten wenigstens teilweise gekoppelt. In diesem Abschnitt werden einige wenige Beispiele dieser Transportvorgänge vom atomistischen Standpunkt aus erörtert, denn die Kenntnis des Transportmechanismus erlaubt ein Urteil darüber, in welchen Grenzen und auf welche Art er von außen beeinflussbar ist.

Wesentliche Transportvorgänge im Brennstab sind:

- a) Sintern im Reaktor
- b) Plastische Verformung
- c) Porenwanderung
- d) Wanderung von Spaltgas, Schwellen des Brennstoffes
- e) Wanderung von Spalt- und Brutatomen im Kristallgitter
- f) Wanderung von festen (löslichen und unlöslichen) Spaltproduktatomen im Kristallgitter

Als treibende Kräfte für diese Transporterscheinungen treten entweder der Temperaturgradient dT/dx , der Gradient des elektrochemischen Potentials $grad \bar{\mu}$ oder auch mechanische Kräfte auf, z.B. verursacht durch die thermische Ausdehnung oder durch Schwellen. Fast in allen Fällen handelt es sich bei diesem Materietransport um atomare Platzwechselfvorgänge, die bei gegebener Temperatur T , einem Temperaturgradienten dT/dx bei einem Abbrand S Spaltungen/cm³ und einer Spaltrate S Spaltungen/cm³.sec ablaufen. Da diese Platzwechselfvorgänge in UO_2 und $(U, Pu)O_2 + x$ zum großen Teil schon außerhalb des Reaktors, d.h. bei $S = 0$ und $S = 0$, noch wenig ver-

standen sind, ist der gegenwärtige Stand unserer atomistischen Kenntnisse über die Transporterscheinungen unter Bestrahlung noch sehr unbefriedigend.

Die Grundlage für die meisten Transportmechanismen ist die Kationendiffusion im $MO_2 + x$ ($M = U$ oder $U_{1-y}Pu_y$), deshalb werden wir diese eingehend erörtern und dann auf die plastische Verformung unter Bestrahlung anwenden. Einige Bemerkungen zum Spaltgasverhalten werden diesen Beitrag abschließen.

Wir werden weder die Porenwanderung, noch Thermoeffusion von Spalt- oder Spaltproduktatomen, noch die Spaltgaswanderung im Detail erörtern, einmal weil dies den Rahmen dieses kurzen Berichtes sprengen würde, aber vor allem auch weil die Grundlagen für eine genauere Behandlung zur Zeit noch fehlen.

2. Zustand des Brennstoffes unter Bestrahlung

Die Spaltschäden, d.h. die Defektproduktion bei der Übertragung der Energie der Spaltprodukte an das Gitter ist im UO_2 im Vergleich zu den Metallen noch kaum untersucht. Die Zeit τ_s , die ein Spaltprodukt im Gitter braucht, um alle kinetische Energie abzugeben, läßt sich grob zu $\tau_s \sim 10^{-9}$ sec abschätzen. Das Volumen V_0 , in dem während dieser Zeit Platzwechselforgänge durch Ionisierung und direkte Stöße auftreten, ist etwa $V_0 \sim 10^{-16}$ cm³. Bei einer Spaltrate von $\dot{S} \sim 10^{14}$ cm⁻³ sec⁻¹ wird dann der Bruchteil des Gittervolumens, der sich in jedem Augenblick in diesem "aktivierten" (flüssigkeitsähnlichen) Zustand befindet

$$\frac{\Delta V}{V} = \dot{S} V_0 \tau_s \sim 10^{-11}$$

d.h. selbst bei hohen Spaltraten befindet sich praktisch das gesamte Gitter in einem gut kristallisierten Zustand, in dem alle Gesetze der Festkörperphysik gelten.

Die beim Abbremsen der Spaltprodukte im Gitter primär und sekundär erzeugten Defekte sind Gitterlücken und Zwischengitteratome, sowohl im Kationenteilgitter, als auch im Anionenteilgitter (Sauerstoffteilgitter). Für die folgenden Betrachtungen reicht es völlig

aus, nur die Kationendefekte (Uran und Plutonium-Gitterlücken und Zwischengitteratome) zu berücksichtigen, da die Beweglichkeit der Sauerstoffionen bei den interessierenden Temperaturen so hoch ist, daß die Gitterfehler im Anionenteilgitter sehr rasch ausheilen und die mit den Kationendefekten erzeugten örtlichen elektrischen Felder durch entsprechende Sauerstoffdiffusion sofort wieder kompensiert werden.

Bei Beginn der Bestrahlung wird im Kristallgitter zunächst eine Defektkonfiguration aufgebaut, die stark von T , S und \dot{S} abhängt, bis bei $S \sim 10^{17}$ bis 10^{18} Spaltungen pro cm^3 eine erste Sättigung erreicht ist [1,2]. Sie besteht vor allem darin, daß sich ein Versetzungsnetzwerk ausgebildet hat, dessen Maschenweite vermutlich eine Funktion von S und T ist. Die erste genauere Untersuchung hierzu stammt von Whapham und Sheldon [2]. Sie finden nach $S = 2,2 \times 10^{19}$ Spaltungen/ cm^3 und einer Bestrahlungstemperatur $T = 100^\circ\text{C}$ einen mittleren Versetzungsabstand von etwa 2000 \AA .

Im weiteren Verlauf der Bestrahlung ($S > 10^{19}$) werden die laufend erzeugten Gitterdefekte teils an Senken verschwinden (Versetzungsnetzwerk), teils rekombinieren und weiter wird ein großer Teil der Gitterlücken von Spaltgasatomen eingefangen werden und zur Erzeugung von Gasblasen beitragen. Dieser Vorgang wird stark von S und T abhängen. Kennt man die Verteilung der Senken (Versetzungsnetzwerk, Korngrenzen, Gasblasen) sollte es möglich sein, die Gleichgewichtskonzentrationen von Gitterlücken, Zwischengitteratomen und im Gitter gelösten Gasatomen zu berechnen und bei bekannten Aktivierungsenergien für die Beweglichkeit der drei Punktdefektarten auch das Verhalten des Systems bei Variationen von Temperatur T und Spalt-rate \dot{S} vorauszusagen. Hierfür fehlen im Augenblick allerdings noch fast alle notwendigen experimentellen Angaben, um physikalisch sinnvolle Vereinfachungen an dem sonst nicht lösbaeren Differentialgleichungssystem machen zu können, das diese Zusammenhänge beschreibt.

In Kapitel 3 werden wir ein sehr stark vereinfachtes Modell dieses Gleichungssystemes ohne Spaltgaseffekte benutzen und in Kapitel 7 den Einfluß des gelösten Spaltgases kurz erörtern.

Im Hinblick auf diese Situation ist es augenblicklich nicht möglich, von der Atomistik her zuverlässige Angaben über Transportvorgänge zu machen. Die in Kapitel 4 und 6 angeführten sehr stark vereinfachten Beispiele sind daher mehr als Hinweise und grob qualitative Abschätzungen aufzufassen, denn als exakte quantitative Ergebnisse.

3. Kationendiffusion unter Bestrahlung

Normalerweise findet Gitterdiffusion über thermisch erzeugte Gitterlücken statt. Dann gilt für den Selbstdiffusionskoeffizienten (und analog für den chemischen Diffusionskoeffizienten)

$$D_v = b_v \nu_v C_o \quad (1)$$

$$\nu_v = \nu_o \exp(-H_w^v/RT) \quad (1a)$$

$$C_o = \exp(-H_B^v/RT) \quad (1b)$$

Dabei bedeuten H_w^v und H_B^v die Aktivierungsenergie für Wanderung bzw. Bildung von Urangitterlücken. ν_v ist die Zahl der Sprünge, die eine Gitterlücke pro sec. ausführt, C_o die Konzentration der Gitterlücken im thermischen Gleichgewicht und b_v ein geometrischer Faktor der Dimension cm^2 . Wie in Kapitel 2 erläutert, treten unter Bestrahlung zur Konzentration der Gitterlücken C_o die Konzentrationen C_v und C_i der Gitterlücken und Zwischengitteratome hinzu, die durch die Kernspaltungen erzeugt wurden. Der Materietransport wird dann unter Bestrahlung durch zwei Diffusionskoeffizienten beschrieben

$$D_v = b_v \nu_v (C_o + C_v) \quad (2)$$

$$D_i = b_i \nu_i (1 - C_i) \quad (3)$$

wobei aber wegen $C_i \ll 1$ die Größe C_i vernachlässigt werden kann.

Wir werden zunächst (2) und die Größen C_v und C_i etwas genauer untersuchen und dann eine modellmäßige Abschätzung für den Materietransport unter Bestrahlung bei tiefen Temperaturen geben (Kapitel 6).

4. Einfluß der Spaltrate auf die Leerstellendiffusion

Vernachlässigt man die Spaltgasproduktion (kurze Bestrahlungszeit) und nimmt eine feste Verteilung von Senken für Gitterlücken und Zwischengitteratome an (erste Sättigung der Strahlenschäden), dann stellt sich ein Gleichgewicht für Produktion und Ausheilung der Gitterdefekte ein, das sich durch folgende Gleichungen beschreiben läßt:

$$K_v = (C_o + C_v) C_i \nu_i + C_v \nu_v A_v \quad (4)$$

$$K_i = (C_o + C_v) C_i \nu_i + C_i \nu_i A_i \quad (5)$$

$$K_i = K_v = K \quad (5a)$$

Dabei ist $K_i = K_v$ die Produktionsrate der Frenkeldefekte und $A_i = A_v$ eine Größe, die Art und Dichte der Senken für Gitterlücken und Zwischengitteratome beschreibt. Die Größen ν_v und ν_i sind durch Gl. (1a) und C_o durch (1b) definiert. (4) und (5) besagen, daß die mit der Häufigkeit K produzierten Gitterlücken teils durch Annihilieren mit Zwischengitteratomen und teils an Senken (Versetzungen) verschwinden. Analoges gilt für die Zwischengitteratome.

Man erhält aus (4) und (5)

$$C_v = \frac{1}{2} (A + C_o) \left\{ \left[\frac{4K}{\nu_v (A+C_o)^2} + 1 \right]^{\frac{1}{2}} - 1 \right\} \quad (6)$$

$$C_i = \frac{1}{2} \frac{\nu_v}{\nu_i} (A+C_o) \left\{ \left[\frac{4K}{\nu_v (A+C_o)^2} + 1 \right]^{\frac{1}{2}} - 1 \right\} \quad (7)$$

Beide Defektkonzentrationen verschwinden für $K = 0$, hängen aber sonst noch von der Leerstellenkonzentration im thermischen Gleichgewicht ohne Bestrahlung C_o ab.

Beim Einsetzen der Zahlenwerte in (6) und (7) sieht man, daß bei niedrigen Temperaturen und genügend hohen Spaltraten folgende Näherungsbeziehungen gelten:

$$C_v \approx \left(\frac{K}{\nu_v} \right)^{1/2} \quad (6a)$$

$$C_i \approx \frac{\nu_v}{\nu_i} \left(\frac{K}{\nu_v} \right)^{1/2} \quad (7a)$$

Die Defektkonzentrationen sind dann proportional der Quadratwurzel aus der Spaltrate und haben eine Temperaturabhängigkeit, die mit der halben Wanderungsenergie für Gitterlücken zusammenhängt.

Zur Auswertung von (6) und (7) benötigen wir realistische Werte der vorkommenden Parameter. Der hier gemachte Versuch, sie zu finden, zeigt wie gering unsere Kenntnisse vom UO_2 und seinen Eigenschaften unter Bestrahlung noch sind. Die wenigen und unsicheren experimentellen Ergebnisse, die zur Verfügung stehen, erlauben deshalb bestenfalls mögliche Hypothesen aufzustellen, aber keine exakten Aussagen.

Eine erste Abschätzung der Werte für diese Parameter erhält man aus den folgenden Überlegungen:

a) die Defekterzeugungsrate K

Es gilt

$$K = \frac{n \dot{S}}{N} \quad (8)$$

\dot{S} = Spaltrate, n = Anzahl der Frenkelpaare mit einer Lebensdauer $\tau > 10^{-9}$ sec, die pro Kernspaltung erzeugt werden, N = Anzahl der Uranatome pro cm^3 . Aus den Ergebnissen von Whapham und Sheldon [2] bei $100^\circ C$ Bestrahlungstemperatur erhält man $n \sim 100$. Setzt man $\dot{S} = 10^{14}$ Spaltungen pro cm^3 und Sekunde, wird $K \sim 4 \cdot 10^{-7} \text{ sec}^{-1}$.

b) die Senkendichte A

Hat sich das Versetzungsnetzwerk einmal ausgebildet, gilt $A_i = A_v$. Bei einer Versetzungsdichte von N_0 Versetzungen pro cm^2 wird in einer ersten groben Näherung [7,8]

$$A = \frac{N_0 a^2 2\pi}{\ln R/r_0} \quad (9)$$

Nach [2] hat man nach $\dot{S} = 2,2 \times 10^{19}$ Spaltungen pro cm^3 $N_0 \approx 2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2}$. Weiter gilt $a = 3,87 \times 10^{-8} \text{ \AA}$ und bei der hier betrachteten Versetzungsdichte ist $2\pi \sim \ln R/r_0$. Damit wird

$$A = N_0 a^2 \sim 3 \times 10^{-6}$$

- c) Die Aktivierungsenergien für die Wanderung und die Bildung von Defekten in UO_2

Die Selbstdiffusion von Uran in UO_2 ist zwar mehrfach untersucht worden, aber bis heute sind die Ursachen für erhebliche Diskrepanzen in den Ergebnissen nicht geklärt. Es gilt nach Schmitz und Lindner [4] in der Beziehung $D = D_0 \exp - Q/RT$

$$D_0 = 0,23 \quad Q = 104,6 \text{ kcal/mol} \quad (10)$$

dagegen nach Auskern und Belle [5] sowie van Lierde [6]

$$D_0 = 4,3 \times 10^{-4} \quad Q = 88 \text{ kcal/mol} \quad (11)$$

Man kann voraussetzen, daß die Urandiffusion über Leerstellen geht, dann gilt auch bei UO_2

$$Q = H_B^V + H_W^V \quad (12)$$

siehe auch (1a) und (1b). Weiterhin benötigen wir neben den Aktivierungsenergien für die Bildung und die Wanderung von Leerstellen H_B^V bzw. H_W^V noch die Wanderungsenergie für Zwischengitteratome H_W^i . Zur Bestimmung dieser drei Größen stehen neben den stark verschiedenen Ergebnissen (10) und (11) im Augenblick nur zwei weitere experimentelle Ergebnisse [2] und [3] zur Verfügung, so daß die im folgenden erschlossenen Werte nur mit Vorbehalt betrachtet werden dürfen.

Nagels et al [3] finden aus der Erholung des elektrischen Widerstandes in UO_2 , das bei $80^\circ C$ bis $S = 5 \times 10^{15}$ Spalt./ cm^3 bestrahlt worden war, eine Aktivierungsenergie

$$H \approx 53 \text{ kcal/mol} \quad (13)$$

H ist die Wanderungsenergie eines Defektes im Uranteilgitter, von dem zunächst unklar ist, ob es sich um Gitterlücken, Zwischengitteratome oder einen komplizierten Defekt handelt.

Andererseits findet Whapham [2] bei gleichen Bestrahlungsbe-

dingungen Agglomerate von Punktdefekten mit ca. 25 \AA Durchmesser und einer Dichte von 10^{16} cm^{-3} , die sich bei weiterer Bestrahlung als Keime für Versetzungsringe aus Zwischengitteratomen herausstellten. Dies bedeutet, bei 100°C sind Zwischengitteratome schon sehr beweglich, während Gitterlücken noch praktisch unbeweglich sind. Nach einer Faustregel über thermisch aktivierte Prozesse $Q \sim \gamma RT$, $\gamma \approx 30$, läßt sich damit eine obere Grenze für die Wanderungsenergie der Uranzwischengitteratome im UO_2 angeben.

$$H_W^i \lesssim 22 \text{ kcal/mol} \quad (14)$$

Unter diesem Aspekt liegt es nahe, das Ergebnis von Nagels et al von (13) als Wanderungsenergie für Uranleerstellen zu deuten.

$$H_W^v \approx 53 \text{ kcal/mol} \quad (13a)$$

Nach (12) hat man dann mit (10) und (11) zwei mögliche Werte für die Bildungsenergie der Urangitterlücken,

$$H_{B1}^v \approx 51,6 \text{ kcal/mol} \quad [4] \quad (15a)$$

$$H_{B2}^v \approx 35 \text{ kcal/mol} \quad [5,6] \quad (15b)$$

zwischen denen im Augenblick nicht entschieden werden kann. Vergleicht man H_B^v und H_W^v mit den entsprechenden Größen bei den Metallen, so würden die Werte (13a) mit (15a) und (10) plausibler erscheinen, jedoch reicht dieses Argument für eine Entscheidung auf keinen Fall aus.

Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 nochmals zusammengestellt.

Sie wurden benutzt, um den Zusammenhang zwischen dem Leerstellendiffusionskoeffizienten D_v nach (2) der Temperatur T und der Spaltrate S in Fig.1 darzustellen. Dabei wurden in der ausgezogenen Kurve $I_A - I_B$ die Werte von (10) und in der ausgezogenen Kurve $II_A - II_B$ diejenigen von (11) zugrundegelegt. Die Geraden $I_A - I_A$ und $II_A - II_A$ stellen den Temperaturverlauf von D_v ohne Bestrahlung nach Gl. (10) bzw. (11) dar, wobei aber die Kurve II_A weit über ihren Gültigkeitsbereich hinaus zu tiefen Temperaturen extrapoliert werden mußte, um noch den Anschluß an den Diffusions-

koeffizienten mit Bestrahlung zu erhalten.

Aus der Fig.1 läßt sich entnehmen:

a) Der Temperaturbereich, in dem der Übergang zwischen reiner thermischer Diffusion und der durch Strahlenschäden verstärkten Leerstellendiffusion erfolgt, ist ziemlich breit. Das ist zu berücksichtigen, wenn man die Temperaturabhängigkeit von Diffusion unter Bestrahlung in Reaktorexperimenten verfolgt. Es können dabei falsche Aktivierungsenergien vorgetäuscht werden.

b) Unter den hier behandelten Bedingungen (feste Verteilung von Senken, Vernachlässigung der Spaltgaswechselwirkung) gilt für den Leerstellendiffusionskoeffizienten bei tiefen Temperaturen $T < T_k$

$$D_v = D_0 \left(\frac{K}{\nu_0} \right)^{1/2} \exp \left(- \frac{1}{2} \frac{H_w^v}{RT} \right) \quad (16)$$

d.h. er ist erheblich weniger von der Temperatur abhängig als bei der thermischen Diffusion, aber relativ stark, d.h. wie $\dot{S}^{1/2}$ von der Spaltrate, siehe Fig.1, rechter linearer Teil der Kurven I_B und II_B . Die Kurvenäste $I_B - I_B$ bzw. $II_B - II_B$ repräsentieren den Anteil von D_v , der durch die Spaltrate \dot{S} verursacht worden ist. Sie besitzen ein Maximum, dessen Abszisse und Breite durch die Werte der Größen H_B^v und A und dessen Höhe hauptsächlich durch D_0 und K , d.h. \dot{S} , bestimmt wird. Bei hohen Temperaturen nimmt der Bestrahlungseinfluß auf D_v wieder ab (linker gekrümmter Teil der Kurven $I_B - I_B$ und $II_B - II_B$), da infolge der höheren Beweglichkeit der Gitterdefekte die durch die Bestrahlung erzeugten Gitterlücken und Zwischengitteratome in stärkerem Maße rekombinieren und an Senken verschwinden als bei tiefen Temperaturen.

c) Der Gesamtverlauf der Kurven $D_v(T) I_A - I_B$ bzw. $II_A - II_B$ hängt wesentlich davon ab, ob das Maximum des Bestrahlungsanteils breit ist (Kurve $I_A - I_B$) oder scharf ausgeprägt ist (Kurve $II_A - II_B$). Im letzteren Fall läßt sich der Temperaturbereich, in dem der Übergang von der reinen thermischen Diffu-

sion in die durch \dot{S} induzierte Leerstellendiffusion erfolgt, näherungsweise durch eine Temperatur T_K charakterisieren, die gegeben ist durch

$$T_K \sim \frac{2Q - H_W^V}{R(\ln \gamma_0 - \ln K)} \quad (17)$$

Wie man sieht, steigt T_K mit wachsendem Wert von $K \sim \dot{S}$ an. Im Falle der Kurve $I_A - I_B$ würde man aber T_K nach (16) um mehr als 100° zu hoch erhalten.

- d) Physikalisch erscheint der Verlauf der Kurve $II_A - II_B$ unwahrscheinlich und vermutlich sind die Werte von D_0 und Q nach (11) auf einen etwas anderen Diffusionsmechanismus zurückzuführen als diejenigen von (10).
- e) Vernachlässigt man die Wechselwirkung der Gitterdefekte mit den Spaltgasblasen nicht, ändert sich die Beziehung (17) in eine andere Abhängigkeit, die noch nicht untersucht ist, die aber sicher auch eine geringere Temperaturabhängigkeit als bei thermischer Diffusion aufweist.

Der relativ hohe Selbstdiffusionskoeffizient bei tiefen Temperaturen bewirkt, daß feste Spaltprodukte auch bei tiefen Temperaturen und relativ kurzen Bestrahlungszeiten schon im Gitter wandern können. Um die Bedingungen zu erfassen, unter denen sie sich bei gegebener Temperatur, Spaltrate und Abbrand tatsächlich ausscheiden, reichen jedoch die einfachen Ansätze für die Defektkonzentrationen, aus denen die Gleichungen (4) und (5) stammen, nicht aus.

5. Einige Bemerkungen zur plastischen Verformung ohne Bestrahlung

Sieht man von der plastischen Verformung eines Polykristalles durch Korngrenzengleiten ab, gibt es zwei Möglichkeiten einen kristallinen Festkörper zu verformen.

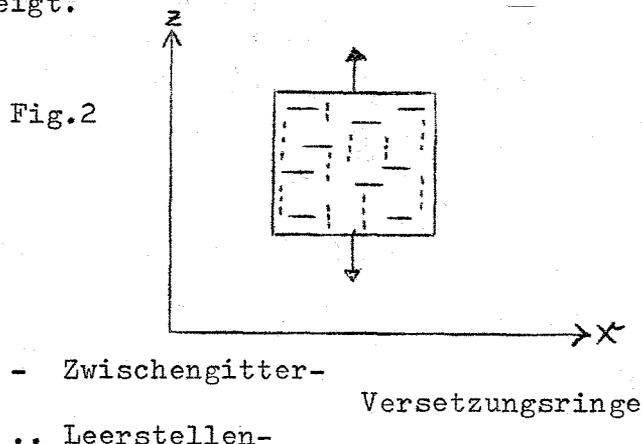
- a) durch Bewegung von Versetzungen unter äußeren (oder auch inneren Kräften, dies ist die normale Kristallplastizität,
- b) durch gerichtete Diffusion von Gitterlücken (und Zwischengitteratomen, siehe unten) infolge äußerer Spannungen, dies ist das sog. Nabarro-Herring-Kriechen [9].

Stöchiometrisches UO_2 wird etwa ab 1400°C für rasche Verformung plastisch [10], Versetzungskriechen sollte schon bei tieferen Temperaturen möglich sein (1200°C) [11]. Dagegen läßt sich überstöchiometrisches UO_2 schon ab 800°C plastisch verformen. Dies wurde bisher meist mit der höheren Uran-Selbstdiffusion in UO_{2+x} begründet, jedoch werden auch die Eigenschaften der Versetzungen durch den Überschuß-Sauerstoff geändert [12]. Versuche, das Kriechen von UO_2 mit dem Nabarro-Herring-Mechanismus zu erklären, waren bisher unbefriedigend, da sich die relativ hohen Kriechgeschwindigkeiten auf diese Weise nicht deuten lassen.

Beispiele für den Nabarro-Mechanismus ohne Bestrahlung gibt es bei hohen Temperaturen. Unter Bestrahlung dürfte er aber bei tiefen Temperaturen der wichtigste Verformungsmechanismus überhaupt sein.

6. Tieftemperaturplastizität unter Bestrahlung

Legt man an einen Kristall unter den in Kapiteln 2 bis 4 geschilderten Bedingungen eine äußere Spannung an, werden die Gitterdefekte nicht mehr statistisch isotrop zu den ebenfalls statistisch orientierten Senken wandern, sondern es werden diejenigen Senken von der Defektart bevorzugt, die eine Deformation im Sinne der äußeren Spannung verursachen. Die Verhältnisse sind im Prinzip in Fig.2 gezeigt.



Die kurzen Striche sollen Zwischengitterversetzungsringe und die Punktreihen Leerstellenversetzungsringe symbolisieren, die beide als Senken für beide Defektarten wirken können. Wenn unter der

äußeren Spannung alle Zwischengitteratome nur zu den Zwischengitterversetzungsringen wandern, wird das betrachtete Volumen in z-Richtung plastisch gedehnt und in x-Richtung plastisch schrumpfen.

Die Gleichungen (4) bis (7) enthalten die nötigen Zusammenhänge, um die für diese Verformung zur Verfügung stehenden Teilchenströme im Rahmen des zugrunde gelegten Modelles zu berechnen. Solange man den Einfluß des Spaltgases vernachlässigen kann (kurze Bestrahlungszeiten) ist die für den Kriechvorgang effektive Produktionsrate K_e für Zwischengitteratome und Gitterlücken gleich.

$$K_e = A C_i \nu_i \quad (18)$$

Mit den in Tabelle 1 abgeschätzten Beziehungen läßt sich die Temperaturabhängigkeit von K_e und damit die des Kriechvorganges angeben.

Der Ausdruck für die eindimensionale plastische Kriechgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}_p$ lautet für den stationären Zustand

$$\dot{\epsilon}_p = V_p \cdot N \cdot K_e \quad (19)$$

$V_p = 4,1 \cdot 10^{-23} \text{ cm}^3$ ist das Volumen eines UO_2 -Moleküls im UO_2 -Gitter und N ist die Anzahl der Uranatome pro cm^3 .

Bei der Ableitung der Gl. (19) ist vorausgesetzt, daß die Sauerstoffdiffusion stets mühelos der Urandiffusion folgen kann, so daß die langsamere Urandiffusion den geschwindigkeitsbestimmenden Schritt darstellt, siehe 2. Dies ist bei Temperaturen $T \gtrsim 100^\circ\text{C}$ der Fall [2].

Legt man die Verhältnisse nach Fig. 1, Kurve I und (10) zugrunde, läßt sich bis etwa 1000°C die Größe C_i durch

$$C_i = \frac{\nu_v}{\nu_i} \left(\frac{K}{\nu_v} \right)^{1/2} \quad (20)$$

darstellen, und es gilt mit (18), (19) und (8)

$$\dot{\epsilon}_p = m \cdot S^{1/2} \cdot e^{-H^v/2RT} \quad (21)$$

$m \sim \text{const.}$

Mit den Werten aus Tabelle 1 läßt sich für 730°C eine Kriechgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}_p \sim 3 \cdot 10^{-9} \text{ sec}^{-1}$ abschätzen. Jedoch kann dieser Zahlenwert um Größenordnungen falsch sein.

Das wesentliche Ergebnis an (21) ist die Tatsache, daß die Kriechgeschwindigkeit mit der Quadratwurzel aus dem Fluß geht und eine Temperaturabhängigkeit besitzt, die mit der halben Wanderungsenergie für Leerstellen zusammenhängt, die Beweglichkeit der Zwischengitteratome fällt interessanterweise in (21) heraus. Wäre die Rekombination zwischen Leerstellen und Zwischengitteratomen unberücksichtigt geblieben, hätte man $\dot{\epsilon}_p$ proportional S und unabhängig von der Temperatur gefunden.

Die durch die Spaltrate S verursachte Tieftemperaturplastizität ist zweifellos auch die wesentliche Ursache für das Nachsintern des Kernbrennstoffes zu Beginn der Reaktorbestrahlung.

7. Der Einfluß gelöster Gasatome auf die Defektkonzentrationen

Die Literatur über die Gasabgabe aus Kernbrennstoffen ist umfangreich, aber erst in den letzten 5 Jahren hat man gelernt, das Verhalten der Gase im Gitter zu verstehen. Hierzu hat vor allem die Elektronenmikroskopie beigetragen, mit deren Hilfe man Gasblasen in dünnen Folien sehen und ihr Verhalten studieren kann [13] bis [18]. Die ersten Arbeiten für das Verständnis der Gasblasen allgemein wurden jedoch nicht an UO_2 , sondern von Barnes und Mitarbeitern (Harwell) in den Jahren 1960 - 1964 an Kupfer gemacht, siehe auch [19].

Das Verhalten der im Gitter gelösten Gase unter Bestrahlung dagegen läßt sich nur indirekt erschließen, indem man die Gasabgabe während der Bestrahlung oder durch Aufheizen der Proben nach der Bestrahlung verfolgt.

Aus der Tatsache, daß im UO_2 , das bei 100°C bis $S = 2,2 \cdot 10^{19}$ bestrahlt worden war, keine Gasblasen gefunden wurden und daß diese sich erst nach Aufheizen bis 1100°C zu bilden begannen [16], weiter daß nach Bestrahlung bei 700°C bis $S \sim 10^{20}$ ebenfalls noch keine Gasblasen im UO_2 vorhanden waren und diese erst durch nach-

trägliches Aufheizen bis 1500°C entstehen [18], geht klar eine außerordentlich hohe Löslichkeit der Gase im Gitter unter Bestrahlung hervor. Sie liegt viele Zehnerpotenzen über der normalen Löslichkeit für Xe und Kr in UO_2 , die etwa 10^{-7} % beträgt. Für das Verhalten des Brennstoffes wäre es daher wichtig, diese Löslichkeit als Funktion von T, S und S zu kennen, um bei Auslegung des Brennelementes und im Betrieb die optimalen Bedingungen für das Verhalten des Brennstoffes einstellen zu können. Dies ist im Augenblick nicht möglich. Man kann aber für den Fall, daß die Temperatur nicht zu hoch (vielleicht $T \leq 1200^{\circ}\text{C}$) und der Fluß hoch genug ist, in einer ersten groben Näherung den Einfluß der Gasatome auf das Fehlstellengleichgewicht in (4) und (5) berücksichtigen.

Das Volumen eines Xe-Atomes ist mit $V_{\text{Xe}} = 50 \text{ \AA}^3$ so groß, daß es unter keinen Umständen in einer Oktaederlücke des UO_2 -Gitters Platz hat. Dagegen sahen wir, daß ein UO_2 -Molekül im Gitter ein Volumen $V = 41 \text{ \AA}^3$ erfüllt. Deformiert man daher das Volumen einer UO_2 -Molekül-gitterlücke zu einer Kugel und weitet deren Radius um etwa 7 %, hat das Edelgasatom im Gitter Platz. Es ist dann allerdings noch von einem anisotropen Spannungsfeld umgeben, das wenigstens auf eine weitere UO_2 -Gitterlücke eine Anziehung ausüben sollte. Unter diesen Voraussetzungen können wir annehmen, daß jedes Edelgasatom sofort nach seiner Entstehung etwa zwei Kationengitterlücken mit den zugehörigen Sauerstoffgitterlücken verbraucht, aber im Gitter relativ unbeweglich ist.

Solange nun das Gas im Gitter gelöst bleibt, d.h. sich noch keine stabilen Keime für Gasblasen bilden a) weil entweder die Temperatur für die Wanderung der Gasatom-Gitterlücken Komplexe nicht ausreicht oder b) weil infolge einer hohen Spaltrate S die sich bildenden Keime für Gasblasen laufend wieder aufgelöst werden, braucht man in (4) nur $K_v = K - nK_g$, $1 < n \lesssim 2$ zu setzen, und (5a) gilt nicht mehr. K_g bedeutet die Produktionsrate der Gasatome. Man erhält dann aus (4) und (5) für die Näherung bei tiefen Temperaturen, siehe (6a) und (7a):

$$C_v \approx \left(\frac{K'}{V_v} \right)^{1/2} \quad (22)$$

wobei
$$K' = K - n K_g \left(1 + \frac{C_0}{A}\right) \quad (22a)$$

und

$$C_i = \left(\frac{K}{\nu_v}\right)^{1/2} \frac{\nu_v}{\nu_i} \quad (23)$$

Dieses Ergebnis ist etwas überraschend, denn es zeigt, daß zwar wie erwartet die durch die Bestrahlung induzierte Konzentration der Gitterlücken abgenommen hat, daß aber die Konzentration der Zwischengitteratome in dieser Näherung nicht beeinflußt worden ist. Das bedeutet, nicht die Rekombination zwischen Gitterlücken und Zwischengitteratomen wird durch das in Lösung befindliche Spaltgas beeinflußt, sondern nur die Zahl der Gitterlücken verringert, die an Senken verschwinden. Jedoch müssen diese oder ähnliche Modelle genauer studiert werden, ehe weiterreichende Schlüsse daraus gezogen werden können. Wichtig ist aber die Tatsache, daß die Abhängigkeit der Defektkonzentrationen von Temperatur und Spaltrate auch durch gelöstes Spaltgas in erster Näherung nicht geändert wird.

Wenn das Spaltgas bei höheren Temperaturen in Form von Gasblasen ausgeschieden ist, kennt man sein Verhalten relativ gut, und es existieren Modelle über die Bewegung von Gasblasen unter einem Temperaturgradienten [22] und über die Spaltgasabgabe aus UO_2 [23] sowie über das Schwellen von Metallen [20,21].

Jedoch sind die bis jetzt aufgestellten Gesetzmäßigkeiten noch ungenügend mit der Erfahrung verglichen, und es ist wahrscheinlich, daß diese Modelle noch modifiziert werden müssen. So deuten neue Ergebnisse darauf hin, daß die Wanderung der Spaltgasblasen beeinflußt wird, wenn das Gitter stark mit festen Spaltprodukten verunreinigt ist [18].

Dagegen sind die für das Verständnis des Verhaltens des Spaltgases wichtigen Bedingungen, unter denen sich bei gegebenen Werten von S , S und T Gasblasen bilden oder wieder auflösen, noch unbekannt.

8. Literatur

- [1] L.E.J. ROBERTS et al: 3. Genfer Konferenz, Beitrag 28/P/155
- [2] A.D. WHAPHAM, B.E. SHELDON: Phil. mag. 12 1179 (1965)
- [3] P. NAGEL et al: Thermodynamics II p. 311, IAEA Wien 1966
- [4] F. SCHMITZ, R. LINDNER: Z. Naturforsch. 16a, 1373 (1961)
- [5] S. AUSKERN, J. BELLE: J. Nucl. Mat. 3, 311 (1961)
- [6] Van LIERDE, S.C.K. Mol: Persönliche Mitteilung Mai 1967
- [7] G.J. DIENES, A.C. DAMASK: J.A.P. 29 1713 (1958)
- [8] G.J. DIENES, VINEYARD: Radiation Effects in Solids (1957)
- [9] C. HERRING, J.A.P. 21, 437 (1950)
- [10] E.J. RAPPERPORT, A.M. HUNTRESS: NMI - 1242 (1960)
- [11] W.M. ARMSTRONG et al.: J. Nuc. mat. 19, 42 (1966)
- [12] H. BLANK, C. RONCHI: J. Nuc. mat. 21, 117 (1967)
- [13] R.S. BARNES, D.J. MAZEY: Proc. 3rd Europ. reg. conf.
electron micr. Prag 1964 p. 197
- [14] K.G. WILLIAMSON, R.M. CORNELL: J. Nuc. mat. 13, 278 (1964)
- [15] R.M. CORNELL, K.G. WILLIAMSON: J. Nuc. mat. 17, 200 (1965)
- [16] A.D. WHAPHAM: Nuc. appl. 2, 123 (1966)
- [17] H.J. MATZKE: Nuc. appl. 2, 131 (1966)
- [18] M.E. GULDEN: J. Nuc. mat. 23, 30 (1967)
- [19] E. RUEDL, R. KELLY: J. Nuc. mat. 16, 89 (1965)
- [20] G.W. GREENWOOD, M.V. SPEIGHT: J. nuc. mat. 10, (146 (1963)

[21] R.S. BARNES: J. Nuc. mat. 11, 135 (1963)

[22] M.V. SPEIGHT: J. Nuc. mat. 13, 207 (1964)

[23] J. BIERSACK: Nukleonik 8, 439 (1966)

Tabelle 1

$$K \sim 4 \times 10^{-7}$$

$$\text{bei } S = 10^{14} \text{ cm}^{-3} \text{ sec}^{-1}$$

$$K \sim 4 \times 10^{-9}$$

$$\text{bei } S = 10^{12} \text{ cm}^{-3} \text{ sec}^{-3}$$

$$A \sim 3 \times 10^{-6}$$

$$C_0 = \exp - \frac{H_B^v}{RT}$$

$$H_{B1}^v = 51,6 \text{ kcal/mol}$$

$$H_{B2}^v = 35 \text{ kcal/mol}$$

$$v_v = v_0 \exp - \frac{H_w^v}{RT}$$

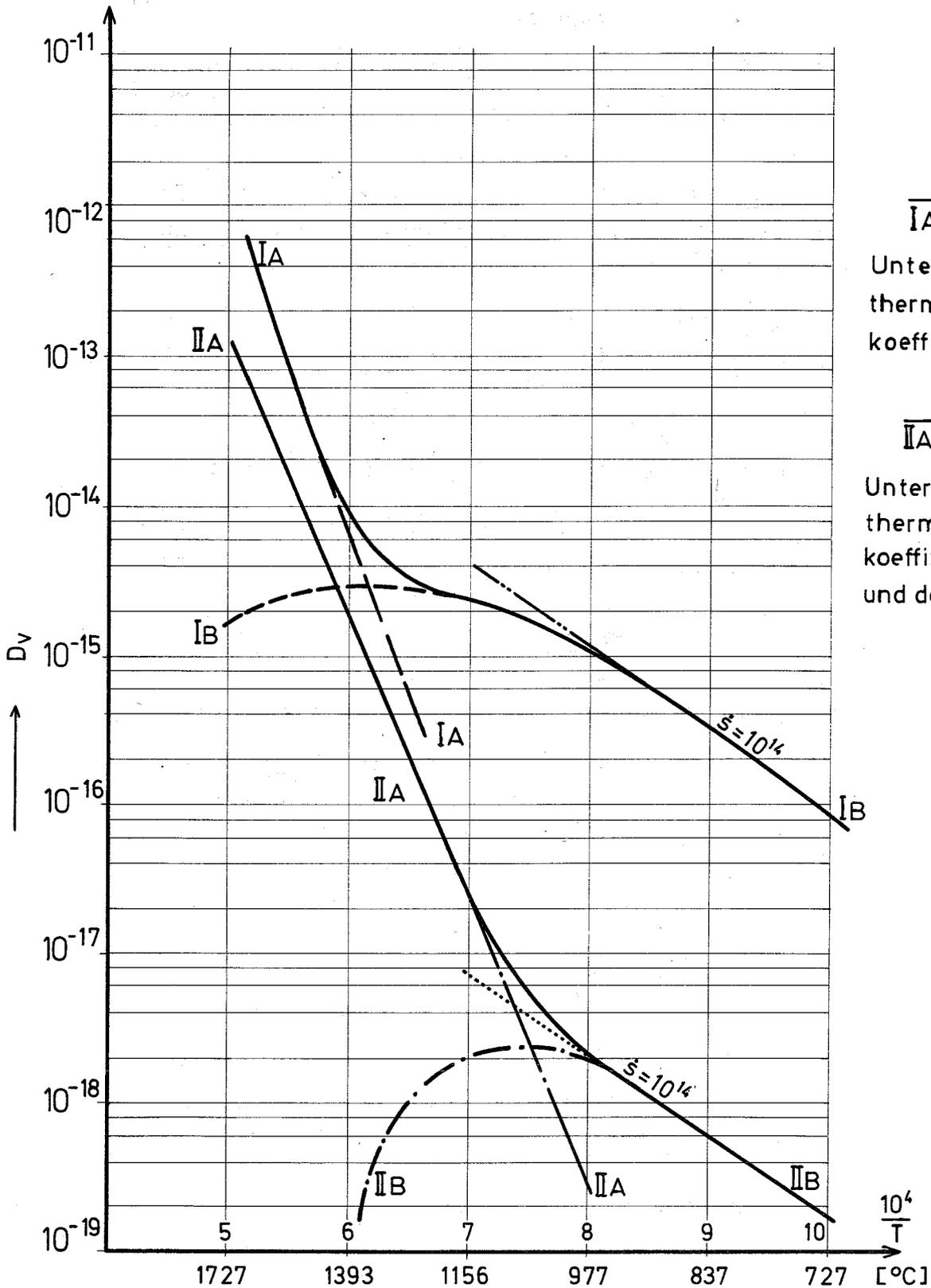
$$H_w^v = 53 \text{ kcal/mol}$$

$$v_i = v_0 \exp - \frac{H_w^i}{RT}$$

$$H_w^i \approx 20 \text{ kcal/mol}$$

$$v_0 = 10^{13} \text{ sec}^{-1}$$

Fig.1 Der Temperaturverlauf des Leerstellendiffusionskoeffizienten D_V unter Bestrahlung bei einer Spaltrate von $\dot{s} = 10^{14} \frac{\text{Spaltungen}}{\text{cm}^3 \cdot \text{s}}$



$\overline{\text{IA}} - \overline{\text{IB}}$:

Unter Benutzung des thermischen Diffusionskoeffizienten nach (10)

$\overline{\text{IA}} - \overline{\text{IB}}$:

Unter Benutzung des thermischen Diffusionskoeffizienten nach (11) und der Werte von Tab. I

VII. BRENNSTOFFZYKLUS UND BRENNELEMENTAUSLEGUNG

von

W. Häfele

Inhalt:

1. Einleitung
2. Der Brennstoffzyklus
3. Die bestimmenden Parameter
4. Die Optimalisierung
5. Die Oberflächenbelastung q

1. Einleitung

In der Brennstoffelementauslegung treffen sich Reaktorauslegung und Brennstoffzyklusauslegung. Über das Brennstoffelement ist eine Optimalisierung des Brennstoffzyklus an die Optimalisierung des Reaktors verknüpft. Die Materialeigenschaften des Brennstoffelementes sind die dabei zu beachtenden Randbedingungen.

2. Der Brennstoffzyklus

Unter solcher Perspektive sollen jetzt die wichtigsten Beiträge zu den Brennstoffzykluskosten betrachtet werden. Dabei geht es nicht darum, diese Beiträge kostenanalytisch genau anzugeben, wie das bei einer kostenmäßig genauen Berechnung sonst der Fall ist. Vielmehr soll lediglich die prinzipielle Parameterabhängigkeit der wichtigsten Beiträge klar werden.

Die hier zu betrachtenden Beiträge zu den Brennstoffzykluskosten sind demnach die folgenden:

- a) Zinskosten für den Spaltstoffeinsatz
- b) Kosten für die chemische Wiederaufarbeitung
- c) Kosten für die (Re)-Fabrikation der Brennstoffelemente
- d) Kosten für das erste core.

Der Brutgewinn soll hier nicht verrechnet werden. Alle Kosten werden auf die kWh bezogen. Ist δ der Lastfaktor, so werden im Jahr

$$8,7 \cdot 10^3 \cdot \delta \cdot M_{\text{KRIT}} \cdot b \cdot \eta \cdot 10^3 \left[\frac{\text{kWh}}{\text{a}} \right] \quad (1)$$

kWh abgegeben. η ist das Verhältnis von elektrischer zu thermischer Leistung, b ist die Brennstoffelementbelastung in MW_{th} pro kg spaltbarem Material und M_{KRIT} ist die kritische Masse des Reaktors in kg spaltbarem Material. In (1) sind offenkundig Leistungsanteile eventueller axialer oder radialer Brutmäntel nicht mit verrechnet.

Die Zinskosten einer Coreladung selbst bestimmen sich einfach

aus

$$\alpha \cdot \beta \cdot M_{\text{KRIT}} \cdot 10^6 \left[\frac{\text{mills}}{a} \right] \quad (2)$$

Dabei ist α der Plutonium (bzw. Uran) Preis in Dollar pro g spaltbares Material, β ist der Zinsfuß. Die Einheit mill bedeutet 10^{-3} \$. Der Umrechnungsfaktor zu Dpfg ist:

$$1 \text{ mill} = 0,4 \text{ Dpfg} \quad (3)$$

Damit ergibt sich der Zinskostenanteil K_{ZINS} wie folgt:

$$K_{\text{ZINS}} = \frac{\alpha \cdot \beta}{8,7 \cdot \delta \cdot \eta \cdot b} \left[\frac{\text{mills}}{\text{kWh}} \right] \quad (4)$$

Die Kosten für die chemische Wiederaufarbeitung einer Coreladung mit den dazu gehörigen (axialen) Brutmantelanteilen sind die folgenden:

$$Z_2 \cdot M \cdot 10^3 \left[\text{mills} \right] \quad (5)$$

Z_2 sind dabei die Kosten in \$ pro kg Brennstoffgemisch aus Core und axialem Brutmantel. M = Masse Brennstoffgemisch in kg einer Coreladung, d.h. Brutstoff aus Core und axialem Brutmantel und spaltbarem Material aus dem Core. Eine solche Ladung hat die folgende Standzeit

$$t_{\text{ST}} = \frac{a_m (1 + y)}{10^3 \cdot b \cdot \delta} \left[\text{d} \right] \quad (6)$$

y ist das Verhältnis der Masse der Brutatome zu der Masse der spaltbaren Atome im Core, a_m ist der mittlere Abbrand der Coreladung in MWd/t schwere Elemente. Weil der Tag 24 Stunden hat, erhält man für die Aufarbeitungskosten K_{repro} aus (5) und (6) somit den folgenden Kostenanteil:

$$K_{\text{repro}} = \frac{Z_2 \cdot 10^2}{2,4 \cdot a_m \cdot \eta} \cdot \frac{M}{M_{\text{KRIT}} (1 + y)} \left[\frac{\text{mills}}{\text{kWh}} \right] \quad (7)$$

Es ist nützlich, sich vor Augen zu halten, daß für durchgehende Brennstäbe, die den axialen Brutmantel und das Core bei gleichem Durchmesser aufnehmen, die folgende einfache Relation gilt

$$\frac{M \cdot c}{M_{\text{KRIT}} (1 + y)} = \frac{H_{\text{ges}}}{H_{\text{core}}} \quad (8)$$

c = chemischer Faktor (Verhältnis der Masse der schweren Atome zu der Brennstoffmasse, z.B. bei UO_2 $c = 0,88$).

Dabei ist H_{ges} [cm] die gesamte Länge des Brennstabes, und H_{core} [cm] ist die Länge des aktiven core Teiles.

Bezeichnet \bar{Z}_1 die über die Anteile des axialen Brutmantels und des Cores gemittelten Fabrikationskosten in \$ pro kg (Misch-) Brennstoff, so ergibt sich für den Kostenanteil der Fabrikation K_{refabr} einer Coreladung zunächst in formal gleicher Weise wie bei (7) der folgende Ausdruck:

$$K_{refabr} = \frac{\bar{Z}_1 \cdot 10^2}{2,4 \cdot a_m \cdot \eta} \cdot \frac{M}{M_{KRIT} (1 + y)} \left[\frac{\text{mills}}{\text{kWh}} \right] \quad (9)$$

Allerdings muß jetzt beachtet werden, daß die Einheitskosten \bar{Z}_1 eine Funktion des Radius R in cm der Brennstoffstäbe sind, d.h.

$$\bar{Z}_1 = f(R) \quad (10)$$

Eine sorgfältige Auswertung dieser Radiusabhängigkeit führt zwar zu noch übersichtlichen, jedoch nicht mehr ganz einfachen Zusammenhängen [1]. Da hier jedoch nicht die genauen Kosten, sondern vielmehr nur eine typische Verknüpfung von Brennstoffzyklus und Reaktorparametern interessiert, soll nicht der inzwischen ermittelte Zusammenhang $\bar{Z}_1(R)$ aus [1], sondern der einfachere Zusammenhang betrachtet werden, der sich ergibt, wenn man annimmt, daß die Herstellungskosten pro Stab konstant und unabhängig vom Radius sind. In dem Radiusbereich $0,5 \leq R \leq 0,8$ (cm) ist das annähernd der Fall. Sind k_1 diese Herstellungskosten pro Stab in \$ so gilt:

$$k_1 = \frac{\bar{Z}_1 \cdot H_{ges} \cdot \pi R^2 \cdot \rho_F}{10^3} \dagger f(R) \quad (11)$$

Dabei ist ρ_F die (hier als einheitlich angenommene) Dichte des Brennstoffs. Beachtet man nun die folgende Relation,

$$\pi R^2 = \frac{\chi (1 + y)}{b \cdot 10^3 \cdot \rho_S} \quad (12)$$

wobei \mathcal{K} die mittlere Stableistung in Watt pro cm Stablänge und ρ_s die Dichte der schweren Elemente ist, so findet man:

$$K_{\text{refabr}} = \frac{k_1 \cdot 10^8 \cdot b}{2,4 \cdot H_{\text{core}} \cdot \chi \cdot (1+y) \cdot \eta \cdot a_m} = g\left(\frac{b}{\chi}, a_m\right) \left[\frac{\text{mills}}{\text{kWh}} \right] \quad (13)$$

Auch der allgemeinere Fall, daß nämlich k_1 nicht konstant ist, sondern seinerseits wieder eine Funktion des Radius ist, führt wegen (12) auf den gleichen, schon bei (13) angegebenen Funktionstypus $g\left(\frac{b}{\chi}, a_m\right)$.

Nur kurz soll jetzt auf die Frage des ersten (bzw. zweiten Cores) eingegangen werden. Wird das Core als ganzes ausgewechselt, so muß während der Abbrandzeit des ersten Cores bereits das Ersatzcore, also das zweite Core, bereitgestellt werden, ohne daß dieses spaltbare Material schon zur Energieerzeugung verwendet werden könnte. Wird das Core nicht als ganzes ausgewechselt, sondern beispielsweise in Teilen zu je $\frac{1}{n}$, so wird für das Auswechseln des ersten n-tels ein n-tel Core Ladung bereitgestellt werden müssen, ohne daß diese Teilladung zur Energieerzeugung schon verwendet werden könnte. Kann das ausgewechselte erste n-tel des Cores während der nächsten Betriebsperiode (in diesem Beispiel t_{ST}/n) aufgearbeitet und neu fabriziert werden, so bleibt es bei der Bereitstellung von $\frac{1}{n}$ core außerhalb des Reaktors. Wird dagegen mehr aus t_{ST}/n für Aufarbeitung und Fabrikation benötigt, z.B. $\frac{m \cdot t_{\text{ST}}}{n}$, so muß der Anteil $\frac{m \cdot t_{\text{ST}}}{n}$ außerhalb des Reaktors bereitgestellt werden. Die kritische Masse bestimmt sich aber aus der geforderten elektrischen Leistung Q_{el} (im Sinne dieser Argumentation wird sie bei nuklearen Rechnungen dann vorgegeben), η und b . Außerhalb des Cores ist also zufolge der eben angestellten Überlegungen der zusätzliche Spaltstoffanteil S

$$S = \frac{m}{n} \cdot \frac{Q_{\text{el}}}{\eta \cdot b} \quad (14)$$

bereitzustellen.

Bezüglich der Zinskosten bedeutet das einfach in (4) das Anbringen des Faktors $(1 + \frac{m}{n})$, d.h. statt b ist die effektive Brennstoffbelastung b' einzusetzen

$$b' = \frac{b}{1 + \frac{m}{n}} \quad (15)$$

falls die Verzinsung in der gleichen Weise wie beim eigentlichen Spaltstoffeinsatz erfolgt.

3. Die bestimmenden Parameter

Aus (4), (7) und (13) ist ersichtlich, daß die folgenden Parameter die Brennstoffzykluskosten hauptsächlich bestimmen:

a) α, β, k_1, Z_2

dabei handelt es sich um Einheitskosten im Sinne von Eingangsgrößen. Teilweise sind sie rein fiskalischer Art, teilweise fabrikatorischer Art.

b) η, δ

dabei handelt es sich um Wirkungsgrade im verallgemeinerten Sinne des Wortes.

c) $y, a_m, \chi, H_{\text{core}}$

dabei handelt es sich um Materialgrößen des Brennstoffes. Bei der Größe y ist das offenkundig, denn das Mischungsverhältnis von z.B. Pu zu abgereichertem Uran ist sicher eine für den Brennstoff als Material typische Größe. Bei a_m als erreichbarem mittlerem Abbrand ist das nicht offenkundig. Jedoch zeigt schon die im Grunde einfache von Karsten entwickelte Formel [2], daß es im Prinzip möglich sein wird, aus den als materielle Bedingungen anzusehenden Spezifikationen für das Brennstoffelement (wie z.B. Schmierdichte, Dicke des Spalts zwischen Brennstoff und Hülle usw.) den möglichen Abbrand a_m als materiell festgelegte Größe vorherzusagen. Die Stableistung χ hängt an jedem Querschnitt eines zylindrischen Brennstoffelementes über die einfache Beziehung

$$\chi = 4\pi \int_{T_a}^{T_i} \lambda dT \quad (16)$$

mit der Außentemperatur an der Oberfläche des Brennstoffs T_a der Zentraltemperatur des Brennstoffs T_i und der Wärmeleitfähigkeit λ zusammen. Bei praktisch allen Reaktorentwürfen

ist die Temperatur T_i durch die Schmelztemperatur T_{SCHM} des Brennstoffgemisches bestimmt, z.B. indem man wählt $T_i = T_{SCHM} - \Delta T$. Die Schmelztemperatur ist eine durch das Material gegebene Größe. Für den Sicherheitsabstand ΔT gilt das nicht, jedoch ist der Sicherheitsabstand ΔT gegenüber der Größe $T_i - T_a$ so klein, daß sein Einfluß auf χ ebenfalls sehr klein ist. Die Außentemperatur T_a wird nun tatsächlich durch die Reaktorauslegung, d.h. hier durch die Temperaturbedingungen, in die das Element eingebettet ist, bestimmt, und ist keine Materialgröße. Praktisch jedoch liegen diese Temperaturen ziemlich fest und die möglichen Auslegungsunterschiede sind auch hier klein gegenüber $T_i - T_a$. So liegt die maximale Stableistung eines Brennstabes mit Pu/U Mischoxyd und Natriumkühlung in diesem Sinne bei 480 W/cm. Im Laufe der nächsten Jahre mag sich dieser Wert zufolge einer Änderung der Auslegungsparameter des Reaktors ($\Delta T, T_a$) um 5 % ändern, größer werden die Änderungen jedoch nicht sein. Allerdings gilt das für die maximale Stableistung, bei der Ermittlung der mittleren Stableistung gehen die Formfaktoren ein. Auch hier schwanken die praktisch erreichbaren Werte nur wenig.

Halten wir einen Augenblick inne: Das hier in Rede stehende Problem ist die Verknüpfung der Auslegung des Brennstoffzyklus mit der Auslegung des Reaktors im Hinblick auf eine Gesamtoptimalisierung. Ist der in Rede stehende Reaktor als Typ einmal festgelegt (z.B. Schneller Brüter mit Pu/U Mischoxyd als Brennstoff und Na als Kühlung), so wird die bei der Optimalisierung anstehende Änderung der Auslegungsparameter beschränkt sein und in diesem Sinne ist χ primär nur eine von Materialeigenschaften bestimmte Größe.

H_{core} ist zwar keine Materialgröße, aber als Maßgröße mit dem Brennstoffstab festgelegt.

- d) Die spezifische Brennstoffbelastung b ist primär ein freier Parameter. Das wird besonders deutlich, wenn man sich vor Augen hält, daß b direkt und ohne verbindende Materialgrößen mit dem Neutronenfluß ϕ zusammenhängt:

$$b = (\sigma_f)_{\text{eff}} \cdot \phi \cdot 10^{-16} \cdot 0,8 \quad (17)$$

$(\sigma_f)_{\text{eff}}$ ist der effektive Spaltquerschnitt in barn. In Schnellen Brütern mit Pu/U Mischoxyden und Natrium als Kühlmittel liegt dieser Wert bei 2. Wie gesagt, ist der entscheidende Zug der Gleichung (17) der, daß keine Materialgrößen eingehen, die Freiheit der Wahl des Flußniveaus ist unmittelbar, die Freiheit der Wahl von b . Wegen (12) hängt aber an einer solchen freien Wahl von b die Wahl des Radius des Brennstoffstabes. Es gibt also einen wirklich offenen Freiheitsgrad

$$\phi \longrightarrow b \longrightarrow R \quad (18)$$

wie immer man ihn auch anspricht, ob mit ϕ , b oder R .

4. Die Optimalisierung

Der eine existierende Freiheitsgrad kann nun dazu benutzt werden, um eine Optimalisierung vorzunehmen. Qualitativ kann man sich sehr schnell orientieren. Betrachtet man nämlich nicht die Kapitalkosten und vernachlässigt man den Effekt, daß letzten Endes bei sich änderndem Radius wegen der Forderung $Q_{el} = \text{constant}$ (z.B. 1 000 MWe) auch der Wert von y sich ändert, macht man also diese Vernachlässigung, um sich überhaupt einmal zu orientieren, so erkennt man sehr schnell, daß in (4) b linear im Nenner und in (13) b linear im Zähler vorkommt und daß bei

$$b = \sqrt{\frac{\alpha \cdot \beta \cdot H_{\text{core}} \cdot a_m \cdot \chi \cdot (1 + y)}{10^8 \cdot k_1 \cdot \sigma \cdot 3,6}} \quad (19)$$

demzufolge ein Minimum der Zykluskosten liegen muß. In der Tat kann man mit Hilfe einer solchen Betrachtung in die Nähe des Optimums geführt werden. Für Schnelle Brüter mit Pu/U Mischoxyden als Brennstoff und Natrium als Kühlmittel liegt das in Rede stehende Minimum der Zykluskosten bei

$$b \approx \frac{1 \text{ MW}_{\text{th}}}{\text{kg}} \longrightarrow R \approx 3 \text{ mm} \longrightarrow \phi \approx 1 \cdot 10^{16} \frac{\text{n}}{\text{cm}^2 \text{sec}} \quad (20)$$

Jedoch soll hier dieses Optimum etwas sorgfältiger angesprochen werden. Zunächst wird man noch einmal die Annahme machen wollen, daß die Kapitalkosten in etwa bei der in Rede stehenden Variation von R (bzw. b , bzw. \emptyset) konstant bleiben, um nicht in das so undurchsichtige Gebiet einer Optimalisierung auch der Kapitalkosten geführt zu werden. Das ist gewährleistet, wenn man die Kühlmittel-eintrittstemperatur T_{ein} , die Aufheizspanne und damit auch die Kühlmittelaustrittstemperatur T_{aus} konstant läßt. Dann bleibt der thermische Wirkungsgrad unverändert, ebenso die Kosten des thermischen Teils des Kraftwerks (wie z.B. Turbine). Fordern wir weiter, daß der Druckverlust des Kühlmittels über die Länge des Cores, Δp , konstant bleibt, so ist in etwa der Kapitalkostenanteil auch des Reaktors festgelegt. Insbesondere gilt das für die Pumpenkosten. Zwar werden sich bei den folgenden Überlegungen Änderungen des Coredurchmessers ergeben, diese aber haben auf die gesamten Kapitalkosten nur einen sehr geringen Einfluß. Deshalb ist mit der Forderung

$$\begin{aligned} T_{\text{ein}} &= \text{constans} \quad (\text{z.B. } 380^{\circ}\text{C}) \\ T_{\text{aus}} &= \text{constans} \quad (\text{z.B. } 580^{\circ}\text{C}) \\ \Delta p &= \text{constans} \quad (\text{z.B. } 3 \text{ atü}) \end{aligned} \quad (21)$$

in etwa die Konstanz der Kapitalkosten gewährleistet.

Der jetzt noch vor allem die Coreauslegung bestimmende und noch offene Parameter ist der relative Kühlmittelvolumenanteil α . Ist weiter β der relative Strukturmaterialvolumenanteil und schließlich ω der relative Brennstoffvolumenanteil, so gilt:

$$\alpha + \beta + \omega = 1 \quad (22)$$

Diese hier definierten α und β haben nichts mit den am Beginn der Arbeit auftretenden α (Pu-Preis) und β (Zinsfuß) zu tun. β liegt durch die Wahl von T_{ein} , T_{aus} und Δp in etwa fest. Ist die Wahl von α erfolgt, so ist mit (22) auch ω festgelegt, das heißt, die Parameter der Corezusammensetzung sind dann festgelegt.

Bei gegebenem Radius des Brennstoffstabes R und vorgegebener Höhe des Cores H_{core} gibt es aber nur einen Wert des Kühlmittelvolumenanteils α , der zum vorgegebenen Druckabfall Δp führt. Somit sind

dann α , β , ω sowie per Vorgabe auch R und H_{core} fixiert. Mit χ ist aber auch die pro Brennstab abgeführte Leistung festgelegt. Aus der Relation

$$\eta \cdot n \cdot \chi \cdot H_{\text{core}} = Q_{\text{el}} \quad (23)$$

ergibt sich somit die Zahl der erforderlichen Brennstäbe n und damit der Durchmesser des cores. Es liegt also die Konfiguration des Reaktors und die core Zusammensetzung nun fest. Eine Kritikalitätsrechnung führt jetzt auf den Wert von y , der den Reaktor kritisch werden läßt. Über die Relation (12) ist damit schließlich auch b bestimmt. Bei solchem Vorgehen, bei dem mit R also auch y variiert, kann das Optimum nicht mehr einfach analytisch wie bei (19) bestimmt werden. Vielmehr muß man den angegebenen Rechengang für verschiedene R wiederholen und schließlich für jedes R die Brennstoffzykluskosten ermitteln. Das führt dann zu einer umfangreicheren Studie wie das z.B. in [3] der Fall ist.

In [3] wird ausgewiesen, daß bei einem Schnellen Brüter mit Pu/U Mischoxyd als Brennstoff und Natrium als Kühlmittel die folgende Parameterkonstellation in der Nähe des Optimums der Brennstoffzykluskosten liegt:

$$\begin{aligned} T_{\text{ein}} &= 380^{\circ}\text{C} \\ T_{\text{aus}} &= 580^{\circ}\text{C} \\ \Delta p &= 3 \text{ atü} \\ \chi_{\text{max}} &= 460 \frac{\text{W}}{\text{cm}} \\ y &= 7,0 \\ H_{\text{core}} &= 97,5 \text{ cm} \\ M_{\text{KRIT}} &= 2682 \text{ kg Pu} \\ Q_{\text{el}} &= 1\,000 \text{ MWe} \\ b &= 0,87 \frac{\text{MW}_{\text{th}}}{\text{kg}} \text{ oder} \\ 2R &= 0,65 \text{ cm} \end{aligned} \quad (24)$$

5. Die Oberflächenbelastung q

Im folgenden soll noch kurz von der Brennstoffoberflächenbelastung q die Rede sein. Sie bestimmt sich aus der Relation

$$q = \frac{\chi}{2 \sqrt{R}} \quad (25)$$

Bei allen hier vorgetragenen Argumentationen kommt q nur insofern indirekt vor, als bei der Diskussion der relativen Konstanz von χ auf die relative Konstanz der Brennstoffoberflächentemperatur T_a abgehoben wurde. An die Oberflächentemperatur des Brennstoffes schließt sich der Temperatursprung zwischen Brennstoff und Hülle an. Dieser Temperatursprung wird bei normaler Ausführung eines Brennstoffelementes dadurch gekennzeichnet, daß eine Wärmeübergangszahl von etwa $1 \text{ W/cm}^2 \text{ }^\circ\text{C}$ vorliegt. Mit dem Wärmestrom ändert sich also auch dieser Temperatursprung. Dann folgt der Temperaturabfall im Hüllmaterial und danach der Temperatursprung zum Kühlmittel. Der letztere ist bei Na-Kühlung wegen des dort vorliegenden guten Wärmekontaktes von Kühlmittel zum Hüllmaterial des Brennstoffs sehr klein. Bei Natrium Kühlung liegt der eigentliche Wärmewiderstand somit im Spalt zwischen Brennstoff und Hüllmaterial. Hier ist es genau die Oberflächenbelastung, die somit in die Bestimmung von T_a und damit in die des des genauen Wertes von χ eingeht. Es ist der Einfluß in den praktischen Fällen gering, so daß schließlich die Oberflächenbelastung nur eine sekundäre, sich als Ergebnis der Auslegung ergebende Größe ist, die keine primäre, die Reaktorauslegung begrenzende Funktion hat, wie das etwa bei der Größe a_m oder χ der Fall ist. Bei Dampfkühlung ist auch der Temperatursprung zwischen Kühlmittel und Hülle erheblich und fällt etwa in die gleiche Größenordnung wie der Temperatursprung zwischen Hülle und Brennstoff; der Einfluß von q auf χ über T_a ist also größer als bei Na. Jedoch ist auch bei Dampfkühlung die Oberflächenbelastung q als solche keine primäre, die Reaktorauslegung begrenzende Größe, vielmehr stellt es sich heraus, daß in diesem Falle die Temperatur der Hülle des Brennstoffstabes solche primäre, die Reaktorauslegung begrenzende Funktion hat.

Lediglich bei dem sogenannten burn-out Effekt, wo der die Hülle des Brennstoffstabes benetzende Flüssigkeitsfilm zerreißt, kommt der Oberflächenbelastung eine primäre, den Reaktorentwurf direkt beeinflussende Funktion zu. Bei Schnellen Brütern beider Kühlmittel, Natrium und Dampf, spielt der burn-out Effekt aber praktisch keine Rolle (nur bei Sicherheitsüberlegungen kommt er gelegentlich in's Spiel). Die Oberflächenbelastung ist also im Zusammenhang mit der Auslegung eines Brennstabes eines Schnellen Brüters in keiner Weise ein Kriterium.

6. Literatur

- [1] KUMMERER, K.: Production cost parameter analysis for fast reactor fuel elements, Brüssel 13. - 17. März 1967
IAEA Symposium on the use of Pu as a reactor fuel,
SM-88/41, KFK-576

- [2] KARSTEN, G.: Fabrication of Fast Reactor Fuel Pins for Test Irradiation, KFK-577

- [3] JANSEN, P.: Brennstoffkosten und Bedarf eines 1000 MW Schnellen Brüters mit Natriumkühlung, Atomwirtschaft 1967, Jahrgang XII, Nr.4

Symbolverzeichnis

Sämtliche in der Arbeit vorkommenden Größen sind in ihrer Maßeinheit festgelegt. Die auftretenden Symbole bedeuten streng genommen Maßzahlen der betreffenden Größen.

a) Lateinische Symbole

a_m	Mittlerer Abbrand der Coreladung	$\left[\frac{\text{MWd}}{t} \right]$ schwere Elemente
b	Brennstoffelementbelastung	$\left[\frac{\text{MW th}}{\text{kg t}} \right]$ schwere Elemente
c	Chemischer Faktor	$\left[1 \right]$
H_{ges}	Gesamte Brennstablänge	$\left[\text{cm} \right]$
H_{core}	Core Höhe	$\left[\text{cm} \right]$
k_1	Fabrikationskosten pro Stab	$\left[\frac{\$}{\text{pin}} \right]$
K_{refabr}	Fabrikationskosten einer Coreladung und Brutmantel	$\left[\frac{\text{mills}}{\text{kWh}} \right]$
K_{repro}	Aufarbeitungskosten einer Coreladung und Brutmantel	$\left[\frac{\text{mills}}{\text{kWh}} \right]$
K_{Zins}	Zinskosten einer Coreladung	$\left[\frac{\text{mills}}{\text{kWh}} \right]$
M	Masse Mischbrennstoff einer Coreladung und Brutmantel	$\left[\text{kg Mischbrennstoff} \right]$
M_{KRIT}	Kritische (Spaltbare) Masse des Cores	$\left[\text{kg spaltbare Atome} \right]$
p	Kühlmitteldruck	$\left[\text{at} \right]$
Q_{el}	Elektrische Leistung des Reaktors	$\left[\text{MW} \right]$

q	(thermische) Brennstoffoberflächenbelastung, Wärmestromdichte	$\left[\frac{W}{cm^2} \right]$
R	Radius der Brennstoffsäule eines Brennstabes	$\left[cm \right]$
T	Temperatur	$\left[^\circ C \right]$
T_a	Brennstoffoberflächentemperatur	$\left[^\circ C \right]$
T_i	Brennstoffzentraltemperatur	$\left[^\circ C \right]$
T_{ein}	Kühlmitteleintrittstemperatur	$\left[^\circ C \right]$
T_{aus}	Kühlmittelaustrittstemperatur	$\left[^\circ C \right]$
t_{ST}	Standzeit einer Coreladung	$\left[d \right]$
$Y =$	Massenverhältnis der brutbaren zu den spaltbaren Atome im Core	$\left[1 \right]$
\overline{Z}_1	Fabrikationseinheitskosten (über Core und Brutmantel gemittelt)	$\left[\frac{\$}{kg_{Mischbrennstoff}} \right]$
Z_2	Aufarbeitungskosten	$\left[\frac{\$}{kg_{Mischbrennstoff}} \right]$

b) Griechische Symbole

∞	Pu- bzw. U-Preis	$\left[\frac{\$}{\epsilon_{spaltbare\ Atome}} \right]$
β	Zinsfuß von ∞	$\left[\frac{1}{a} \right]$
δ	Lastfaktor	$\left[1 \right]$

η	Leistungswirkungsgrad	$\left[1 \right]$
λ	Brennstoffwärmeleitfähigkeit	$\left[\frac{W}{cm \cdot ^\circ C} \right]$
ρ_F	Brennstoffdichte (über Core und Brutmantel gemittelt)	$\left[\frac{g}{cm^3} \right]$
ρ_S	Dichte der schweren Elemente	$\left[\frac{g}{cm^3} \right]$
σ_f	Mikroskopischer Spaltquerschnitt	$\left[\text{barn} \right]$
ϕ	Neutronenfluß	$\left[\frac{n}{cm^2 \cdot s} \right]$
χ	Stableistung	$\left[\frac{W}{cm} \right]$
ω	relativer Brennstoffvolumenanteil	$\left[1 \right]$
α	relativer Kühlmittelvolumenanteil	$\left[1 \right]$
β	relativer Strukturmaterialvolumenanteil	$\left[1 \right]$

VIII. DIE MECHANISCHE BEANSPRUCHUNG DER
BRENNLEMENTHÜLLE

von

H.J. Laue

Inhalt

1. Einleitung
2. Grundlagen der mechanischen Beanspruchung
3. Belastung durch Innendruck - Na-gekühlter Reaktor
4. Belastung durch den Außendruck - dampfgekühlter Reaktor
5. Zusammenfassung

1. Einleitung

Nach den gegenwärtigen Entwurfskonzepten für schnelle Brutreaktoren kommt der Brennelementhülle überragende Bedeutung zu. Ausgehend vom Prinzip der sogenannten "freistehenden Hülle" muß das Hüllrohr beim natriumgekühlten Reaktor dem Innendruck durch Spaltgas und durch das Anschwellen des Brennstoffs (100 - 150 at) bzw. beim dampfgekühlten Reaktor zusätzlich dem Kühlmittelaußendruck (120 - 170 at) ohne nennenswerte Verformung in einem hohen Neutronenfluß (ca. 10^{16} n/cm²sec) ca. 2 Jahre standhalten.

Die Auslegung des Brennelements muß sich an diesen Forderungen orientieren, d.h. die aus der vorgegebenen Brennelementauslegung resultierende Beanspruchung muß den Festigkeitseigenschaften der Hülle Rechnung tragen. Zur quantitativen Ermittlung der Brennelementauslegung sind neben theoretischen Überlegungen vor allem ausführliche Versuche, sowohl am Hüllmaterial allein als auch am ganzen Brennelement notwendig.

Beim natriumgekühlten Reaktor muß man aus neutronenphysikalischen und Korrosionsgründen (siehe Beitrag III) vor allem austenitische Stähle verwenden, deren Festigkeitseigenschaften jedoch nur begrenzte Belastungen zulassen.

Beim dampfgekühlten Reaktor kommt die Hauptbeanspruchung vom Kühlmitteldruck, d.h. das Problem des Kriechbeulens zylindrischer Rohre steht im Mittelpunkt der Betrachtungen. Selbst hochwarmfeste Nickellegierungen sind bei den vorgegebenen Abmessungen ohne Unterstützung durch den Brennstoff bzw. den entsprechenden Innendruck dieser Beanspruchung nicht gewachsen. Das Prinzip der freistehenden Hülle muß damit möglicherweise aufgegeben und die Auslegung mehr auf die Wechselwirkung Brennstoff-Hülle hin orientiert werden, wobei aus Sicherheitsgründen auch der Wegfall des Außendrucks mit in die Betrachtungen eingezogen werden muß.

Die in dieser Arbeit enthaltenen festigkeitstheoretischen Betrachtungen der Brennelementhülle sind zum großen Teil den Arbeiten [1, 2] entnommen. Zur Behandlung der erwähnten Probleme werden einleitend die wichtigsten Grundlagen der mechanischen Beanspruchung metallischer Werkstoffe zusammengestellt.

2. Grundlagen der mechanischen Beanspruchung

Die Kurzzeitfestigkeit eines metallischen Werkstoffes wird am einfachsten durch den einaxialen Zugversuch ermittelt. Der Stab wird durch eine Zug-Normalspannung σ beansprucht. Das Ergebnis dieser Zugversuche wird im Spannungs-Dehnungsdiagramm graphisch dargestellt (Fig.1).

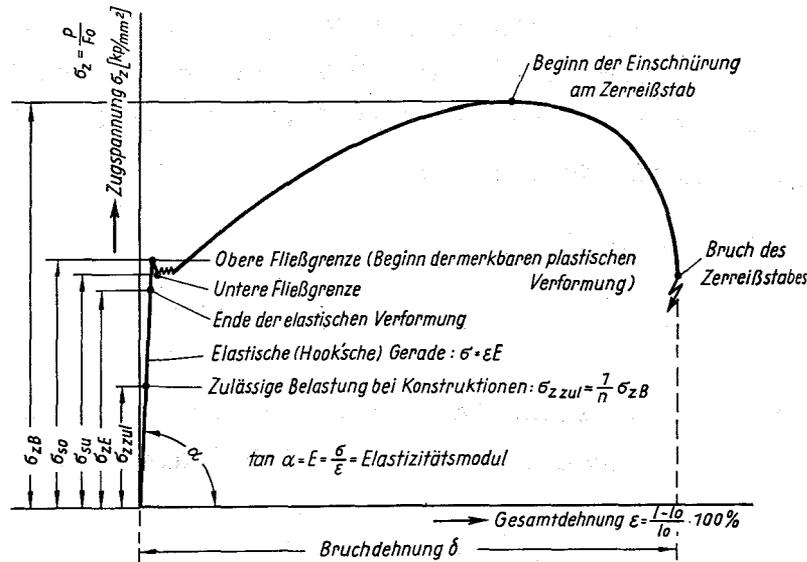


Fig.1 Spannungs-Dehnungsdiagramm (Weicheisen)

In einem hinreichend kleinen Deformations- bzw. Spannungsbereich ist die Verformung elastisch, d.h. nach Wegnahme der äußeren Spannung stellt sich wieder die ursprüngliche Form ein.

Für hinreichend kleine Deformationen gilt im elastischen Bereich für den einaxialen Zugversuch das lineare Hookesche Gesetz

$$\sigma = E \cdot \epsilon \quad (1)$$

σ = einaxiale Spannung

$$\epsilon = \frac{l - l_0}{l_0} = \text{relative Längenänderung}$$

E = Elastizitätsmodul

Mit der Längenänderung ϵ ist immer eine Querdehnung ϵ_q verbunden, für die gilt

$$\frac{\epsilon_q}{\epsilon} = - \nu \quad (2)$$

ν = Poissonsche Querkontraktionszahl

Wenn der an einem Flächenelement angreifende Spannungsvektor eine Normal- und Schubkomponente hat, wird das herausgegriffene Element als Folge der Normalspannungen Dehnungen erfahren, aber es werden sich durch die Schubspannungen τ auch seine Winkel ändern. Für diese Winkeländerung γ gilt:

$$\tau = G \cdot \gamma \quad (3)$$

G = Schubmodul

Damit ist der linear elastische isotrope Körper durch die drei Konstanten E , ν und G charakterisiert, die durch die Beziehung

$$G = \frac{E}{2(1+\nu)} \quad (4)$$

verknüpft sind.

Die elastischen Konstanten sind in einem relativ großen Temperaturbereich nur schwach temperaturabhängig und werden von Legierungskomponenten nur geringfügig beeinflusst. Dies liegt daran, daß bei der elastischen Verformung sich die Gitteratome zueinander verschieben, wobei die Verschiebung klein gegen die Gitterkonstante ist, so daß die elastische Formänderung direkt mit den interatomaren Kräften verknüpft ist.

Der Zusammenhang zwischen Normalspannung σ und Schubspannung τ eines zweiachsigen Spannungszustandes mit den Hauptspannungen σ_x und σ_y in Abhängigkeit des Winkels γ ist durch die Gleichung des sogenannten Mohrschen Spannungskreises gegeben.

$$\left[\sigma - \frac{1}{2} (\sigma_x + \sigma_y) \right]^2 + \tau^2 = \left[\frac{1}{2} (\sigma_y - \sigma_x) \right]^2 \quad (5)$$

Der Mohrsche Spannungskreis ist in Fig.2 graphisch dargestellt.

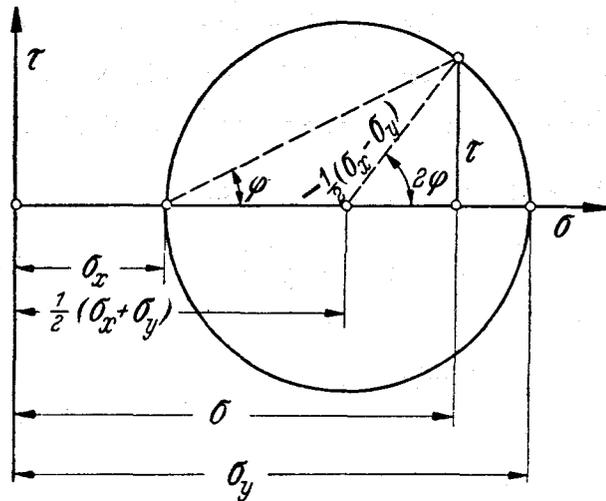


Fig.2 Mohrscher-Spannungskreis

Im weiteren Verlauf der Spannungs-Dehnungskurve kommt es zu einer bleibenden, d.h. plastischen Verformung. Hier besteht kein einfacher Zusammenhang mehr zwischen Verzerrung und Spannung, weiterhin sind die betreffenden Materialkonstanten stark temperatur- und legierungsabhängig.

Sieht man sich einen fehlerfreien kubischen Einkristall an (Fig.3), so tritt plastische Verformung ab einem gewissen

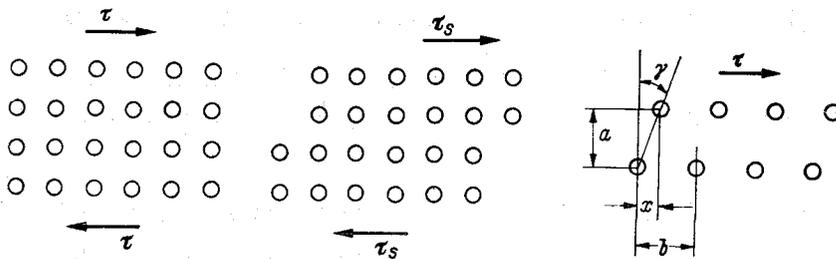


Fig.3 Verformung eines fehlerfreien kubischen Einkristalls

τ -Wert auf, der sogenannten Fließgrenze τ_s , da die Verformung durch Aufeinandergleiten der Atomebenen erfolgt. Bei regelmäßigem Aufbau der Atome ist τ eine periodische Funktion der Verschiebung x , die Periodenlänge ist gleich dem Atomabstand b .

Mit dem ersten Glied der periodischen Funktion

$$\tau(x) = \sum_{v=1}^{\infty} \tau_v \sin \frac{2v\pi x}{b} \quad (6)$$

und unter Einführung des Schubwinkels

$$\gamma = \frac{x}{a} \quad (7)$$

gilt näherungsweise

$$\tau \approx \tau_1 \sin \frac{2\pi \gamma a}{b} \quad (8)$$

Bei kleinen Schubwinkeln geht diese Beziehung in das Hooksche Gesetz, entsprechend (3), über.

$$\tau(\gamma) = G \cdot \gamma \quad (3)$$

Aus (8) und (3) folgt:

$$\tau_s = \tau_1 = \frac{G}{2\pi} \cdot \frac{b}{a} \quad (9)$$

Bei kubischen Kristallen gilt also

$$\tau_s \approx \frac{1}{6} G \quad (10)$$

Die auf diese Weise errechnete Fließgrenze ist damit jedoch mehr als 100mal größer als die wirklich gemessene.

Die plastische Verformung muß also auf grundsätzlich andere Weise erfolgen.

Die Atomebenen bewegen sich nicht als starre Einheit, da die Metallkristalle niemals fehlerfrei sind. Neben anderen Fehlern sind vor allem die Versetzungen von Bedeutung, z.B. rings um die Kanten einer eingeschobenen zusätzlichen Atomebene (Fig.4) die sogenannte Stufenversetzung. Die wichtigste Eigenschaft der Versetzungen ist an der einfachen Stufenversetzung gut erkennbar. Das Vorkommen einer zusätzlichen Ebene bewirkt das

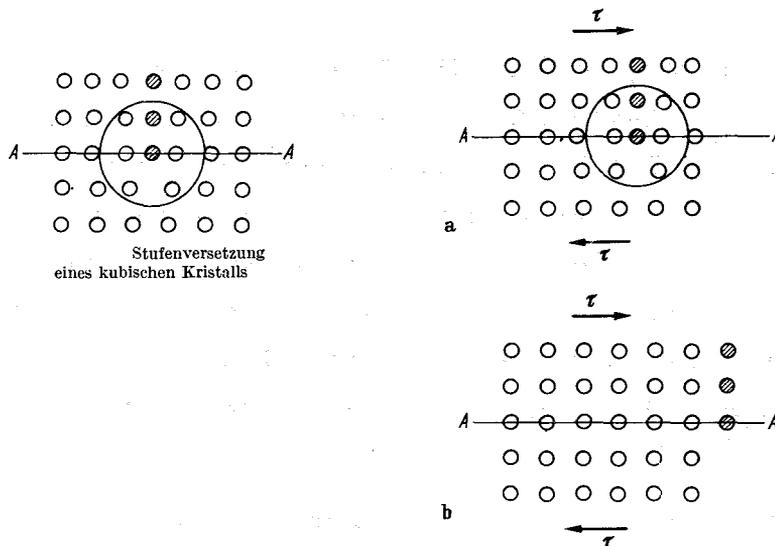


Fig. 4 Plastische Verformung eines kubischen Einkristalls (schematisch)

Auftreten von Eigenspannungen, oberhalb A-A sind es Druckspannungen, unterhalb Zugspannungen. Längs der Ebene A-A treten Schubspannungen auf. In unmittelbarer Nähe sind diese Schubspannungen in der Größenordnung der früher hergeleiteten Spannung τ_s . Es ist daher nur eine sehr kleine äußere Schubkraft erforderlich, um eine beschränkte Gleitung längs der Ebene A-A zu bewirken. Diese Gleitung findet nur in der unmittelbaren Nähe der eingeschobenen Atomebene statt, in den übrigen Teilen des Kristalls kommen nur sehr kleine, rein elastische Verschiebungen der Atome vor. Diese örtlich begrenzte Gleitung resultiert in einer Bewegung der Versetzung selbst, die bewirkt, daß die benachbarten Ebenen der Reihe nach die Rolle einer eingeschobenen Atomebene übernehmen, bis die Versetzung die Außenfläche des Kristalls erreicht und dort verschwindet. Das Endergebnis dieser Bewegung der Versetzung ist eine gewisse Schubdeformation.

Eine verhältnismäßig kleine Spannung hat also auf diese Weise eine plastische Verformung im Kristall verursacht.

Die Theorie der plastischen Verformung in Kristallen setzt also eine hinreichende Zahl von Versetzungen im Kristall voraus, d.h. sie müssen von vornherein vorhanden oder durch den Deformationsvorgang entstehen. Über den Mechanismus der Bildung von Versetzungen kann in diesem Rahmen nicht näher eingegangen werden.

Wird ein Kristall erwärmt, so wird die Bewegung der Versetzung wegen der thermischen Schwingungen der Atome um ihre Ruhelage wesentlich erleichtert. Bei hohen Temperaturen entstehen so hohe Schwingungen, daß eine gewisse zeitlich konstante äußere Last eine stetig fortschreitende Verformung verursacht, die man als Kriechen bezeichnet. Die Beschränkung der plastischen Verformung auf kleine Gebiete des Kristalls ist eine notwendige Voraussetzung für den oben angedeuteten Mechanismus des Kriechens.

Jede Versetzung ist ferner eine Eigenspannungsquelle, damit wird eine Versetzung von anderen Versetzungen durch Kräfte beeinflusst, die ihre Bewegung beeinflussen. Immer mehr Versetzungen sollten eigentlich die Beweglichkeit vergrößern, in Wirklichkeit bewirkt die gegenseitige Beeinflussung ein Abnehmen der Kriechgeschwindigkeit (Primärkriechen). Die gebremsten Versetzungen häufen sich zu Gruppen an, die aber bei erhöhter Temperatur nicht stabil sind. Die hohen Eigenspannungen dieser Gruppen bewirken ihre Zerteilung und es wird schließlich zwischen ankommenden und abgehenden Versetzungen ein Gleichgewichtszustand erreicht, d.h. konstante Verformungsgeschwindigkeit (Sekundärkriechen). Mit fortschreitendem Kriechen bei erhöhter Temperatur und konstanter Spannung kommt es schließlich zu einer Einschnürung der Probe (zäher Bruch), die Kriechgeschwindigkeit steigt mehr oder weniger stark bis zum Bruch an (Tertiärkriechen). Eine typische Kriechkurve ist in der Fig.5

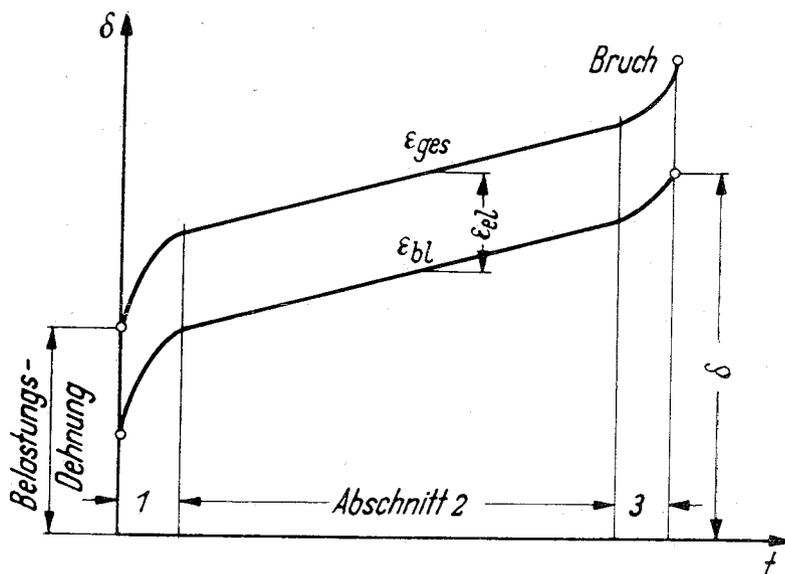


Fig.5 Kriechkurve

wiedergegeben.

In polykristallinen Metallen, d.h. Konglomerate von Kristallkörnern mit verschiedenen Richtungen der Kristallachsen, sind im allgemeinen mehrere Arten von Kriechmechanismen wirksam, es können sich mehr oder weniger starre Kristallkörner relativ zueinander bewegen, andere Verformungen finden hauptsächlich im Innern der Körner statt, ferner gibt es Kombinationen dieser beiden Hauptmechanismen.

Korngrenzen stellen selbst Reihen von Versetzungen dar und ihre Eigenschaften sind von größter Bedeutung, dazu kommen Behinderungen von Fremdatomen usw.

Die Versetzungstheorie gibt somit eine qualitative Beschreibung der Kriecherscheinungen, zur quantitativen Beurteilung der Kriechfestigkeit reicht sie nicht aus.

Aus der Kriechkurve in Fig.5 ergibt sich die Dehnung aus

$$\epsilon_{bl} = \epsilon_{ges} - \epsilon_{el} \quad (11)$$

während die Kriechgeschwindigkeit im sekundären Bereich

$$\dot{\epsilon}_s = \dot{\epsilon} \cdot t \quad (12)$$

ist. Da die Dehnung durch Primärkriechen meistens vernachlässigt werden kann, gilt ferner

$$\epsilon_{ges} = \epsilon_0 + \dot{\epsilon} \cdot t \quad (13)$$

ϵ_0 und $\dot{\epsilon}$ sind von der Spannung abhängig und können experimentell bestimmt werden. ϵ_0 ergibt sich sofort nach Ansetzen der Spannung und ist, falls linear elastisch

$$\epsilon_0 = \frac{\sigma}{E} \quad (14)$$

$\dot{\epsilon}$ ist dagegen stark spannungsabhängig, es gilt

$$\dot{\epsilon} = f(\sigma) \quad (15)$$

Von den vorgeschlagenen Ansätzen sei hier nur das sogenannte Nortonsche Kriechgesetz, entsprechend (15), erwähnt:

$$\dot{\epsilon} = k \sigma^n \quad (16)$$

mit k und n als temperaturabhängigen Materialkonstanten. Das Gesetz bildet die Grundlage für die sogenannte Kriechmechanik, wobei k und n experimentell ermittelt werden müssen. Die Grundgleichung des stationären Kriechens unter zeitlich konstanter Last lautet somit

$$\dot{\epsilon} = \frac{\sigma}{E} + k \sigma^n t \quad (17)$$

Mit dieser Gleichung können nun die speziellen Probleme der mechanischen Beanspruchung der Brennelementhülle näher betrachtet werden.

3. Belastung durch Innendruck - Na-gekühlter Reaktor

Die Hauptbeanspruchung der Brennelementhülle des natriumgekühlten Reaktors kommt vom Innendruck durch Anschwellen des Brennstoffs und den Spaltgasdruck.

Entsprechend den Auslegungsparametern für den natriumgekühlten 300 MW-Prototyp-Brutreaktor (Innendurchmesser $2r = 5,24$ mm, Wandstärke $s = 0,38$ mm und Länge $\ell = 2500$ mm) sind die Hüllrohre als lang und dünnwandig zu betrachten, so daß die betreffenden Näherungsgleichungen angewandt werden dürfen.

Bei einem Rohr unter Innendruck folgt unmittelbar, daß die Tangentialspannung σ_t , die Axialspannung σ_a und die Radialspannung σ_r Hauptspannungen sind. Die Abhängigkeit dieser Spannungen vom Innendruck ist in Fig.6 schematisch wiedergegeben.

Bei mehraxialen Spannungszuständen verwendet man im allgemeinen die sogenannte Vergleichsspannung σ_v . Nach Mohr gilt:

$$\sigma_v = \sigma_{\max} - \sigma_{\min} \quad (18)$$

Vernachlässigt man im folgenden die sehr kleine Radialspannung σ_r , was sicher zulässig ist, ist die Tangentialspannung gleich der Vergleichsspannung mit

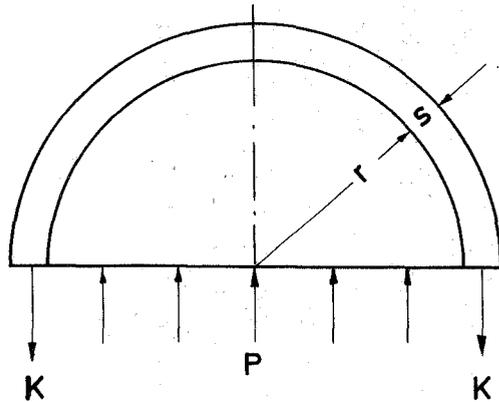
$$\sigma_v = \frac{p \cdot r}{s} \quad (19)$$

Das Nortonsche Kriechgesetz lautet dann analog

$$\dot{\epsilon}_v = k \sigma_v^n \quad (20)$$

Fig. 6 Hauptspannungen in einem dünnwandigen Rohr bei Innendruckbeanspruchung

Tangentialspannung



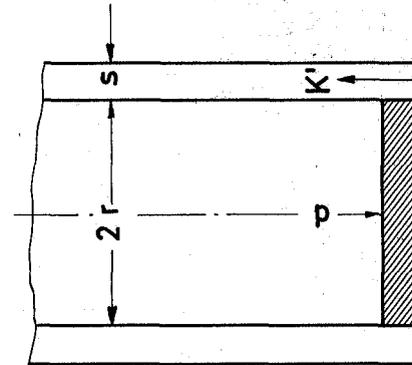
$$2K = p \cdot 2 \cdot r \cdot 1$$

$$K = \sigma_t \cdot s \cdot 1$$

„Kesselformel“

$$\sigma_t = \frac{p \cdot r}{s}$$

Axialspannung

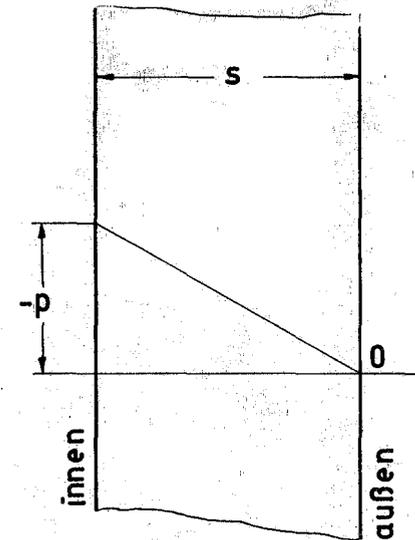


$$K' = p \cdot r^2 \cdot \pi$$

$$K' = \sigma_a \cdot 2r \cdot \pi \cdot s$$

$$\sigma_a = \frac{p \cdot r}{2 \cdot s}$$

Radialspannung



$$\sigma_r \text{ außen} = 0$$

$$\sigma_r \text{ innen} = -p$$

während die Dehnungsgeschwindigkeiten in den drei Hauptrichtungen gleich

$$\dot{\epsilon}_t = \frac{\dot{\epsilon}_v}{\sigma_v} \left(\sigma_t - \frac{\sigma_a + \sigma_r}{2} \right) \quad (21)$$

$$\dot{\epsilon}_a = \frac{\dot{\epsilon}_v}{\sigma_v} \left(\sigma_a - \frac{\sigma_t + \sigma_r}{2} \right) \quad (22)$$

$$\dot{\epsilon}_r = \frac{\dot{\epsilon}_v}{\sigma_v} \left(\sigma_r - \frac{\sigma_t + \sigma_a}{2} \right) \quad (23)$$

sind.

Da die Parameter k und n des Nortonschen Kriechgesetzes stark temperaturabhängig sind, ist es in gleicher Weise die Kriechgeschwindigkeit. So beträgt z.B. die Kriechgeschwindigkeit bei Stahl bei 1 % Dehnung nach 10 000 h bei 500 °C $10^{-6}/h$ und bei 550 °C $4 \cdot 10^{-5}/h$.

Nach Larsen und Miller gilt folgende Beziehung:

$$T_1 (C - \log \dot{\epsilon}_1) = T_2 (C - \log \dot{\epsilon}_2) \quad (24)$$

mit T_1, T_2 = Temperaturen in °K

$\dot{\epsilon}_1, \dot{\epsilon}_2$ = Kriechgeschwindigkeiten bei T_1 und T_2

C = Konstante (im allgemeinen zwischen 15-20)

Bei einem unter Innendruck belasteten Rohr mit einem gleichzeitigen Temperaturgradient in der Wand findet somit im Anfangsstadium an der Innenseite stärkeres Kriechen statt, die Spannungen bauen sich jedoch ab und werden in tiefere Temperaturbereiche verlagert, d.h. die Kriechgeschwindigkeit ist nach einer gewissen Zeit in Richtung der maximalen Hauptspannung σ_t überall gleich, es gilt somit Gleichung (21). Vernachlässigt man σ_r und setzt die für einen Zylinder geltende Beziehung $\sigma_a = \frac{\sigma_t}{2}$ ein, ergibt sich

$$\dot{\epsilon}_t = \dot{\epsilon}_v \frac{3}{4} \frac{\sigma_t}{\sigma_v} \quad (25)$$

da ferner näherungsweise $\sigma_v \approx \sigma_t$ ist, gilt

$$\dot{\epsilon}_t = \frac{3}{4} \dot{\epsilon}_v \quad (26)$$

Für Überschlagsrechnungen kann man ferner mit einer mittleren

Temperatur rechnen:

$$\bar{T} = \frac{T_A + T_i}{2} \quad (27)$$

T_A = Hüllaußentemperatur

T_i = Hüllinnentemperatur

Wir setzen im folgenden voraus, daß der Druck konstant mit der Zeit zunimmt, d.h. wir setzen entsprechend (19) die Beziehung

$$\sigma_v = p \frac{r}{s} \cdot t \quad (28)$$

in die Nortonsche Kriechbeziehung (20) ein und man erhält

$$\dot{\epsilon}_v = k \left(p \frac{r}{s} \cdot t \right)^n \quad (29)$$

Um nun den integralen Druckanstieg während der Standzeit t_s zu erhalten, integriert man die Gleichung (29) und erhält schließlich

$$\epsilon_{t_{\max}} = \frac{3k}{4(n+1)} \left[\frac{p_{\max} \cdot r}{s} \right]^n \cdot t_s \quad (30)$$

$\epsilon_{t_{\max}}$ = Maximale Dehnung

t_s = Standzeit

Durch einfaches Umformen erhält man den Druck P_{\max} nach der Standzeit t_s .

$$P_{\max} = \frac{s}{r} \left[\frac{4 \cdot \epsilon_t (n+1)}{3 \cdot k \cdot t_s} \right]^{\frac{1}{n}} \quad (31)$$

bzw. die Standzeit bei vorgegebenem Innendruck und Dehnung

$$t_s = \left(\frac{s}{r P_{\max}} \right)^n \left(\frac{4 \epsilon_{t \max} (n+1)}{3 k} \right) \quad (32)$$

Als weitere Belastung in einem zylindrischen Rohr mit einem Temperaturgradienten, d.h. einem Temperaturunterschied zwischen

Innen- und Außenwand, treten thermische Spannungen auf. Für Wärmespannungen bei dünnwandigen Rohren gilt

$$\sigma_a = \tau = \frac{E \cdot \alpha}{1 - \nu} (T - T_m) \quad (33)$$

α = Wärmeausdehnungszahl

ν = Poissonsche Zahl

T_m = Mittlere Temperatur

Der Maximalwert außen und innen ist dann gleich

$$\sigma_{\max} = \pm \frac{E \cdot \alpha \cdot \Delta T}{2(1 - \nu)} \quad (34)$$

ΔT = Temperaturabfall in der Hülle

wobei der negative Wert der Spannung an der Innenwand und der positive Wert der Spannung an der Außenwand gilt.

Diese Materialspannungen wirken jedoch nur am Anfang, da jede Art von Eigenspannungen, ganz gleich, ob sie allein oder anderen Spannungen überlagert sind, durch Kriechvorgänge allmählich abgebaut werden. Es muß aber beachtet werden, daß oberhalb einer bestimmten Spannung, der Grenzspannung, unzulässige Beanspruchungen oder auch Verformungen auftreten können. Die sogenannte Grenzspannung ist nicht mit der Streckgrenze identisch. Da die Bestimmung dieser Grenzspannung nicht ohne weiteres möglich ist, z.B. nur durch Näherungs- bzw. graphische Verfahren, werden in der Praxis Annahmen verwendet, die im allgemeinen genügend Sicherheit beinhalten. In den USA benützt man z.B. die Forderung $\sigma_{\text{thermisch}} < \frac{4}{3} \sigma_{0,2}$. Nach [1] kann man eine sogenannte Ersatzstreckgrenze einführen, die in etwa $\frac{2}{3} \sigma_{1/1000}$ entspricht.

Unter Berücksichtigung der in Tabelle 1 wiedergegebenen Daten für das Brennelement und das Hüllmaterial ergibt sich nach Gleichung (34) ein $\sigma_{\max} = 8,3 \text{ kg/mm}^2$, entsprechend eine Ersatzstreckgrenze bei 650°C $\sigma_g = \frac{3}{4} \sigma_{1/1000} = 24 \text{ kg/mm}^2$.

Der Abbau der thermischen Spannungen wird somit innerhalb kurzer Zeit erfolgen, wobei ein Rest erhalten bleibt, der streng genommen zum Innendruck addiert werden muß. Weiterhin spielt die Frage des "thermal Ratcheting" [4] auf Grund der Leistungsschwankungen

eines Reaktors, vor allem durch das Abschalten und Wiederauffahren, eine Rolle. Das thermal Ratcheting, d.h. die schrittweise plastische Dehnung, tritt jedoch nur dann auf, wenn der plastische Abbau von Spannungsspitzen auf mehrere Anfahr- und Abschaltphasen des Reaktors verteilt wird. Bei der Geometrie eines Brüterbrennelementes und den vorgegebenen Beanspruchungen ist dies nicht der Fall. Es zeigt sich nämlich, daß der plastische Abbau der Spannungsspitzen innerhalb von zwei Zyklen, d.h. nach einem Anfahren und Abschalten, erfolgt ist. Das thermal Ratcheting spielt damit für Brüterhüllrohre keine wesentliche Rolle.

Die mechanische Beanspruchung eines Brüterhüllrohres konzentriert sich schließlich auf den Innendruck durch Spaltgas oder Festkörperkontakt, wobei die restlichen thermischen Spannungen in einem Sicherheitsbeiwert berücksichtigt werden müssen. Geht man von einer Standzeit gleich 15 000 h aus, das entspricht in etwa der Lebensdauer eines Brüterbrennelementes und setzt die Zeitdehngrenze = 0,2 %, da die bisherigen Bestrahlungsversuche an Röhrrchen unter Innendruck tangentielle Bruchdehnungen von 0,3 - 1,0 % zeigten und die Zeitstandfestigkeit der bestrahlten Proben in etwa der unbestrahlten 0,2%-Zeitdehngrenze entspricht, ergibt sich mit den Werten aus Tabelle 1 nach Gleichung (31) für den Stahl X8CrNiMoVNb1613 ein maximaler Innendruck bei 650 °C Hüllwandtemperatur von 180 at (Fig.7).

Damit darf unter Zugrundelegung eines integralen Druckaufbaus durch das Spaltgas und das Schwellen des Brennstoffs sowie einer Dehnung von 0,2 % der Innendruck nach 15 000 h beim Stahl X8CrNiMoVNb1613 (4988) 180 at nicht überschreiten. Der Einfluß der Bestrahlung wurde dabei nicht berücksichtigt. Vergleichsweise ist deshalb in Fig.7 die aus experimentellen Ergebnissen bei 600 und 700 °C extrapolierte Zeitstandfestigkeit von Röhrrchen (70 mm Außendurchmesser, 0,4 mm Wandstärke, $s/r = 0,125$) unter Bestrahlung wiedergegeben. Danach setzt bei einem konstanten Innendruck von 90 at der Bruch nach 15 000 h ein.

Für die festigkeitsmäßige Auslegung des Brennelements muß somit der hier angegebene Bereich - 180 - 90 at - eingehalten werden, wobei aus Sicherheitsgründen nach den bisherigen Kenntnissen der Enddruck näher am unteren Bereich liegen sollte.

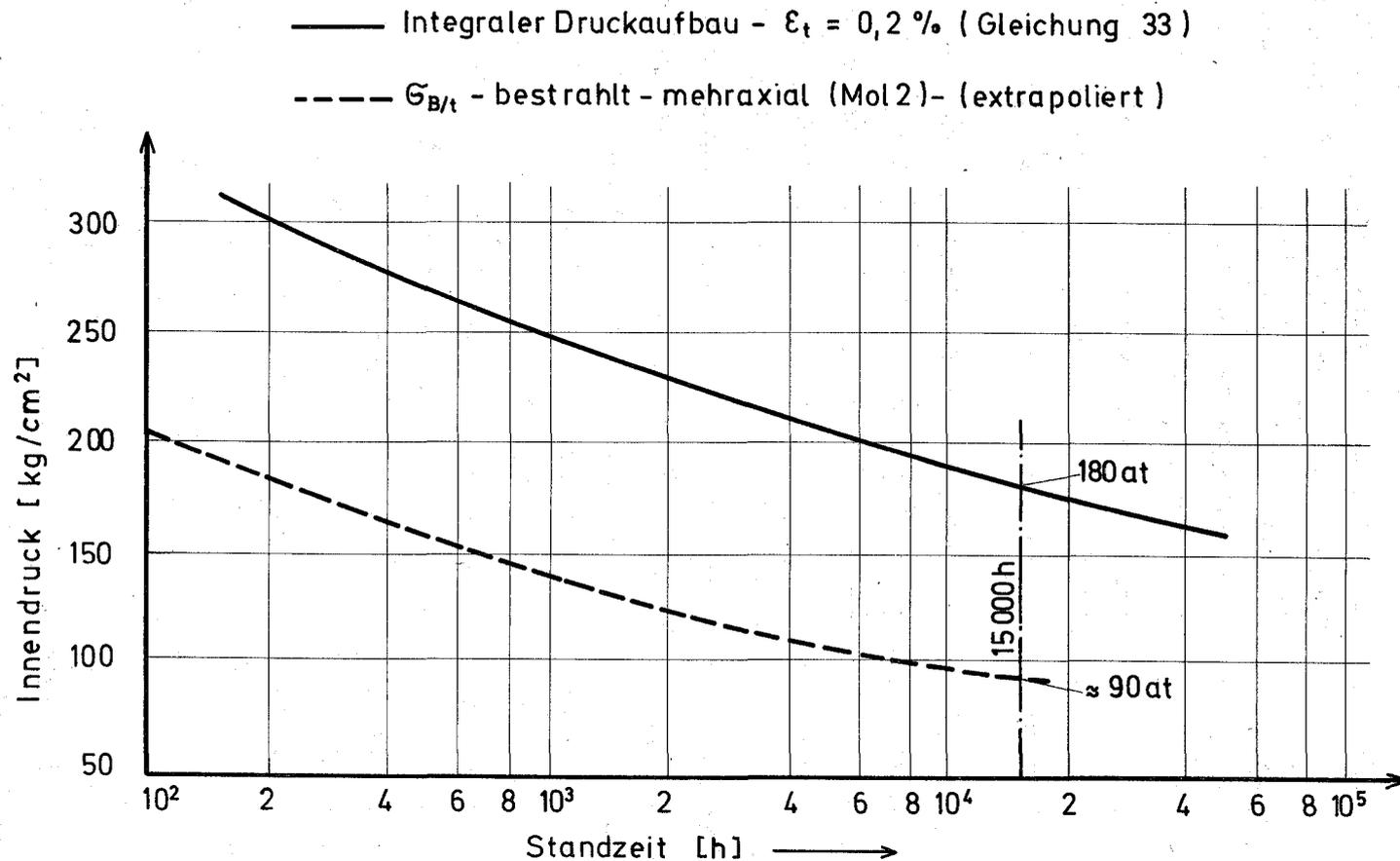


Fig.7 Zeitstandfestigkeit des aust. Stahls X8CrNiMoVNb 16 13 [4988]
 bei 650°C und integralem Druckaufbau bzw. mit konstantem Druck
 unter Bestrahlung (Rohrproben 45 · 7,0 · 0,4 mm)

Der geplante Mol 5-Versuch (In-pile-Kriechverhalten) wird über die Beeinflussung der Kriechgeschwindigkeit und damit der Zeitdehngrenze nähere Auskunft geben und gegebenenfalls günstigere Maximaldrücke für die Auslegung zulassen.

Nimmt man entsprechend Na1 einen maximalen Innendruck des Spaltgases bei 100 % Freisetzung von 70 at an, bleibt in etwa ein Betrag von 40 - 50 at für das Schwellen des Brennstoffs, d.h. die Brennstofftemperatur und Dichte des Brennstoffs muß sich an diesem Wert orientieren, soweit dies im Augenblick überhaupt möglich ist. Ähnliche Festigkeitsbereiche können selbstverständlich auch im Bereich niedriger Hülltemperatur ermittelt werden, wobei bei steigender Festigkeit der Hülle auch ein höherer Schwellendruck des Brennstoffs zugelassen werden kann. Ein Vergleich der Zeitstandfestigkeit des Stahls X8CrNiMoVNb1613 bei 550 und 650 °C in Fig.8 verdeutlicht diese Annahme. Ferner zeigt Fig.8 den Bereich der Zeitstandfestigkeiten bei 650 °C der ebenfalls möglichen Hüllwerkstoffen 4961 und 4981 gegenüber dem Stahl 4988. Die Zusammensetzung der drei Stähle sowie die 0,2 und 0,5 % Zeitdehngrenzen nach 10 000 h bei 600 - 700 °C sind in Tabelle 2 wiedergegeben. Die bisherige Hüllmaterialauswahl hat sich damit vor allem an der Festigkeit, nicht an der Duktilität orientiert. Zwei Argumente sind für diese Entscheidung ausschlaggebend:

- a) Der Entwurf sieht aus thermodynamischen Gründen nur maximale Dehnungen der Hülle von 1 % vor.
- b) Die bisherigen Ergebnisse der Mol 2-Bestrahlungen erbrachten, mit Ausnahme des Incoloy 800 nach kurzen Standzeiten, bei allen Legierungen unterschiedlicher Zusammensetzung Bruchdehnungen zwischen 0,15 und 1,2 %, wobei die meisten Werte in der Größenordnung von 0,5 % waren.

Die mechanische Beanspruchung der Brennelementhülle des natriumgekühlten Reaktors setzt damit hochwarmfeste Legierungen voraus, und neue, in die Auswahl genommene Legierungen sollten zumindest 0,2 - 0,5 % Zeitdehngrenzen entsprechend dem Stahl 4988 aufweisen.

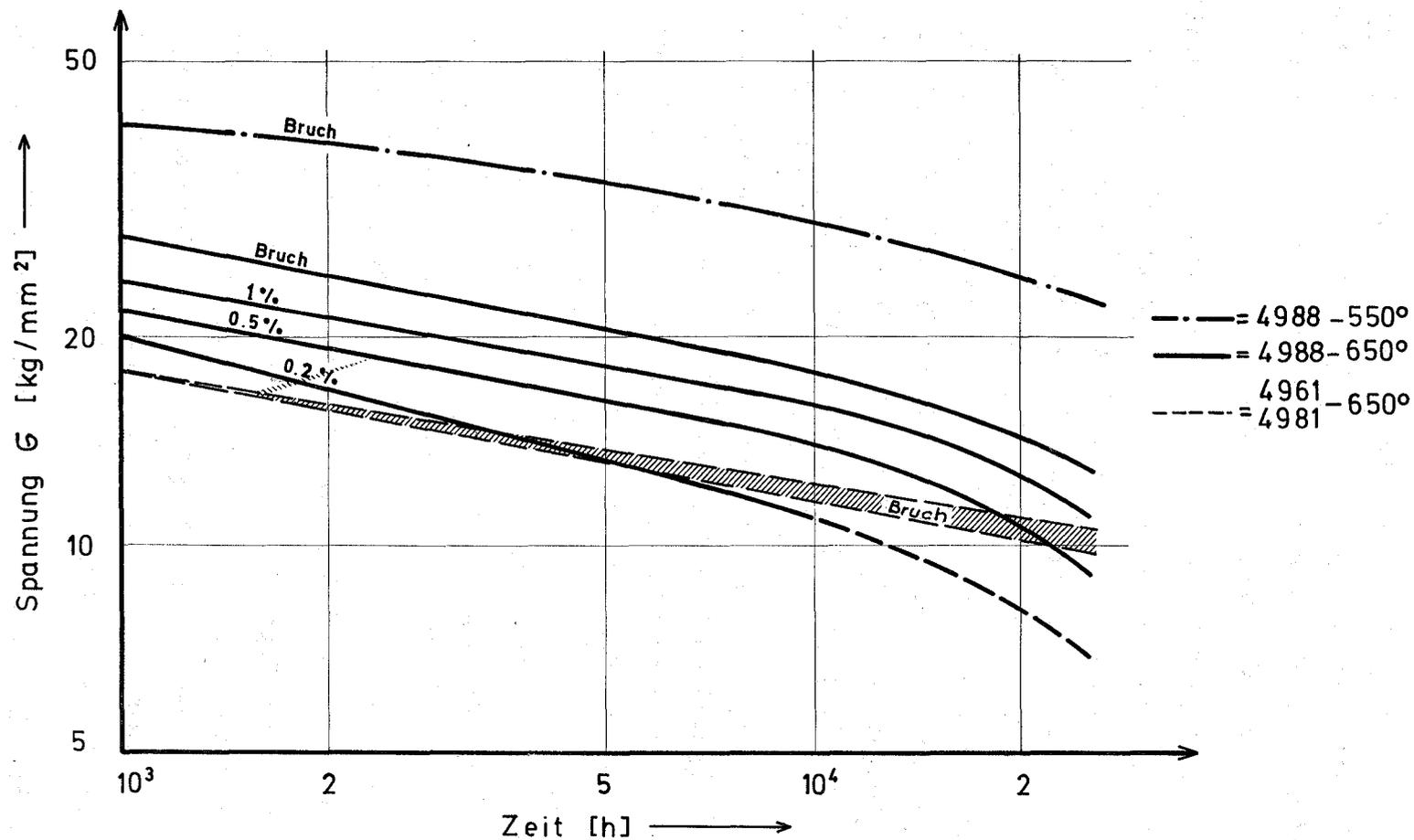


Fig.8 Zeitdehngrenze bzw. Zeitstandfestigkeit von X8CrNiMoV Nb16 13 [4988]
 und Zeitstandfestigkeit von X8CrNiNb 16 13 [4961] und
 X8CrNiMoNb 16 16 [4981]

4. Belastung durch den Außendruck - dampfgekühlter Reaktor

Beim dampfgekühlten Brutreaktor kommt die Hauptbeanspruchung der Brennelementhülle vom Kühlmitteldruck, der nach den bisherigen Entwürfen zwischen 120 und 170 at liegen wird. Ausschlaggebend ist die Frage des Kriechbeulens, d.h. das Einbeulen der Hüllrohre durch den Kühlmitteldruck über einen Kriechvorgang, das bei leeren Rohren aus hochwarmfesten Legierungen, z.B. Inconel 625 und Temperaturen von 700 °C innerhalb kurzer Zeit zum Zusammenklappen führt.

Damit bekommt der innere Gegendruck, sei es durch vorher aufgebrauchten Gasdruck, durch das Spaltgas oder den Schwelldruck des Brennstoffs, zur Unterstützung der Hülle besondere Bedeutung. Andererseits darf der Gesamtinnendruck aus Sicherheitsgründen auch am Ende der Standzeit nicht zu hoch werden, damit beim Wegfall des Kühlmitteldrucks die Brennelemente nicht innerhalb kurzer Zeit auf Grund des hohen Innendrucks zu Bruch gehen.

Das Kriechbeulen von dünnwandigen Rohren unterscheidet sich vom elastisch-plastischen Einbeulen, das dann auftritt, wenn die Streckgrenze des Materials überschritten wird. Bei einem Außendruck von 180 at und einer Quetschgrenze von Inconel 625 bei 700 °C von 345 at besteht diese Gefahr kaum. Das Kriterium der Quetsch- oder Streckgrenze ist jedoch nicht immer ausreichend. In Analogie zum Knickstab tritt bei einem nicht vollkommen kreisrunden Rohr neben der nominellen Druckbeanspruchung auch eine Biegebeanspruchung auf. Sie hängt linear von der Abweichung gegenüber der Idealgeometrie, Gerade oder Kreis, ab und kann unter Umständen dominieren und zu starken Instabilitäten führen. So gilt für ein Rohr mit 7,0 mm Außendurchmesser und 0,4 mm Wandstärke aus einem 16/13 CrNi-Stahl bei 700 °C:

Rein theoretischer elastischer Beuldruck von $P_{el} = 720$ at

Angenäherter überelastischer Beuldruck (bei nicht Idealgeometrie) von $P_K = 180$ at.

Dagegen ist mit einem $\sigma_{0,2} = 18,3$ kg/mm² ein maximaler zulässiger Außendruck bis zur Erreichung der Quetschgrenze von $P_{0,2} = 220$ at notwendig.

Ein Druck von 180 at entspricht bei austenitischen Stählen, und damit auch für Incoloy 800, der Grenze für die Kurzzeitbelastung. Diese Materialien sind somit für dampfgekühlte Brüter nur dann zu verwenden, wenn das collapsed can Konzept - duktile Hülle - fester Brennstoff - zur Anwendung kommt. Unter der Annahme ausreichender Brennstofffestigkeit wird dabei ein Abstützen der Hülle auf den Brennstoff angestrebt, dadurch wird die Hülle in der Beanspruchung entlastet, sie muß dagegen den thermischen Zyklen und dem radialen Schwellen des Brennstoffs folgen, d.h. eine gute Duktilität, selbst unter Bestrahlung, aufweisen.

Das Konzept der freistehenden Hülle (feste Hülle - weicher Brennstoff) setzt dagegen einen extrem festen Hüllwerkstoff voraus, der auch bei nahezu völligem Verlust der Duktilität während der Bestrahlung ausreichende Festigkeit besitzt, um den vorliegenden Beanspruchungen standhalten zu können.

Wie wir später noch sehen werden, wird ein Kompromiß zwischen beiden Konzepten für den dampfgekühlten Brüter am günstigsten sein. Das zentrale Problem bleibt jedoch nach wie vor das Kriechbeulen bei konstantem Außendruck, da durch diese zeitabhängige Erscheinung die Belastbarkeit und die Standzeit der Brennelementhülle begrenzt ist. Das bedeutet, daß im Gegensatz zum elastisch-plastischen Verhalten beim Kriechbeulen keine kritische Belastungsgrenze besteht, vielmehr vergrößert sich jede noch so kleine Anfangsabweichung vom idealen Kreisquerschnitt, selbst unter geringer Belastung, stetig und progressiv, um schließlich auch eine vorgegebene Grenze zu überschreiten, insofern nur genügend Zeit zur Verfügung steht.

Das Problem wurde vor allem von N.J. Hoff in [6] und J.P. Ellington [7] festigkeitstheoretisch behandelt und in [2] für die Anwendung beim dampfgekühlten Brüter überarbeitet.

Für die festigkeitstheoretischen Überlegungen nach N.J. Hoff wurden folgende Annahmen getroffen:

- a) Das Rohr ist unendlich lang, dünnwandig und von konstanter Wandstärke
- b) Die Temperatur ist im ganzen Rohr konstant

Hier besteht der größte Unterschied zwischen Modell und Wirklichkeit. In axialer Richtung kann man zwar auf einige cm von gleicher Temperatur sprechen, während in radialer Richtung zwischen Innen- und Außentemperatur ein Temperaturunterschied von $\geq 30^\circ\text{C}$ vorhanden ist. Da k stark temperaturabhängig ist, muß man auf alle Fälle mit einer effektiven Wandtemperatur rechnen, um k richtig festzulegen. Auf der sicheren Seite liegt man sicher mit der Hüllwandinnentemperatur, während eine effektive Temperatur ungefähr dem arithmetischen Mittelwert gleichgesetzt werden kann.

- c) Belastung durch reinen Außendruck
- d) Das Nortonsche Kriechgesetz $\dot{\epsilon} = k \sigma^n$ gilt, d.h. Primärkriechen soll vernachlässigt werden.

Da die elastische Anfangsverformung vernachlässigt werden kann und die im Zugversuch ermittelte Dehnung während des Primärkriechens in der Größenordnung der elastischen Dehnung bleibt, kann es in der Tat berücksichtigt bleiben.

Die Berechnungsparameter sind somit: Temperatur, Druckdifferenz, Kriecheigenschaften (k und n), Wandstärke und Anfangsovalität des Querschnitts.

Diese Anfangsovalität wächst am Anfang nur relativ langsam, ab einer gewissen Verformungsgröße sehr rasch an bis zum flachgedrückten Querschnitt. Dieses Verhalten ist besonders ausgeprägt bei nur geringen Unrundheiten (ca. 0,01 - 0,02 mm). Entsprechende Unrundheiten werden dem Hersteller für Brüterhüllrohre spezifiziert.

Unter dieser Annahme tritt erst nach 90 % der Standzeit, d.h. Zeit bis zum völligen Flachdrücken, unzulässige Verformung auf. Zur Berechnung von $t_k = \text{krit. Zeit} = \text{Standzeit}$ wurde in [2] und [6] folgende Grundgleichung hergeleitet, die jedoch nur für ein gerades $n > 3$ im Nortonschen Kriechgesetz gilt.

$$\dot{x} = \frac{x}{\tau} \left[1 + \frac{(n-1)(n-2)}{1^2 \cdot 3^2} x^2 + \frac{(n-1)(n-2)(n-3)(n-4)}{1^2 \cdot 3^2} x^4 \dots \right] \quad (35)$$

τ = Zeitkonstante

X = Ovalität = $2\sqrt{3} \frac{\text{Maximale Abweichung vom Kreis}}{\text{Wandstärke}}$

$$\tau = \frac{3}{n k'} \left[\frac{5 \lambda}{\Delta P R_m} \right]^n \left[\frac{\rho}{R_m} \right]^2 \quad (36)$$

n = Kriechkonstante

k' = Kriechkonstante = $k (3/4) \frac{n+1}{2}$

R_m = mittlerer Radius, bezogen auf die mittlere Temperatur

ρ = Trägheitsradius = $\frac{S}{2\sqrt{3}}$

ΔP = äußerer Überdruck

λ = Bezugsspannung für Dimensionsgleichheit im Norton'schen Kriechgesetz: $\dot{\epsilon} = k \left(\frac{\sigma}{\lambda} \right)^n$

Als kritische Zeit = Standzeit erhält man für $n = 6$, das entspricht bei Inconel 625 nach Tabelle 3 einer Temperatur von 650°C , folgende Gleichung

$$t_k = \tau \sqrt{\frac{1}{2}} \ln \left(\frac{1,9}{X_o^4} + \frac{4,2}{X_o^2} + 1 \right) - 0,66 \ell_n \left(\frac{0,28 X_o^2 + 1,03}{0,28 X_o^2 + 0,143} \right) \quad (37)$$

Die eckige Klammer der Gleichung (37) ist damit nur von der Anfangsovalität abhängig, während alle anderen Parameter in τ (Gleichung (36)) enthalten sind.

Mit einer vorgegebenen Anfangsovalität von $X_o = 0,02$ mm ergibt sich nach Gleichung (37) und (36) bei 650°C und einer vorgegebenen Standzeit von 20 000 h ein äußerer Überdruck von ca. 70 at, während bei 700°C und gleicher Zeit der Überdruck nur in der Größenordnung von 40 - 50 at sein darf. Da jedoch nach [8] bei einem Vergleich der Ansätze von Hoff und Ellington Unterschiede in den Standzeiten um den Faktor 3 ermittelt wurden, sind experimentelle Untersuchungen über das Kriechbeulverhalten erforderlich, vor allem, um für weitere Parameterstudien den Unterschied zwischen Modell und Experiment genauer zu kennen.

Nach den überschlägigen Rechnungen dürfte eine mittlere Hüllwandtemperatur von 650°C für Inconel 625 den gegebenen Möglichkeiten entsprechen, wobei die Druckdifferenz zwischen dem maximal möglichen Überdruck von 70 at und dem vorgegebenen Kühlmitteldruck von 170 at bzw. 120 at entweder durch einen vorher aufgebracht

Heliuminnendruck oder durch die Stützwirkung des Brennstoffs aufgebracht wird. Im Augenblick scheint die Version des Heliuminnendrucks realistischer, da keine Angaben über die Stützwirkung des Brennstoffs ~~bekannt sind~~ und wohl nur in einem In-pile-Dampfloop mit Brüter entsprechenden Parametern zu ermitteln sind.

Damit läßt sich z.Zt. für Inconel 625 als Hüllmaterial unter Berücksichtigung des Kriechbeulverhaltens folgendes sagen:

Bei einer mittleren Hüllwandtemperatur von 650°C bzw. 700°C darf der äußere Überdruck 70 bzw. 50 at nicht übersteigen.

Der zulässige Innendruck bei einer Standzeit von 20 000 h läßt sich im Augenblick aus den Mol 2-Bestrahlungen nur annähernd extrapolieren. Danach beträgt der maximale konstante Innendruck für Inconel 625 bei 650°C bzw. 700°C 65 bzw. 35 at, während die tangentielle Dehnung bei beiden Temperaturen in der Größenordnung von 1 % sein wird (Fig.9).

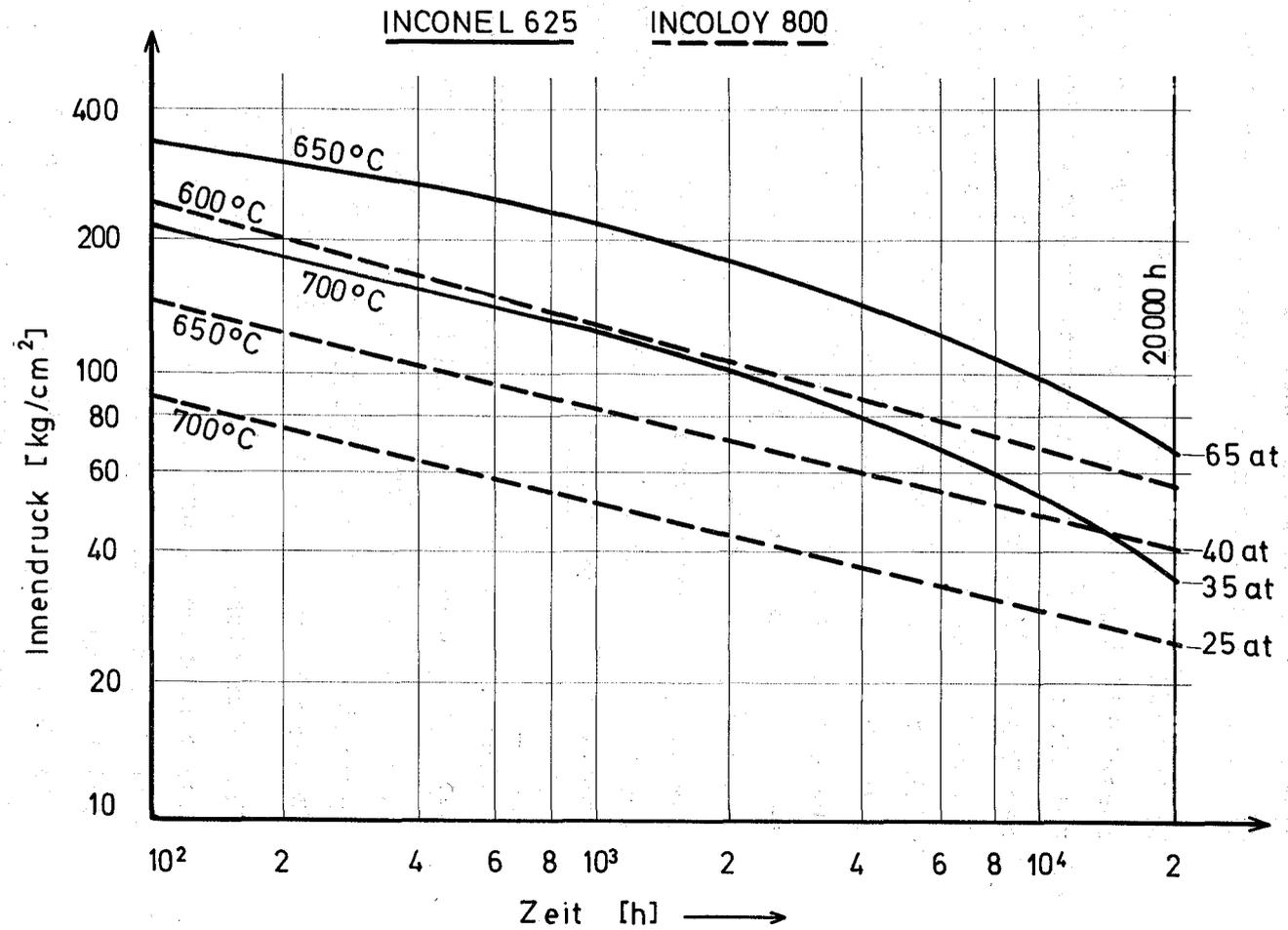
Der mögliche Gesamtinnendruck, der sich aus dem zulässigen Innendruck plus dem Kühlmitteldruck ergibt, beträgt bei 650°C und 120 at Außendruck 185 at, bei 700°C und dem gleichen Außendruck 155 at.

Berücksichtigt man ferner einen Spaltgasdruck von 50 at, der durch eine entsprechende Plenumlänge realisiert werden kann, so darf bei einem zulässigen Überdruck von 70 at bei 650°C der maximale Brennstoffschwelldruck 85 at, bei 700°C und einem zulässigen Überdruck von 50 at der Schwelldruck 35 at nicht übersteigen.

Nach den bisherigen Kenntnissen über das Schwellen von Brennstoff dürften diese Drücke am Ende der Standzeit auch einigermaßen realistisch sein, natürlich fehlt auch hier die experimentelle Bestätigung.

Aus Sicherheitsgründen muß nun jedoch auch der Fall des vollkommenen Wegfalls des Kühldrucks berücksichtigt werden, d.h. eine Notkühlung mit gleichem Temperaturniveau. Der Gesamtinnendruck wurde bereits für 650°C am Ende der Standzeit mit 185 at, bei 700°C mit 155 at bestimmt, er darf die Streckgrenze des Materials plus einem Sicherheitsfaktor nicht überschreiten, da sicher auch mit Temperaturexkursionen gerechnet werden muß

Fig.9 In-Pile-Zeitstandfestigkeit (extrapoliert) von Rohrproben
(7,0 · 0,4mm) aus INCONEL 625 und INCOLOY 800



$$P_{i \text{ zul}} = \frac{\sigma_{0,2} \cdot S}{1,5 \cdot R_m} \quad (38)$$

$P_{i \text{ zul}}$ = zulässiger Innendruck

S = Wandstärke

R_m = mittlerer Hüllrohrradius bei 650 °C

Mit $\sigma_{0,2}$ - bestrahlt = 61 kg/mm² bei 650 °C ergibt sich ein
 $P_{i \text{ zul}} = 450$ at und bei 700 °C mit $\sigma_{0,2}$ - bestrahlt = 58 kg/mm²
 ein $P_{i \text{ zul}} = 430$ at.

Nach den bisherigen Kenntnissen ist damit eine Brennelementauslegung für den dampfgekühlten Brüter und Inconel 625 mit mittleren Hüllwandtemperaturen von 650 - 700 °C und 120 at Kühlmitteldruck durchaus realistisch. Der notwendige Heliuminnendruck von 50 - 70 at wird gegebenenfalls nach weiteren Kenntnissen über die Brennstoffstützwirkung noch variierbar sein.

Ein Vergleich mit den Verhältnissen bei 170 at Kühlmitteldruck ist Tabelle 4 zu entnehmen. Bei einem Heliumdruck von 110 at (650 °C) bzw. 130 at (700 °C) ergibt sich bei 50 at Spaltgasdruck und 85 bzw. 35 at Brennstoffschwelldruck ein Gesamtinnendruck am Ende der Standzeit von 235 bzw. 215 at. Auch bei Wegfall des Kühlmitteldrucks wird hier die Streckgrenze nicht überschritten. Im Prinzip gilt deshalb das gleiche wie bei 120 at Kühlmitteldruck, wenn der maximale Spaltgasdruck (50 at) und der Schwelldruck des Brennstoffs (85 bzw. 35 at) durch entsprechende Brennelementauslegung (Länge des Spaltgasplenums) und Brennstoffparameter (Dichte, Brennstofftemperatur) in den vorgegebenen Grenzen bleibt.

Darüber hinaus ist eine Erhöhung der Hüllrohrtemperatur auf 750 °C mit Inconel 625 sicher nur bedingt möglich, das wird durch den starken Abfall der Zeitstandkurve bei 750 °C in Fig.10 deutlich. Die Zeitstandfestigkeit von 2 kg/mm² nach 20 000 h ist sicher nicht geeignet, Inconel 625 im Dauerbetrieb bei einer mittleren Hüllrohrtemperatur von 750 °C einzusetzen.

Bei der Verwendung von Incoloy 800 als Hüllmaterial für den dampfgekühlten Brüter sollte auf Grund der geringeren Festigkeit gegenüber Inconel 625 die Sicherheitsfrage im Vordergrund stehen.

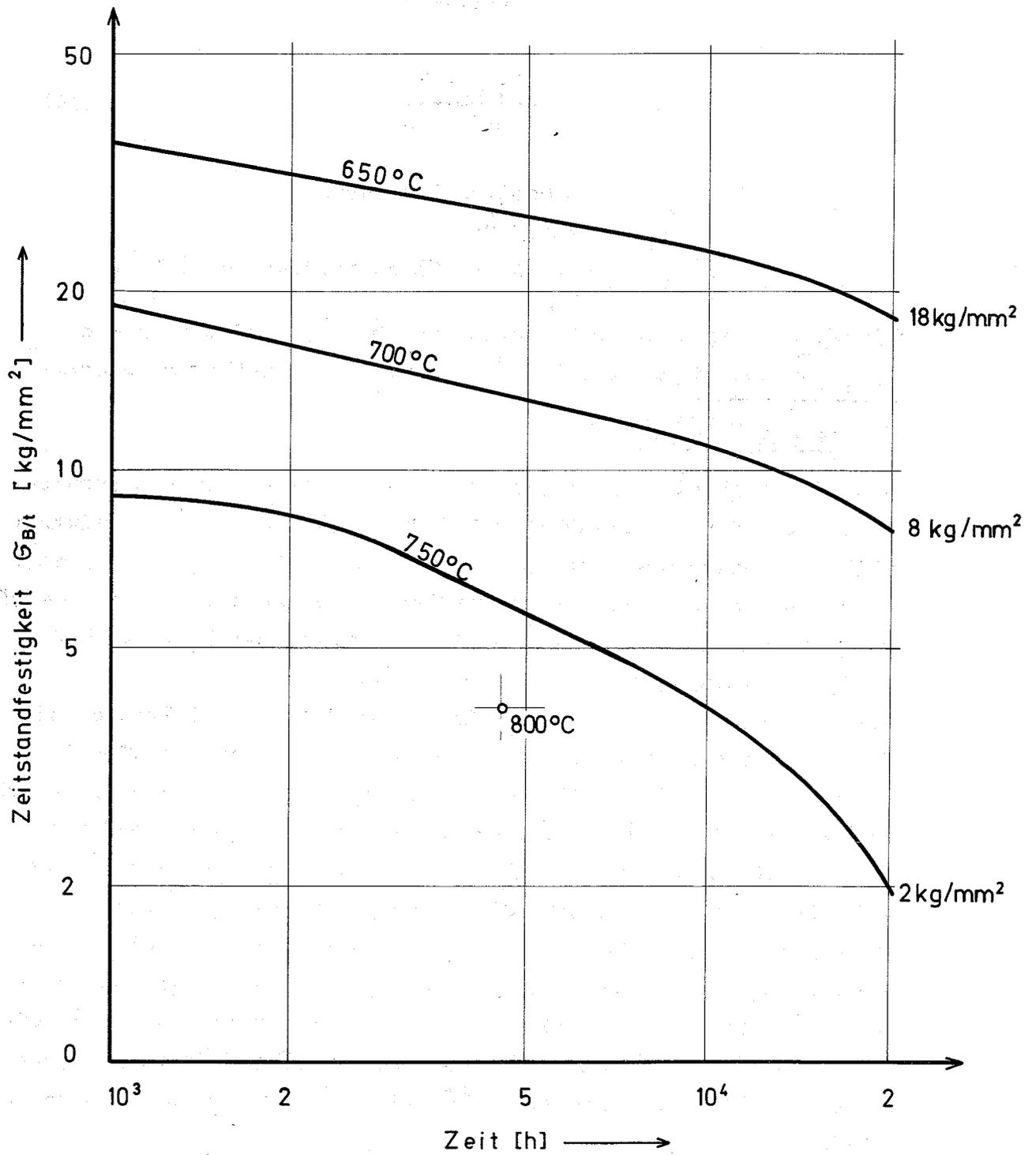


Fig.10 Zeitstandfestigkeit von INCONEL 625

Die zulässigen maximalen Innendrucke bei Wegfall des Außendrucks sind in Tabelle 5 in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen. Danach darf bei 650 bzw. 700 °C der Innendruck am Ende der Standzeit 190 bzw. 180 at nicht überschreiten.

Unter Berücksichtigung der Festigkeit und des hohen n -Wertes der Norton-Beziehung muß man jedoch mit einem Heliuminnendruck von ca. 100 at rechnen. Genauere Angaben sind in diesem Rahmen nicht möglich, da Gleichung (35) mit $n = 9$ gemäß Tabelle 3 nicht ohne weiteres lösbar ist. Man muß sich damit im Augenblick auf allgemeine Betrachtungen, die jedoch sicher nicht völlig unrealistisch sind, beschränken. Unter der Annahme eines maximalen Spaltgasdrucks von 50 at und eines Schwellendrucks von ebenfalls 50 at als Mittelwert für 650 und 700 °C wird mit dem Innendruck $P_i = 200$ at der zulässige maximale Innendruck am Ende der Standzeit überschritten (Tabelle 5: 650 °C: 190 at, 700 °C: 180 at).

Da die Streckgrenze von Incoloy 800 bei 650 °C und 700 °C keine großen Unterschiede zeigt, sind die Unterschiede bei diesen Temperaturen nur geringfügig. Andererseits kann jedoch der Brennstoffschwellendruck bei der geringen Hüllwandtemperatur und damit Brennstofftemperatur wesentlich größere Unterschiede zeigen. Hier liegt auch der größte Unsicherheitsfaktor bei der ganzen Betrachtung. Im Gegensatz zur Streckgrenze unterscheidet sich ferner die 20 000 h - Zeitstandfestigkeit nach Fig.9 bei 650 °C (40 at) und 700 °C (25 at) prozentual wesentlich stärker.

Unter Berücksichtigung des Brennstoffschwellens und der vorgegebenen Festigkeit ist damit bei Incoloy 800 eine Entscheidung über die Hüllwandtemperatur - 650 oder 700 °C - im Augenblick nur sehr schwer möglich. Wahrscheinlich ist die Verwendung von Incoloy 800 bei einem Kühlmitteldruck von 120 at nur mit relativ festem Brennstoff, d.h. einem Konzept der "halbfesten Hülle", möglich. Neben einer niedrigen Brennstoff- und Hüllwandtemperatur muß die Hülle ausreichende Festigkeit, aber vor allem gute Duktilität aufweisen, um den wechselseitigen Verformungen des Brennstoffs folgen zu können. Nach den bisherigen Mol-2-Bestrahlungen zeigt Incoloy 800, im Gegensatz zu allen anderen untersuchten Legierungen, auch tangentialer Dehnungen in der Größenordnung von 3 %.

Nach Versuchen der General Electric [9], die zum Teil nur Dehnungen von kleiner 1 % erhalten, handelt es sich bei den eigenen Ergebnissen möglicherweise nicht um eine generelle Eigenschaft von Incoloy 800, das bekanntlich durch geringe Unterschiede in der Zusammensetzung in den mechanischen Eigenschaften stark beeinflusst werden kann. Nähere Angaben sind damit erst nach zyklischen Beanspruchungen unter Bestrahlung möglich, die in etwa dem zeitlichen Verlauf der Brennstoffveränderungen entsprechen sollten.

Zusammenfassend läßt sich über die Verwendung von Incoloy 800 sagen, daß man die maximale Hüllwandtemperatur 600 °C nicht überschreiten sollte und eine Unterstützung der Hülle durch den Brennstoff unbedingt erforderlich ist, um den Heliuminnendruck möglichst gering zu halten.

5. Zusammenfassung

Nach einer kurzgefaßten Darstellung der wichtigsten Grundlagen der mechanischen Beanspruchung metallischer Werkstoffe, wurden die möglichen Hüllrohrbelastungen für den natrium- und dampfgekühlten Brutreaktor getrennt betrachtet.

Die Hauptbeanspruchung der Hüllrohre beim natriumgekühlten Reaktor kommt vom Innendruck durch die freigesetzten gasförmigen Spaltprodukte und das Schwellen des Brennstoffs. Als Hüllwerkstoffe kommen vor allem austenitische Stähle in Frage. Da nach den bisherigen Bestrahlungsversuchen die Bruchdehnungen bei mehraxialer Belastung in der Größenordnung von 0,5 % bleiben, muß vor allem die Festigkeit berücksichtigt werden. Nach den vorgegebenen Brennelementauslegungsdaten der Na2-Studie sowie den theoretischen Überlegungen und experimentellen Ergebnissen muß bei 650 °C Hüllwandtemperatur und dem Stahl X8CrNiMoVNb1613 (4988) der Innendruck nach 15 000 h Betriebszeit zwischen 180 und 90 at bleiben. Bei einem maximalen Spaltgasdruck von 70 at und der notwendigen Sicherheitszugabe darf damit der Brennstoffschwelldruck 50 at nicht überschreiten. Für Stähle geringerer Festigkeit, z.B. 4961 bzw. 4981, muß der maximale Innendruck noch unter dem hier angegebenen Wert liegen.

Beim Brennelement des dampfgekühlten Brütters ist das Kriechbeul-

verhalten der Hüllrohre eines der wichtigsten Auslegungskriterien. Nach festigkeitstheoretischen Überlegungen läßt sich die Standzeit bei einem Außendruck von 120 - 170 at berechnen. Da die bisher bekannten Theorien relativ große Unterschiede in der Standzeit vermitteln, bedarf es noch der experimentellen Bestätigung. Mit großer Wahrscheinlichkeit wird bei hochwarmfesten Nickellegerungen, z.B. Inconel 625, ohne Stützwirkung durch den Brennstoff bzw. einen Heliuminnendruck, die erforderliche Standzeit nicht erreicht. Bei Inconel 625 darf für eine Standzeit von 20 000 h bei 650 °C der zulässige Außendruck nicht höher als 70 at und bei 700 °C nicht höher als 50 at sein. Da die Stützwirkung des Brennstoffs im Temperaturbereich 650 - 700 °C nahezu unbekannt ist, muß ein entsprechender Heliuminnendruck vorgesehen werden. Nach den Ergebnissen der Mol-2-Versuche beträgt der Berstdruck von bestrahltem Inconel 625 nach 20 000 h und 650 °C ca. 65 at und bei 700 °C 35 at. Der Gesamtinnendruck, zusammengesetzt aus dem Helium- und Spaltgasdruck sowie dem Schwellendruck des Brennstoffs, sollte damit die vorgegebenen Drücke abzüglich des Kühlmitteldrucks nicht überschreiten. Bei 120 at Außendruck muß der Innendruck bei 650 °C kleiner als 185 at, bei 700 °C kleiner als 155 at bleiben, die entsprechenden Werte für 170 at Außendruck sind dann 235 und 205 at.

Diese Drücke genügen auch den Sicherheitsanforderungen beim kurzzeitigen Wegfall des Außendrucks. Eine Erhöhung der Hüllwandtemperatur bei Inconel 625 auf 750 °C ist dagegen bei der geringen Zeitstandfestigkeit $\sigma_{B/20\ 000\ h} = 2\ \text{kg/mm}^2$ nicht empfehlenswert.

Für Incoloy 800 muß der Heliuminnendruck noch höher als bei Inconel 625 sein. Unter Berücksichtigung des Spaltgas- und Brennstoffdrucks wird die notwendige Sicherheitsanforderung am Ende der Standzeit nicht mehr erfüllt, d.h. der Gesamtinnendruck ist höher als die Streckgrenze des Materials. Für das Konzept der "halbfesten Hülle" sind jedoch noch weitere Versuche notwendig, vor allem über das Verhalten bei zyklischer Beanspruchung unter Bestrahlung und über den Brennstoffschwellendruck bei Hüllwandtemperaturen von 600 °C. Erst dann kann über die Verwendung von Incoloy 800 als Hüllmaterial im dampfgekühlten Brüter entschieden werden.

Literatur

- [1] G. Schmidt: Betrachtungen über die betriebsmäßige Beanspruchung von Brennelementhüllen, PSB-Bericht Nr. 94
- [2] G. Schmidt: Hüllrohr-Festigkeitsprobleme beim dampfgekühlten Schnellen Brüter, PSB-Bericht Nr. 224
- [3] Schneller natriumgekühlter Reaktor Na2, KFK-660 (1967)
- [4] D.R. Miller: Thermal-Stress Ratchet Mechanism in Pressure Vessels, Trans AIME, June 1959, 190/196
- [5] A. von der Steinen: Teil III: Langzeitverhalten austenitischer Stähle, Archiv f. das Eisenhüttenwesen 33 (1962) S.49/60
- [6] N.J. Hoff, W.E. Jahsmann, W. Nachbar: A study of creep collapse of a long circular cylindrical shell under uniform external pressure, J. of Aerospace 26 (1959), S.663
- [7] J.P. Ellington: Creep Collapse of Tubes under external Pressure, DEG Report-162 (R) UKAEA (1960)
- [8] J. Höchel, R. Antoni, W. Uhde, E. Parzig, H. Plitz: Brennelemente für den dampfgekühlten Schnellen Brutreaktor, Atomwirtschaft 12 (1967) S.325/330
- [9] S.Y. Ogawa, C.N. Spalaris: Burst and Tensile Properties of irradiated Incoloy-800 and Inconel-625 Tubing Materials, Trans ANS 10 (1967) Nr.1, S.134/135

Tab.1 Brennelementdaten für den natriumgekühlten Prototyp-Reaktor (nach 3) und Eigenschaften des Hüllmaterials
X 8CrNi MoVNb 1613

Brennelement

Länge	2675 mm
Außendurchmesser	6,0 mm
Wandstärke	0,38 mm
Hüllwandtemp.:	
max. außen	685 °C
nom. außen	618 °C
max. innen	706 °C
nom. innen	635 °C

Hüllmaterial

X8 CrNi MoVNb 16 13 [Werkst.Nr.4988]	
Wärmeleitzahl	0,21 W/cm°C
Wärmeausdehnungszahl	$17,6 \cdot 10^{-6}$ / grad.
$\sigma_{0,2} - 650^\circ\text{C}$	18,3 kg/mm ²
Kriechparameter:	k $8 \cdot 10^{-13}$
	n 7,6
E - Modul - 650 °C	16 500 kg/mm ²
Poissonsche Zahl	0,3

Tab. 2 Chemische Zusammensetzung und 10 000 - 0,2% und 0,5% - Zeit -
dehngrenzen von austen. Stählen (Dehngrenzen nach [5])

DIN - Bezeichng.	Werkstoff Nr.	Legierungselemente [Gew-%]							$\sigma_{0,2}/10\,000$ [kg/mm ²]			$\sigma_{0,5}/10\,000$ [kg/mm ²]		
		C	Cr	Ni	Mo	V	Nb	N	600°C	650°C	700°C	600°C	650°C	700°C
X8CrNiMoVNb1613	4988	0,08	16	13	1,3	0,7	1,0	0,1	17,0	10,0	5,0	23,0	14,0	6,3
X8CrNiNb 1613	4961	0,08	16	13			1,0		15,0	8,5	4,0	20,0	11,0	5,0
X8CrNi MoNb1616	4981	0,08	16	16	1,8		1,0			7,0	5,0		10,0	6,0

Tab.3 Brennelementdaten für den dampfgekühlten Brüter und Eigenschaften der Hüllmaterialien INCONEL 625 und INCOLOY 800

Brennelement		
Länge	2155	mm
Außendurchmesser	7,0	mm
Wandstärke	0,37	mm
Anfangsovalität	0,01 - 0,02	mm
max. nominelle Hüllrohrtemperatur	635	°C
max. Hüllrohrtemperatur im heißen Kanal	747	°C
Kühlmitteldruck	D 1: 170	at
	D 2: 120	at

Hüllmaterial	INCONEL625		INCOLOY 800		
	650°C	700°C	650°C	700°C	
Kriech - parameter	: n	5,6	4,7	8,9	9,4
	: k	$8 \cdot 10^{-14}$	$4 \cdot 10^{-11}$	$9 \cdot 10^{-17}$	$1,5 \cdot 10^{-15}$
$\sigma_{0,2}$ -bestrahlt [kg/mm ²]	61,0	58,0	26,0	24,0	

Tab.4 Hüllmaterialbelastung von INCONEL 625 bei 120 und 170 at Kühlmittel-
druck

Kühlmit- teldruck [at]	Stand- zeit [h]	zul.Über- druck [at]		Helium- druck [at]		Innendruck bestrahlt (Mol 2) max. [at]		Innendruck max. [at]		Spalt- gas- druck [at]	Schwell- druck [at]		zul. Innen- druck (Sicherheit) [at]	
		650°C	700°C	650°C	700°C	650°C	700°C	650°C	700°C		650°C	700°C	650°C	700°C
120	20000	70	50	50	70	65	35	185	155	50	85	35	450	430
170				110	130			235	205					

Tab.5 Zulässiger max. Innendruck bei Hüllrohren
aus INCOLOY 800 in Abhängigkeit von der
Temperatur (Neutronendosis: $2 \cdot 10^{21} \text{ n/cm}^2$)

$$P_{i \text{ zul.}} = \frac{G_{0,2} \cdot s}{1,5 \cdot R_m}$$

$$s = 0,37 \text{ mm}$$

$$R_m = 3,31 \text{ mm}$$

Temperatur [°C]	$G_{0,2}$ -bestrahlt [kg/mm ²]	Pi - zulässig [at]
500	40,0	300
550	35,0	260
600	31,0	230
650	26,0	190
700	24,0	180
750	20,0	150

VIII. DIE CHEMISCHE BEANSPRUCHUNG DER BRENNELEMENT-HÜLLE

von

S. Leistikow

Inhalt:

1. Einleitung
2. Heißdampf-Korrosion von Reaktorwerkstoffen
 - 2.1 Allgemeine Heißdampf-Korrosion
 - 2.1.1 Allgemeine Betrachtung
 - 2.1.2 Isotherme Heißdampf-Korrosion
 - 2.1.3 Heißdampf-Korrosion unter Wärmeübergang
 - 2.1.4 Heißdampf-Korrosion unter Wärmeübergang und Bestrahlung
 - 2.2 Lokale Heißdampf-Korrosion
 - 2.2.1 Spannungskorrosion außerhalb des Reaktors
 - 2.2.2 Spannungskorrosion im Reaktor
 - 2.3 Zusammenfassung und Aufgabenstellung
3. Natrium-Korrosion von Reaktorwerkstoffen
 - 3.1 Allgemeine Natrium-Korrosion
 - 3.1.1 Allgemeine Betrachtung
 - 3.1.2 Isotherme Natrium-Korrosion
 - 3.1.3 Natrium-Korrosion unter Wärmeübergang
 - 3.2 Interkristalline Korrosion in Natrium
4. Hüllmaterial-Brennstoff Reaktion
5. Schlußbetrachtung
6. Literatur

1. Einleitung

Die folgenden Ausführungen beinhalten die chemisch-physikalischen Wechselwirkungen des Kühlmittels und des Brennstoffes mit dem Hüllwerkstoff und zeigen die Grenzen auf, die nach dem Stand der gegenwärtigen Kenntnisse dem Einsatz hochbelasteter Brennelemente gesetzt sind.

Bevor die typischen Wechselwirkungen jedes Kühlmittels getrennt erörtert werden, sollen die markantesten Erscheinungen der Metallkorrosion gemeinsam für Dampf und Natrium aufgezeigt werden. Das liegt deshalb recht nahe, weil hochlegierte Cr-Ni-Stähle und Ni-Cr-Fe-Legierungen sowohl für die Dampf- als auch für die Natriumkühlung Verwendung finden und unter den Bedingungen eines schnell zirkulierenden Kühlmittels in technischen Kreisläufen eine ähnliche Beanspruchung erfahren. Es bestehen also gewisse Ähnlichkeiten in der Phänomenologie des Korrosionsangriffes, die wie folgt darzustellen sind:

Die allgemeine, ebene Korrosion des Hüllmaterials wirkt sich nachteilig aus durch Oxidschichtbildung und/oder Abtrag gewisser Anteile der Wandstärke zu Lasten des tragenden Querschnitts und der thermohydraulischen Dimensionierung der Brennelementanordnung besonders bei langzeitigem Reaktoreinsatz.

Die selektive Korrosion bewirkt ein struktur- (korn- oder korngrenzen-) spezifisches, nicht gleichmäßiges Vordringen der Reaktionsfront in das Metallinnere oder auch eine zusammensetzungsspezifische Diffusion und Reaktion gewisser Legierungsanteile in der Materialoberfläche unter Schaffung resp. Zurücklassung von Diffusions- oder Reaktionszonen veränderter Legierungszusammensetzung und veränderten chemischen und mechanischen Verhaltens der solchermaßen veränderten Materialoberfläche.

Produkte dieser allgemeinen und selektiven Oberflächenkorrosion führen zu Kreislaufablagerungen überall dort, wo das Kühlmittel seine Energie durch Abkühlung oder Entspannung verliert. Diese Stoffe fallen dann entsprechend ihrer verminderten Löslichkeit aus dem Reaktorkühlmittel aus und können - wie auch die mechanisch mitgerissenen Anteile - zu radioaktiven Abscheidungen, sogar zur Kreislaufverstopfungen Anlaß geben.

Auch seien die lokalen Korrosionsschäden erwähnt, die besonders an niedriger legierten Cr-Ni-Stählen im Zusammenhang mit temperaturabhängigen Ausscheidungs Vorgängen in den Legierungen, Verunreinigungen im Kühlmittel und mechanischen Zugspannungen im Material meist über elektrochemische Mechanismen der Spannungskorrosion auftreten können.

Damit sind die wesentlichsten Punkte genannt, nach denen die Wechselwirkung der beiden Kühlmittel mit dem Brennelement-Hüllmaterial im folgenden getrennt besprochen werden sollen.

Da die Zahl der verfügbaren Informationen äußerst beschränkt ist, schließen sich nur wenige Ausführungen über die Reaktion von Brennstoff und Spaltstoff mit dem Hüllmaterial an.

2. Heißdampf-Korrosion von Reaktorwerkstoffen

2.1 Allgemeine Heißdampf-Korrosion

2.1.1 Allgemeine Betrachtung

Im Gegensatz zu dem unedlen Element Natrium ist Wasserstoff ein recht edles Element, das mit Sauerstoff unter Bildung von Wasser und Abgabe einer freien Bildungsenergie ΔG von etwa - 120 kcal/Mol reagiert. Da der Gewinn freier Bildungsenergie bei der Oxydation der hier interessierenden Metalle jedoch bei etwa - 120 bis - 180 kcal/Mol liegt - die Aktivierungsenergieschwelle wird durch die der Oxydation vorgelagerten Adsorptions- und Chemisorptionsvorgänge mit freien Bildungsenergien von mehr als - 100 kcal/Mol herabgesetzt - vermag Wasserdampf als schwaches Oxydationsmittel unter Bildung die Reaktionspartner trennender Oxidschichten zu reagieren.

Darüber hinaus tritt in technischen Dampfkreisläufen bei Anwendung hoher Wasserdampfdrucke, hoher Strömungsgeschwindigkeiten und kontinuierlicher Wasserstoff-Abtrennung durch Kondensatentgasung ein Oxydationsmittelüberschuß auf, so daß es nicht zu einer Einstellung des folgenden Reaktionsgleichgewichtes: $\text{Me} + \text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{MeO} + \text{H}_2$ kommt, sondern zu einer einseitigen Begünstigung der Metalloxydation.

Doch da die Änderung der freien Energie zwar die treibende Kraft der Oxydationsreaktion darstellt, diese Größe aber keine oder nur wenig Beziehung zur Reaktionsgeschwindigkeit hat, verlagern sich die Probleme der Metall-Korrosion von thermodynamischen zu kinetischen Fragen des Reaktionsablaufes, auf die im folgenden näher

eingegangen werden soll.

2.1.2 Isotherme Heißdampf-Korrosion

Die isotherme Heißdampf-Korrosion der Struktur- und Brennelementhüllmaterialien, über deren Zusammensetzung im hier interessierenden Rahmen die Tabelle 1 Auskunft gibt, führt zum Aufbau von Oxidschichten unterschiedlicher Dicke, Struktur, Zusammensetzung und Haftfestigkeit an der metallischen Unterlage. Gemeinsam ist jedoch allen Materialien ein Reaktionsablauf, der nach einem relativ kurzzeitigen, nicht linearen Übergangszustand über längere Reaktionszeiten durch eine lineare Funktion angenähert werden kann.

$$\Delta W = \Delta W_0 + k_1 t \quad [1]$$

ΔW = korrodierte Metallmenge in mg/dm^2

ΔW_0 = durch Schnitt der linearen Funktion mit der Ordinate extrapolierte Konstante in mg/dm^2

k_1 = Konstante der linearen Reaktionsgeschwindigkeit in mg/dm^2 Monat

t = Reaktionszeit in Monaten

Im Prinzip ist ΔW_0 abhängig von der Struktur und Reinheit der Ausgangs-Metalloberfläche, auf der die erste oxidische Deckschicht gebildet wird. Die Konstante der linearen Reaktionsgeschwindigkeit ist abhängig von der Reaktionstemperatur gemäß der Arrhenius-Beziehung, von der Kaltverformung der Metalloberfläche sowie von dem Gittertyp, Molvolumen, Fehlordnung, Haftfestigkeit, der thermodynamischen Stabilität der sich bildenden Oxide und vom Zustand, der Strömungsgeschwindigkeit und der Qualität des Dampfes.

Nur wenige dieser Parameter sind in schmaler Meßbreite an einer geringen Zahl von Materialien untersucht worden. Bei den untersuchten Cr-Ni-Stählen, einschließlich Incoloy-800, wurde eine starke Abhängigkeit von der Oberflächenvorbereitung [2,3], eine geringfügigere vom Sauerstoffgehalt und der Strömungsgeschwindigkeit und eine relative Unempfindlichkeit vom Dampfdruck experimentell nachgewiesen. Die Korrosion der untersuchten Nickellegierungen ist weniger abhängig vom Oberflächenzustand, ein Einfluß des Sauerstoffgehaltes

des Dampfes wurde nicht gefunden [4]. Der Einfluß des Druckes ist noch nicht bekannt.

Als Beispiel sind in Fig.1 die Oxydationskurven [5], in Tabelle 2 die Reaktionsgeschwindigkeiten und die zugehörigen Konstanten einiger technischer Heißdampf-Legierungen für zwei verschiedene Temperaturen wiedergegeben [1]. Die Figuren 2 und 3 geben den typischen Aufbau der Oxidschichten auf Incoloy-800 und Inconel-625 nach isothermer Heißdampf-Reaktion wieder [6,7].

Im allgemeinen gilt für diese Legierungen:

- Austenitische Cr-Ni-Stähle bilden dicke, zwei- bis dreiphasige und schützende Oxidschichten von relativ guter Haftfestigkeit,
- Nickel-Basislegierungen bilden dünne, einphasige Oxidschichten, die kleine Metallpartikel einschließen und einen horizontalen Spalt (wohl entlang der Ausgangsoberfläche des Materials) zeigen. Meßbare Anteile der Oxidschicht werden an das Heißdampf-System verloren und hinterlassen eine, auf der Oberfläche zerklüftete Struktur,
- Incoloy-800, das in seiner Legierungszusammensetzung zwischen den beiden erstgenannten Legierungstypen steht, besitzt die Vorteile beider: eine schützende, dreiphasige Oxidschicht mittlerer Dicke und guter Haftfestigkeit [8]. Die Zusammensetzung der drei Teilschichten wurde durch Röntgenbeugungsanalyse nach mechanischem Abtrag als aus (dampfseitig beginnend) α -Fe₂O₃, Spinelle (Fe₃O₄) und Nickel/Eisen-Chromspinell) und Cr₂O₃ mit metallischen Partikeln bestehend erkannt [6].

Durch metallographisches Ätzen wurden bei allen untersuchten Legierungen in den der Oxidschicht benachbarten, metallischen Randschichten weiße, strukturlose Zonen gefunden, die durch selektive Diffusion und Oxydation einiger Legierungselemente, besonders des Chroms, entstanden waren. Die metallographische Erscheinungsform und Dicke dieser Diffusionszone wurde für Inconel-625 planimetrisch ermittelt [8], die geringe Widerstandskraft gegen erneute Oxydation nach Entzunderung wurde an Proben des Incoloy-800 nachgewiesen [7].

Das Ergebnis der isothermen Vorauswahl von Brennelement-Hüllmaterialien läßt sich wie folgt zusammenfassen: neben den in der Heißdampf-Technologie bewährten ferritischen und austenitischen rostfreien Stählen zeigen besonders die nickelhaltigen Legierungen ein ausgezeichnetes Verhalten in Heißdampf höherer Temperatur.

Ganz anders jedoch verhält sich die Heißdampf-Korrosion desselben Materials unter den Bedingungen des Wärmetransportes zum kühlenden, schnell zirkulierenden Dampf. Eine entscheidende Zunahme des Anstieges der linearen Funktion (siehe Fig.4) erfordert eine umfangreiche Erprobung der Materialien unter den speziellen Anwendungsbedingungen des Brennelement-Hüllmaterials eines dampfgekühlten Reaktors. Davon soll im folgenden Abschnitt die Rede sein.

2.1.3 Heißdampf-Korrosion unter Wärmeübergang

Im Gegensatz zu den Verhältnissen unter isothermen Reaktionsbedingungen steht die unter Wärmeübergang zum Dampf auf dem Metall sich ausbildende Oxidschicht unter dem Einfluß sich überlagernder thermischer und mechanischer Spannungen (Fig.5), die durch die Oxidschichtbildung, den Strömungsdruck des Dampfes und den steilen Temperaturgradienten in der laminaren Dampfgrenzschicht erzeugt werden und zum Abplatzen beträchtlicher Anteile der Oxidschicht im Verlauf der Langzeitreaktionen führen [9].

Nach einem nicht linearen Kurvenabschnitt tritt erneut ein lineares Zeitgesetz [5], dieses Mal aber mit einem wesentlich steileren Tangens als bei vergleichbaren isothermen Bedingungen, auf:

$$\Delta W = \Delta W_0 + k_1 t$$

Im Prinzip besteht, ähnlich wie unter isothermen Bedingungen, eine Abhängigkeit der Reaktionsgeschwindigkeit von der Temperatur gemäß der Arrhenius-Beziehung, vom Dampfzustand, der Kaltverformung der Materialoberfläche sowie von den physikalischen und chemischen Eigenschaften der gebildeten Oxide. Während die korrodierte Metallmenge in Abhängigkeit von der Reaktionstemperatur mit Hilfe der folgenden Funktionen errechnet werden kann,

Incoloy-800

$$\Delta W = 48.43 T \exp(-5230/T) + 3409 \cdot T \cdot t \exp(-10388/T) \quad [10]$$

Inconel-625

$$\Delta W = 2427 \exp(-3073/T) + 1.07 \cdot 10^6 t \exp(-9944/T) \quad [11]$$

mit ΔW = korrodierte Metallmenge in mg/dm^2

T = absolute Temperatur in $^{\circ}\text{K}$

t = Reaktionszeit in Monaten

ist eine Abhängigkeit von der Kaltverformung der Materialoberfläche nur qualitativ nachgewiesen worden [11]. Unerprobt blieb bislang die Abhängigkeit vom Dampfdruck, von der Größe des Wärmeübergangs sowie von der Reinheit des Heißdampfes hinsichtlich Gasgehalt und Spurenverunreinigungen nach technischer Dampferzeugung.

Das lineare Zeitgesetz tritt, begünstigt durch die Bildung poröser Schichtstrukturen, gelegentlich aber auch bei kompakten Schichten [12], bei einer geschwindigkeitsbestimmenden Phasengrenzreaktion an der Phasengrenze Metall/Oxid oder Oxid/gasförmiges Oxydationsmittel auf. Im vorliegenden Fall scheint unter der Einwirkung mechanischer Spannungen die poröse Struktur durch Entstehen, Verheilen und Wiederentstehen von Schichtdefekten aufrecht erhalten zu werden, doch ist die geschwindigkeitsbestimmende Phasengrenzreaktion nicht bekannt. Die abplatzenden Metalloxide werden im Dampfstrom fortgerissen, zum Teil im Dampfsystem (Rohrleitungen, Ventile, Turbine usw.) abgelagert, zum größten Teil aber aus dem Dampfkondensat entfernt.

Die Fig.6 zeigt den zeitlichen Verlauf der Heißdampf-Korrosion unter Wärmeübergang von Incoloy-800 und Inconel-625. Die besonders gute Korrosionsbeständigkeit des Inconel-625 wird deutlich bei Extrapolationen auf eine Reaktionszeit von 3 Jahren bei 704°C Oberflächentemperatur: für Incoloy-800 wird ein mittlerer Metallverlust von $3140 \text{ mg}/\text{dm}^2 \hat{=} 40 \mu$ Wandstärke, für Inconel-625 von $1491 \text{ mg}/\text{dm}^2 \hat{=} 19 \mu$ berechnet [10,11]

Die Fig.7 läßt erkennen, daß es nicht zu einem Aufbau einer, den Wärmeübergang hindernden, dicken Oxidschicht im Laufe der bisher untersuchten Versuchszeit kommt, da sich mit einer vergleichbaren

Geschwindigkeit neben der Korrosion ein ständiger Verlust der Oxidschicht an das Heißdampf-System vollzieht [5,11].

Die Fig.8 und 9 zeigen repräsentative mikroskopische Aufnahmen der Materialoberflächen von Incoloy-800 [9] und Inconel-625 [6] nach mehrtausendstündigen Korrosionsversuchen. Die Oxidschichten sind dünn und durchdringen, besonders im Fall des Inconel-625, recht ungleichmäßig das metallische Gefüge der Hüllrohroberfläche. Durch metallographisches Ätzen wurden auch bei den unter Wärmeübergang korrodierten Materialien unterhalb der Oxidschichten Zonen lokaler Zusammensetzungsunterschiede (Diffusionszonen) sichtbar gemacht. Quantitative Untersuchungen mit der Mikrosonde und Röntgenfluoreszenz [14] zeigen, daß - während sich die Metalle Eisen und Nickel anreichern - aus den beiden untersuchten Legierungen Incoloy-800 und Inconel-625 vor allem Chrom selektiv herausoxydierte und zum Aufbau der Oxidschicht unverhältnismäßig stark beitrug. Die Ausmessung der Konzentrationsprofile in der Metalloberfläche nach der Korrosionsreaktion erlaubt bei bekanntem Metallverlust und bekannter Zusammensetzung des haftfesten Oxides eine quantitative Berechnung der Zusammensetzung des Oxides vorzunehmen, das an das Heißdampf-System verloren wurde. Auch konnten Berechnungen über den dynamischen Gleichgewichtszustand der Diffusionszone im Verlauf langzeitiger Korrosionsreaktionen durchgeführt werden [11,14].

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß aus dem Kreis der untersuchten technischen Legierungen Inconel-625 als favorisiertes Material der Gruppe der Nickellegierungen, Incoloy-800 als bestes Material unter den hochlegierten Cr-Ni-Stählen zur Anwendung als Brennelement-Hüllmaterial für die thermische oder thermisch-schnelle Dampfüberhitzung hervorgegangen sind und die notwendigen Voraussetzungen erfüllen, ernsthaft zur Verwendung als Hüllmaterial für einen dampfgekühlten schnellen Brutreaktor erprobt zu werden.

2.1.4 Heißdampf-Korrosion unter Wärmeübergang und Bestrahlung

Nur wenige Ergebnisse stehen zur Beurteilung der Frage zur Verfügung, welchen Einfluß ein thermischer Neutronenfluß auf den Ablauf der Heißdampf-Korrosion unter Wärmeübergang ausübt. Eine quantitative Aussage könnte ein Vergleich der EVESR-Nachbestrah-

lungsuntersuchungen mit den bei der General Electric durchgeführten out-of-pile Heißdampf-Korrosionsversuchen unter Wärmeübergang erbringen, da die Reaktorbetriebsbedingungen - mit Ausnahme des Neutronenflusses - weitgehend den Kreislaufbedingungen entsprachen. Da aber ein mehrhundertfacher Wechsel der Betriebsbedingungen gelegentlich der Abschaltungen, des Anfahrens und der Lastwechsel auftrat, der die Gesamtzeit der Hochtemperaturbelastung der Brennelemente zwar verminderte, doch in unkontrollierbarem Maße die thermisch-mechanischen Übergangszustände beeinflusste, unter denen die Oxidschichten von den Oberflächen der Brennelemente abplatzen und die Korrosion begünstigen, sind diese Ergebnisse des etwa 3-jährigen Reaktorbetriebes (mit entsprechend reduzierter Verfügbarkeit) nur halbquantitativ verwendbar.

Die EVESR-Nachbestrahlungsuntersuchungen ergaben im Fall der niedrig belasteten Mark II - Elemente mit maximaler Oberflächentemperatur von 730-750°C und den Hüllmaterialien 304 ss, 310 ss, Incoloy-800 und Inconel-600 eine durch Korrosion oxydierte und in der Zusammensetzung lokal veränderte Wandstärke von insgesamt 25-50 µ. Die Heißdampf-Korrosion der höher belasteten Mark III - Elemente mit maximalen Oberflächentemperaturen von 760-770°C und dem Hüllwerkstoff Incoloy-800 betrug einschließlich aller Randeffekte weniger als 25 µ [15].

Die Extrapolationen aus den out-of-pile Korrosionsversuchen unter Wärmeübergang erwiesen sich damit - grob gesprochen - im wesentlichen als richtig. Doch sollten in Zukunft alle Möglichkeiten wahrgenommen werden, weitere Ergebnisse der Heißdampf-Korrosion im schnellen und thermischen Neutronenfluß an Brennelement-Hüllmaterial zu erarbeiten.

2.2 Lokale Heißdampf-Korrosion

2.2.1 Spannungskorrosion außerhalb des Reaktors

In Autoklaven - [16] resp. Kreislauf - Versuchen [17] ist die Möglichkeit gezeigt worden, unter Zusatz chemischer Verunreinigungen und/oder hohen mechanischen Zugspannungen in der Dampf-atmosphäre trans- oder meist interkristalline Spannungskorrosions-

schäden an Heißdampfmaterialien zu erzielen. Betroffen waren davon bislang die wesentlichen Werkstoffe mit Ausnahme der matrixhärtenden Mo- und Nb-haltigen Nickellegierungen wie Inconel-625, Inconel-718 etc. Bisher ist es jedoch nicht gelungen, eindeutig zwischen chemisch begünstigten Spannungsschäden und spannungsbegünstigtem chemischem Angriff zu unterscheiden und den Bereich kritischer Materialbeanspruchung hinsichtlich der Parameter Spannung und Chlorid-Konzentration schärfer aufzuzeigen.

2.2.2 Spannungskorrosion im Heißdampf-Reaktor

Aus den Erfahrungen des SADE- und ESADE-Versuchskreislaufes im VBWR der General Electric, in denen zahlreiche Spannungskorrosionsschäden auftraten [18], lernte man, daß nur extreme Wassereinigung einen durch Brennelementschäden ungestörten Reaktorbetrieb garantieren kann. Entsprechende Vorkehrungen (siehe Tabelle 3) wurden während der 3jährigen Betriebszeit des EVESR getroffen und damit erreicht, daß sich nur an zwei Stäben aus kommerziellem 304 ss der 508 Stäbe umfassenden Beladung Spannungskorrosionsschäden ereigneten. An keinem der übrigen wurden lokale Korrosionsschäden, auch nicht im Entstehen, gefunden. Selbst dünne Abscheidungen von Verunreinigungen, besonders entlang der Abstandshalterdrähte, die sich wohl meist aus Silikaten zusammensetzten, begünstigten keinesfalls Spannungskorrosionsschäden.

Die Forderung, die Materialentwicklung, Brennelement-Entwurf und Reaktorbetrieb bei der Entwicklung und Anwendung eines Brennelementes für einen dampfgekühlten Brutreaktor zu erfüllen haben, kann wie folgt ausgesprochen werden:

- es sind Legierungen zu entwickeln, die unter einer normalen Zugspannung in der Hüllrohroberfläche lokale Konzentration von Verunreinigungen (z.B. an Abstandshalterdrähten oder Turbulanzförderern) schadlos widerstehen,
- es sind Reaktorbetriebsbedingungen einzustellen, bei denen der Brennelement-Werkstoff außerhalb seines kritischen Bereiches der Einwirkung chemischer Verunreinigungen und mechanischer Zugspannungen zum Einsatz kommt.

2.3 Zusammenfassung und Aufgabenstellung

In out-of-pile Kreislaufversuchen und im EVESR wurde der Einsatz einer Vielzahl von Materialien unter den Bedingungen der thermischen Dampfüberhitzung erfolgreich demonstriert. Bei diesen Untersuchungen wurden aber folgende, für einen dampfgekühlten Schnellen Brutreaktor spezifischen Belastungen des Brennelement-Hüllmaterials nicht verifiziert:

- Verwendung eines Hüllrohres geringen Durchmessers (etwa 7 mm) aus einem hochnickelhaltigen Werkstoff (wie Inconel-625) bei Verwendung spezieller Abstandshalter (Rippenrohre) und den Wärmeübergang verbessernden Oberflächengeometrien,
- Einsatz unter Oberflächentemperaturen von etwa 700-750°C, einem Wärmefluß von 160-200 W/cm², einem Dampfdruck von 150-180 atm und einem durch den hohen Außendruck bedingten speziellen Spannungszustand der Brennelement-Hülle,
- Überhitzung bei technischer Dampferzeugung durch direkten Wärmeübergang und Kondensatverdampfung,
- Einsatz im schnellen Neutronenfluß bis zu höchsten Abbränden.

Maßstäblich out-of-pile und in-pile Versuche, mit besonderem Augenmerk auf die Heißdampf-Korrosion, sind deshalb im Rahmen der Hüllmaterialentwicklung für einen dampfgekühlten Schnellen Brutreaktor weiterhin erforderlich.

3. Natrium-Korrosion von Reaktorwerkstoffen

3.1 Allgemeine Natrium-Korrosion

3.1.1 Allgemeine Betrachtung

Das oberhalb einer Temperatur von 97,7°C flüssige Metall-Natrium dient der Reaktortechnologie als Kühlmittel, mit Vorteil zur Abfuhr großer Wärmemengen aus einem Reaktorcore hoher Leistungsdichte. Wegen seiner Eigenschaft als starkes Reduktionsmittel und einer nur sehr geringen Löslichkeit der Behälter- und Brennelement-Hüllmaterialien aus Legierungen des Eisens, Chroms und Nickels bei Arbeitstemperatur läßt sich der chemische Korrosionsangriff, dessen Mechanismus und Ausmaß in Abhängigkeit von verschiedenen

Reaktor-Betriebsbedingungen im folgenden aufgezeigt werden sollen, in erträglichen Grenzen halten.

Die Flüssigmetall-Korrosion resultiert einerseits aus Differenzen des chemischen Potentials zwischen flüssigem und festem Metall und andererseits aus der chemischen Reaktion der Oberfläche des festen Metalles mit dem flüssigen Metall und seinen Verunreinigungen. Der erste, rein physikalische Mechanismus wird wie folgt beschrieben (Fig.10):

1. In einem isothermen System, das ein festes Metall in Kontakt mit einem flüssigen Metall enthält, existiert solange eine Differenz des chemischen Potentials als treibende Kraft der Auflösung des festen Metalles bis sich das Flüssigmetall nach Maßgabe der temperaturabhängigen Löslichkeit mit dem festen Metall sättigt und sich ein Gleichgewichtszustand zwischen Auflösung und Abscheidung einstellt.
2. Dieser Gleichgewichtszustand kann wie folgt gestört werden:
 - durch Auftreten von Temperaturdifferenzen im Fest-Flüssigmetall-System, die im Bereich höherer Temperaturen eine verstärkte Löslichkeit des festen Metalles im Natrium, im Bereich niedriger Temperaturen eine verminderte Löslichkeit und Abscheidung zur Folge haben,
 - bei isothermem Einsatz von zwei festen Metallen unterschiedlicher Zusammensetzung im Natrium, wobei die löslichen Anteile des einen Metalles unter Bildung von Legierungen, Ablagerungsverbindungen oder Oberflächen-Diffusionsschichten mit dem anderen Metall reagieren.

In beiden Fällen kommt es zu einer verstärkten Auflösung von Metallen, die sich im ersten Fall bei örtlichen Temperaturdifferenzen in Natriumkreisläufen laufend vollzieht (thermischer Massentransport), die im zweiten Fall erst dann zum Stillstand kommt, wenn die konzentrationsabhängige Potentialdifferenz zwischen den beiden festen Metallen abgebaut ist, d.h. durch Abscheidung und Verbindungsbildung mit dem zweiten Metall schließlich

beide Metalle dasselbe Oberflächenpotential gegenüber Natrium hinsichtlich des nunmehr gemeinsamen Partners besitzen. Eine so entstandene Legierungsschicht kann als Diffusionshindernis wirken und den Massentransport im Laufe der Zeit zum Stillstand bringen [19]. Das sind die Bedingungen des konzentrationsabhängigen chemischen Massentransportes wie er in Natrium-Kreisläufen bei Verwendung z.B. von ferritischen und austenitischen Anlageteilen auftritt. Dabei "entkohlen" die Ferrite, während die Austenite "aufkohlen".

3. Die chemische Reaktion des Natriums und seiner Verunreinigungen mit den exponierten Metalloberflächen kann gemäß der Änderung der freien Bildungsenergie aus Reduktions- und Oxydationsvorgängen bestehen. So ist es unterhalb 700°C thermodynamisch möglich [20]:

- mit Natrium die Oxide des Eisens, des Nickels und des Chroms zu reduzieren,
- mit Natriumoxid die Metalle Vanadin, Niob, Titan, Zirkon und Uran zu oxydieren.

Beide Vorgänge können sich unter Korrosion der Materialoberfläche vollziehen. Doch sind wegen der undefinierten Aktivität des gelösten Sauerstoffes, der Bildung intermediärer Natriumoxid-Metall-Oxid-Komplexe und des heterogenen Aufbaus des Systems Legierung/Flüssigmetall diese Reaktionen noch weitgehend unerforscht. Das ist verständlich, da das, was sich dem Experimentator als Korrosion in einem technischen Flüssigmetall-Kühlkreislauf zeigt, eine Überlagerung der gesamten obengenannten Erscheinungen physikalischer und chemischer Art in einem System aus verschiedenen, kompliziert aufgebauten Legierungen bei unterschiedlicher Betriebstemperatur und dem Flüssigmetall mit verschiedenen Verunreinigungsgehalten darstellt.

Gesichert ist vom Mechanismus der Korrosionsreaktion, daß es mindestens während der ersten Phase zur Ausbildung einer mehr oder wenig haftfesten Oxidschicht (unter Gewichtszunahme) kommt, die abgelöst wird von zuerst selektiver, später (nach Einstellung eines Diffusionsprofils in der Materialoberfläche) von Gleichgewichtskonzentrationsbestimmter Materialauflösung (unter

Gewichtsabnahme) in den heißen Zonen des Kreislaufsystems und für den Fall stark temperaturabhängiger Löslichkeit einer Abscheidung in den weniger heißen Bereichen.

3.1.2 Isotherme Natrium-Korrosion

Maßstäbliche Versuche zur Auswahl geeigneter Struktur- und Brennelement-Hüllmaterialien werden in technischen Kreisläufen durchgeführt. Ohne auf spezielle Fragen ihres Entwurfes, Baues oder Betriebes eingehen zu können, soll ganz allgemein festgestellt werden, daß in jedem Fall die erzielten Ergebnisse anlagespezifisch sind, und daß zu ihrem Verständnis mindestens die folgenden Betriebsgrößen bekannt sein müssen:

1. Maximale Temperatur des Kreislaufsystems
2. Maximale Temperaturdifferenz zwischen heißer und kalter Zone des Kreislaufsystems
3. Strömungsgeschwindigkeit des Natriums in den Teststrecken
4. Verunreinigungs- besonders Sauerstoffgehalt des Natriums
5. Legierungszusammensetzung der verwendeten Kreislaufmaterialien
6. Legierungszusammensetzung und Position der Probematerialien.

Als Kreislaufmaterialien können die in Tabelle 4 aufgezeigten niedrig legierten, ferritischen Materialien in den Zonen niedriger Temperatur dann eingesetzt werden, wenn es gelingt, den Kohlenstoffgehalt mittels Niob, Vanadin oder Titan zu stabilisieren, um damit den Massentransport in die heißen Zonen zum austenitischen Material zu unterbinden. Die Korrosion dieser ferritischen Materialien bleibt nach anfänglicher Chrom- und Mangan-Verarmung [21] der Materialoberfläche auf einen dynamischen Gleichgewichtszustand beschränkt, in dem, neben Eisen, Chrom nur noch gemäß seiner Diffusion durch die verarmte Zone von etwa 12 μ Dicke in Lösung geht.

Als Kreislaufmaterialien für die bei höheren Betriebstemperaturen arbeitenden Teile des Kreislaufes werden im allgemeinen austenitische Chrom-Nickel-Stähle (Tabelle 4) verwendet. Ihre Erprobung als Kreislauf- und besonders als Brennelement-Hüllmaterial nimmt den breitesten Raum in der Literatur ein. Zum quantitativen Verständnis der Abhängigkeit des thermischen Massentransportes von der absoluten

Höhe der Temperatur bei gegebener Temperaturdifferenz werden in Fig.11 für Cr-Ni-Stähle und Nickelbasislegierungen Ergebnisse wiedergegeben, die deVan [22] beim 1000stündigen Betrieb von Kreisläufen aus jeweils nur einem Material, jedoch bei Anwendung einer Reihe verschiedener Materialien im Versuchsprogramm, erarbeitete. Sie zeigen ein gutes Verhalten der austenitischen Chrom-Nickel-Stähle, doch bei hochnickelhaltigen Legierungen die starke Tendenz, in den heißen Zonen in Lösung zu gehen und sich in den kältesten wieder abzuscheiden.

Ähnlich sind die Ergebnisse von Thorley und Tyzak [23], die unter scharfen Bedingungen eines technischen Kreislaufes aus austenitischem Stahl bei hohen Sauerstoffgehalten und Natrium-Strömungsgeschwindigkeiten etwa dem Nickelgehalt proportionale Korrosionsgeschwindigkeiten, insbesondere der technischen Nickellegierungen, fanden. Die in Fig.12 aufgeführten Werte lassen erkennen, daß - trotz geringerer Festigkeit - austenitische Chrom-Nickel-Stähle mit Vorzug als Brennelement-Hüllmaterial in Natrium bis zu Temperaturen von 650°C eingesetzt werden. Das bestätigen auch die weiteren Untersuchungen der Autoren, in denen Korrosionsresultate austenitischer Cr-Ni-Stähle, die unter vergleichbaren Bedingungen erarbeitet wurden, in einer Kurvendarstellung zusammengefaßt sind.

Die Fig.13 zeigt, daß die Natriumkorrosion dieser Materialklasse unter den besagten, verschärften Bedingungen durchweg bei $35-50 \mu/\text{Jahr}$ liegt und, wie im weiteren dargelegt wird, sich durch Reinigung des Natriums auf $10-15 \text{ ppm}$ Sauerstoff auf etwa $14-35 \mu/\text{Jahr}$ herabdrücken läßt.

Die Korrosion der Cr-Ni-Stähle in flüssigem Natrium verläuft über folgenden Mechanismus: zuerst bildet sich unter geringfügiger Gewichtszunahme ein grün-schwarzer Oxidfilm aus, dessen Zusammensetzung als die eines Natriumchromat(III)- NaCrO_2 erkannt wurde [24]. Dieser Vorgang hat eine Chromverarmung der Oberfläche zur Folge. Im nächsten Schritt wird diese Chromat-Schicht abgelöst und aus der bloßen Metalloberfläche Nickel herausgelöst bis die Zusammensetzung und Struktur des Gefüges ferritisch ist. Diese Umwandlung kann an Hand der Fig.14 leicht verstanden werden. Erst bei einem Eisengehalt der Metalloberfläche von etwa 90 % ist ein Gleichge-

wichtszustand eingestellt, der alle Charakteristiken der Korrosion eines ferritischen Materials (wie z.B. 2 1/4 Cr - 1 Mo) [23] zeigt.

Parallel zu diesen selektiven Auflösungs- und Strukturumwandlungsprozessen in der Materialoberfläche kann, wie es zum Beispiel die General Electric beschreibt [21], eine Aufkohlung durch Kohlenstofftransport eintreten: von einem unstabilisierten 2 1/4 Cr - 1 Mo in der kälteren Zone des Kreislaufes wurde Kohlenstoff während etwa 2800 Stunden bei 650°C und 1 m/sec Strömungsgeschwindigkeit auf die Oberfläche eines 316 ss in der heißen Zone transportiert und dort in Form von karbidischen Ausscheidungen unterhalb der ferritischen Gleichgewichtszone inter- und intrakristallin im austenitischen Gefüge bis in eine Tiefe von 50 µ abgeschieden. Systematische Versuche, die sich hauptsächlich mit dem Einfluß dieses Kohlenstofftransportes auf die Festigkeit und die Dehnung des betroffenen Materials beschäftigen, sind auch in anderen Laboratorien im Gange und können in der Literatur verfolgt werden [25].

Der Einfluß der Temperatur auf die Reaktionsgeschwindigkeit in Natrium wurde im Bereich höherer Sauerstoffgehalte und bei Temperaturen von 450-725°C für austenitische Chrom-Nickel-Stähle von Thorley und Tyzak [23] wie folgt beschrieben:

$$k = 2,3 \times 10^{-6} \cdot \exp\left(\frac{17500}{RT}\right)$$

k = Reaktionsgeschwindigkeit in cm/sec

T = absolute Temperatur in °K

Diese Autoren beschrieben die Abhängigkeit des Metallverlustes von der Sauerstoffkonzentration als linear bei 650°C. Daher erniedrigt die Absenkung des Sauerstoffgehaltes im Natrium von 25 auf 10 ppm die Reaktionsgeschwindigkeit praktisch um den Faktor 2 (Fig.15).

Eine lineare Zunahme der Korrosionsgeschwindigkeit wurde bei Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit des Natriums bis zu 3 m/sec gefunden. Nach einem Wendepunkt im Gebiet zwischen 3-5 m/sec wird sie unabhängig von der Strömungsgeschwindigkeit (Fig.16). Nach Weeks [24] scheint es so, als ob die Na₂O-Zudiffusion im Natrium zur Metalloberfläche mit nachfolgender Komplexbildung FeO (Na₂O)₂ und

Auflösung der geschwindigkeitsbestimmende Reaktionsschritt ist. Bei hohen Natrium-Strömungsgeschwindigkeiten wird diese oberflächliche Reaktionszone immer dünner und damit die Reaktionsgeschwindigkeit unabhängig von der Strömungsgeschwindigkeit.

Die General Electric [21] faßte den Einfluß der in den vorhergehenden Abschnitten diskutierten Parameter in einer Formel zusammen, die für Ferrite und Austenite die Korrosionsgeschwindigkeit unter den Bedingungen des dynamischen Gleichgewichtszustandes nach dem Auftreten einer ferritischen Oberflächenschicht wie folgt darstellt:

$$k = v^{0.884} C_o^{1.156} \exp \left(12.845 - \frac{13.300}{T+273} \right) - 0.00676 \frac{L}{D} + \frac{2.26}{t+1}$$

k = Auflösungsgeschwindigkeit in $\text{mg}/\text{dm}^2 \cdot \text{Monat}$

v = Natrium-Strömungsgeschwindigkeit in ft/sec

C_o = Sauerstoff-Konzentration im Natrium in ppm

t = Zeit in Monaten

T = Proben temperatur $^{\circ}\text{C}$

L = Entfernung vom Einlaß zu einer gegebenen isothermen und geschwindigkeitskonstanten Zone

D = hydraulischer Durchmesser

Die Konstanten wurden aus 25 Versuchsläufen, die eine ganze Spanne von unterschiedlichen Betriebsbedingungen abdeckten, statistisch berechnet.

Ganz im Gegensatz zu der Korrosion der austenitischen Cr-Ni-Stähle wurde in einem Meßbereich von $<10-25$ ppm Sauerstoff und $2-13$ m/sec für die Nickelbasislegierung Nimonic 80 A eine Unabhängigkeit der Reaktionsgeschwindigkeit von der Sauerstoffkonzentration und - wie Fig.17 zeigt - eine lineare Abhängigkeit von der Strömungsgeschwindigkeit gefunden [26]. Das wird mit diffusionsbestimmter Materialauflösung ohne Bildung von komplexen Natrium-Nickel-Oxiden begründet. Dieser Befund ist für den Einsatz von Nickelbasislegierungen besonders nachteilig, weil weder durch bessere Natriumreinigung eine höhere Materialbeständigkeit erzielt werden kann, noch aus Gründen der Wärmeabfuhr aus dem Reaktorcore durch Absenkung der Natrium-Strömungsgeschwindigkeit erreicht werden sollte.

Zahlreiche binäre und ternäre Vanadin-Legierungen sind aus Gründen ihrer großen Festigkeit, geringen Strahlenversprödung und ihres niederen Einfangquerschnittes im schnellen Neutronenfluß im Maßstab von Versuchsschmelzen hergestellt und der Natriumkorrosion unterworfen worden [27,28,29]. Die Resultate zeigen unter anderem, daß die Korrosion stark vom Sauerstoffgehalt des Natriums abhängig ist und bislang nur bei gründlicher Reinigung des Natriums auf ≤ 10 ppm (das entspricht einer sehr guten Kaltfallen- oder einer durchschnittlichen Heißfallen-Reinigung technischer Kreisläufe) in erträglichen Grenzen gehalten werden kann. Interessante Fortschritte sind hier zu erwarten.

3.1.3 Natrium-Korrosion unter Wärmeübergang

In den bisherigen Versuchen war das zu untersuchende Probenmaterial in Kreisläufen unter isothermen Bedingungen, durch das zirkulierende Natrium erwärmt, korrodiert worden.

Die General Electric [21] hält es zur Entwicklung ihrer großen schnellen Reaktoren für notwendig, das Hüllmaterial im maßstäblichen Wärmefluß dem Natrium zu exponieren. Zur Durchführung solcher Versuche sind eine Graphitstab-Induktionsheizung und ein Elektronenbombardement vorgesehen. Bei Wärmeflüssen von 300 W/cm^2 rechnet man mit Temperatursprüngen von $40\text{-}50^\circ\text{C}$ über die Hüllmaterialwandung, mit ähnlichen Werten von der Hüllmaterialoberfläche zum Hauptstrom des Natriums und befürchtet deshalb zusätzliche Effekte auf das Materialverhalten, vor allem eine verstärkte Korrosion.

3.2 Interkristalline Korrosion in Natrium

Die General Electric [21] berichtete von einem Schaden durch interkristalline Korrosion, der nach 30 000 Betriebsstunden bei 650°C in Rohrleitungen eines Natriumkreislaufes bis in eine Tiefe von 180μ zwischen der letzten heißen Teststrecke und dem ersten Kühler auftrat. Die Art des Schadens wurde wegen seiner Bedeutung bei der Anwendung dünnwandigem Hüllmaterials genauer untersucht.

Die Kombination einer Korrosionsschicht aus Na_2O und NaOH , die sich durch Luft-Rückdiffusion in das Schutzgas gebildet hatte, die Gegenwart thermischer Spannungen und erhöhter Temperatur

während der Vorheiz- und Anfahrzeit schufen günstige Bedingungen für das Auftreten eines solchen Schadens. Spannungskorrosionsuntersuchungen in Natrium an vorgespannten Rohrproben bei verschiedenen Sauerstoff-Konzentrationen sind im Gange.

4. Hüllmaterial-Brennstoff-Reaktion

Zwischen Brennstoff und Hüllmaterial kann es unter den Bedingungen des Reaktorbetriebes zu folgenden Wechselwirkungen kommen:

Wasser, Kohlenstoff-Verbindungen, Halogene, Oxide, Jodide und flüchtige Spaltprodukte können zur inneren Oberfläche des Hüllmaterials transportiert werden und dort in eine Korrosionsreaktion eintreten,

Brenn- und Spaltstoffe können unter Störung der Kornstruktur und Begünstigung von Ausscheidungsvorgängen in das Hüllmaterial eindiffundieren.

Nur wenige Publikationen liegen vor, um quantitative Aussagen zu machen. Untersuchungen der General Electric [21,30] ergaben an Brennelement-Stäben aus 304 ss und 347 ss mit UO_2 - PuO_2 -Brennstoff nach einem Abbrand von maximal 99 000 MWD/T bei 680°C Oberflächentemperatur, daß das Ausmaß einer allgemeinen Oberflächenreaktion eine Tiefe von 25 μ nicht überschritt, und daß lokale Ausscheidungen in oder in Nachbarschaft von Korngrenzen als $M_{23}C_6$ und Korngrenzenveränderungen bis in eine örtliche Tiefe von 75 μ erfolgten.

Diese Befunde treffen nicht für alle Stäbe und an Schadenstellen nicht für den gesamten Umfang eines Stabquerschnittes zu und sind nach den bisherigen Versuchen keine eindeutige Funktion des Abbrandes.

5. Schlußbetrachtung

Natrium

Die Anwendung von austenitischen Stählen als Brennelement-Hüllmaterial in technisch reinem Natrium bis zu 650°C ist unter der Voraussetzung erträglicher Strahlenversprödung und unterdrückten Kohlenstoff-Transportes möglich. Natrium-Korrosionsversuche unter Wärme-

übergang sollten diese Aussage bestätigen. Bei höheren Natriumtemperaturen als 650°C haben weder die austenitischen Stähle noch die Nickelbasislegierungen die notwendige Korrosionsbeständigkeit.

Die Anwendung von Legierungen hochschmelzender Metalle, wie Vanadin, mit verbesserten Festigkeitseigenschaften und geringerer Strahlenversprödung ist grundsätzlich oberhalb dieser Temperaturgrenze möglich, wenn es gelingt, die Konzentration von Natriumverunreinigungen in technischen Systemen spürbar abzusinken, aufrechtzuerhalten und zu messen.

Es ist also die noch ungenügende Reinheit des Natriums, die die Anwendung höherer Arbeitstemperaturen gegenwärtig beschränkt.

Heißdampf

In Heißdampf erscheinen - trotz fehlender Erfahrung unter den Bedingungen hoher Oberflächenbelastung - hochlegierte Cr-Ni-Stähle und Nickelbasislegierungen mit Zusätzen von Molybdän, Wolfram und Niob zuverlässig genug, daß out-of-pile und in-pile Langzeitversuche unter den verschärften Bedingungen des schnellen Brutreaktors vorbereitet und Reaktorentwürfe auf dieser Grundlage durchgeführt werden.

Die Möglichkeiten, noch höhere Festigkeiten durch Modifikation vorhandenen Materials oder durch den Übergang auf eine andere Materialbasis zu erzielen, scheinen beschränkt zu sein.

Doch kann zuversichtlich erwartet werden, daß Korrosions- und Festigkeitsforderungen von Nickelbasislegierungen erfüllt werden, wenn es gelingt, durch Anwendung turbulenz- und quervermischungsfördernder Oberflächengeometrien eine Absenkung der Oberflächentemperatur bei unverändertem Nutzeffekt zu erzielen.

Hüllmaterial-Brennstoff

Die Verträglichkeit des UO_2 -20% PuO_2 -Brennstoffes mit den erprobten austenitischen Stählen kann nach den vorliegenden Untersuchungen als sehr gut bezeichnet werden.

6. Literatur

- [1] G.P. Wozadlo und W.L. Pearl: Corrosion 21, 355-369 (1965)
- [2] M. Warzee, J. Hennaut, M. Maurice, C. Sonnen, J. Waty und Ph. Berge: J. Electrochem. Soc. 112, 670-674 (1965)
- [3] G. Östberg: Bericht S-355, Aktiebolaget Atomenergie Stockholm (1966)
- [4] W.E. Ruther und S. Greenberg: J. Electrochem Soc. 111, 1116-1121 (1964)
- [5] W.L. Pearl, E.G. Brush, G.G. Gaul und G.P. Wozadlo: GEAP-4760, 34-75 (1965)
- [6] S. Leistikow: GEAP-5125, 16/7-16/13 (1966)
- [7] S. Leistikow: GEAP-5175, 16/8-16/12 (1966)
- [8] S. Leistikow: GEAP-5087, 6/17-6/18 (1965)
- [9] G.G. Gaul und S. Leistikow: GEAP-5061, 16/7-16/10 (1965)
- [10] W.L. Pearl, E.G. Brush, G.G. Gaul und G.P. Wozadlo: Nucl. Appl. 1, 235-245 (1965)
- [11] W.L. Pearl, E.G. Brush, G.G. Gaul und S. Leistikow: Nucl. Appl. 3, 418-432 (1967)
- [12] G.G. Gaul: GEAP-5175, 16/2 (1966)
- [13] K. Hauße: Werkstoffe und Korrosion 9, 791-798 (1965)
- [14] E.G. Brush, S. Leistikow und W.L. Pearl: Nucl. Appl. 3, 6-7 (1967)
- [15] S. Rabin, G. Rittenmyer und S. Leistikow: GEAP-Berichte 5510 und 5481 (1967)
- [16] H. Coriou, L. Grall und M. Pelras: 3. Intern. Kongreß Metallkorrosion Moskau 1966

- [17] W.L. Pearl, G.G. Gaul und G.P. Wozadlo: GEAP-4450 (1964)
- [18] C.N. Spalaris: Nucleonics 21, 41-49 (1963)
- [19] F. Tödt: Korrosion und Korrosionsschutz, 2. Aufl. 967-975 (1961)
- [20] L. Champeix: Énergie Nucl. 8, 471-482 (1966)
- [21] E.L. Zebroski, R.S. Young, F.A. Comprelli und D. Dutina: Symp. Alk. Metals Coolants, Wien 1966, Paper No. SM-85/28
- [22] J.H. DeVan: Symp. Alk. Metals Coolants, Wien 1966, Paper No. SM-85/32
- [23] A.W. Thorley und C. Tyzak: Symp. Alk. Metals Coolants, Wien 1966, Paper No. SM-85/18
- [24] J.R. Weeks, C.J. Klamut und D.H. Gurinsky: Symp. Alk. Metals Coolants, Wien 1966, Paper No. SM-85/40
- [25] K.E. Horton, R.C. Andrews, R.C. Werner und D.F. Atkins: Symp. Alk. Metals Coolants, Wien 1966, Paper No. SM-85/33
- [26] P.T. Nettley, I.P. Bell, K.W. Bagley, D.R. Harries, A.W. Thorley und C. Tyzak: Fast Breeder Conf., London 1966, Paper No. 5 B/3
- [27] L. Champeix, R. Darras und J. Sannier: Symp. Alk. Metals Coolants, Wien 1966, Paper No. SM-85/7
- [28] S. Greenberg, W.E. Ruther, H.A. Levin: Symp. Alk. Metals Coolants, Wien 1966, Paper No. SM-85/20
- [29] H.U. Borgstedt, G. Drechsler und G. Frees: Achema Werkstoff-Kolloq., Frankfurt 1967
- [30] F.A. Comprelli, F.J. Hetzler und T.A. Lauritzen: Proc. Conf. Fast Breeder ANL 7120, 366-371 (1965)

Tab.1 Nominelle Zusammensetzung von Heissdampflegierungen

<u>Legierung</u>	<u>C</u>	<u>Fe</u>	<u>Cr</u>	<u>Ni</u>	<u>Mn</u>	<u>Mo</u>	<u>W</u>	<u>Nb</u>	<u>Co</u>	<u>Al</u>	<u>Ti</u>	<u>Si</u>
Incoloy - 800	0.06	46	21	32	1	-	-	-	-	0.1	0.2	0.3
Incoloy - 801	0.06	46	21	32	1	-	-	-	-	0.4	0.9	0.3
Incoloy - 804	0.05	26	30	41	1	-	-	-	-	0.3	0.8	0.5
Incoloy - 825	0.03	30	21	42	1	3	-	-	-	0.1	0.7	0.3
Inconel - 600	0.04	7	16	76	0.2	-	-	-	-	-	-	0.2
Inconel - 625	0.03	3	22	62	0.1	9	-	4	-	0.2	0.2	0.3
Inconel - 718	0.04	18	19	53	0.3	3	-	5	-	0.4	0.9	0.3
Hastelloy - X	0.10	19	22	49	1	9	0.44	-	1.5	-	-	0.8
Hastelloy - F	0.03	22	22	45	1	7	0.26	2	2.5	-	-	0.6
Hastelloy - N	0.06	3.7	7.8	70.7	0.7	16.2	0.03	-	0.2	0.06	0.02	0.6
In-102	0.06	7	15	68.3	-	3	3	3	-	-	0.6	-
Rene-41	0.07	0.3	19	55	-	9.8	-	-	11	1.5	3.2	0.05
Rene-62	0.05	23	14	47	1	9	-	2	-	1.2	2.5	0.1
Type-304 SS	0.08	69	19	9	2	-	-	-	-	-	-	0.7
Type-310 SS	0.04	51	25	20	2	-	-	-	-	-	-	0.5
Type-406 SS	0.15	82	13	0.3	0.3	-	-	-	-	4	-	0.6

Tabelle 2

Isotherme Heißdampf-Korrosion bei 566 und 621°C

Lineare Korrosionsgeschwindigkeit und entsprechende, durch Schnitt der linearen Funktionen mit den Ordinaten extrapolierte Konstanten.

Legierung	Korr. Geschwindigkeit, k_1 mg/cm ² · Monat				Konstante, W_0 mg/dm ²	
	566°C		621°C		566°C	621°C
Incoloy-800	3.7 ± 1.2	5.9 ± 7.7	98 ± 8	385 ± 56		
Incoloy-804	---	12.3 ± 2.8	---	54 ± 20		
Incoloy-825	12.0 ± 4.5	3.3 ± 1.9	47 ± 33	114 ± 11		
Inconel-600	2.1 ± 0.4	31.2 ± 16.8	29 ± 4	368 ± 121		
Inconel-625	0.4 ± 6.1	0.3 ± 5.8	54 ± 28	108 ± 25		
Inconel-718	2.6 ± 1.0	15.3 ± 2.9	33 ± 7	-3 ± 20		
Hastelloy-X	7.1 ± 2.0	2.2 ± 2.6	74 ± 16	120 ± 15		
Hastelloy-F	1.4 ± 1.3	2.2 ± 1.2	53 ± 10	43 ± 8		
René-62	9.1 ± 2.0	15.4 ± 3.2	36 ± 14	24 ± 22		
304 ss	22.8 ± 5.0	63.7 ± 22.6	197 ± 21	427 ± 133		
406 ss	11.4 ± 10.5	10.2 ± 6.1	509 ± 72	438 ± 36		

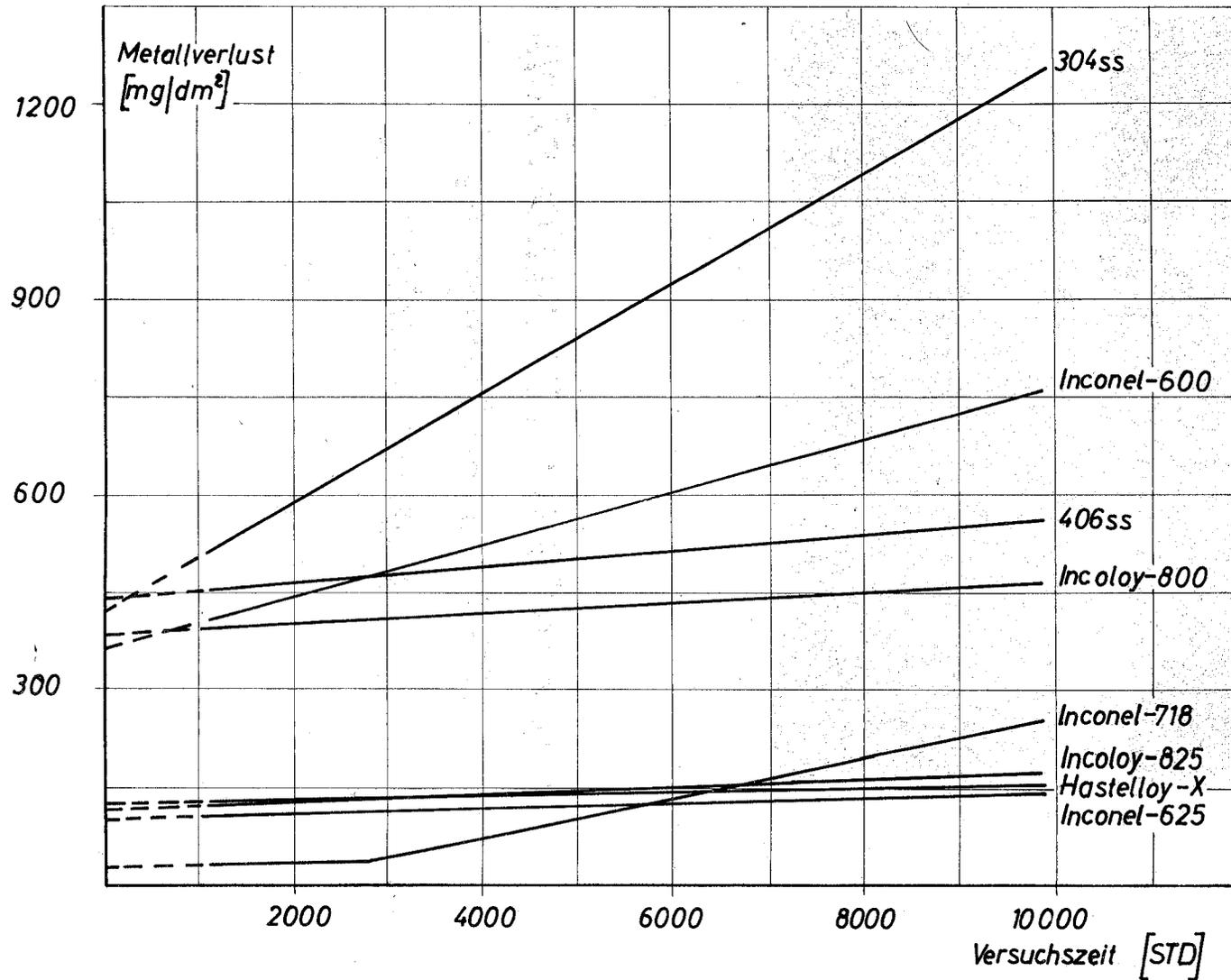
Tab. 3

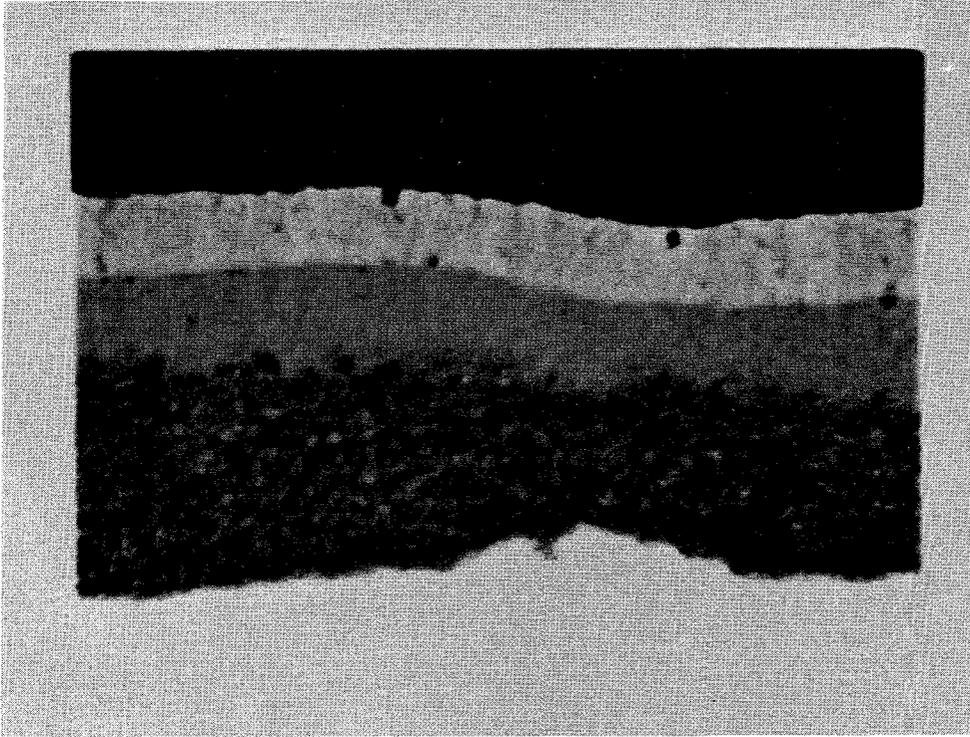
Wasserqualität

	<u>Richtwerte</u>		<u>Messwerte</u>
	Kesselspeisewasser		Heissdampfreaktor (EVESR)
Leitfähigkeit	[$\mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$]	< 0.5	0.3
Chloride	[ppm]	< 0.05	< 0.02
Sauerstoff	[ppm]	< 0.03	Zusatz von 20ppmO ₂ + 2,5ppmH ₂ zum Sattdampf
Silikate	[ppm]	< 0.03	—

Tab. 4	<i>C</i>	<i>Cr</i>	<i>Ni</i>	<i>Co</i>	<i>Fe</i>	<i>Mo</i>	<i>Nb</i>	<i>Mn</i>	<i>Al</i>	<i>Ti</i>	<i>Si</i>
430	0,12	14	0,5					1			1
2¼Cr-1Mo	0,15	225			96	1		0,45			
5-Cr	0,12	5			93	0,5		0,58		0,55	
304 ss	0,08	19	10		68			2			1
310 ss	0,25	24	19		53			2			1,5
316 ss	0,10	17	12		64	3		2			1,5
321 ss	0,07	18	9		72						0,5
330 ss	0,25	14	33		50			2			1
347 ss	0,08	17	9		70		0,8	2			1
4988	0,08	16	13		70	1,3	Nb=0,8 V=0,8				0,4
Incoloy-800	0,06	21	32		45			1	0,6		
Inconel-600	0,02	16	77		6						
Nilo 50	0,03		50		50						
Nilo K	0,03		29	16	53						
Nimonic 80A	0,06	20	75						1,4	2,3	
PE 11	0,07	18	38		35	5,2			0,9	2,2	
PE 16	0,06	16	43		34				1,2	1,2	

Fig.1 Isotherme Heissdampf-Korrosion, 621 °C, 70 ATM.





*Fig. 2 INCOLOY-800 BLECHPROBE
1000 Std. Heißdampf, 621°C
ungeätzt, 2000X*

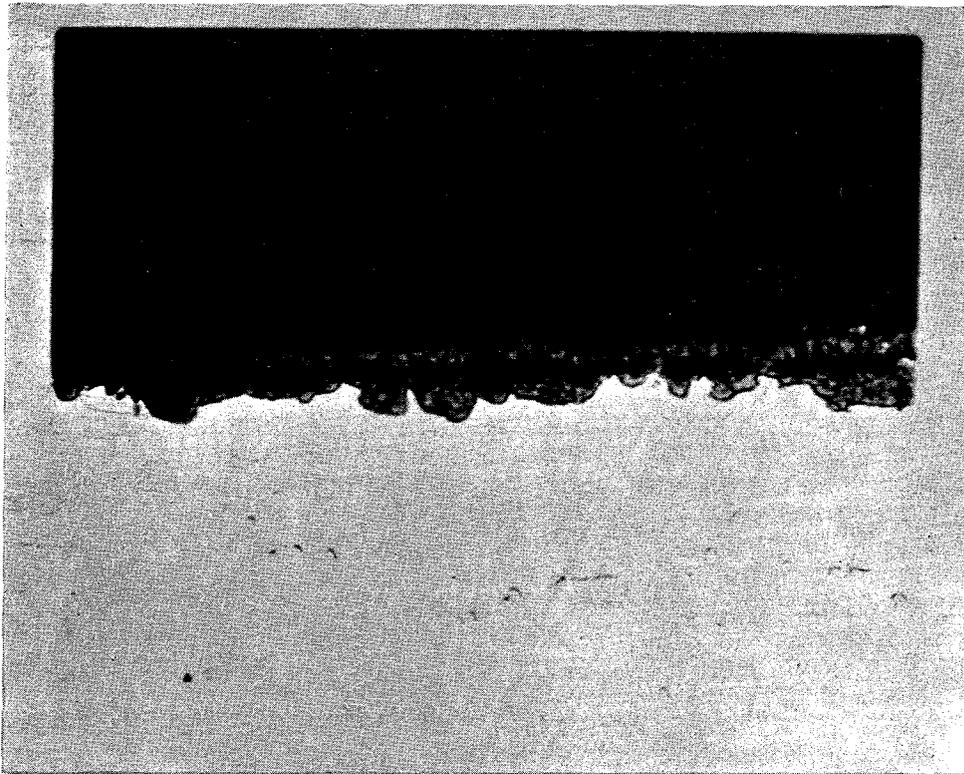
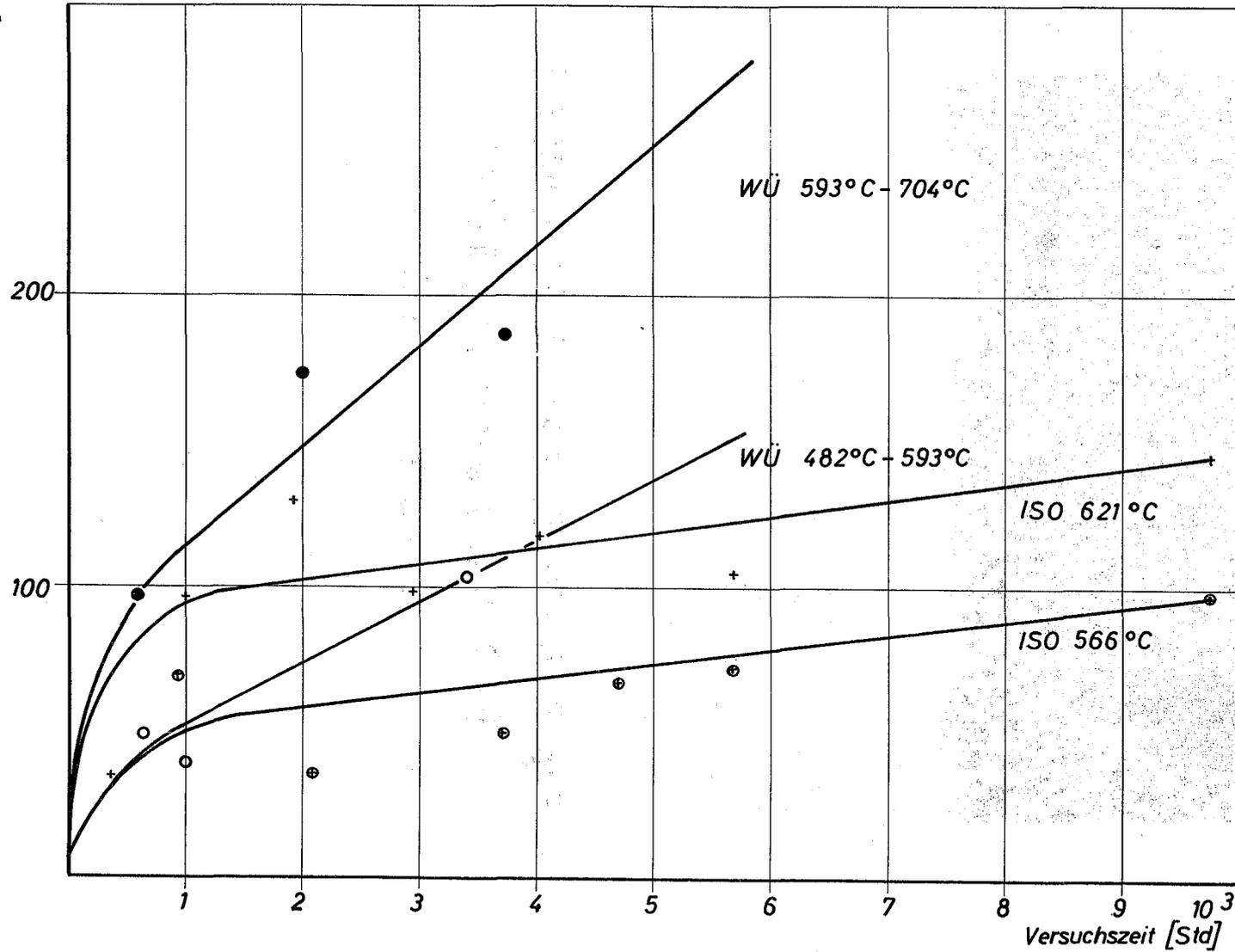


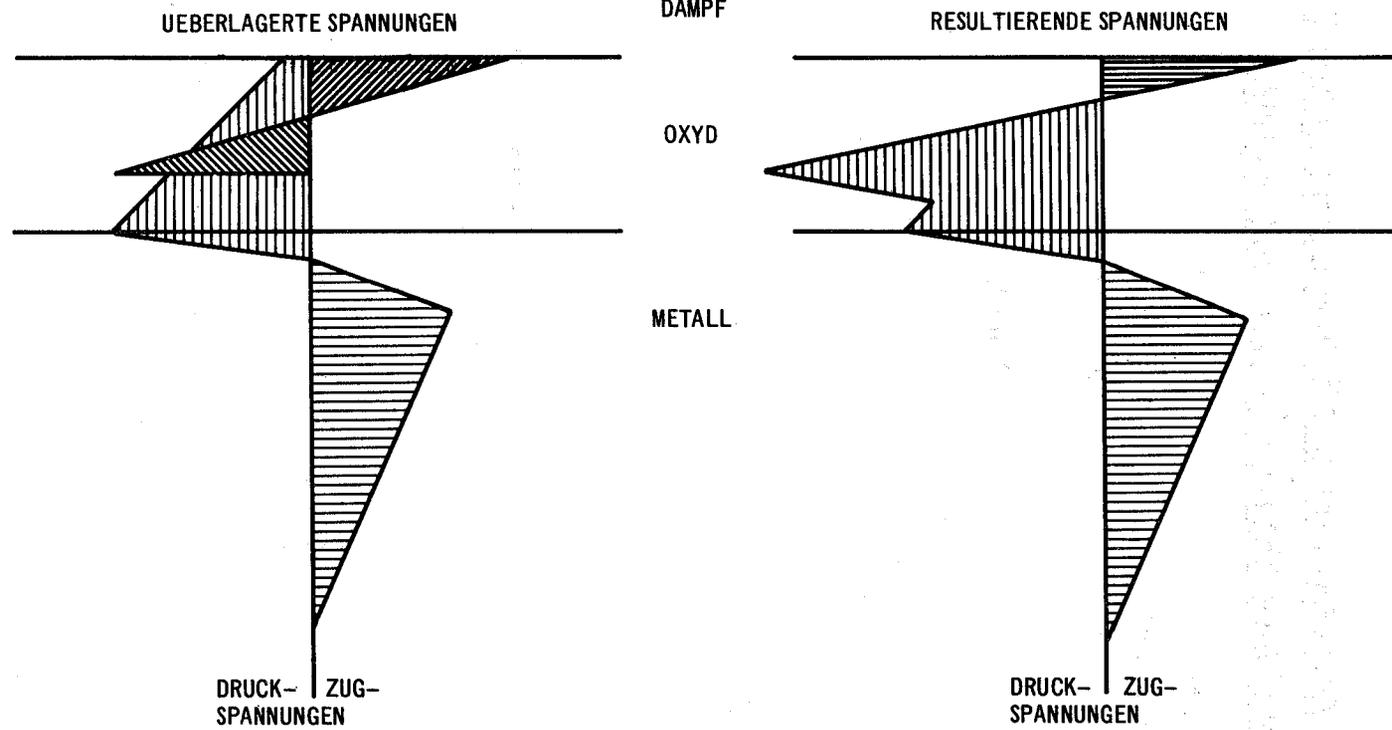
Fig. 3 INCONEL-625 BLECHPROBE
9 800 Std. Heißdampf, 621°C
ungeätzt, 2000 X

Fig.4 Inconel - 625 Vergleich von isothermen und Wärmeübergangs-Versuchsergebnissen

Metallverlust
mg / dm²

[nach
S.Leistikow]





II-12

ABB.II-3 UEBERLAGERUNG VON SPANNUNGEN DIE WAEHREND DER OXYD-SCHICHTBILDUNG UNTER WAERMEUEBERGANG AUFTRETEN KOENNEN.

Fig.6 Heissdampf-Korrosion unter Wärmeübergang: 593-704°C, 70 atm,
55m/sec, 55W/cm² (General Electric)

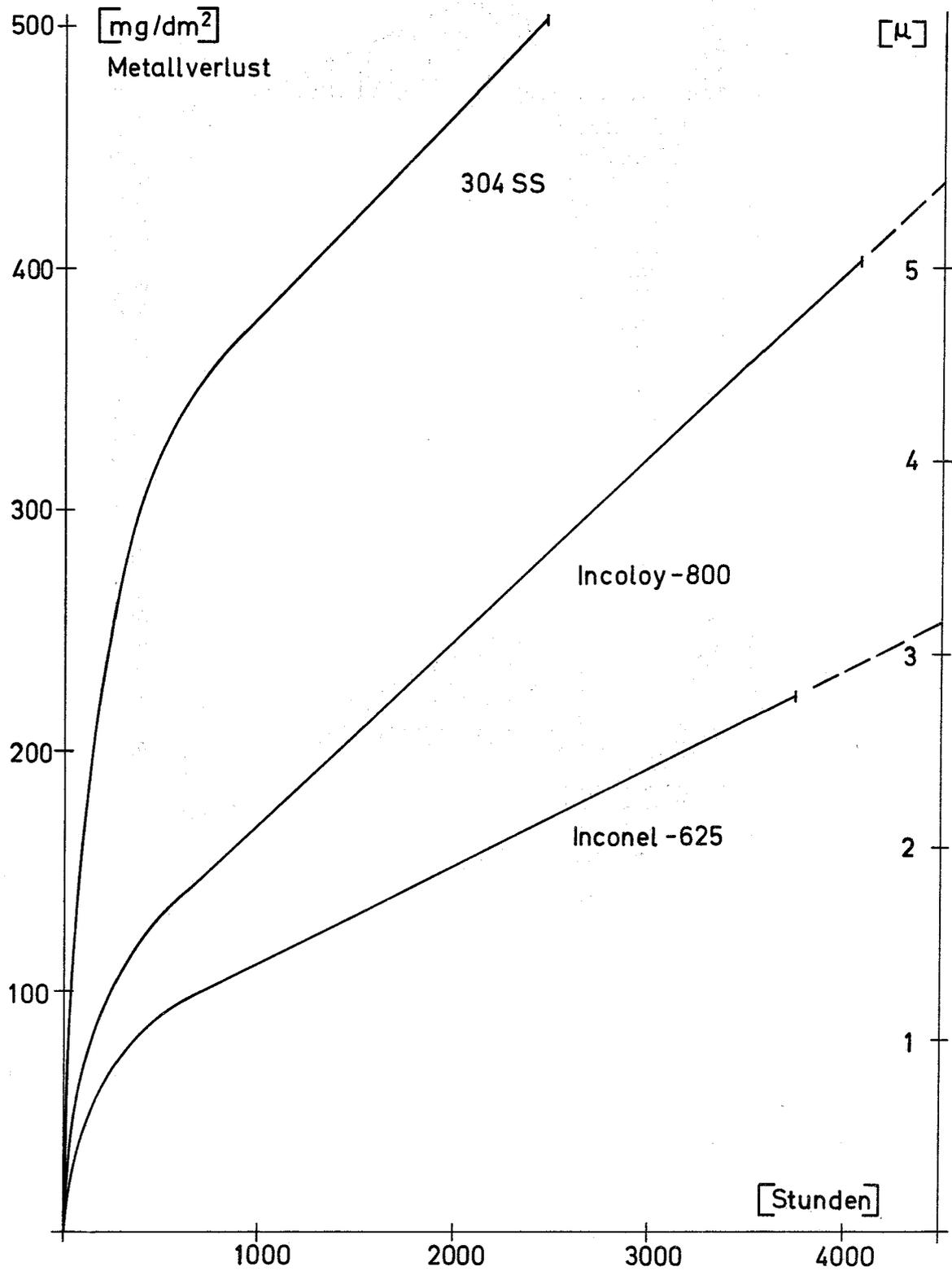
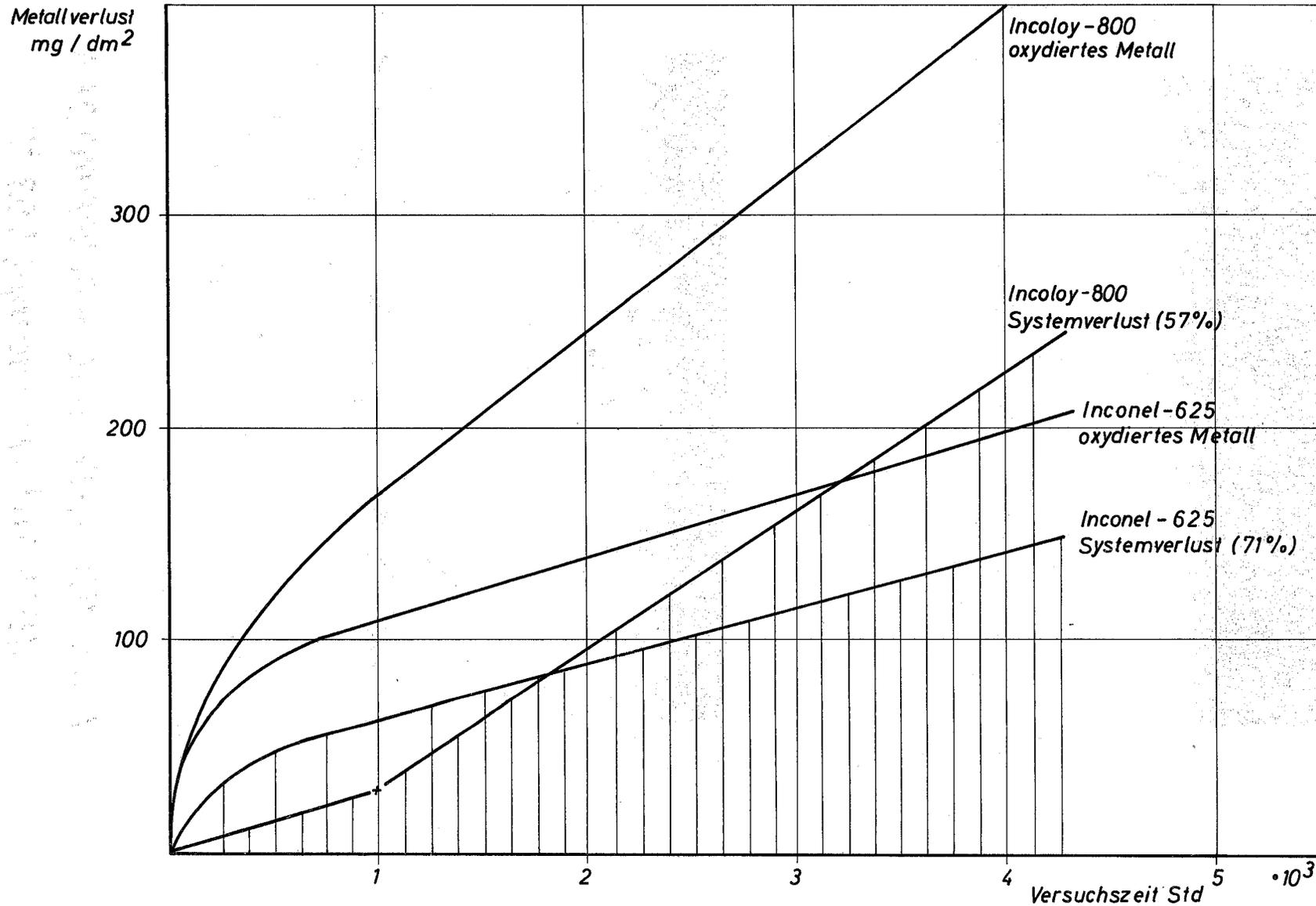


Fig. 7

Heissdampf-Korrosion von Incoloy-800 und Inconel-625 unter Wärmeübergang (593-704°C)



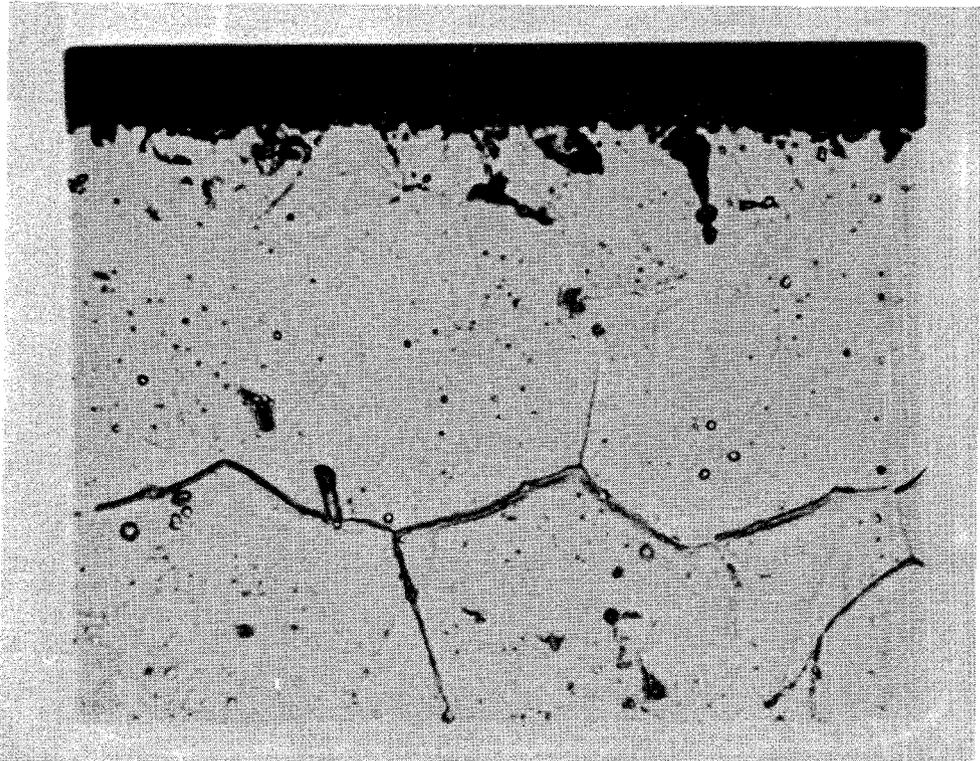
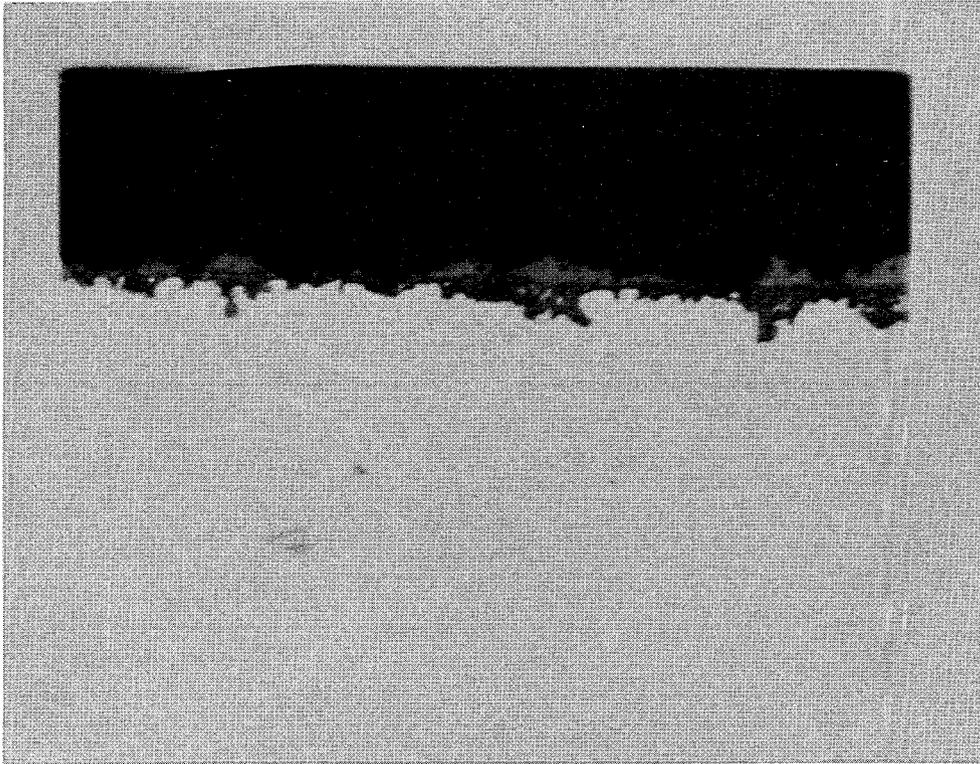
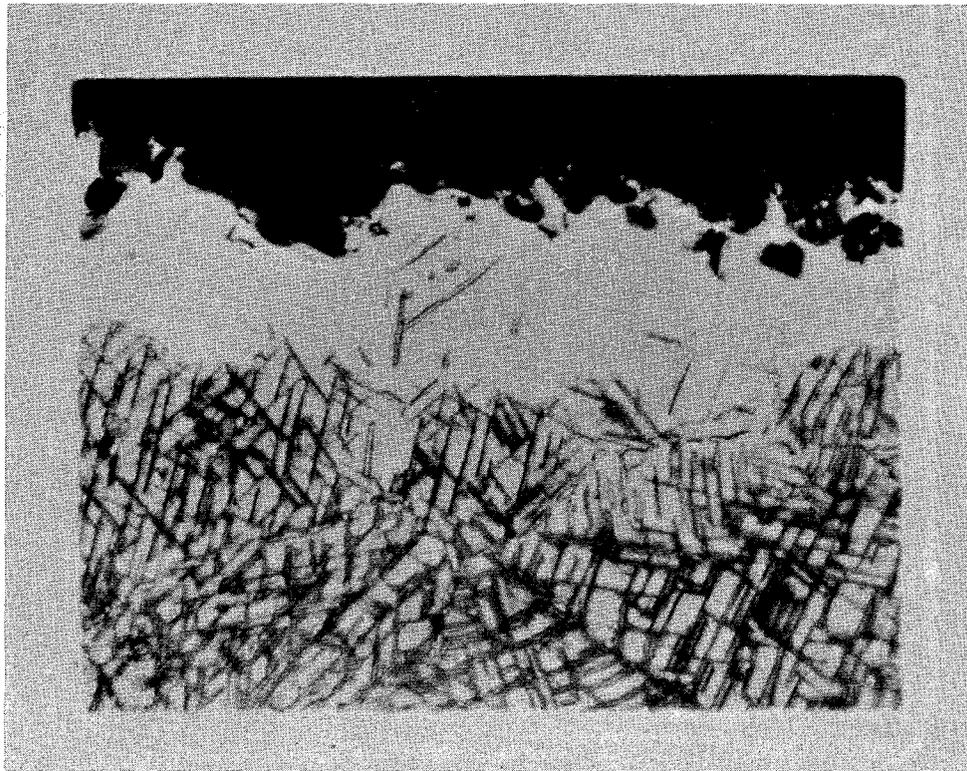
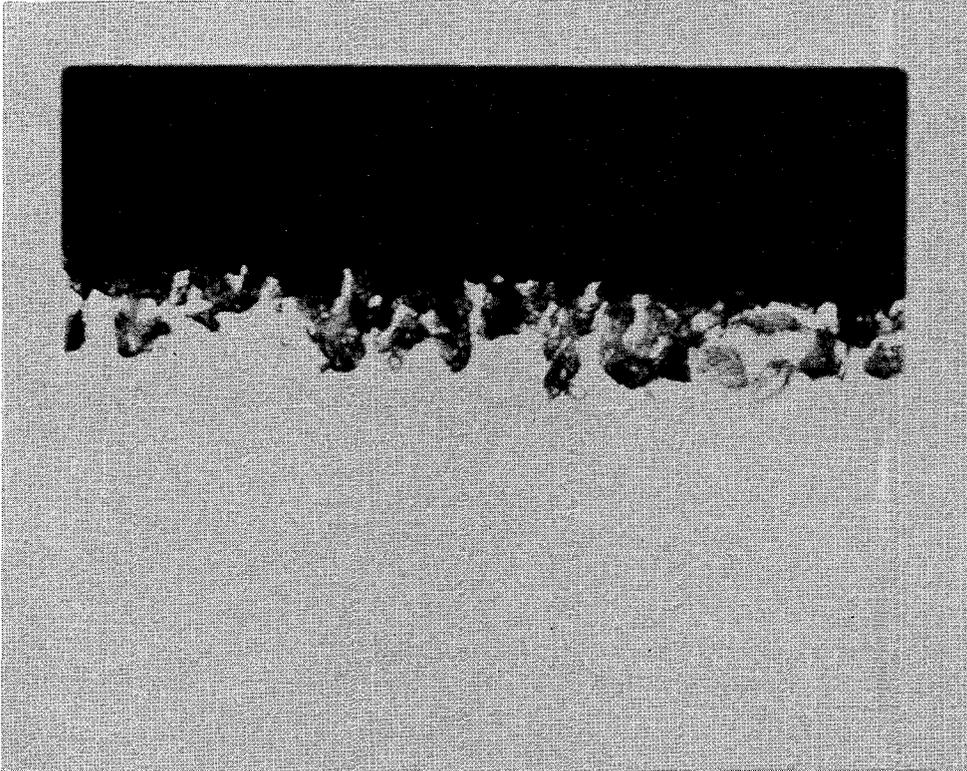


Fig 8 INCOLOY-800 ROHRPROBEN
4078 Std. Heißdampf, 593 °C
1053 Std. Heißdampf, 815 °C
ungeätzt u. geätzt, 2000X



*Fig. 9 INCONEL-625 ROHRPROBE
3685 Std. Heißdampf, 760°C
ungeätzt u. geätzt, 2000X*

Fig. 10

Natrium-Korrosion

1. Aufgrund chemischer Potentialdifferenzen:
Einstellung eines temperaturabhängigen Gleichgewichtes zwischen Auflösung und Abscheidung löslicher Anteile
2. Aufgrund von Störungen des unter 1. gezeigten Gleichgewichtszustandes ("Massentransport")
 - a) bei Temperaturdifferenzen im System und Abscheidung löslicher Anteile der Zone hoher Temperatur in der Zone niedrigerer Temperatur,
 - b) bei isothermen Bedingungen und Bildung von Legierungen, Ablagerungsverbindungen und Diffusions-schichten löslicher Anteile der Legierung A mit der Legierung B.
3. Aufgrund chemischer Reaktionen des Natriums und seinen Verunreinigungen mit der Metalloberfläche:
 - a) Reduktion von Metalloxiden
 - b) Oxydation unter Bildung von Oxidschichten unterschiedlicher Haftfestigkeit
 - c) Bildung löslicher Metalloxid-Natriumoxid-Komplexe

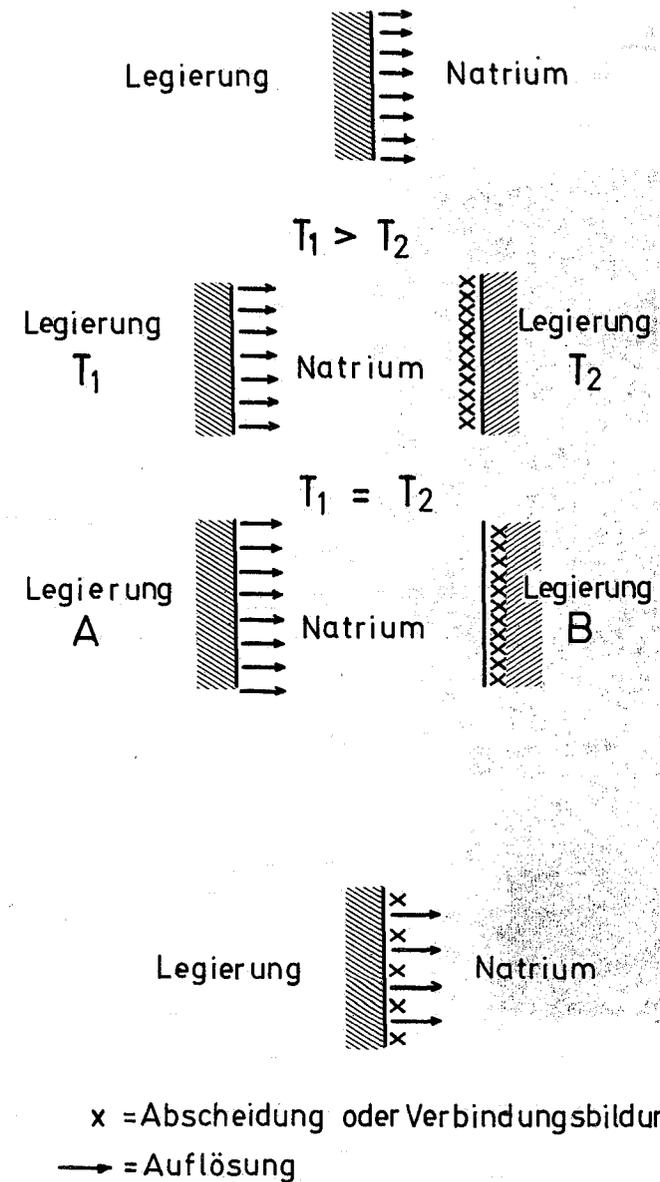


Fig. 11

MASSENTRANSPORT VERSUCHE IN NATRIUM

$\Delta T = 167^\circ\text{C}$, 1m/sec (NACH DEVAN)

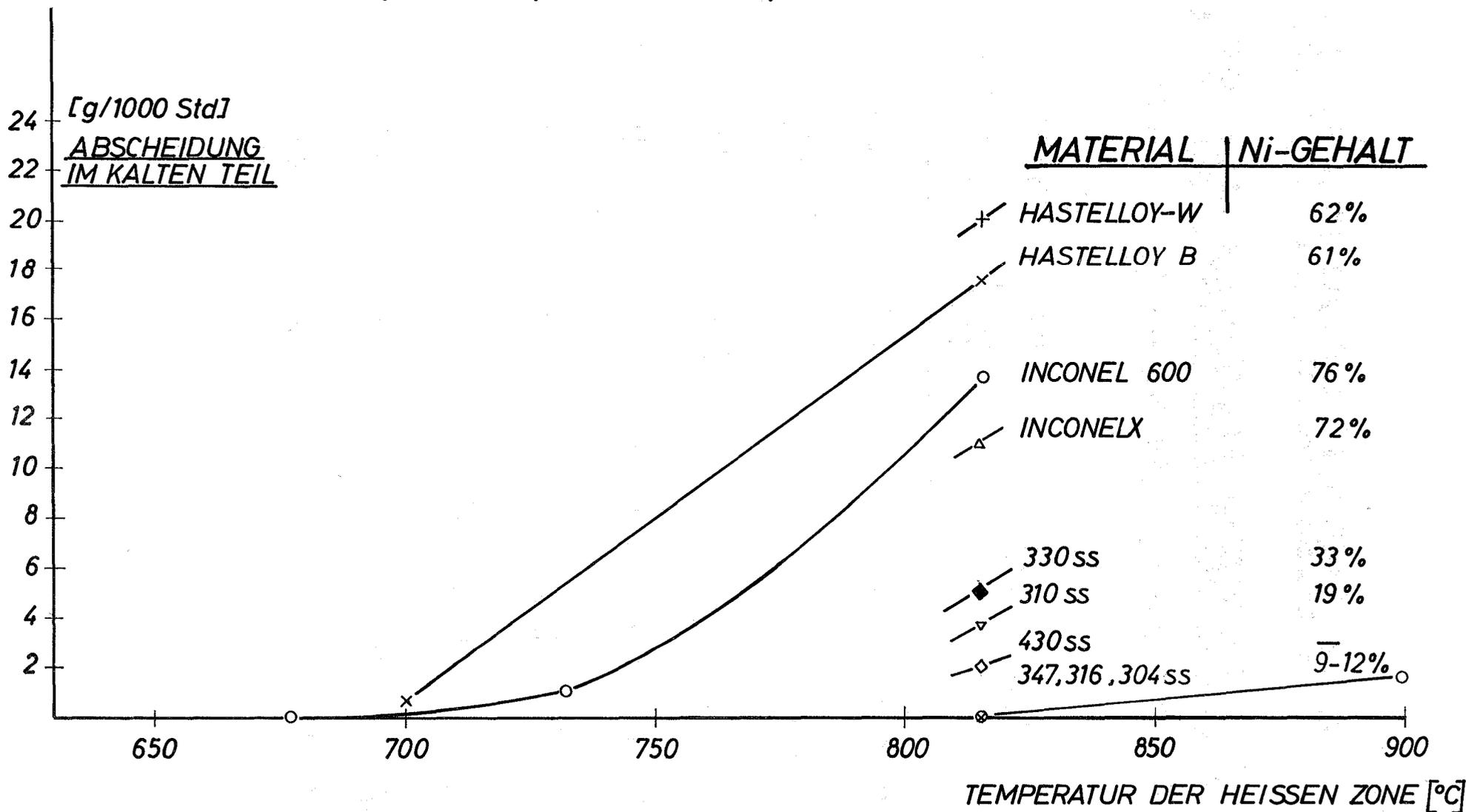


Fig.12

ALLGEMEINE KORROSION IN
FLÜSSIGEM NATRIUM BEI 650 °C

10-12 m/sec 25-30 ppm O₂ 1340 Std.

<i>MATERIAL</i>	<i>Ni GEHALT [%]</i>	<i>EXTRAP. METALLVERL. [μ/JAHR]</i>
<i>Inconel-600</i>	<i>77</i>	<i>155</i>
<i>Nimonic-80A</i>	<i>75</i>	<i>124</i>
<i>Nickel</i>	<i>100</i>	<i>100</i>
<i>PE 11(18/38/5 Cr-Ni-Mo)</i>	<i>38</i>	<i>74</i>
<i>PE 16(16/43 Cr-Ni)</i>	<i>46</i>	<i>71</i>
<i>Nilo (50 Ni/50 Fe)</i>	<i>50</i>	<i>63</i>
<i>18/8/1 Ti</i>	<i>8</i>	<i>61</i>
<i>316 SS</i>	<i>12</i>	<i>46</i>

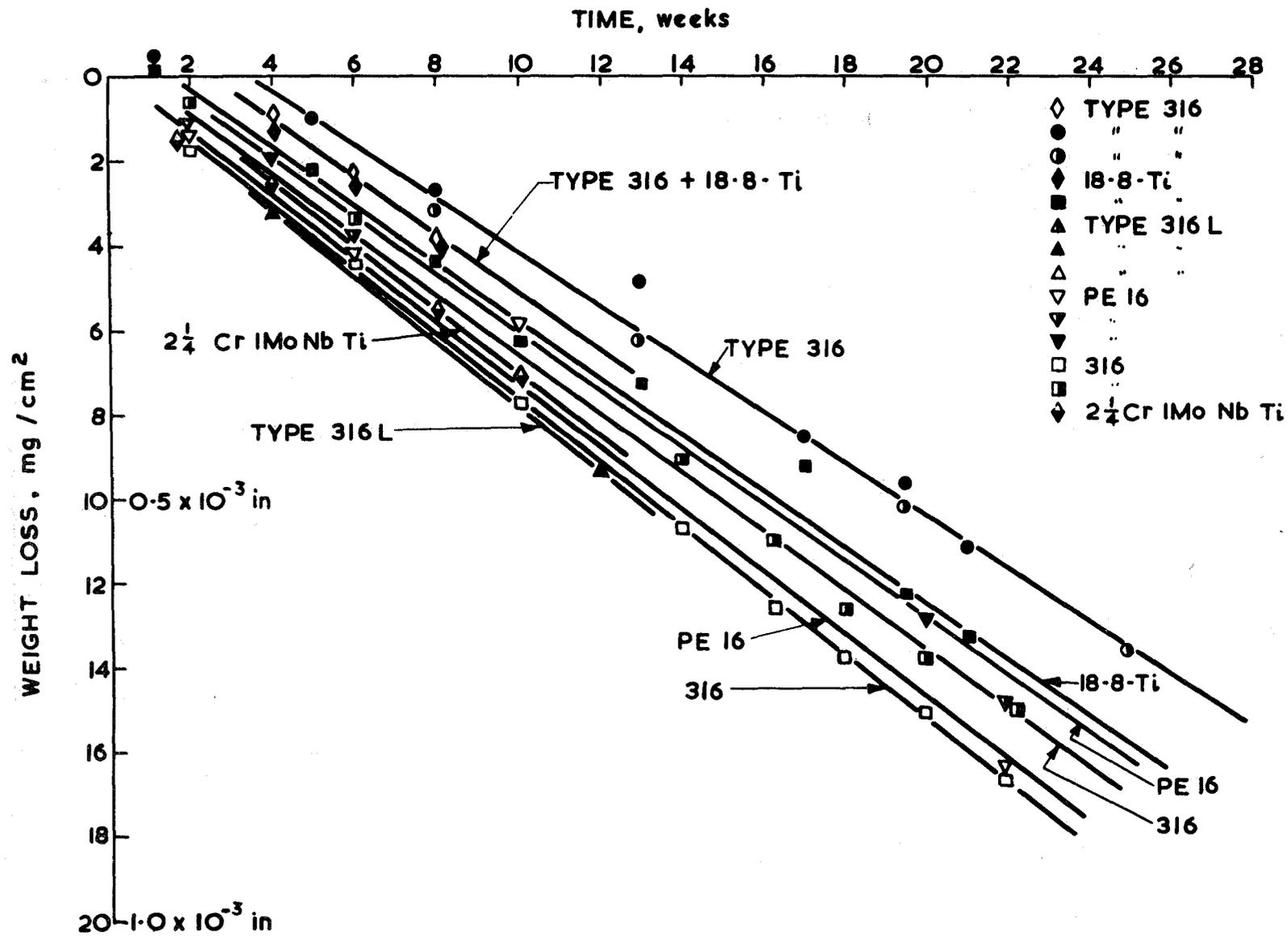


Fig. 13

A COMPARISON OF THE BEHAVIOR OF VARIOUS STEELS IN FLOWING LIQUID SODIUM AT 650 °C O₂ LEVEL ~ 25 ppm CENTRAL SPECIMENS TAKEN FOR COMPARISON PURPOSES

Fig. 14

GEFÜGE DER CHROM-NICKEL-STÄHLE

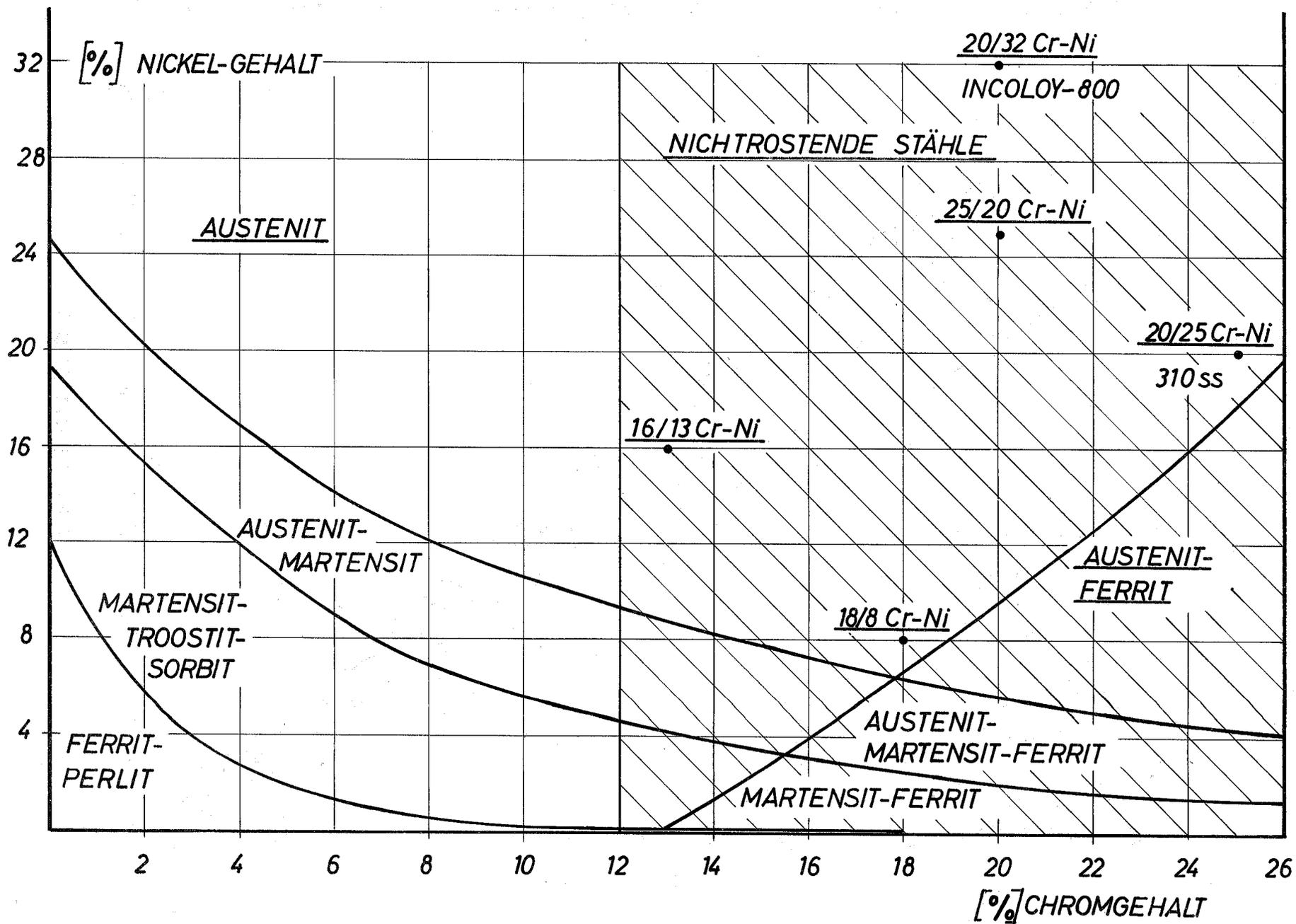
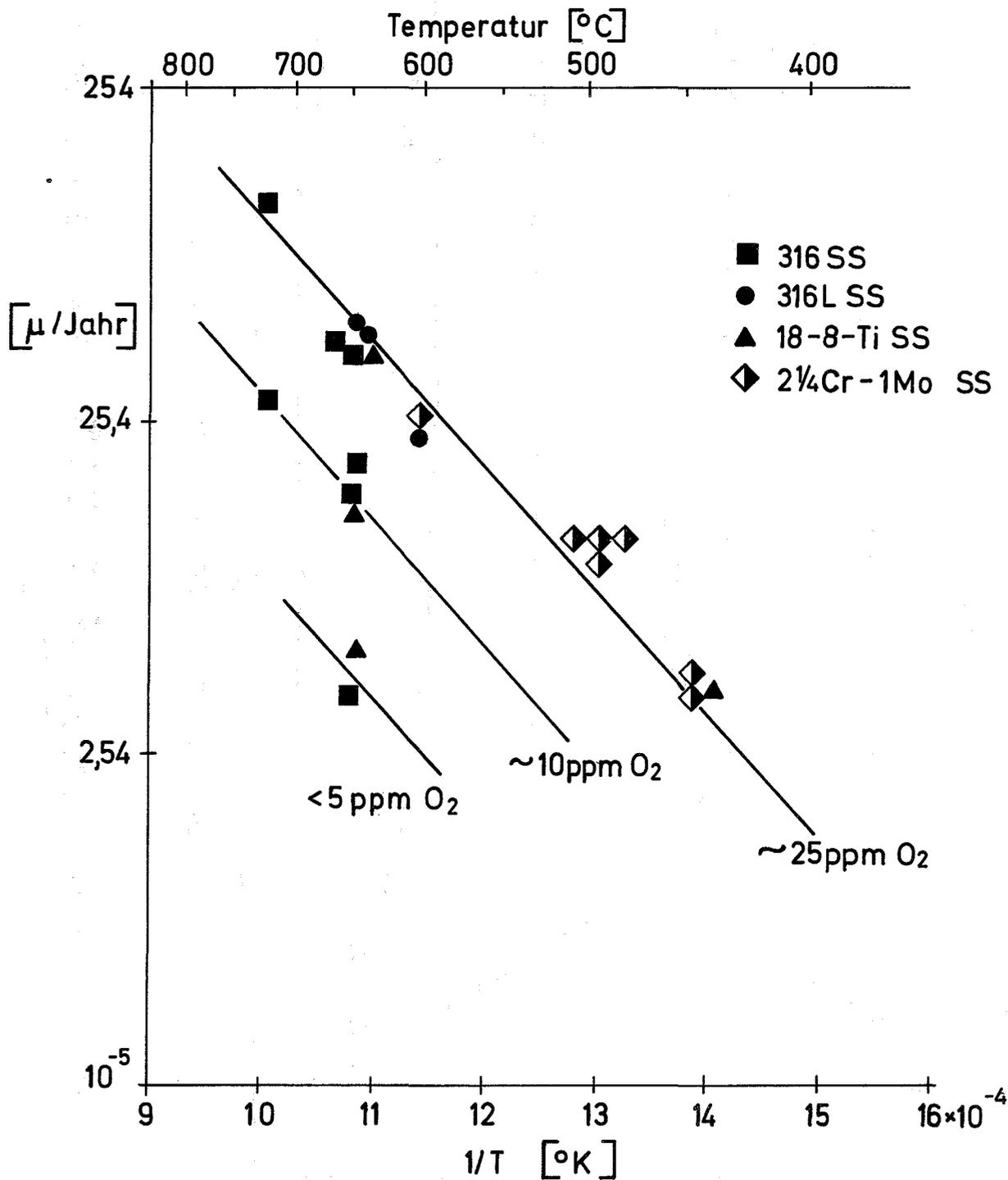


Fig. 15
Abtragende Korrosion von Stählen in strömendem Natrium:

Einfluss von Temperatur und O₂ - Gehalt.



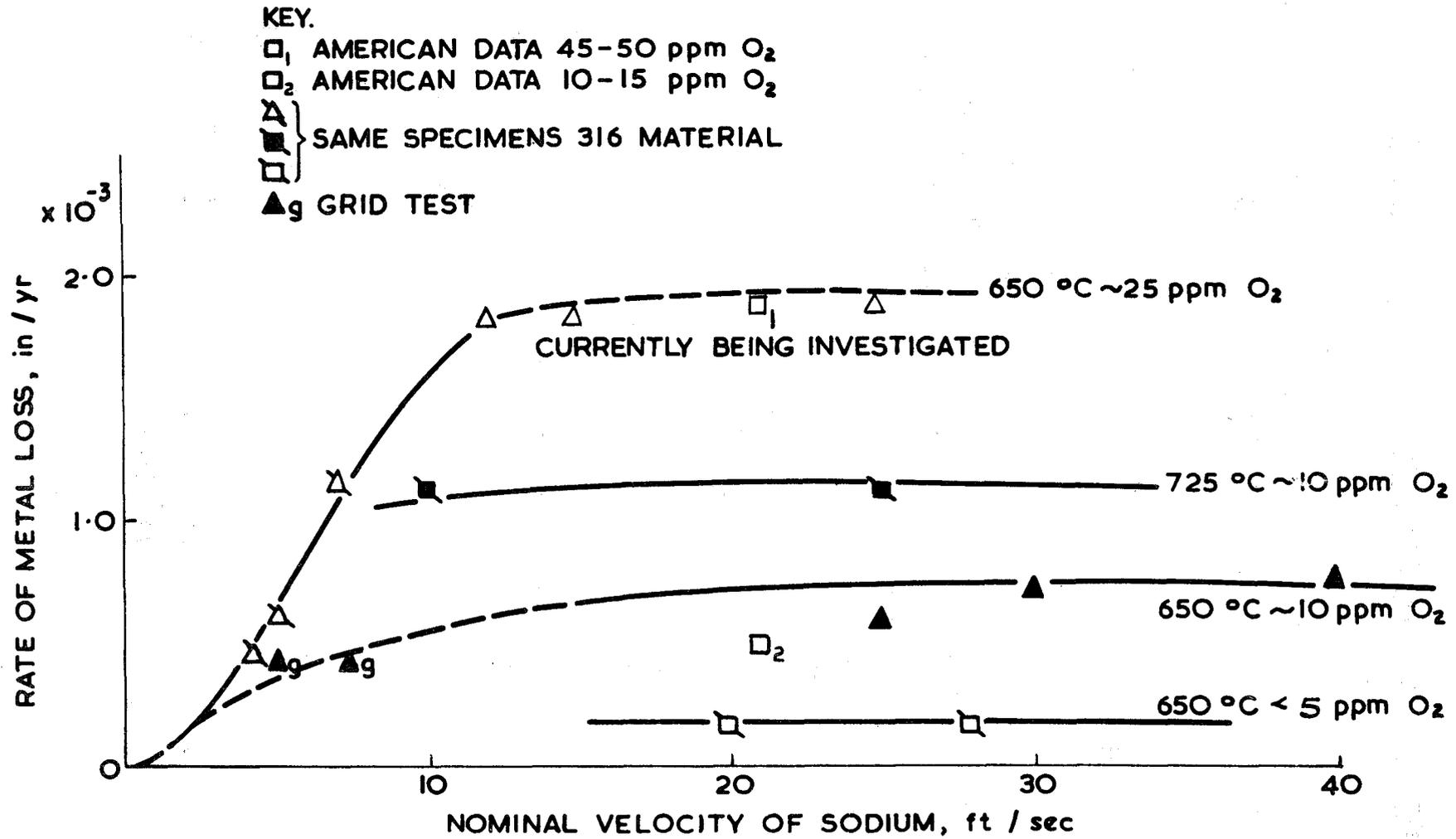


Fig. 16

EFFECT OF VELOCITY ON THE RATE OF METAL LOSS FROM VARIOUS STAINLESS STEELS
(BORE DIA CONSTANT)

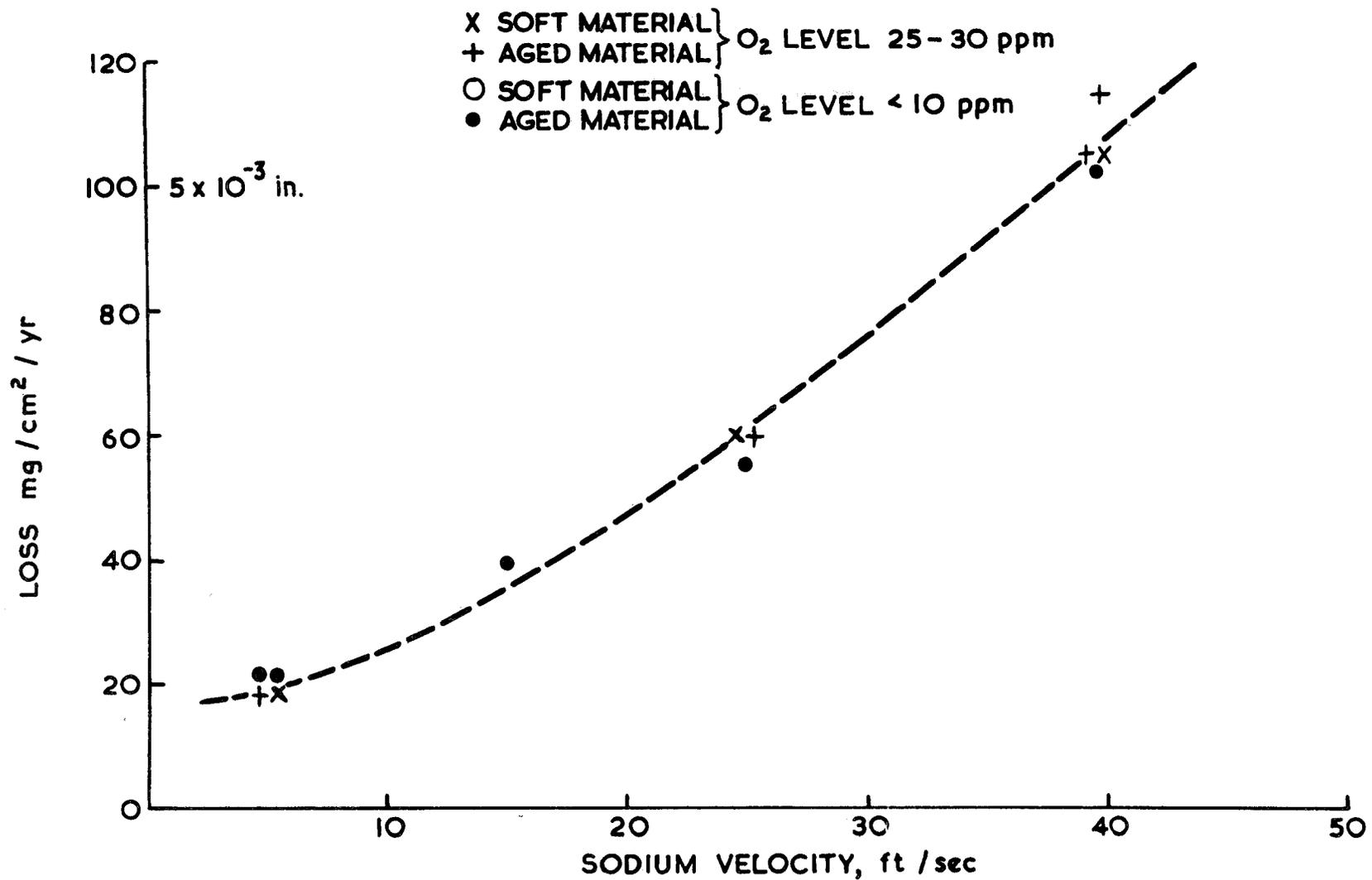


Fig. 17 EFFECT OF VELOCITY ON THE RATE OF METAL LOSS FROM NIMONIC 80A AT 850 °C

X. BESTRAHLUNGSVERSUCHE AN HÜLLMATERIALIEN UND IHRE AUSWERTUNG

von

H. van den Boorn

Inhalt:

1. Einleitung
2. Allgemeine Gesichtspunkte bei der experimentellen Auslegung
 - 2.1 Bestimmungsparameter
 - 2.1.1 Reaktorbetriebsbedingungen für Hüllmaterialien
 - 2.1.2 Versuchsanforderungen
 - 2.2 Beschränkungen
 - 2.2.1 Kosten- und Zeitaufwand
 - 2.2.2 Vorhandene Bestrahlungsmöglichkeiten
3. Laufende Bestrahlungsversuche
 - 3.1 Mol-1-Versuche im BR2
 - 3.1.1 Beschreibung
 - 3.1.2 Ergebnisse
 - 3.2 Mol-2-Versuche im BR2
 - 3.2.1 Beschreibung
 - 3.2.2 Ergebnisse
 - 3.3 Mol-3A-Versuche im BR2
 - 3.4 Mol-3B-Versuche im BR2
 - 3.5 Dido-M-Versuche im FRJ-2
 - 3.6 Fermi-M-Versuche im EFFBR
4. Weitere Bestrahlungsversuche
 - 4.1 Versuche mit vorhandenen Einrichtungen
 - 4.2 Geplante Versuche

1. Einleitung

Aufgabe des Hüllmaterialbestrahlungsprogramms für das Projekt Schneller Brüter ist die Untersuchung des Einflusses der Neutronenbestrahlung auf die mechanischen Eigenschaften von hochwarmfesten Legierungen. Ausgehend von den Überlegungen, die bei der technischen Auslegung von Bestrahlungsexperimenten eine Rolle spielen, berichtet die nachfolgende Zusammenstellung über die zur Zeit laufenden und in Vorbereitung stehenden Experimente sowie über die bis jetzt vorliegenden Ergebnisse (Stand Januar 1967).

2. Allgemeine Gesichtspunkte bei der experimentellen Auslegung

2.1 Bestimmungsparameter

2.1.1 Reaktorbetriebsbedingungen für Hüllmaterialien

Die Beanspruchungen, denen die Hülle eines Brennstabes unter Schnell-Brüter-Bedingungen ausgesetzt ist, gehen aus einer Zusammenstellung der Betriebsbedingungen der geplanten Schnell-Brüter-Leistungsreaktoren hervor (Tabelle 1). Die in der Tabelle aufgeführten Beanspruchungen sind zur Zeit in keinem Reaktor gemeinsam zu erreichen. Jeder Bestrahlungsversuch kann damit nur begrenzte Informationen erbringen, und erst durch eine Vielzahl verschiedener Experimente lassen sich in ausreichender Näherung die Bedingungen eines Schnell-Brüter-Brennelementes simulieren.

Ziel des Versuchsprogramms ist die Erforschung des Verhaltens eines dünnwandigen Rohres, das bei hoher Temperatur und großem Wärmefluß in einer korrodierenden Umgebung unter variablem Innen- bzw. Außendruck belastet wird. Dazu kommt der wesentliche Einfluß einer hohen Dosis schneller Neutronen (bis zu 10^{24} nvt) auf die Eigenschaften ausgewählter Legierungen, die aus neutronenökonomischen Gründen günstige neutronenphysikalische Eigenschaften aufweisen müssen. Ferner sollen noch zwei weitere Probleme besonders erwähnt werden, nämlich

- die Verträglichkeit der Hülle mit UO_2 - PuO_2 -Brennstoff und das Korrosionsverhalten in Dampf bzw. Natrium hoher Temperatur sowie

- das sog. Kriechbeulen von zylindrischen Rohren unter Außen-
druck bei dampfgekühlten Reaktoren.

Abgesehen von diesen Gesichtspunkten kann man bei der Legierungsauswahl jedoch auf Erfahrungen zurückgreifen, beispielsweise aus der chemischen Industrie, wo eine Reihe von hochwarmfesten und korrosionsbeständigen Legierungen schon lange Zeit im Einsatz sind. Es ist somit sinnvoll, erst einmal diese kommerziellen Legierungen auf ihre Verwendbarkeit im Reaktorbau zu untersuchen; darüber hinaus müssen natürlich auch neue, für die Anwendung im Reaktor spezifische Legierungen entwickelt werden, z.B. Vanadin-Basislegierungen, die als Hüllwerkstoffe für bestimmte Reaktortypen geeignet erscheinen.

2.1.2 Versuchsanforderungen

Insgesamt ist aus den Betriebsbedingungen für das Hüllmaterial eines schnellen Brutreaktors zu entnehmen, daß die Zeitstand- und Kriechfestigkeiten sowie die Korrosionsbeständigkeit bei hoher Temperatur und hohem Wärmefluß in einer korrodierenden Umgebung unter Neutronenbestrahlung untersucht werden müssen. Das ganze Hüllmaterialbestrahlungsprogramm für das Karlsruher Brüterprojekt umfaßt dementsprechend zur Zeit die Untersuchung des Einflusses der Neutronenbestrahlung auf

- die Kurzzeitfestigkeit nach der Bestrahlung in einem relativ hohen schnellen Fluß bei tiefen Temperaturen,
- die Langzeitfestigkeiten nach der Bestrahlung bei hohen Temperaturen mit möglichst hohen schnellen Neutronendosen sowohl im Schutzgas als auch Natrium, ferner unter mehrschichtiger Belastung während dieser Bestrahlungen.

2.2 Beschränkungen

2.2.1 Kosten- und Zeitaufwand

Die hohen Kosten und der große Zeitaufwand spielen bei der Auslegung von Bestrahlungsexperimenten eine wichtige Rolle. Die Kosten der Neutronen in den vorhandenen Bestrahlungsreaktoren sollen hier nicht erörtert werden, sie sind den Interessenten bekannt. Zusätzlich zu diesen hohen Neutronenkosten muß jedoch

mit weiteren Kosten gerechnet werden, nämlich

- Kosten für die Bestrahlungsvorrichtung, d.h. für sämtliche Regel- und Registrierapparaturen. Häufig sind hierfür teure Entwicklungen durchzuführen.
- Kosten für den eigentlichen Bestrahlungseinsatz. Diese Einsätze sind u.a. teuer, weil man anstrebt, durch eine extreme Ausnutzung des zur Verfügung stehenden Volumens möglichst viele Prüflinge mit den dazugehörigen Wertgebern für Regel- und Registrierapparatur einzubauen, weil der Einsatz während der Bestrahlung Bestandteil des Reaktors ist und somit die Reaktorsicherheitsbedingungen befriedigt werden müssen, und weil der Einsatz nach der Bestrahlung nicht wieder verwendbar ist.
- Kosten für die Entmantelung des bestrahlten Einsatzes für den eventuellen Transport der bestrahlten Proben und für die Nachuntersuchung in den Heißen Zellen.
- Kosten für eventuell notwendige Parallelversuche im Materialuntersuchungs-Laboratorium.

Zum Beispiel kostet ein komplettes Bestrahlungsexperiment für einen Einsatz der Mol-3A-Versuche einige hunderttausend Deutsche Mark.

Der große Zeitaufwand wird am besten an Hand eines konkreten Beispiels gezeigt. Bei der Durchführung einer Hochtemperaturbestrahlung des Typs Mol-3A bis zu einer Dosis von 10^{21} n/cm² im BR2-Reaktor muß mit folgendem Mindestzeitaufwand gerechnet werden:

Vorplanung des Experiments	etwa 3 Monate
Bestellung und Bau des Einsatzes und der Instrumentierung	etwa 12 Monate
Genehmigungsverfahren und Abnahmeprüfungen	etwa 4 Monate
Einbau im Reaktor	etwa 1 Monat
Bestrahlungszeit	etwa 6 Monate
Abklingzeit und Nachuntersuchung	etwa 6 Monate

Die Gesamtzeit beträgt somit nahezu 3 Jahre.

2.2.2 Vorhandene Bestrahlungsmöglichkeiten

Eine weitere Einschränkung bei der Auslegung von Bestrahlungsexperimenten kommt von der Seite der vorhandenen Bestrahlungsreaktoren und der für die Nachuntersuchung ausgerüsteten Heißen Zellen. Von den vielen vorhandenen Reaktoren sind wegen der Neutronenökonomie und der geometrischen Verhältnisse usw. nur wenige Reaktoren für die Bestrahlung von Hüllmaterialien geeignet. In diesen im Prinzip verfügbaren Reaktoren sind die Bestrahlungsmöglichkeiten dann noch weiter eingeschränkt in Bezug auf Materialart, Anzahl und Güte der Bestrahlungspositionen, mögliche Konstruktion der Einsätze, Möglichkeit zur Instrumentierung der Einsätze, Bestrahlungstemperatur, die zur Verfügung stehenden Neutronenflüsse, Flußgradienten und Temperaturgradienten in den Bestrahlungspositionen usw. In der nachstehenden Tabelle 2 sind von den Reaktoren, die für das vorliegende Bestrahlungsprogramm in Betracht gezogen werden, einige interessierende Daten angegeben.

Bei der Nachuntersuchung sind naturgemäß die Langzeitversuche mit einem hohen Zeitaufwand verbunden. Der Einbau von 15 Zeitstandbatterien in die Heißen Zellen des Kernforschungszentrums Karlsruhe wurde beschlossen. Diese Anzahl ist als Kompromiß zwischen dem Bedarf einerseits und dem vertretbaren Investitionsumfang andererseits zu betrachten. Das zur Zeit festgelegte Bestrahlungsprogramm lastet diese Zeitstandbatterien in den nächsten 3 bis 4 Jahren voll aus, so daß keine weiteren Bestrahlungen von Zeitstandproben mehr geplant werden können.

3. Laufende Bestrahlungsversuche

Bevor die einzelnen Bestrahlungsexperimente, die in Tabelle 3 aufgeführt sind, ausführlich besprochen werden, wird eine kurze Erläuterung über den Stand dieser Experimente im Dezember 1966 gegeben.

Die Versuchsreihe Mol-1 im belgischen Reaktor BR2 läuft seit Mitte 1964. Es wurden vor allem Kleinerreißproben bestrahlt. Die Versuchsreihe wird auch in Zukunft weitergeführt. Die Fermi-M1-Bestrahlung im Enrico Fermi Fast Breeder Reactor (EFFBR) ist

eine Ergänzung und Erweiterung der Mol-1-Reihe, da neben dem höheren schnellen Fluß die Proben in Kontakt mit flüssigem Natrium sind. Die Temperatur liegt im Bereich der Tieftemperaturbestrahlung. Leider mußte diese Bestrahlung durch den Reaktorunfall im Oktober 1966 abgebrochen werden.

Die Mol-2-Versuche im belgischen Reaktor BR2 begannen Mitte 1966 und werden programmgemäß weitergeführt. Die ersten zwei Mol-3A-Einsätze sind seit November 1966 im Reaktor. Die Bestrahlungszeit wird etwa 10 Monate betragen.

Die Dido-M-Bestrahlungen im Jülicher Reaktor FRJ-2 (Dido) beginnen als Ergänzung zu Mol-3A im Sommer 1967.

An die Mol-3A-Versuche schließen sich die Mol-3B-Versuche im BR2 an, wobei die Proben in direktem Kontakt mit ruhendem Natrium bestrahlt werden.

3.1 Mol-1-Versuche im BR2

3.1.1 Beschreibung

In einem Bestrahlungsversuch der Reihe Mol-1 werden in einem Einsatz bis zu 130 Zerreißproben bei 50°C bis 100°C mit einer Dosis schneller Neutronen der Größenordnung 10^{21} n/cm² bestrahlt. Die Zerreißproben haben einen Durchmesser von 3 mm und eine Länge von 30 mm und stehen in direktem Kontakt mit dem Kühlwasser (Temperatur $\approx 50^\circ\text{C}$) oder in gekapselten Bündeln (Temperatur $\approx 100^\circ\text{C}$) im Inneren eines 6-schaligen BR2-Brennelementes. Der Einsatz ist nicht instrumentiert. Die Dosis wird an Hand miteinander Meßsonden bestimmt.

Wiewohl sich die Versuchsbedingungen von den Betriebsbedingungen eines schnellen Brütters ziemlich unterscheiden, ist dieser Versuchstyp für ein breiteres Bestrahlungsprogramm von Bedeutung. Die große Anzahl Proben pro Einsatz, die kurze Durchführungszeit und die relativ geringen Kosten dieses Versuches ermöglichen es, schnell erste Anhaltspunkte über eine große Anzahl von Legierungen, über einen bestimmten Legierungstyp unterschiedlicher Zusammensetzung oder verschiedener Ausscheidungs-

zustände usw. zu erhalten. Der Aussagewert dieser Reihe von Versuchen liegt in der gewählten Nachuntersuchung, die im wesentlichen für jede Legierung aus folgenden Schritten besteht:

- a) Zugversuche bei Raumtemperatur zur Bestimmung der Tieftemperaturversprödung,
- b) Zugversuche bei Raumtemperatur nach Wärmebehandlung bei verschiedenen Temperaturen und Zeiten zur Bestimmung des Ausheiltemperaturbereiches,
- c) Zugversuche bei Temperaturen, die oberhalb des Ausheiltemperaturbereiches liegen und für die Verwendung von direktem Interesse sind. Bei diesen Versuchen erhält man die Hochtemperaturversprödungserscheinungen bzw. die mechanischen Kurzzeiteigenschaften bei bestimmten Temperaturen nach Bestrahlung.
- d) Die zu a), b) und c) gehörenden Vergleichsmessungen an unbestrahlten Proben.

Bis jetzt wurden die Versuchseinsätze A, B, C, D, E und F bestrahlt. In Tabelle 4 sind Materialarten, Probenzahl und Bestrahlungsdosen dieser Einsätze aufgeführt.

3.1.2 Ergebnisse

In den Literaturstellen [3 bis 6] wird ausführlich über die bis jetzt durchgeführten Bestrahlungsversuche berichtet. Es soll nun versucht werden, hier eine kurze Zusammenfassung zu geben.

Stähle, Fe-Ni-Cr-Legierungen und Ni-Legierungen: Bei allen untersuchten austenitischen Stählen, Fe-Ni-Cr-Legierungen und Ni-Legierungen wurde eine mehr oder weniger ausgeprägte Tief- und Hochtemperaturversprödung festgestellt. In den Abb. 1, 2 und 3 sind die Kurzzeitfestigkeiten und Bruchdehnungen vor und nach der Bestrahlung in Abhängigkeit der Temperatur für die Legierungen X8CrNiMoVNb1613, Inconel X750 und Incoloy 800 aufgetragen. Man erkennt den quantitativen Einfluß der Tieftemperaturversprödung aus den Werten bei Raumtemperatur, den Erholungstemperaturverlauf der Kurven für Streckgrenze und Zugfestigkeit und den quantitativen Einfluß der Hochtemperaturversprödung am deutlich-

sten aus dem Verlauf der Kurve für die Bruchdehnung. Qualitativ kann noch zusammenfassend erwähnt werden

- die fast vollständige Versprödung der aushärtbaren Nickellegerungen bei hoher Temperatur, Beispiel Inconel X750
- die relativ hohe verbleibende Duktilität der austenitischen Stähle bei hoher Temperatur zusammen mit Erholungstemperaturbereichen unterhalb 600°C , Beispiel 16/13 CrNi
- der geringe Einfluß der Hochtemperaturversprödung bei den hochlegierten Eisenbasislegierungen, Beispiel Incoloy 800

Vanadinlegierungen: In der Mol-1-Reihe wurden mehrere, im Rahmen eines Entwicklungsauftrages hergestellte binäre V-Ti- und ternäre V-Ti-Nb-Legierungen untersucht. In Abb.4 sind die mechanischen Eigenschaften bei Raumtemperatur, für V-Ti- bzw. V20NbTi-Legierungen vor und nach Bestrahlung in Abhängigkeit vom Titangehalt aufgetragen. Aus dem Bild ist zu entnehmen, daß sowohl bei binären als auch bei ternären Legierungen ein ausgeprägter Einfluß der Tieftemperaturversprödung festzustellen ist.

In Abb.5 sind mechanische Eigenschaften bei 650°C vor und nach der Bestrahlung in Abhängigkeit vom Ti-Gehalt dargestellt. Diese Ergebnisse lassen die Feststellung zu, daß ab 650°C für binäre V-Ti-Legierungen ab 10 % Titan und für ternäre V-20Nb-Ti-Legierungen eine ausgeprägte Ausheilung der Einflüsse der Tieftemperaturversprödung stattfindet. Weiterhin sieht man, daß bei diesen Legierungen kein Einfluß einer Hochtemperaturversprödung auf die Kurzzeitfestigkeiten festzustellen ist. Aus den Abb.6 und 7 ist zu entnehmen, daß diese Feststellung in genereller Weise zutrifft. So erkennt man in Abb.6 bei 650°C eine bessere Ausheilung bei V-Legierungen mit 10 % Ti und in Abb.7 bei 750°C bei allen untersuchten Legierungen eine nahezu vollständige Ausheilung und keine Anzeichen für eine Hochtemperaturversprödung.

3.2 Mol-2-Versuche im BR2

3.2.1 Beschreibung

In den Mol-2-Versuchen werden Zeitstandfestigkeiten bei hoher Temperatur unter Bestrahlung untersucht. Zu diesem Zweck können

mit der Mol-2-Anlage gleichzeitig 16 innenbeheizte und druckbeaufschlagte Röhren aus hochwarmfesten Legierungen bestrahlt werden. Druck- und Temperaturbelastung werden hierbei derart gewählt, daß nach einer festgelegten Bestrahlungsdosis die Grenze der Zeitstandfestigkeit erreicht wird. Für eine genaue Beschreibung der Anlage sei auf [7] verwiesen. Die Versuchsanlage wurde vom Institut für Reaktorentwicklung konstruiert und gebaut. Sie ist seit Juni 1966 in Betrieb und arbeitet einwandfrei. Das vorgesehene Programm für die Mol-2-Reihe ist in Tabelle 5 zusammengefasst.

3.2.2 Ergebnisse

Die ersten 4 Einsätze wurden zur Untersuchung von Zeitstandfestigkeiten unter Bestrahlung bei hoher Temperatur für die Legierungen 16/13 CrNi, 20/25 CrNi, Incoloy 800 und Inconel X750 benützt. Hauptsächlich die Wahl der geeigneten Innendrucke und Temperaturen war Gegenstand der ersten Versuche. An Hand von Abb.8 soll dies kurz für eine Legierung erläutert werden. Bei den vorgegebenen Temperaturen von 600°C bzw. 700°C werden für das betreffende Material aus Literaturangaben und Zeitstandversuchen die Zeitstandfestigkeiten festgelegt. Statt der Tangentialspannung ist auf der Ordinate der über die Kesselformel berechnete Innendruck aufgetragen. Mit Rücksicht auf Programmumfang, Standzeit, Dosis usw. wurden als Versuchszeiten 2, 4 und 8 BR2-Reaktorzyklen festgelegt. Versuchsbedingung ist, daß die Standzeit der Proben vor Abschluß der vorgesehenen Bestrahlungszeit von 2, 4 oder 8 Zyklen erreicht wird. Bekannt sind also in Abb. 8 die voll ausgezogenen Zeitbruchlinien, die Zeiten von 2, 4 und 8 Reaktorzyklen und demzufolge die Bezugsdrücke 1, 2, 3, 4, 5 und 6. Unbekannt sind die gestrichelten Zeitbruchlinien nach Bestrahlung und deshalb die Versuchsfelder A, B, C, D, E und F für die zu wählenden Innendrucke der Versuchsröhren. Die ersten Versuche dienten hauptsächlich dazu, diese Versuchsfelder einzuengen. Über die ersten Ergebnisse wird demnächst berichtet werden. Um diesen Bericht nicht vorwegzunehmen, werden an dieser Stelle nur einige qualitative Ergebnisse gebracht.

- a) Der erwartete starke Abfall der Zeitstandfestigkeiten unter Bestrahlung hat sich bestätigt und beträgt ca. 30 % für nicht aushärtbare Legierungen und ca. 70 % für aushärtbare Legierungen, d.h. die Legierung Inconel X750 ist als Brüterhüllrohr auf Grund der starken Versprödung nicht interessant. Die Legierungen Incoloy 800 und 20/25 CrNi zeigen neben der hohen Versprödung nur geringe absolute Festigkeit. Deshalb werden ab Einsatz 9 die Legierungen Inconel X750, Incoloy 800 und 20/25 durch Inconel 625, Inconel 718 und Hastelloy X ersetzt (Tabelle 5 berücksichtigt schon diese Änderung).
- b) Die bei Reaktorentwürfen bisher verwendete Zeitdehngrenze $\sigma_{1/10\ 000}$ ist nach diesen Ergebnissen nicht mehr sinnvoll, da der Bruch oft unterhalb 1 % Dehnung eintritt.

3.3 Mol-3A-Versuche im BR2

In den Mol-3A-Versuchen im belgischen Reaktor BR2 wird der Einfluß der Bestrahlung bei hoher Temperatur auf das Zeitstandverhalten hochwarmfester Legierungen nach Bestrahlung untersucht. Mit der vorhandenen Anlage können gleichzeitig zwei Einsätze mit je 36 Proben im inneren eines 6-schaligen BR2-Brennelementes bestrahlt werden. Die Bestrahlungstemperatur liegt über 600°C und wird durch die Gamma-Heizung des Reaktors erreicht. Die Temperaturregelung erfolgt über eine regulierbare Gasmischung aus He und Ne, die durch einen berechneten Spalt zwischen Einsatzaußenwand und Probenträger gespült wird. Das Regelprinzip beruht auf der unterschiedlichen Wärmeleitfähigkeit dieser beiden Edelgase. Da die Temperaturkonstanz im BR2 nicht sehr gut ist, können Temperaturunterschiede bis zu 50°C im Laufe eines Zyklus zwischen kältestem und wärmstem Prüfling auftreten. Die Einstellung der gewünschten Solltemperatur erfolgt am mittleren Probenbündel und die Regelkapazität der Gasgemischanlage erlaubt eine Einhaltung der Solltemperatur an dieser Stelle mit $\pm 10^\circ\text{C}$. Jeder Einsatz hat einen eigenen Gasgemisch-Regelschrank. Beide Einsätze gemeinsam haben einen Temperaturschrank. Die Temperaturmessung erfolgt über insge-

samt 12 Thermoelemente (4 pro Probenbündel) je Einsatz mit laufender Registrierung. Die Bestrahlungsbedingungen sind hinsichtlich

- Atmosphäre: He-Ne-Gasgemisch
- Temperatur: Solltemperatur 650°C
Minimumtemperatur $> 600^{\circ}\text{C}$
- Dosis: integrierter thermischer Fluß $> 10^{21}$ n/cm²
- Nachuntersuchung: Zeitstandversuche in den Heißen Zellen und Vergleichsversuche an unbestrahlten Proben

Der Versuch läuft seit Ende Oktober 1966 mit den ersten zwei Einsätzen. Die Beladung ist im

- Einsatz I 12 Proben X8CrNiMoVNb1613
 12 Proben Inconel 625
 12 Proben Inconel 718
- Einsatz II 12 Proben V-3Ti-15Nb
 12 Proben V-3Ti-10Nb
 12 Proben V-10Ti-15Nb

Die Ergebnisse werden ab Anfang 1968 vorliegen, da für die Bestrahlung 10 Monate und für die Nachuntersuchung etwa 6 Monate benötigt werden.

3.4 Mol-3B-Versuche im BR2

In diesen Versuchen wird mit der vorhandenen Vorrichtung der Mol-3A-Bestrahlungen wiederum der Einfluß der Bestrahlung bei hoher Temperatur auf das Zeitstandverhalten von Stählen, Ni- und V-Legierungen nach der Bestrahlung untersucht. Jedoch ist hierbei der Probenträger mit Natrium gefüllt, so daß die Proben in direktem Kontakt mit ruhendem Natrium sind. Die Bestrahlungstemperatur wird bei 650°C und die integrierte thermische Dosis bei 10^{21} n/cm² liegen. Außerdem soll der Einsatz in der Bestrahlungsposition verschiebbar sein, so daß für alle Proben eine gute Temperatur- und Flußkonstanz erreicht wird. Die Temperaturregelung erfolgt wieder über das He-Ne-Gasgemisch der Mol-3A-Anlage.

Der Einsatz wird von der BR2-Betriebsgruppe gebaut. Die Versuche werden im Anschluß an die Mol-3A-Versuche durchgeführt. Es sind 2 Einsätze mit 52 Flachzerreißproben zur Bestrahlung vorgesehen.

3.5 Dido-M-Versuche

Bei den Dido-M-Versuchen im FRJ-2 in Jülich wird der Einfluß der Neutronenbestrahlung bei 600°C auf das Zeitstandverhalten hochwarmfester Legierungen nach der Bestrahlung untersucht werden. Die Bestrahlung erfolgt in elektrisch geheizten Probenträgern in MarkIII-Bestrahlungspositionen. Zur Zeit sind 2 Einsätze vorgesehen, die nacheinander zum Einsatz kommen werden. Die Beladung erfolgt mit den gleichen Materialien wie bei den Mol-3A-Versuchen, nämlich in

- einem offenen Einsatz mit 16 Proben 16/13 CrNi
 - 16 Proben Inconel 625
 - 16 Proben Inconel 718
- einem geschlossenen Einsatz mit 16 Proben V3Ti15Nb
 - 16 Proben V3Ti10Nb
 - 16 Proben V10Ti15Nb

Diese Versuche sind im wesentlichen eine Ergänzung der Mol-3A-Versuche. Die Unterschiede beider Versuche sind aus der nachfolgenden Gegenüberstellung ersichtlich.

	Mol 3A	Dido-M
Probenzahl/Einsatz	36	48
Einsätze	2 + 4	2
Probenheizung	nuklear	elektrisch
Temperaturtoleranz	± 25°C	± 5°C
Kosten pro Probe ohne Nebenkosten	DM 3000.-	DM 1850.-
Bestrahlungszeit	3-4 Monate	6-8 Monate
Schnelle Neutronendosis	10^{21} n/cm ²	5×10^{20} n/cm ²
Bestrahlungskapazität	2 Einsätze gleichzeitig	2 Einsätze nacheinander
Anfang	Oktober 1966	Sommer 1967

Die Nachuntersuchung der Dido-M-Bestrahlungsproben besteht aus Langzeitversuchen bei 600°C und 700°C in den Heißen Zellen des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Die ersten Ergebnisse können bei der vorhandenen Kapazität der Zeitstandbatterien in den Heißen Zellen Ende 1968 erwartet werden.

3.6 Fermi-M-Versuche im EFFBR

In den Fermi-M-Versuchen wird in Ergänzung zu den Mol-1-Versuchen der Einfluß der Bestrahlung bei niedriger Temperatur auf die mechanischen Eigenschaften nach der Bestrahlung untersucht. Die Nachuntersuchung der Zugproben ist dieselbe wie in der Mol-1-Reihe und wird in den Heißen Zellen von Battelle Memorial Institute, Columbus, Ohio, USA, durchgeführt. Die Bestrahlung erfolgt in dem EFFBR "Non-Fissionable-Materials-Surveillance-Subassembly", einem offenen Einsatz ohne Instrumentierung. Die Proben sind in direktem Kontakt mit dem flüssigen Natrium von 300-350°C. Die Temperatur liegt demnach unterhalb des Ausheiltemperaturbereiches. Im Einsatz, der in einer Core-Position eingebaut wird, können 32 runde Zugproben und die nötigen Dosimeter untergebracht werden. Die angestrebte Dosis und der dichte Kontakt der Proben mit flüssigem Natrium von etwa 300°C sind die wesentlichen Unterschiede zwischen diesem Versuch und den Mol-1-Versuchen. In einem ersten Einsatz, der während der Fermi-Demonstrationsperiode eingebaut war, wurden folgende 4 Legierungen untersucht:

- 8 Proben 16/13 CrNi
- 8 Proben Inconel 625
- 8 Proben V-20Ti-20Nb
- 8 Proben V-5Ti-20Nb

Die Proben wurden nur wenige Tage bestrahlt bis zum EFFBR-Unfall im Oktober 1966. Wir nehmen an, daß die erreichte schnelle Dosis etwa 10^{20} nvt beträgt. Der Einsatz konnte aus dem Reaktor gezogen und soll demnächst zur Nachuntersuchung nach Columbus gebracht werden.

4. Weitere Bestrahlungsversuche

4.1 Versuche mit vorhandenen Einrichtungen

Als nächste Mol-1-Versuche sind vorbereitet:

Mol-1G

Zweck: Zeitstand- und Kriecheigenschaften nach Bestrahlung bei 50°C mit 2×10^{21} nvt

Material: 16/13 CrNi, Inconel 625, Inconel 718

Nachuntersuchung: Langzeitversuche bei 600°C und 700°C

Mol-1H

Zweck: Einfluß auf Hochtemperaturversprödung von kaltverformten und wärmebehandelten Ni-Legierungen nach Bestrahlung bei 50°C und $1,5 \times 10^{21}$ nvt

Material: Inconel 625, Hastelloy X, Inconel 718

Vorbehandlung: a) Auslieferungszustand

b) Kaltverformt + 400 h bei 700°C

Nachuntersuchung: Zugversuche bei hoher Temperatur

Die Mol-2-Reihe wird entsprechend dem Plan der Tabelle 5 weitergeführt. Es ist vorgesehen, in absehbarer Zeit weitere vier Einsätze für Mol-3A-Versuche zu bestellen. Die Beladungspläne dieser Einsätze liegen noch nicht fest. Weiterhin ist ein Fermi-M2-Einsatz nach Wiederaufnahme des EFFBR-Betriebes vorgesehen. In diesem Einsatz sollen die Legierungen 16/13 CrNi, Inconel 625, V10Ti15Nb und V3Ti15Nb einer integrierten schnellen Dosis von 5×10^{22} nvt ausgesetzt werden.

4.2 Geplante Versuche

Für die nächste Zukunft werden In-Pile-Kriechversuche mit kontinuierlicher Dehnungsmessung vorbereitet. Die ersten Kriechversuche werden Anfang 1967 bestellt, so daß mit deren Einsatz im Jahre 1968 gerechnet werden kann. Voraussichtlich werden die Versuche im BR2-Reaktor unter der Bezeichnung Mol-5 durchgeführt.

Literatur:

- [1] A. MÜLLER, K. BENNDORF, H. BÖHM u.a.: Referenzstudie für den 1000 MWe dampfgekühlten schnellen Brutreaktor (D1), KFK-392, August 1966
- [2] D. SMIDT, A. MÜLLER: Referenzstudie für den 1000 MWe natriumgekühlten schnellen Brutreaktor (Na1), KFK-299, Dezember 1964
- [3] H. BÖHM, W. DIENST, H. HAUCK, H.J. LAUE: Änderung der mechanischen Eigenschaften von Chrom-Nickel-Stählen und Nickellegierungen durch Neutronenbestrahlung, J. Nuc. Mat. 18, (1966) 337-347

- [4] H. BÖHM, W. DIENST, H. HAUCK, H.J. LAUE: Abhängigkeit des Bestrahlungsverhaltens einer aushärtbaren Ni-Cr-Fe-Legierung vom Ausscheidungszustand, J.Nuc.Mat. 20 (1966) 87-93
- [5] H. BÖHM, M. SCHIRRA: Untersuchung über das Zeitstand- und Kriechverhalten binärer und ternärer Vanadin-Legierungen, J. Less-Common Metals, 12 (1967) 280-293
- [6] H. BÖHM, W. DIENST, H. HAUCK, H.J. LAUE: Irradiation Effects on the mechanical properties of Vanadium-base-Alloys, 69. Annual Meeting of the ASTM, Atlantic City, June 1966
- [7] K. GAST, W. KRAMER: Sicherheitsbericht für BR2-Materialbestrahlungsversuche, Projekt Mol-2, Untersuchung des Kriechverhaltens von Can-Materialien unter Bestrahlung, KFK-396, Oktober 1965

Tab.1 Betriebsbedingungen für das Hüllmaterial
eines Brennstabes in einem
Schnellbrüter - Leistungsreaktor [1,2]

	1 000 MWe Na - gekühlt	1 000 MWe Dampf - gekühlt
Form:	Rohr (dünnwandig, schlank)	
Aussendurchmesser	6,7 mm	7 mm
Wandstärke	0,35 mm	0,37 mm
Brennstoff	UO ₂ -PuO ₂ - Mischung	
Füllgas	He	
Kühlmittel	Natrium	H ₂ O-Dampf
Temperaturen:		
mittl. Kühlm.-temp. Austritt	580 °C	540 °C
max. Kühlm.-temp. Austritt	630 °C	648 °C
max. Hüllrohrtemp. innen (mit Heißkanalfaktoren)	685 °C	780 °C
Druckbelastung:		
innerer Druck v. Füllgas	— — —	≈ 120 atü
innerer Druckaufbau	bis 70 atü	≈ bis 260 atü
Kühlmitteldruck	≈ 6 atü	170 atü
Betriebszeit maximal	22 000 h	16 000 h
	≐ Abbrand des BE	
Fluss in Core-Mitte	10 ¹⁶ n/cm ² s	1,7 · 10 ¹⁵ n/cm ² s
Stableistung maximal	566 W/cm	390 W/cm

Tab.2 Wichtige Kenngrößen der für Bestrahlungsversuche interessierenden Reaktoren

	FR 2	FRJ 2	BR 2	DFR	EFFBR
Gesamtleistung MW	44	10	57	60	110
Flüsse: (Core- mitte)	mittl.Fluss $\frac{1}{\text{cm}^2 \text{s}}$	$8,8 \cdot 10^{13}$	$1,4 \cdot 10^{14}$	$2,47 \cdot 10^{14}$	
	max.Fluss $\frac{1}{\text{cm}^2 \text{s}}$	$1 \cdot 10^{14}$	$1,6 \cdot 10^{14}$	$4 \cdot 10^{14}$	$2,5 \cdot 10^{15}$
	mittl.Fl.>100KeV $\frac{1}{\text{cm}^2 \text{s}}$	$4,4 \cdot 10^{12}$	$3 \cdot 10^{13}$	$2,22 \cdot 10^{14}$	$2 \cdot 10^{15}$
Flußgradient (axial und radial)	rel. klein	rel. klein	rel. groß	rel. groß	rel. groß
Kühlmittel	D ₂ O	D ₂ O	H ₂ O	Na - K	Na
mittl.Kühltemperatur °C	45	40	50	230	230
Geometrie für Bestrahlungseinsätze	durchgehende Kanäle in Core-Position 30 - 130 mm ϕ	durchgehende Kanäle in Core - Position 50, 100, 150 mm ϕ	durchgehende Kanäle in Core - Position 17-43 mm ϕ 900 mm lang	Norm - Einsatz Core - Position 22 mm ϕ 720 mm lang	Norm-Einsatz (NMTS) Core - Position 67 mm ϕ 1250 mm lang
\uparrow -Heizung in Core-Posit.	schwach	schwach	13-16 W/g Al	3-6 W/g Stahl	3-5 W/g Stahl
Zykluszeit	30 Tage	30 Tage	30 Tage	30 Tage	30 Tage
Instrumentierungsmögl.	gut	gut	sehr gut	beschränkt	beschränkt

Tab. 3 Bestrahlungsprogramm

Programm	Probenform	Material	Bestrahl.-temper.	Dosis(nvt)	Umgebung	Nachuntersuchungen	Probenzahl-Einsatz
Mol 1	Zugproben Zeitstandproben	Stähle Ni-Legierung V-Legierung	~ 50°C	10 ²⁰ -10 ²¹ > 10 ²¹	Wasser	1.Zugversuche bei Raumtemp. 2.Zugversuche nach versch. Behandlung 3.Zugversuche bei hoher Temp. 4.Langzeitversuche bei hoher Temperatur	max. 132 (bis jetzt 6 Einsätze)
Fermi M1	Zugproben	Stähle Ni-,u.V-Leg.	300-350°C	5·10 ²¹	Na	wie Mol 1 1.2.und 3.	32
Mol 2	Druckröhrchen (bis 500 at)	austen. Stahl Ni-Legierung V-Legierung	600°C 700 °C elektr.Heiz.	>10 ²⁰	He	Zeitstandfestigkeit mehraxiale Beanspruchung	8 (18 Einsätze)
Mol 3A	Zeitstandproben	austen.Stahl Ni-Legierung V-Legierung	>600°C	5·10 ²¹	He-Ne	Langzeitversuche bei 600°C bzw. 700°C	36 (2 Einsätze bzw.6 Eins.)
DIDO M	Zeitstandproben	Stähle Ni-Legierung V-Legierung	600°C elektr.Heiz.	>10 ²¹	Schutzgas	Langzeitversuche bei 600 bzw. 700°C	48 (2 Einsätze)
Mol 3B	Zeitstandproben	austen.Stahl Ni-Legierung V-Legierung	600°C	2·10 ²¹	Na (ruhend)	Langzeitversuche bei 600°C bzw. 700°C	36 (2 Einsätze)
Fermi M2		Stähle Ni-V-Legierung	300-400°C	5·10 ²²	Na	noch festzulegen	32

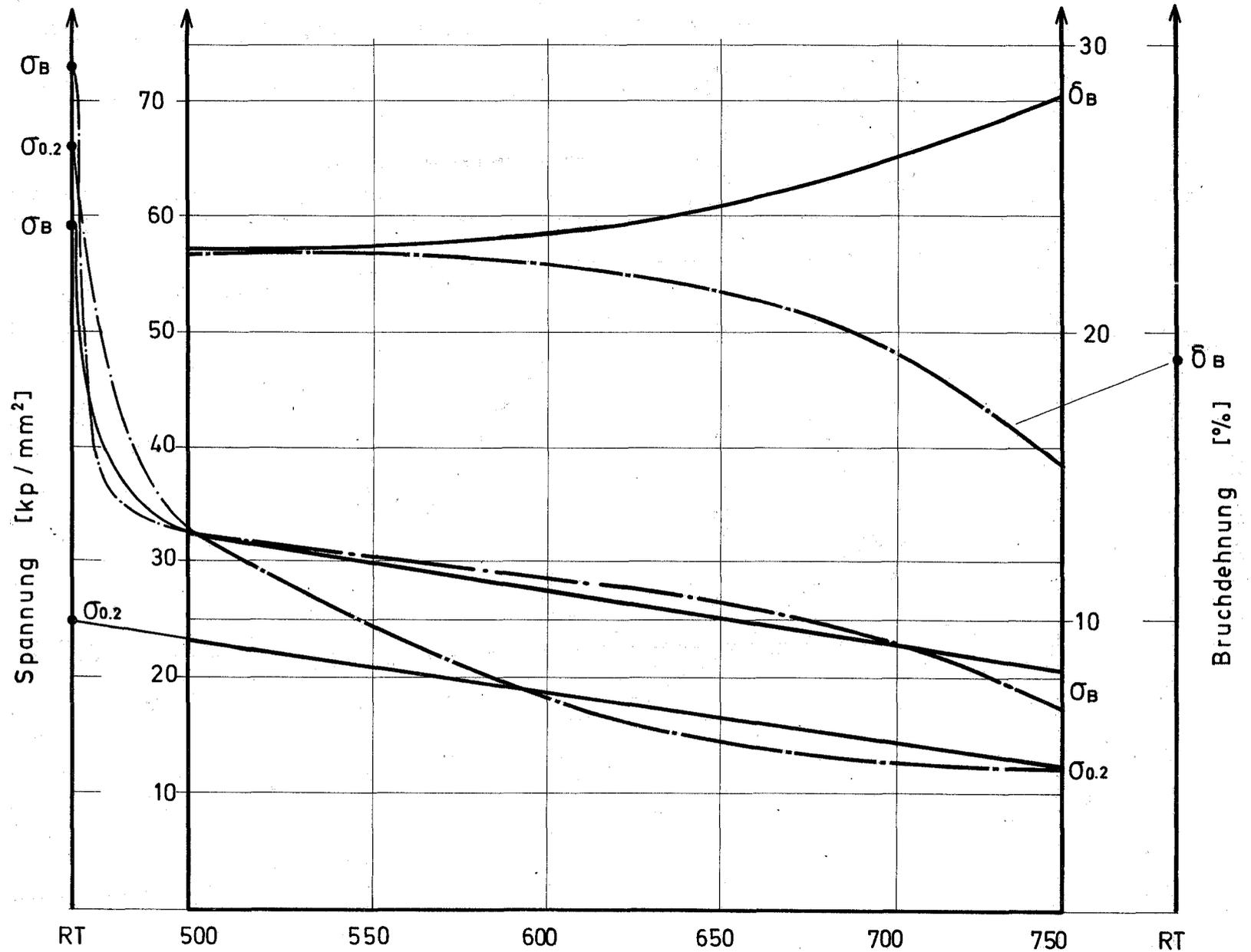
Tab.4 Mol-1- Einsätze bis Dezember 1966

Einsatz	Material	Proben- zahl	mittl.Dosis 10 nvt	
			thermisch	>0,1 MeV
1 A	X8 CrNi MoVNb 1613	16		
	X8 Ni Cr MoTi 2515	15	5,5	4,8
	Inconel X 750	30		
1 B	16/13 Cr Ni	15		
	X2 Ni Cr 2520	15		
	Inconel 600	15	3,0	2,7
	Inconel X 750	16		
1 C	16/13 CrNi	15		
	20/25 CrNi	15		
	Inconel 600	15	13,0	11,0
	Inconel X 750	16		
1 D	In 102	8		
	Inconel 625	3		
	Inconel X 750	24	16,5	15,0
	Incoloy 800	1		
	V-Legierungen	45		
1 E	V-Legierungen	30		
	T Z M	11	17,0	15,0
1 F	Incoloy 800	31		
	Inconel X 750	50	17,6	16,0

Tab. 5

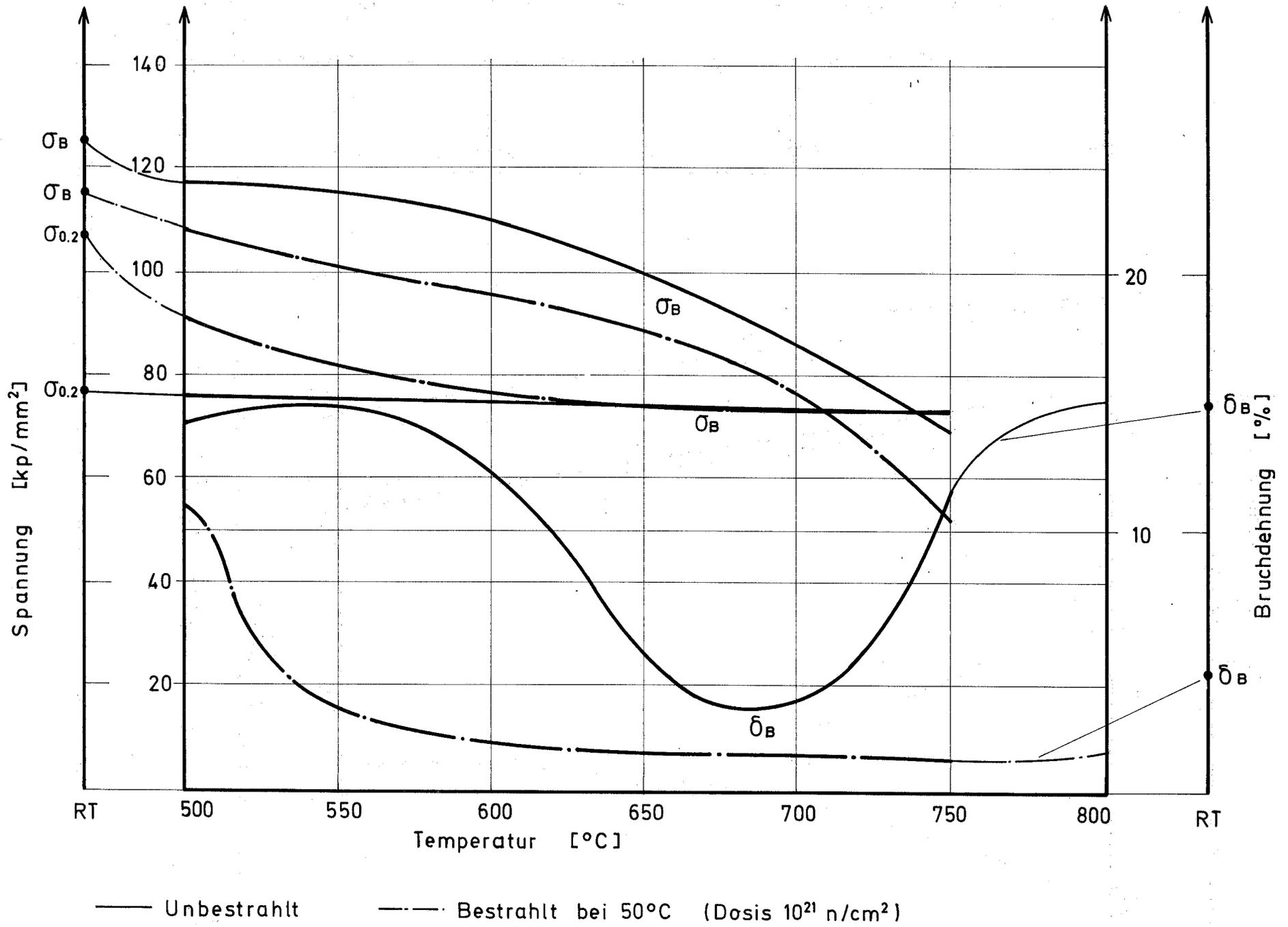
Bestrahlungsplan Mol 2

Kapsel Nr.	Kanal	Zykluszahl	Versuchszeit (h)	Temperat. °C	Legierungen		Bestrahlungstermine	
1	C 41	2	960	600	Incoloy 800	Inconel x 750	Juni	– Juli 1966
2	C 319				16/13 Cr Ni	20/25 Cr Ni		
3	C 41	2	960	700	Incoloy 800	Inconel x 750	August	– September 1966
4	C 319				16/13 Cr Ni	20/25 Cr Ni		
5	C 41	4	1920	600	Incoloy 800	Inconel x 750	November 1966	– Februar 1967
6	C 319				16/13 Cr Ni	20/25 Cr Ni		
7	C 41	4	1920	700	Incoloy 800	Inconel x 750	März	– Juni 1967
8	C 319				16/13 Cr Ni	20/25 Cr Ni		
9	C 41	2	960	600	16/13 Cr Ni	Inconel 625	Juli	– August 1967
10	C 319				Inconel 718	Hastelloy x		
11	C 41	2	960	700	16/13 Cr Ni	Inconel 625	September	– Oktober 1967
12	C 319				Inconel 718	Hastelloy x		
13	C 41	4	1920	600	16/13 Cr Ni	Inconel 625	November 1967	– Februar 1968
14	C 319				Inconel 718	Hastelloy x		
15	C 41	4	1920	700	16/13 Cr Ni	Inconel 625	März	– Juni 1968
16	C 319				Inconel 718	Hastelloy x		
17	C 41	8	3840	600	16/13 Cr Ni	Inconel 625	Juli 1968	– Februar 1969
18	C 319				Inconel 718	Hastelloy x		



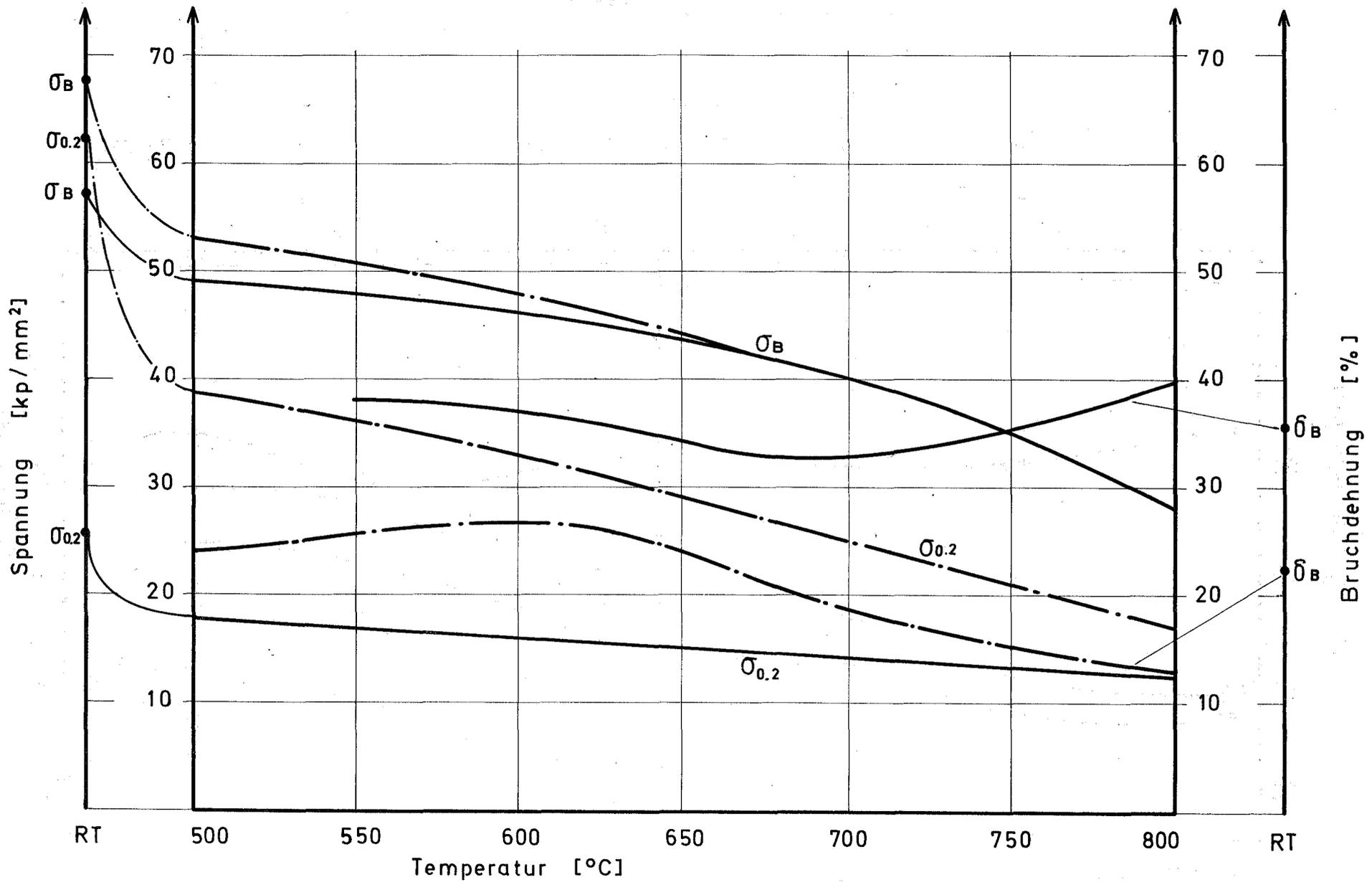
— Unbestrahlt - - - Bestrahlt bei 50°C (Dosis: 10^{21}h/cm^2)

Abb.1 Mech. Eigenschaften von X8 CrNiMo V Nb 16 13



X - 22

Abb.2 Mech. Eigenschaften von Inconel X 750



— Unbestrahlt —·— Bestrahlt bei 50°C (Dosis $\sim 10^{21} \text{ n/cm}^2$)

Abb.3 Mech. Eigenschaften von Incoloy 800

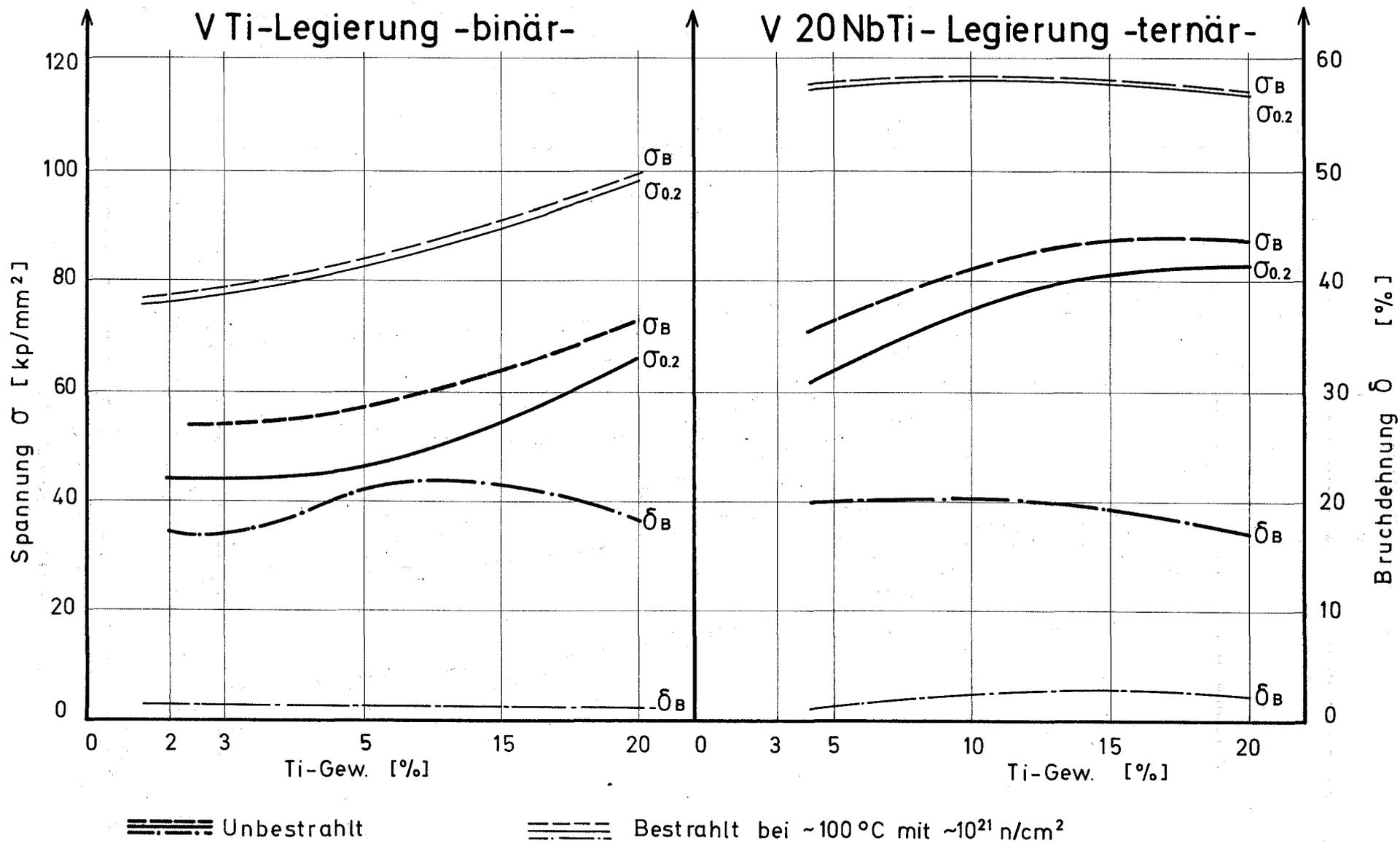
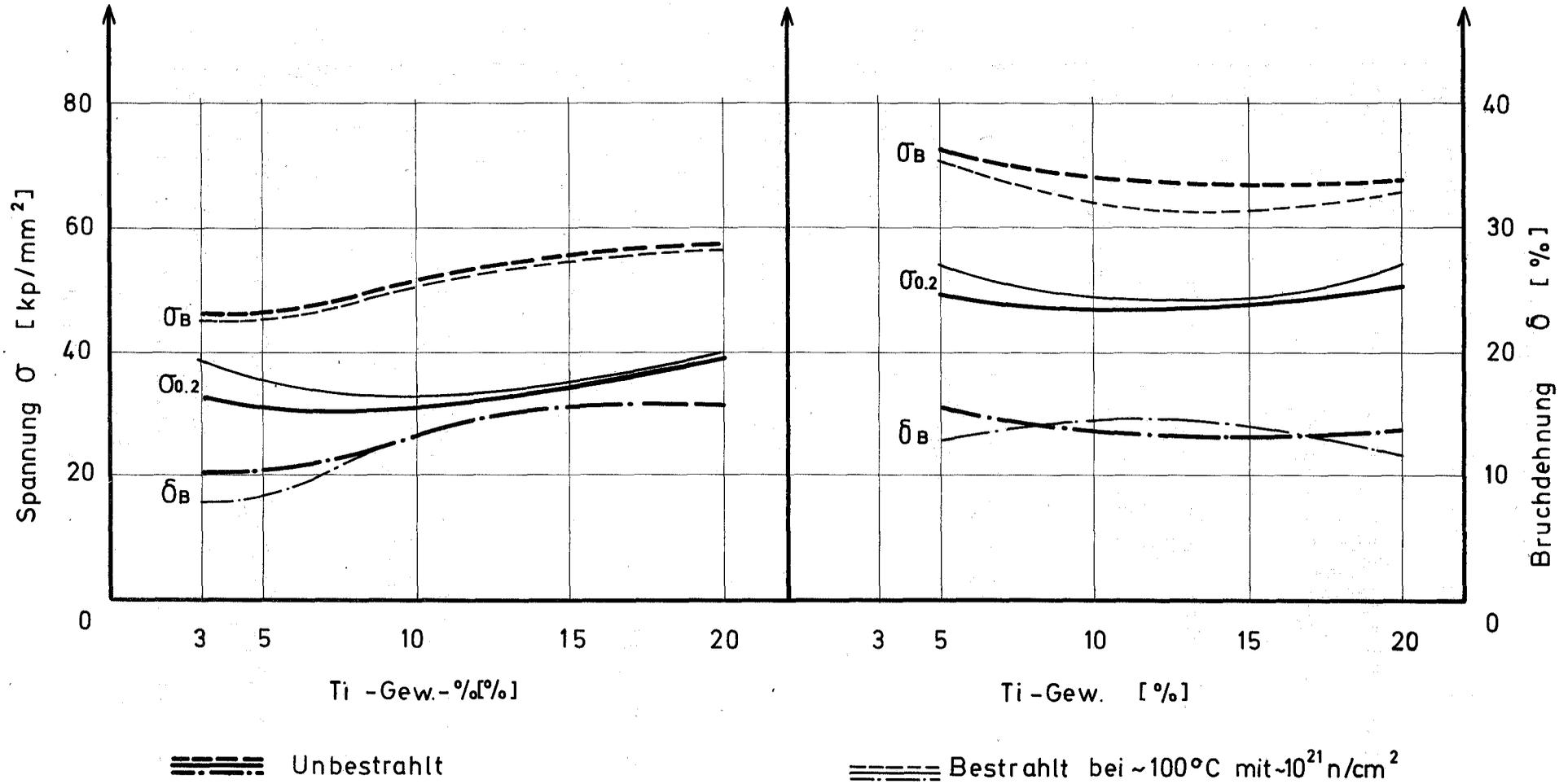


Abb.4 Mech. Eigenschaften bei Raumtemperatur

V-Ti-Legierung - binär -

V-20Nb-Ti-Legierung - ternär -



X - 25

Abb.5 Mech. Eigenschaften bei 650°C

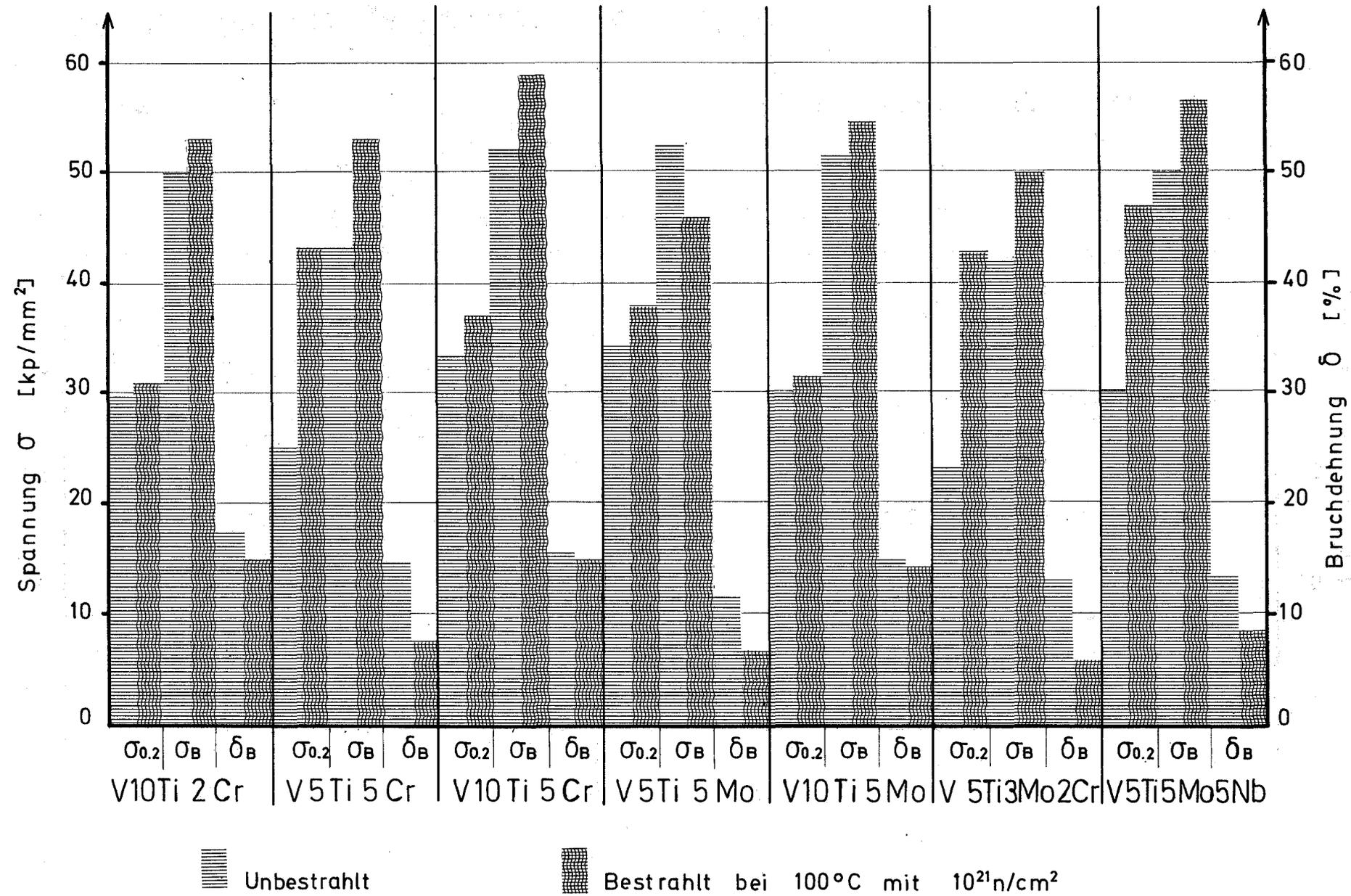


Abb.6 Mech. Eigenschaften einiger V-Legierungen bei 650°C

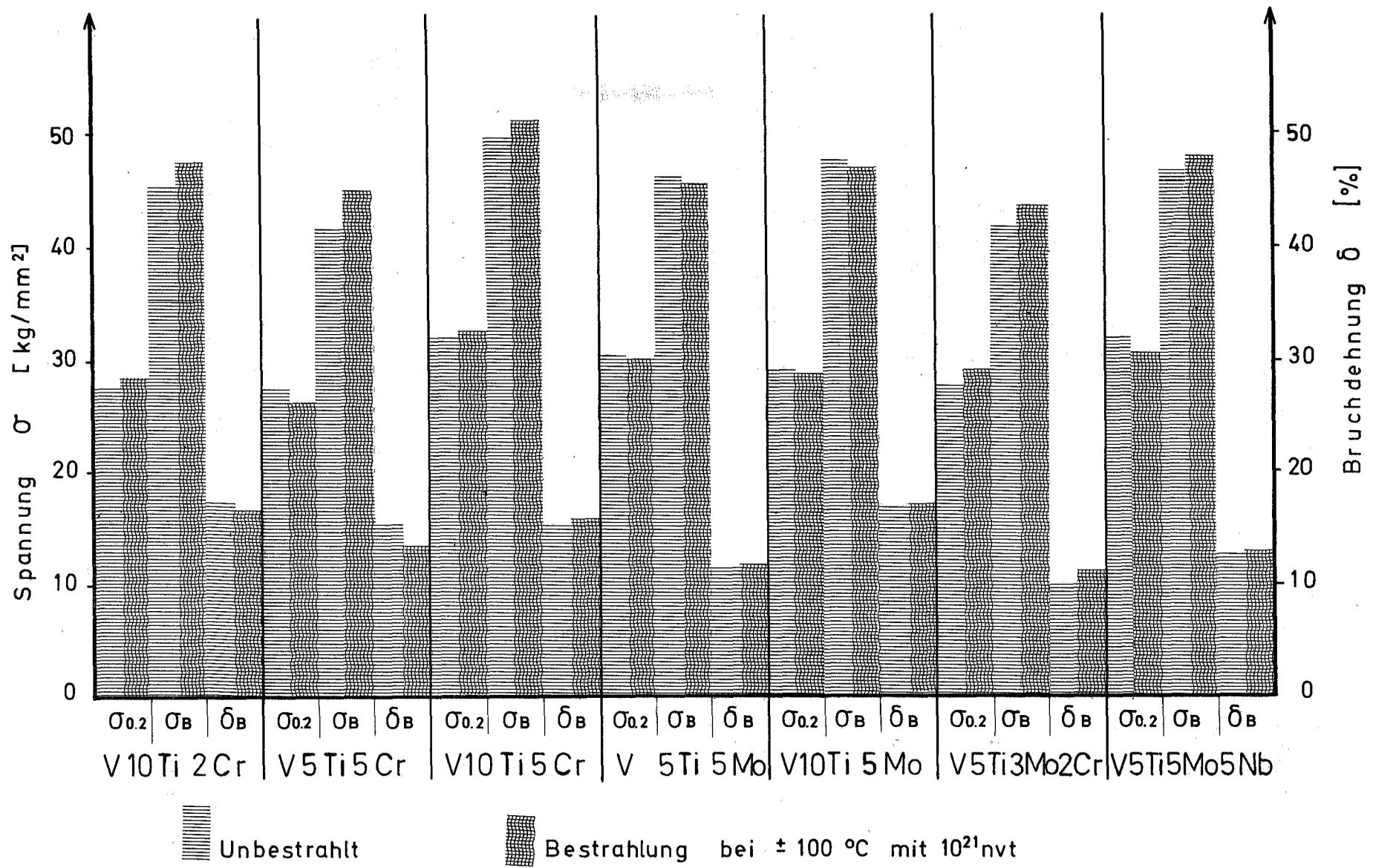


Abb.7 Mech. Eigenschaften einiger V-Legierungen bei 750°C

A-F : Versuchsfelder für die vorzugebenden Innendrucke

----- Bestrahlt ————— Unbestrahlt

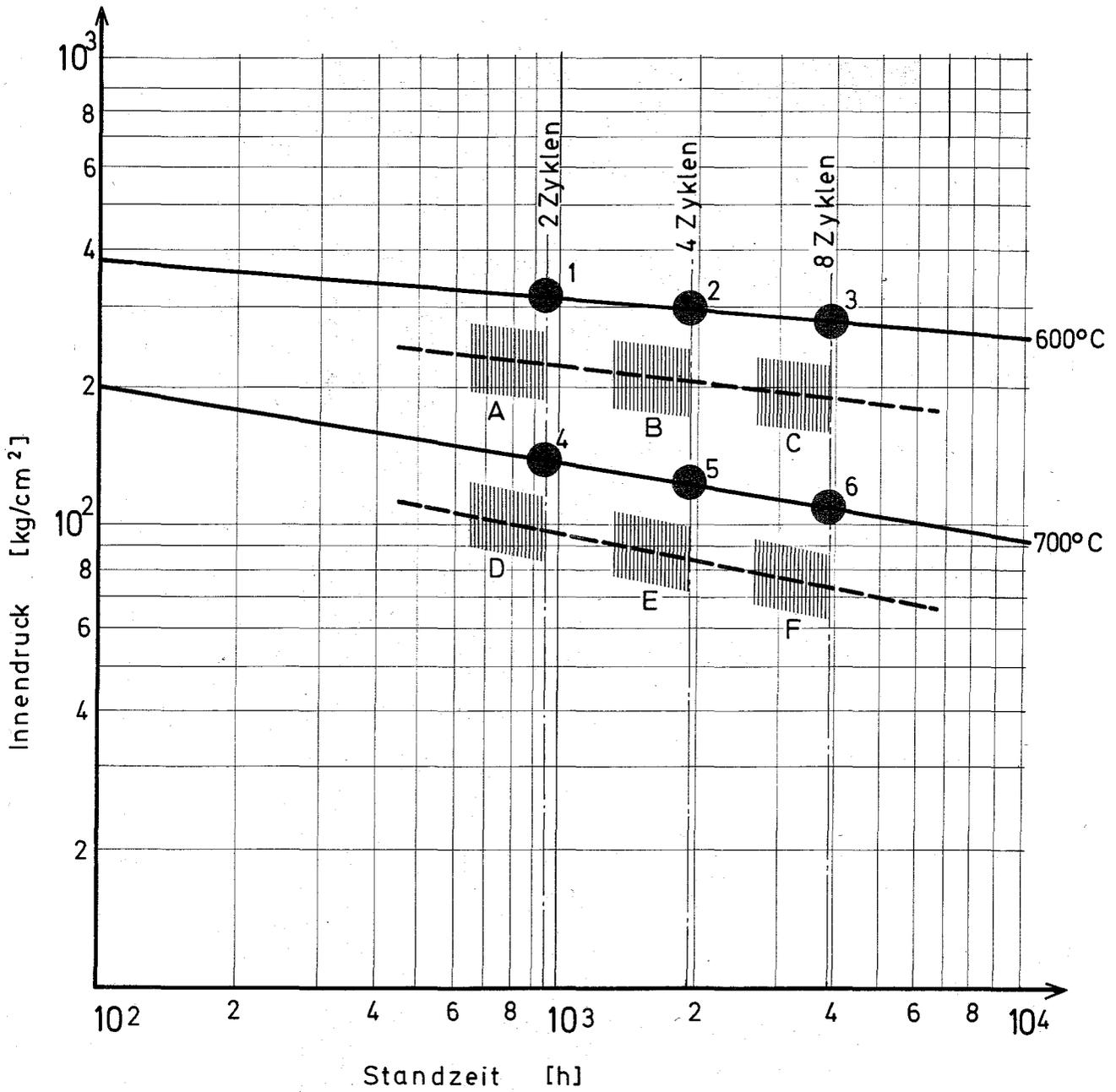


Abb.8 Auswahl der Probeninnendrucke im MOL-2 Versuch am Beispiel 16/13 Cr Ni-Stahl

XI. DIE AUSLEGUNG UND DURCHFÜHRUNG VON Brennelement-
BESTRAHLUNGSEXPERIMENTEN

von

H. Beißwenger

Inhalt:

1. Einleitung
2. Planung von Bestrahlungsexperimenten
 - 2.1 Auswahl der Auslegeparameter
 - 2.2 Reaktorerscheinungen und Ausfallkriterien
 - 2.3 Nachuntersuchung bestrahlter Brennelementproben
3. Auslegung von Bestrahlungsexperimenten
 - 3.1 Bestrahlung im schnellen Reaktor
 - 3.2 Bestrahlung im thermischen Reaktor
 - 3.2.1 Berechnung des Wärmeleitintegrals
 - 3.2.2 Berechnung des Temperaturverlaufs im Brennstoff
 - 3.2.3 Abhängigkeit des Wärmeleitintegrals und der Stableistung von der Anreicherung und dem Durchmesser
 - 3.2.4 Länge der Bestrahlungsprobe
4. Bestrahlungseinrichtungen
 - 4.1 Aufgaben der Bestrahlungseinrichtungen
 - 4.2 Bestrahlung im schnellen natriumgekühlten Reaktor
 - 4.3 Kapseln für Bestrahlungen im FR2
 - 4.4 FR2-Abbrandloop
 - 4.5 Versuchseinrichtungen für Kurzzeitbestrahlung zum FR2-Abbrandloop
5. Bestrahlungsprogramm
 - 5.1 Bestrahlungsvorhaben in schnellen natriumgekühlten Reaktoren
 - 5.1.1 Bestrahlungstest im Enrico-Fermi-Reaktor
 - 5.1.2 Bestrahlung im Dounreay-Reaktor (DFR)
 - 5.2 Kapselversuche im FR2
 - 5.3 Loopversuche im FR2
 - 5.4 Schlußbemerkungen über die Brennstoffbestrahlungen des Projektes Schneller Brüter

1. Einleitung

Bestrahlungsversuche sind die Grundlage der Brennelemententwicklung. Obwohl schon viele Bestrahlungsversuche, hauptsächlich bei den nuklearen Großmächten durchgeführt wurden, sind wir weit davon entfernt, sämtliche Vorgänge, die sich in einem Brennelement während der Standzeit im Reaktor abspielen, zu kennen. Die Bestrahlungsversuche sollen dazu beitragen, hier weitere Erkenntnisse zu erlangen. Dies soll einerseits dazu führen, die optimalen Auslegedaten für die Brennelemente eines bestimmten Reaktors festzulegen und soll andererseits zu einer umfassenden Brennelementtheorie führen, die es gestattet, das Verhalten eines Brennelements im Reaktor quantitativ zu beherrschen. Das Auffinden von Auslegekriterien für eine optimale Brennelementkonstruktion ist als Nahziel anzusehen. Es genügt jedoch nicht, nur genügend empirische Daten zu sammeln. Man muß auch die Ursachen für das jeweilige Verhalten kennenlernen, um die Basis einer brauchbaren Theorie zu schaffen.

Der vorliegende Bericht orientiert sich im wesentlichen am Bestrahlungsprogramm des Projektes Schneller Brüter. Einige Ergebnisse sind in [1] angegeben. Die Bestrahlungseinrichtungen wurden in den Sicherheitsberichten [3,4,5] beschrieben.

2. Planung von Bestrahlungsexperimenten

Bei der Planung von Bestrahlungsexperimenten muß man sich zunächst Klarheit darüber verschaffen, welche Parameter als Ausgangsgrößen festgelegt werden können, mit welchen Effekten während der Bestrahlung zu rechnen ist bzw. welche Erscheinungen untersucht werden sollen und welche Kriterien für den Ausfall eines Brennelementes entscheidend sind. In der Tabelle 1 sind die wichtigsten Auslegeparameter, die Erscheinungen des Reaktorverhaltens und die Ausfallkriterien zusammengestellt.

2.1 Auswahl der Auslegeparameter

Um die optimale Auslegung für eine Brennelementkonstruktion zu finden, erscheint es am einfachsten zu sein, alle Auslegeparameter durchzuvariieren und alle Varianten zu bestrahlen. Dieser

Tabelle 1

Auslegeparameter	Reaktorverhalten	Ausfallkriterien
mittlere Brennstoffdichte	Anfahrverhalten Tablettenbrennstoff (Änderung des Spaltes zwischen Brennstoff und Hülle durch thermische Ausdehnung) Vibrierter Brennstoff (Sinterverhalten und Änderung der Wärmeleitfähigkeit)	Verformung der Hülle Anschwellen Einbeulen Verbiegen
Stableistung	Volumenzunahme des Brennstoffs Temperaturverteilung, Änderung der Porenverteilung, nicht freigesetztes Spaltgas, Volumenanteil der festen Spaltprodukte, Festigkeit und Plastizität des Brennstoffes	
Abbrand	Spaltgasdruckaufbau durch das in den Spalt Brennstoff-Hülle und in den Zentralkanal freigesetzte Spaltgas	Bruch der Hülle
Brennstoff	Diffusion von Pu, Spaltprodukten und Sauerstoff	
Herstellungsvarianten	Axiale Brennstoffverschiebung durch Verdampfungs-, Schmelz- und Sintervorgänge	Axiale Brennstoffverschiebung
Innere * Geometrie	Verhalten bei Leistungsüberschlag und Abfall der Kühlung	
Hülle	Verhalten des Hüllmaterials Festigkeitseigenschaften in Abhängigkeit von Temperatur und Bestrahlung - Verträglichkeit mit Brennstoff - Korrosion durch das Kühlmittel	Entmischung von U und Pu

XI - 3

* Bedeutung von Innere Geometrie:
 Bei Tablettenbrennstoff: Spaltbreite - Zentralkanal - Pelletdichte - Einsenkung an der Stirnfläche (Dishing) - Verteilung und Form der Poren, der Körner und der eingelagerten Pu-Partikel (bei Mischoxiden).
 Bei vibrierterem Brennstoff: Verteilung und Form der Partikel und der Hohlräume.

Weg ist jedoch nicht realisierbar, da eine zu große Probenanzahl notwendig wäre. Nehmen wir an, daß wir drei Dichtevarianten, drei Varianten der Stableistung, etwa sechs Varianten der inneren Geometrie, drei Varianten der Zusammensetzung und drei Abbrandvarianten zu bestrahlen hätten und jede einzelne Variante mit nur zwei Proben zu belegen wäre, so käme man ohne Variation der Hülle auf etwa 1000 Proben. Leider gibt es keine Bestrahlungseinrichtungen, die ein derartiges Volumen bewältigen könnten. Das andere Extrem, daß für alle Parameter ein mittlerer Wert gewählt wird und nur ein Parameter variiert wird, ist nicht hinreichend, da für das Reaktorverhalten eine sehr starke Koppelung unter den einzelnen Parametern besteht. Für die Reaktorversuche muß daher eine möglichst gut ausgewogene Auswahl getroffen werden.

Eine gewisse Ausnahme bezüglich der Koppelung der Ausgangsparameter bildet die Brennelementhülle. Obwohl sie für das Reaktorverhalten eines Brennstabes eine wesentliche Rolle spielt, können die Eigenschaften des Hüllmaterials unter Bestrahlung weitgehend in gesonderten Versuchen ermittelt werden. Die Hülle ist also der einzige Parameter, der keine starke Koppelung zu den übrigen hat. Die Hüllmaterialentwicklung wird daher beim Projekt Schneller Brüter gesondert betrieben. Es wird darüber in den Beiträgen VIII, IX und X berichtet.

Die Reaktorversuche, durch die die günstigsten Auslegeparameter ermittelt werden sollen, sind nicht ausreichend, um die Reaktorercheinungen detailliert kennenzulernen. Es sind deshalb gesonderte Versuchsreihen anzusetzen mit dem Ziel, Aufschluß über alle Vorgänge, die sich im Brennelement während der Reaktorbestrahlung abspielen, zu erhalten. Beispiele hierfür sind das Anfahrverhalten des Brennstoffs und die Untersuchung über die Ursachen bzw. den Mechanismus der Volumenzunahme des Brennstoffs während des Abbrandes. Beides kann in den üblichen Auswahlversuchen, auch wenn eine gründliche Nachuntersuchung erfolgt, nicht genügend aufgeklärt werden.

2.2 Reaktorerscheinungen und Ausfallkriterien

Die wichtigste Abbranderscheinung ist die Volumenzunahme des Brennstoffes. Sie hängt von der Temperaturverteilung, der Porenverteilung, von der Volumenverfügbarkeit, dem nicht freigesetzten Spaltgas, dem Volumenanteil der festen Spaltprodukte und schließlich von der Plastizität und Festigkeit des Brennstoffs ab. Die Aufklärung dieser Erscheinungen und Zusammenhänge ist das wichtigste Ziel der Bestrahlungsversuche.

Ein weiterer wichtiger Punkt ist das Anfahrverhalten. Hierbei soll in erster Linie geklärt werden, wie sich bei Pelletbrennstoff ein verschieden großer Spalt zwischen Brennstoff und Hülle auswirkt. Bei vibriertem Brennstoff ist die zeitliche Änderung der Wärmeleitfähigkeit zu ermitteln.

Nahezu alle Reaktorerscheinungen sind von der Temperatur abhängig. Somit ist die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs in Abhängigkeit von den Ausgangsparametern und ihrer Änderung im Reaktor von Bedeutung.

Einige der Abbranderscheinungen sind weniger eine Auswirkung der Reaktorbestrahlung als des Einflusses der Temperaturverteilung im Brennstoff. Dies trifft besonders für die Diffusions- und Verdampfungserscheinungen zu. Diese können deshalb zu einem großen Teil auch außerhalb des Reaktors untersucht werden.

Als wichtigstes Ausfallkriterium ist der Bruch der Hülle anzusehen. Ein Brennelement muß jedoch auch dann schon als ausgefallen angesehen werden, wenn bei einem verhältnismäßig kleinen Leistungsüberschlag der Bruch der Hülle eintreten würde. Dies kann der Fall sein bei einer Aufweitung der Hülle, beim Einbeulen oder Verbiegen der Hülle, aber auch bei einer axialen Brennstoffverschiebung. Wenn die axiale Brennstoffverschiebung an vielen Elementen gleichzeitig auftritt, kann dies eine Reaktivitätsänderung zur Folge haben, die so groß ist, daß die Brennelemente unbrauchbar werden. Infolge von Thermodiffusion kann eine Entmischung von Uran und Plutonium eintreten. Das Plutonium sammelt sich dann im allgemeinen in der Nähe des Zentrums des Brennelements. Dadurch wird

der Dopplerkoeffizient der Reaktivität ungünstig beeinflusst und die Zentraltemperatur angehoben. Besonders durch letzteres kann das Brennelement unbrauchbar werden.

2.3 Nachuntersuchung bestrahlter Brennelementproben

Um das Reaktorverhalten im einzelnen zu untersuchen, sind außer einem umfangreichen Bestrahlungsprogramm auch sehr eingehende Nachuntersuchungen erforderlich. In Beitrag XII wird darüber berichtet.

3. Auslegung von Bestrahlungsexperimenten

Von der Aufgabenstellung her sind für ein Bestrahlungsexperiment folgende Parameter vorgegeben:

mittlere Brennstoffdichte ρ

Stableistung χ

Neutronenfluß ϕ

Außentemperatur der Hülle T_H

Abbrand A

U/Pu-Verhältnis

Dazu besteht noch die Forderung, daß die Bestrahlungszeit möglichst kurz bzw. innerhalb tragbarer Grenzen sein soll; was bedeutet, daß eine hohe spezifische Leistung anzustreben ist.

Gesucht sind der Durchmesser des Brennstoffs bzw. dessen Radius R und die Anreicherung γ .

Es hat sich als zweckmäßig erwiesen, die oben genannten Größen vorzugeben und Durchmesser und Anreicherung unter der Nebenbedingung einer großen spezifischen Leistung zu berechnen. Dies ist möglich, da das Bestrahlungsverhalten in gewissen Grenzen vom Brennstoffradius und der Anreicherung unabhängig ist.

Häufig gibt es aber auch Fälle, bei denen die obigen Parameter nicht beliebig variiert werden können. Sie können gewisse Einschränkungen durch die vorhandenen Bestrahlungseinrichtungen erhalten. Dies gilt besonders für die Hüllrohräußentemperatur; hier sind häufig Kompromisse erforderlich.

3.1 Bestrahlung im schnellen Reaktor

Die betreffenden Zusammenhänge sind in schnellen Reaktoren verhältnismäßig einfach. Es gilt (Beitrag IV):

$$\chi = q R^2 \pi = 4 \pi w \quad (1)$$

$$\text{mit } w = \int_{T_a}^{T_i} k(T) dT \quad (2)$$

- χ = Stabileistung
- q = radialunabhängige Wärmequellendichte
- R = Brennstoffradius
- w = Wärmeleitintegral
- k = Brennstoffwärmeleitfähigkeit
- T_i = Brennstoffzentraltemperatur
- T_a = Brennstoffoberflächentemperatur

Die Wärmequellendichte q ist reaktorphysikalisch wie folgt gegeben:

$$q = \frac{1}{c} \sum_{\text{fiss}} \phi = \frac{S_H b}{1 + Y} \quad (3)$$

$$\text{mit } \sum_{\text{fiss}} = \int_i n^i \sigma^i = n_{\text{fiss}} \sigma_{\text{fiss}} \quad (4)$$

(summiert über die spaltbaren Isotopen)

$$c = 3,1 \cdot 10^{10} \text{ W}^{-1} \text{ s}^{-1}$$

$$\phi = \text{Neutronenfluß}$$

$$S_H = \text{Dichte der Masse der schweren Atome}$$

$$b = \text{Spez. Leistung (Leistung pro Masse der spaltbaren Atome)}$$

$$Y = \text{Massenverhältnis der Brutatome zu den spaltbaren Atomen}$$

$$\sum_{\text{fiss}} = \text{makroskopischer Gesamtspaltquerschnitt}$$

$$n^i = \text{Zahl der spaltbaren Kerne pro Vol. Einheit des Isotops } i$$

$$\sigma^i = \text{mikroskopischer Spaltquerschnitt des Isotops } i$$

$$n_{\text{fiss}} = \text{Gesamtzahl der spaltbaren Kerne pro Vol. Einheit}$$

$$\sigma_{\text{fiss}} = \text{(über die Isotopen gemittelter) mikroskopischer Spaltquerschnitt}$$

Mit
$$n_{\text{fiss}} = \frac{\rho_{\text{fiss}} N_L}{M_{\text{fiss}}} \quad (5)$$

N_L = Loschmidtzahl
 ρ_{fiss} = Dichte der Masse der spaltbaren Kerne
 M_{fiss} = (Über die Isotopen gemitteltes) Atomgewicht

und
$$\rho_{\text{fiss}} = \gamma \rho_H \quad (6)$$

γ = Anreicherung

erhält man aus (1)

$$R^2 = \frac{c}{\pi N_L} \cdot \frac{\chi M_{\text{fiss}}}{\sigma_{\text{fiss}} \phi \gamma \rho_H} \quad (7)$$

Die letzte Gleichung stellt den Zusammenhang zwischen dem Brennstoffradius R und der Anreicherung γ mit den vorgegebenen Größen dar. Im allgemeinen wird man die Wärmequellldichte q so groß wie möglich machen. Das bedeutet, daß bei vorgegebenem Fluß die Anreicherung ebenfalls so groß wie möglich gemacht wird. Bei Pu-haltigem Brennstoff wird im allgemeinen ein U/Pu-Verhältnis vorgegeben werden. Die Anreicherung kann dann über den U-235-Gehalt der Urankomponente eingestellt werden. Bei vorgegebener Maximalanreicherung erhält man einen bestimmten Brennstoffradius. Wenn dieser aus Gründen der Herstellbarkeit oder der Kühlung zu klein ausfällt, wird man einen bestimmten Radius vorgeben und die entsprechende Anreicherung errechnen.

3.2 Bestrahlung im thermischen Reaktor

Für die Auslegung zur Bestrahlung im thermischen Reaktor besteht ein grundsätzlicher Unterschied gegenüber der Bestrahlung im schnellen Reaktor [2]. Während im schnellen Reaktor der Fluß ϕ unabhängig vom Radius r ist, besteht im thermischen Reaktor besonders bei hoch angereicherten Brennstabproben eine Flußabsenkung innerhalb des Brennstoffs, und diese ist abhängig von der Anreicherung γ . Der Fluß ϕ ist also $\phi = \phi(r, \gamma)$, ebenso die Wärmequellldichte q(r) (siehe Fig.1). Unter diesen Bedingungen ist (1) nicht mehr gültig, d.h. die Stabileistung kann nicht mehr

als Maß für die Zentraltemperatur verwandt werden.

3.2.1 Berechnung des Wärmeleitintegrals

Im folgenden soll nun der Zusammenhang zwischen dem Wärmeleitintegral und der Wärmequellldichtevertelung abgeleitet werden. Zu diesem Zweck errechnen wir die in dem Zylinder mit Radius r' erzeugte Wärme und verlangen, da ein stationärer Zustand vorliegt, daß diese Wärme über den äußeren Zylindermantel abfließt und dabei einen bestimmten Temperaturgradienten an dieser Stelle erzeugt.

Damit ist:

$$2\pi \int_0^{r'} q(r) r \cdot dr = -2\pi r' k(T) \left(\frac{dT}{dr} \right)_{r'} \quad (8)$$

Beachten wir, daß $\left(\frac{dT}{dr} \right)_{r'} = \frac{dT}{dr}$, gesetzt werden kann, so erhält man

nach Separation der Variablen und Integration von 0 bis R bzw. von T_i nach T_a :

$$\int_0^R \frac{1}{r} \int_0^{r'} q(r) r \, dr \, dr' = + \int_{T_a}^{T_i} k(T) \, dT = w(T_i, T_a) \quad (9)$$

Damit ist der Zusammenhang zwischen der Wärmequellldichtevertelung und den thermischen Größen hergestellt.

3.2.2 Berechnung des Temperaturverlaufs im Brennstoff

Aus einem Wärmeleitintegral-Temperatur-Diagramm kann man die betreffenden Brennstofftemperaturen ermitteln. Dabei ist die Bezugstemperatur T_B im Wärmeleitintegral ohne Bedeutung.

$$w(T) = \int_{T_B}^T k(T) dT$$

(9) kann man umformen in

$$w(T_i, T_a) = \int_{T_B}^{T_i} k(T) dT - \int_{T_B}^{T_a} k(T) dT = w(T_i) - w(T_a) \quad (10)$$

D.h. da die linke Seite von (9) bekannt ist, kann man aus dem w-T-Diagramm bei vorgegebener Brennstoffoberflächentemperatur T_a die

Zentraltemperatur ablesen.

Für einen beliebigen Radius r_1 im Brennstoff gilt entsprechend (9)

$$\int_0^{r_1} \frac{1}{r'} \int_0^{r'} q(r) r dr dr' = \int_{T_1}^{T_i} k(T) dT = w(T_i, T_1) = w(T_i) - w(T_1) \quad (11)$$

Bei vorgegebenem T_i kann man aus dem w - T -Diagramm die Temperatur T_1 ablesen.

(9) bzw. (11) gilt auch, wenn der Brennstoff innen hohl ist. Die Integration auf der linken Seite ist dann vom Radius r_0 des Hohlraums aus durchzuführen. Man erhält (Beitrag IV) bei radialunabhängigem q

$$\int_{T_1}^{T_0} k(T) dT = \frac{q}{4} (r_1^2 - r_0^2) - \frac{q}{2} r_0^2 \ln \frac{r_1}{r_0} \quad (12)$$

r_0 = Radius des Hohlraums

T_0 = (Max.) Brennstoffinnentemperatur

3.2.3 Abhängigkeit des Wärmeleitintegrals und der Stableistung von der Anreicherung und dem Durchmesser

In Fig.2 ist das Wärmeleitintegral und die Stableistung in Abhängigkeit von der Anreicherung für einen Brennstoffdurchmesser von 0,6 cm und einen ungestörten Fluß $\phi_0 = 10^{14}$ ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$) dargestellt. Wie man sieht, sind für kleine Anreicherungen die Stableistung und das Wärmeleitintegral gleich. Beide sind proportional der Anreicherung. Der Anstieg der Stableistung zu höherer Anreicherung hin wird immer flacher, eine Steigung ist jedoch auch bei der höchsten Anreicherung noch vorhanden. Das Wärmeleitintegral ist bei jeder Anreicherung kleiner als die Stableistung. Es erreicht bei einer bestimmten Anreicherung ein Maximum und fällt dann wieder deutlich ab.

In Fig.3 ist das Wärmeleitintegral in Abhängigkeit von der Anreicherung für verschiedene Brennstoffdurchmesser aufgetragen. Man sieht, daß das Maximum des Wärmeleitintegrals umso ausgeprägter wird, je

größer der Stabdurchmesser ist. Es verschiebt sich außerdem mit größerem Stabdurchmesser zu kleineren Anreicherungen.

In Fig.4 ist die Stableistung in Abhängigkeit von der Anreicherung dargestellt. Gleichzeitig ist die Kurve eingetragen, die die Maxima des Wärmeleitintegrals miteinander verbindet sowie diejenige Kurve, deren Schnitt mit der Stableistungskurve genau über dem Maximum des Wärmeleitintegrals liegt. Man findet somit die Höhe und Lage des Maximums des Wärmeleitintegrals auch in dieser Kurvenschar.

Zur Auslegung eines bestimmten Bestrahlungsversuchs wird man zunächst die Kurvenscharen in Fig.3 und 4 entsprechend dem vorgegebenen Fluß auf einen anderen Maßstab umrechnen. Der ungestörte Neutronenfluß ist direkt proportional dem Wärmeleitintegral und der Stableistung. Außer dem ungestörten Neutronenfluß ist auch noch die Flußabschwächung in der Kapsel zu berücksichtigen. In den Abbildungen 2 - 4 ist mit einer Abschwächung von 15 % gerechnet. Wenn diese Größe nicht zutreffend ist, ist eine entsprechende Korrektur anzubringen.

Wenn nun der richtige Ordinatenmaßstab festgelegt ist, läßt sich aus den Kurvenscharen von Fig.3 und 4 ein Wertepaar für den Stabradius und die Anreicherung ermitteln, das die gewünschte Stableistung und Wärmeleitintegral ergibt. Man wird dabei einen Brennstoffradius auswählen, der gerade eben noch die Forderungen des Wärmeleitintegrals befriedigt. Wegen des Maximums im Wärmeleitintegral gibt es nun zwei Anreicherungen, in denen das gewünschte Wärmeleitintegral erreicht wird. Man wird jedoch immer die kleinere Anreicherung wählen, weil bei der höheren Anreicherung eine sehr ungünstige Leistungsverteilung entsteht.

Bei sehr hoher Anreicherung hat man am Rand des Brennelements eine hohe Spaltrate, die gegen die Mitte sehr stark abnimmt. Dies führt zu einer ungünstigen Temperaturverteilung und der Bestrahlungsversuch ist nicht mehr repräsentativ für ein Brüter-Brennelement, bei dem die Spaltrate gleichmäßig über das ganze Element verteilt ist.

Andererseits ist es jedoch auch ungünstig, eine zu kleine Anreiche-

rung zu wählen, da damit der Brennstoffradius größer gewählt werden muß, was eine kleinere Leistungsdichte und damit eine längere Abbrandzeit zur Folge hat. Weiterhin ist zu berücksichtigen, daß bei verhältnismäßig kleiner Ausgangsanreicherung und hohem Abbrand ein starker Leistungsabfall während der Bestrahlungszeit eintritt. Somit bleibt also für die Anreicherung nur der Bereich zwischen Maximum des Wärmeleitintegrals und der Hälfte dieses Wertes zur Auswahl offen.

3.2.4 Länge der Bestrahlungsprobe

Die Länge der Bestrahlungsprobe wurde in die bisherige Betrachtung nicht einbezogen, da sie sich im allgemeinen nicht direkt auf das Bestrahlungsverhalten auswirkt. Der weitaus größte Teil der Reaktorercheinungen kann an Kurzproben untersucht werden. Für diese Kurzproben bildet man die Länge so, daß die Störungen im Neutronenfluß und in der Temperaturverteilung, die an den Enden auftreten, den größeren Teil der Probe nicht beeinflussen. Dies wird erreicht, wenn die Probe wenigstens eine Länge vom zehnfachen bis zum zwanzigfachen Durchmesser hat.

In einigen Fällen ist es jedoch notwendig, auch Bestrahlungstests an Brennstäben mit voller Länge durchzuführen. So muß z.B. nachgewiesen werden, daß das Spaltgas aus dem Core über ein entsprechendes Axialblanket bis zu einem am Ende des Brennelementes vorgesehenen Hohlvolumen durchkommt und kein separater Spaltgasdruckaufbau im Brennelement stattfindet.

4. Bestrahlungseinrichtungen

4.1 Aufgaben der Bestrahlungseinrichtungen

Eine Bestrahlungseinrichtung hat folgende Aufgaben zu erfüllen:

- a) Wärmeabfuhr und Außentemperatur: Die Wärmeabfuhr an einem Prüfling muß gewährleistet sein unter Einhaltung einer bestimmten Außentemperatur am Prüfling.
- b) Instrumentierung und Regelung: Die Außentemperatur am Prüf-

ling sollte an mehreren Stellen gemessen und nach Möglichkeit auch geregelt werden können. Für manche Versuche ist es wünschenswert, darüber hinaus auch Temperaturen im Brennstoff, Spaltgasdruckaufbau und andere Größen zu messen.

- c) Korrosion der Hülle: Der Korrosionsangriff durch das Kühlmittel und evt. auch die Druckbelastung durch das Kühlmittel sollen dem Originalelement möglichst ähnlich sein.
- d) Sicherheitsanforderungen: Bei Hüllrohrbruch dürfen keine katastrophalen Folgen eintreten. Das ganze muß den Sicherheitsanforderungen des Reaktors genügen.

In vielen Fällen ist man in erster Linie am Bestrahlungsverhalten des Brennstoffs interessiert. Die Hülle wird dann so ausgelegt, daß sie mit großer Sicherheit die Bestrahlung übersteht. In diesem Fall ist dann die Einhaltung einer bestimmten Außentemperatur am Prüfling, Instrumentierung und Regelung sowie der Korrosionsangriff nicht von wesentlicher Bedeutung. Man kann für diese Fälle verhältnismäßig einfache Bestrahlungskapseln verwenden, die dann wiederum den Vorteil haben, daß sie leichter handhabbar sind und damit in größerer Zahl eingesetzt werden können. Wenn jedoch das Verhalten eines ganzen Elementes geprüft werden soll, sind entweder aufwendige Bestrahlungsvorrichtungen in thermischen Reaktoren notwendig, oder man führt Bestrahlungen in schnellen Reaktoren durch, bei denen die Betriebsbedingungen den angestrebten Bedingungen weitgehend nahekommen.

4.2 Bestrahlung im schnellen natriumgekühlten Reaktor

Bei Bestrahlungen im schnellen natriumgekühlten Reaktor ist im allgemeinen keine besondere Bestrahlungseinrichtung erforderlich. Die Bestrahlungen werden auf Brennelementpositionen durchgeführt, wobei man im allgemeinen Positionen wählt, bei denen die Kühlmittelaustrittstemperatur und die Aktivität des Kühlmittels registriert werden können. Eine Messung oder Regelung der Hüllwandtemperatur ist dabei nicht möglich. Aufgrund von Berechnungen und Vorversuchen stellt man den Natriumdurchfluß so ein, daß eine gewünschte Oberflächentemperatur erreicht wird.

4.3 Kapseln für Bestrahlungen im FR2

Die Kapselbestrahlungen im FR2 werden auf Brennelementpositionen durchgeführt. In einer Bestrahlungseinrichtung lassen sich mehrere Prüflinge (3-4) übereinander anordnen. Auf diese Art läßt sich eine große Zahl von Prüflingen bestrahlen. Bei der Instrumentierung beschränkt man sich auf die Messung der Temperatur, entweder an der Brennelementoberfläche, oder man bringt die Meßstelle im Wärmeübertragungsmittel an und kann dann auf die Temperatur an der Brennelementoberfläche extrapolieren. Zunächst wurden Kapseln entwickelt, bei denen flüssiges Blei-Wismut als Wärmeübertragungsmittel verwendet wurde. Da sich dies nicht bewährte, wurde eine Kapsel entwickelt, bei der der Prüfling von Natrium umgeben ist und nur noch in der äußeren Schicht Blei-Wismut als Wärmeüberträger verwendet wird. Eine Beschreibung ist in [3] enthalten.

In Fig.5 ist eine Zeichnung der Kapsel wiedergegeben. Es ist darauf zu erkennen, daß sich der Prüfling in einer inneren mit Natrium gefüllten Kapsel befindet. Die Kapsel ist aus austenitischem Stahl gefertigt. Die Temperaturmeßstellen befinden sich im Natrium. Mehrere dieser übereinander angeordneten Kapseln werden in ein Zirkaloyrohr gesteckt und der Zwischenraum zwischen dem Zirkaloyrohr und der inneren Kapsel mit Blei-Wismut aufgefüllt. Die Temperatur am Prüfling wird durch die Stableistung und die Wärmeleitung der einzelnen Schichten fest eingestellt. Eine gewisse Variation ist lediglich durch Veränderung der Bestrahlungsposition, also des thermischen Flusses möglich. Als maximale äußere Hüllwandtemperatur ist $T_{H \text{ max}} = 560^{\circ}\text{C}$ bei einer Stableistung von $\chi = 770 \text{ W/cm}$ vorgesehen.

Durch die Temperaturmessung im Natrium kann die Hülltemperatur ermittelt werden.

Die kombinierte Bleiwismutkapsel erfüllt weitgehend die Forderungen für einen Brennstoffbestrahlungstest, erlaubt jedoch keine ernstliche Prüfung der Hülle, da man aus Sicherheitsgründen mit der Hülltemperatur unterhalb einer anzustrebenden Testtemperatur bleiben muß. Als Vorteil wird außerdem angesehen, daß der Prüfling in Natrium, also dem vorgesehenen Kühlmittel, ausgesetzt wird.

4.4 FR2-Abbrandloop

Das FR2-Abbrandloop ist für die Bestrahlung von Brennelementprüflingen im Zentralkanal vorgesehen. Das Abbrandloop ist eine verhältnismäßig aufwendige Bestrahlungseinrichtung. Die Prüflinge werden mit Helium gekühlt. Hierfür ist ein vollständiger Heliumkreislauf mit Pumpen, Wärmetauschern, Filtern, Nebenkreisläufen und Regeleinrichtungen errichtet worden. Das Loop ist in Betrieb seit Mai 1966 und hat sich bis jetzt sehr gut bewährt.

Das Heliumloop bietet folgende Vorteile:

- a) Die Oberflächentemperatur des Brennelementes kann über Thermoelemente gemessen und durch Veränderung des Heliumdurchflusses geregelt werden.
- b) Die Leistung kann über die abgeführte Wärme und den Temperatur sprung zwischen Kühlmittelintritt und -austritt verhältnismäßig genau ermittelt werden.
- c) Es ist möglich, den Spaltgasdruckaufbau in den Prüflingen direkt zu messen.
- d) Da das Loop einen eigenen Kühlkreislauf mit Vorrichtungen zur Dekontamination besitzt, können Experimente durchgeführt werden, bei denen der Prüfling sehr hoch belastet wird. Ein Hüllrohrbruch oder ein Durchschmelzen des Prüflings hat keine wesentlichen Folgen und beeinträchtigt den Betrieb des Reaktors nicht.

In Fig.6 ist eine Querschnittszeichnung des Abbrandloop wiedergegeben. Die Strömung des Kühlmittels ist mit Pfeilen angegeben. Das Kühlmittel strömt in einem äußeren Ringraum aufwärts, wird am oberen Ende umgelenkt und strömt entlang den Prüflingen abwärts und sammelt sich dann in einem zentralen Rohr. Weitere Einzelheiten sind in [4] zu finden.

Auslegedaten des Loops:

4 Prüflinge:	Durchmesser	7 - 10 mm
	max. Länge	200 mm

He-Kühlung:	He-Druck	30 atü
	He-Durchsatz	80 m ³ /h
	max. abführbare Leistung	45 kW
	max. Wärmeübergangszahl	0,6 W/cm ² °C
	Hülltemperatur	600 °C
	max. Stableistung (bei 7 mm Durchmesser)	630 W/cm

4.5 Versuchseinrichtungen für Kurzzeitbestrahlung zum FR2-Abbrand-loop

Um im FR2-Loop Kurzzeitbestrahlungen mit hoher Leistung durchführen zu können, wurde ein spezieller Loopeinsatz gebaut. Mit diesem Spezialeinsatz ist es möglich, Prüflinge bei laufendem Reaktor einzufahren und wieder auszufahren. Weiterhin kann die Stableistung der Prüflinge variabel gehalten werden, indem sie von Orten niedrigen Flusses bis zum Zentrum, dem Ort des höchsten Flusses, bewegt werden können. Mit dieser Einrichtung kann man das Anfahrverhalten von Brennelementen und das Verhalten bei Leistungsüberschlag untersuchen. Als Kühleinrichtung wird die Einrichtung des FR2-Abbrand-loops benutzt. Im Kurzzeitloop kann jeweils nur ein Prüfling bestrahlt werden.

Auslegedaten für den Prüfling:

Außendurchmesser	10 - 12 mm
max. Stableistung	1000 W/cm
Länge	200 mm

Eine Abbildung des Kurzzeitloops ist in Fig.7 wiedergegeben.

Nähere Einzelheiten sind in [5] zu finden.

5. Bestrahlungsprogramm

Das Brennelementbestrahlungsprogramm des Projektes Schneller Brüter umfaßt mehrere Versuchsgruppen. In den folgenden Abschnitten soll ein kurzer Überblick über die einzelnen Bestrahlungsvorhaben gegeben werden.

5.1 Bestrahlungsvorhaben in schnellen natriumgekühlten Reaktoren

5.1.1 Bestrahlungstests im Enrico-Fermi-Reaktor

Es ist geplant, in Zusammenarbeit mit Euratom ein erstes Bestrahlungsvorhaben im Enrico-Fermi-Reaktor durchzuführen. Das zur Bestrahlung vorgesehene Brennelementbündel kann auf einer normalen BE-Position eingesetzt werden. Durch die Natriumkühlung und den schnellen Neutronenfluß werden die Bedingungen im Prototypreaktor weitgehend realisiert. Als Brennstoff soll $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ verwendet werden, wobei das UO_2 auf 93 % U-235 angereichert ist. Ein Teil der Elemente wird Tabletten mit Lichten von 93 % und 88 % d.th.D. enthalten. Der andere Teil wird abgerundete Partikel enthalten, die einvibriert werden und deren Dichte 85 ± 2 % d.th.D. betragen soll.

Bei diesem Versuch soll zum erstenmal in größerem Umfange eine Bestrahlung bis zu einem Abbrand von etwa 90 000 MWD/to durchgeführt werden. Dabei sollen von den 24 Stäben, die gleichzeitig eingesetzt werden können, 12 nach einem Abbrand von etwa 30 MWD/to herausgenommen und durch frische Stäbe ersetzt werden. Damit würde eine Staffelung des Abbrands von 30 000, 60 000 und 90 000 MWD/to erreicht werden.

Die Vorbereitungen zu diesen Versuchen sind schon sehr weit gediehen. Die Bestrahlung konnte wegen einer Betriebsstörung im Enrico-Fermi-Reaktor noch nicht durchgeführt werden.

5.1.2 Bestrahlung im Dounreay-Reaktor (DFR)

Im DFR ist ein Bestrahlungsvorhaben geplant, bei dem die Brauchbarkeit der für den schnellen natriumgekühlten Prototypreaktor spezifizierten Brennelemente nachgewiesen werden soll. Die Teststäbe sollen mit $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ -Tabletten gefüllt werden, und sowohl in den Abmessungen als auch im Hüllmaterial den Prototypbrennelementen entsprechen. Die vorgesehenen 39 Stäbe sollen also keine Brennstoffvarianten enthalten. Der Abbrand soll mehr als 50 000 MWD/to betragen.

5.2 Kapselversuche im FR2

Seit Anfang 1965 werden im FR2 Kapselversuche durchgeführt. Bei der ersten Versuchsgruppe kamen 22 Proben zum Einsatz. Die erste Versuchsgruppe diente vor allem dazu, die Kapseln zu erproben und Erfahrungen auf dem Gebiet der Bestrahlungsexperimente zu sammeln.

In einer zweiten Versuchsgruppe wurde UO_2 und UO_2-CeO_2 in Form von Tabletten und vibriertem Brennstoff mit drei Dichtevarianten bestrahlt. Auch diese Versuche dienen, ähnlich wie die Versuchsgruppe 1, in erster Linie zum Sammeln von Erfahrungen bei Bestrahlungsexperimenten und sollen außerdem über das Bestrahlungsverhalten von UO_2-CeO_2 eine erste Auskunft geben. CeO_2 wird als Simulationsmaterial für PuO_2 verwendet. Die Bestrahlung dieser Versuchsgruppe ist teilweise abgeschlossen.

Bei Versuchsgruppe 3 sollen breitgestreute Auswahlversuche an nicht Pu-haltiger Oxydkeramik durchgeführt werden. Man will dabei zum erstenmal einen sehr hohen Abbrand anstreben. Bei diesen Versuchen sollen alle Herstellungsvarianten und Dichtevarianten eingesetzt werden. Für die Versuchsgruppe 3 und 4 ist der Einsatz der neuentwickelten Natrium-Blei-Wismutkapsel vorgesehen, die ihre erste Probe gut bestanden hat.

Daten für die Prüflinge:

Hüllmaterial	austenitischer Stahl
Stableistung	500 - 700 W/cm
Abbrand	10 000 - 70 000 MWd/to
Brennstoffdurchmesser	6,4 mm
Hülldurchmesser	7,4 mm
Brennstofflänge	80 mm
Prüflingslänge	170 mm
Anreicherung	11,5 % U 235
Zahl der Prüflinge	64 Stück

Brennstoffmaterial:

UO_2 -Tabletten, geschliffen, Spalt: $150 \pm 10 \mu$
 ungeschliffen, Spalt: $150 \pm 50 \mu$

UO_2-CeO_2 -Tabletten, geschliffen

UO_2 gesinterte Partikel vibriert 85 % d.th.D.

UO_2 geschmolzene gebrochene Partikel 85 % d.th.D.

In der Versuchsgruppe 4 sind breitgestreute Auswahlversuche bis zu hohem Abbrand mit Pu-haltiger Oxydkeramik vorgesehen. Ebenso wie in Versuchsgruppe 3 sollen alle wichtigen Varianten eingesetzt werden und bei hoher Stableistung bis zu hohen Abbränden bestrahlt werden.
Prüflingsdaten:

Probenzahl: ca. 50 Stück
 davon 30 Stück mit Tabletten gefüllt
 20 Stück mit vibriertem Brennstoff gefüllt

Pu-Gehalt 15 %
 Stableistung 500 - 700 W/cm
 Brennstoffdurchmesser 6 mm
 Hüllaußendurchmesser 7 mm
 Abbrand wie bei Versuchsgruppe 3

In Versuchsgruppe 5 sollen Bestrahlungen an ganzen Brennstäben vorgenommen werden, die mit PuO₂-haltigem Brennstoff gefüllt sind. Oben und unten am Brennstab ist jeweils eine mit Brutstoff gefüllte Zone vorgesehen, die dem axialen Blanket entspricht. Am oberen Ende ist wie bei allen Brennelementen mit hohem Abbrand ein Spaltgasplenum notwendig. Mit den Versuchen soll u.a. gezeigt werden, daß das im Brennstoff freigesetzte Spaltgas über die Brutzone in das dafür vorgesehene Volumen am oberen Ende gelangen kann und kein Aufblähen des Brennelements infolge von Spaltgasdruck erfolgt.

Prüflingsdaten:

Brennstoffmaterial: UO₂-PuO₂-Tabletten und vibrierter Brennstoff mit Dichtevarianten

Prüflingsanzahl: 8 Stäbe

Brennstofflänge: ca. 80 mm

Gesamtlänge: 1200 mm

Brennstoffdurchmesser: 5,5 mm

Außendurchmesser: 6,3 mm

Stableistung: 600 - 700 W/cm

5.3 Loopversuche im FR2

Seit Sommer 1966 steht das FR2-Abbrandloop und seit Anfang 1967 auch das FR2-Kurzzeitloop zu Bestrahlungen zur Verfügung. Das Helium-Loop hat gegenüber den Kapselexperimenten den Vorteil,

daß die Außentemperatur an Brennelementen meßbar und regelbar ist, außerdem kann der Spaltgasdruckaufbau und bis zu einem gewissen Grad auch die Innentemperatur im Brennelement gemessen werden.

Zur Erprobung des Loops wurde eine erste Versuchsgruppe von Bestrahlungsexperimenten durchgeführt. Die Bestrahlungen dauerten einige Tage bis zu einem Reaktorzyklus von 3 Wochen.

Nachdem das Abbrand-Loop seine erste Probe bestanden hatte, wurde das Kurzzeit-Loop eingesetzt und mit der Versuchsgruppe 2 begonnen. Bei den Kurzzeitversuchen sollen vor allen Dingen das Anfahrverhalten der verschiedenen Herstellungsvarianten untersucht werden. Die Stabileistung soll dabei soweit gesteigert werden, bis der Brennstoff im Innern der Probe zum Schmelzen kommt. An Tabletten-gefüllten Proben sollte dabei die Spaltbreite zwischen Tabletten und Hülle in weiten Grenzen variiert werden. An Partikel-gefüllten einvibrierten Proben soll festgestellt werden, wie weit der Brennstoff durch Sintern seine Wärmeleitfähigkeit erhöht und wie lange es dauert bis der Sinter-Effekt wirksam wird.

In der Versuchsgruppe 2 sollen die Kurzzeit-Bestrahlungen mit UO_2 -haltigen Brennstoffvarianten durchgeführt werden. Die Stabileistung soll bis 1000 W/cm und die Außentemperatur der Hülle bis $600^\circ C$ erreichen. Die hochbelasteten Proben können nach der Bestrahlung zerstörungsfrei auf Aufschmelzen und axiale Brennstoffverschiebung getestet werden. Man verwendet dabei die Durchstrahlung mit dem Betatron und das Gamma-scanning. Die Bestrahlungszeit wird von 10 Minuten, 2 Stunden bis 24 Stunden gestaffelt.

Prüflingsdaten:

Prüflingsanzahl	ca. 50 Stück
Brennstoffdurchmesser	10 / 8,6 mm
Hüllaußendurchmesser	12 / 7 mm
Anreicherung	7,5 %

Brennstoffmaterial:

UO_2 -Tabletten, geschliffen und ungeschliffen
 Tablettenschmierdichte 80 - 90 % d.th.D.
 Spalt 100μ und 250μ diametral
 mit und ohne Dishing
 UO_2 -Vibrierdichte 85 % d.th.D.

In einer Versuchsgruppe 3 sollen ähnliche Versuche wie in Versuchsgruppe 2 an Pu-haltigen Proben durchgeführt werden. Es sollen also Kurzzeitbestrahlungen an ähnlichen Brennstoffvarianten zur Bestrahlung kommen, wobei jeweils das UO_2 durch UO_2 - PuO_2 ersetzt wird.

In der Loop-Versuchsgruppe 4 sollen dann wieder Langzeit-Bestrahlungen und zwar an PuO_2 -haltigen Brennstoffproben durchgeführt werden. Die Bestrahlungen sollen dann bis zu einem hohen Abbrand (70 000 MWd/to) ausgedehnt werden. Die Stableistung und die Außentemperatur sollen den Maximalwerten von Originalelementen entsprechen.

5.4 Schlußbemerkungen über die Brennstoffbestrahlungen des Projektes Schneller Brüter

Das Bestrahlungsprogramm umfaßt die wichtigsten Probleme der Brennelemententwicklung. Durch die geplanten und laufenden umfangreichen Nachuntersuchungen werden auch Ursachen für die einzelnen Bestrahlungserscheinungen geklärt werden können. Somit werden die Bestrahlungsvorhaben einen namhaften Beitrag zu einer Brennelementtheorie leisten können.

6. Literatur

- [1] K. Kummerer, G. Karsten: Some Results on the Development of a Fast Reactor Fuel Element, KFK-575
- [2] H. Beißwenger: Berechnung der Stableistung, des Wärmeleitintegrals und des Temperaturverlaufs bei zylindrischen Brennstoffproben mit Folgerungen für Bestrahlungsversuche, PSB-Bericht Nr. 83/64
- [3] H. Häfner: Sicherheitsbericht für FR2-Kapselversuchseinsätze mit kombinierten Na-Pb/Bi-Kapseln (Typ 4), PSB-Bericht Nr. 227/66
- [4] H. Reiser: Sicherheitsbericht für FR2-Abbrandloop, PSB-Bericht Nr. 147/65
- [5] H. Deckers: Sicherheitsbericht für Versuchseinrichtung für Kurzzeitbestrahlungen zum FR2-Abbrandloop, PSB-Bericht Nr. 222/66

Fig. 1 Abhängigkeit der Wärmequellendichte q vom Radius r für verschiedene Anreicherungen

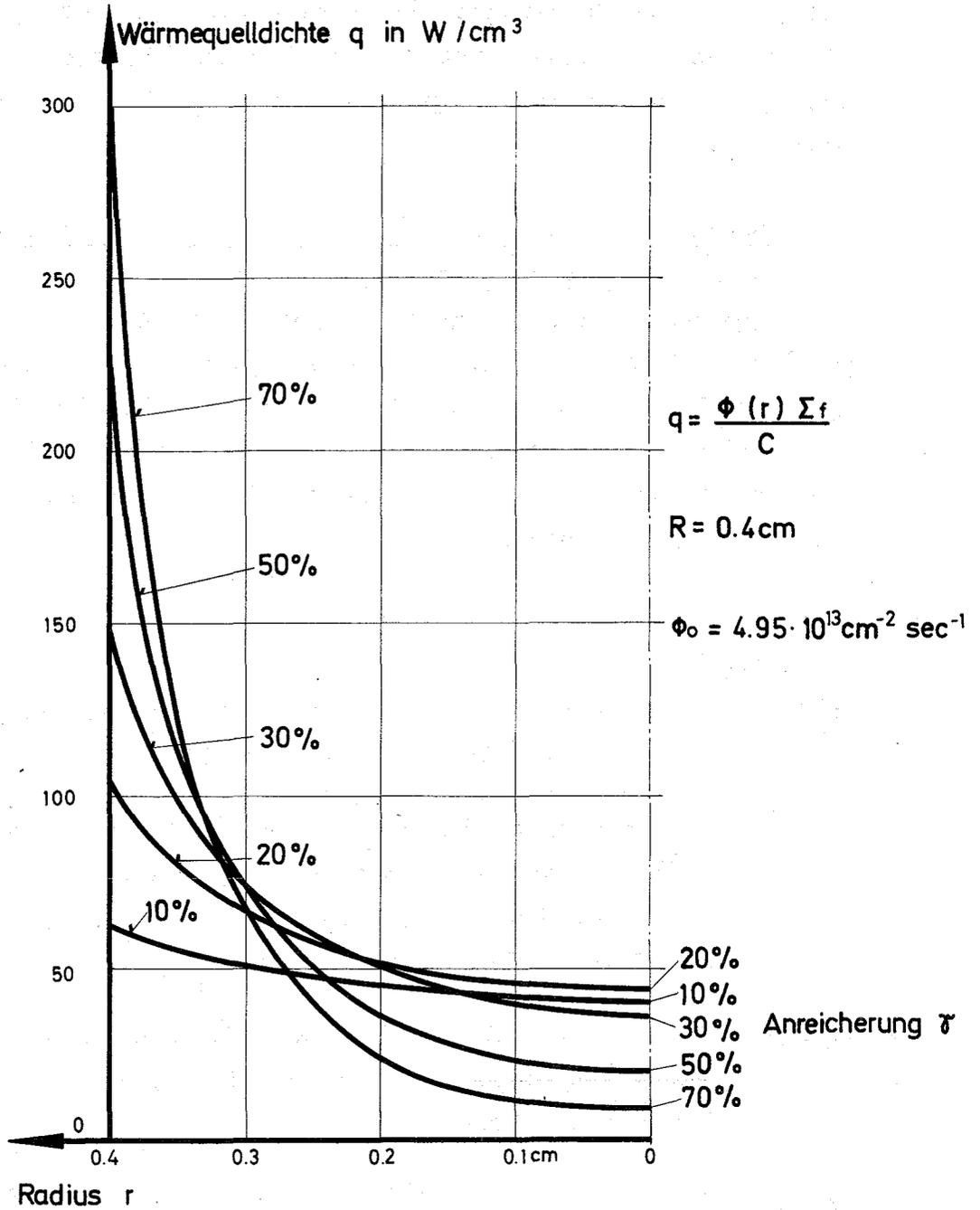


Fig. 2 Stableistung und Wärmeleitintegral in Abhängigkeit von der Anreicherung

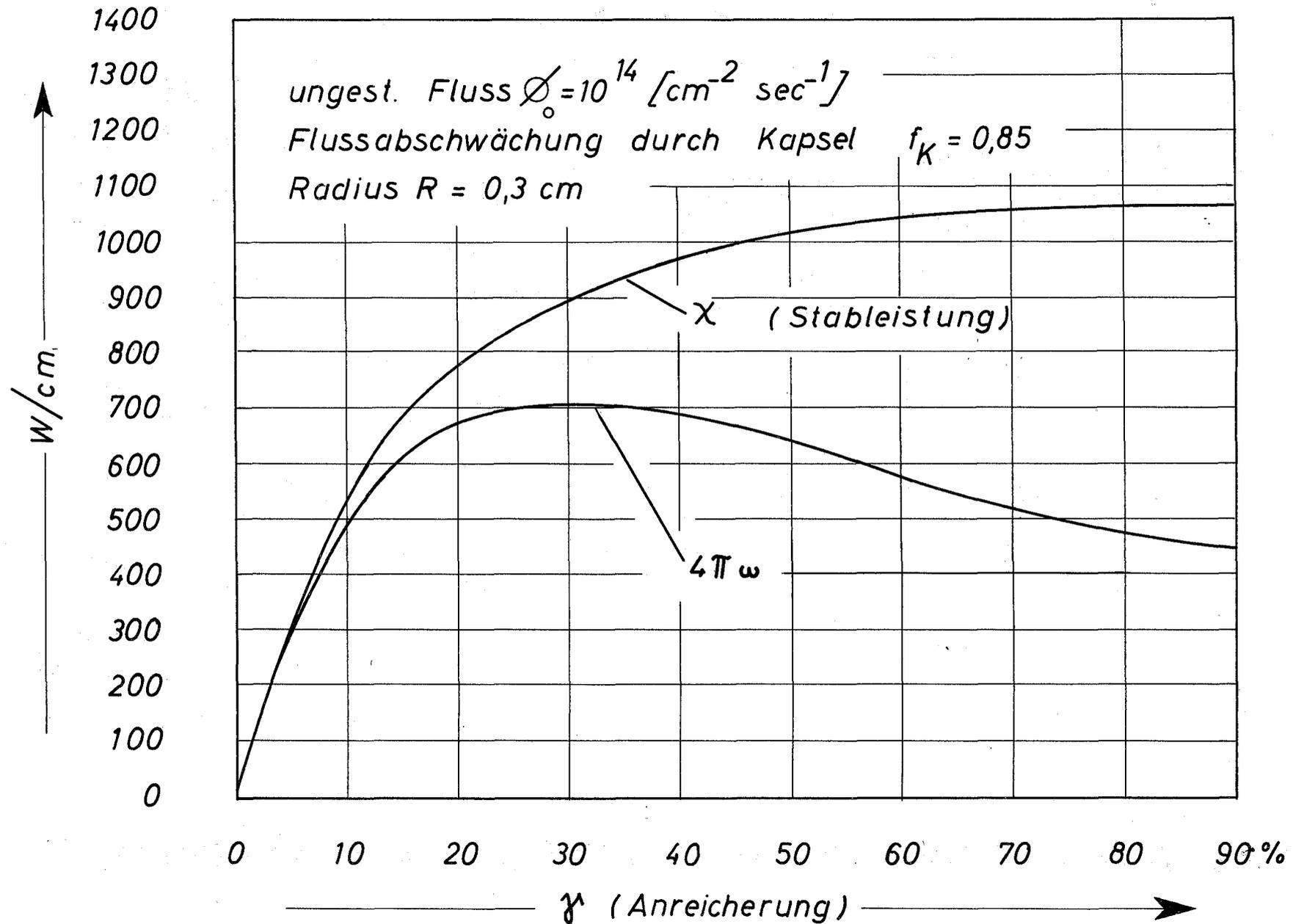


Fig. 3 Wärmeleitintegral in Abhängigkeit von der Anreicherung für versch. Radien R.

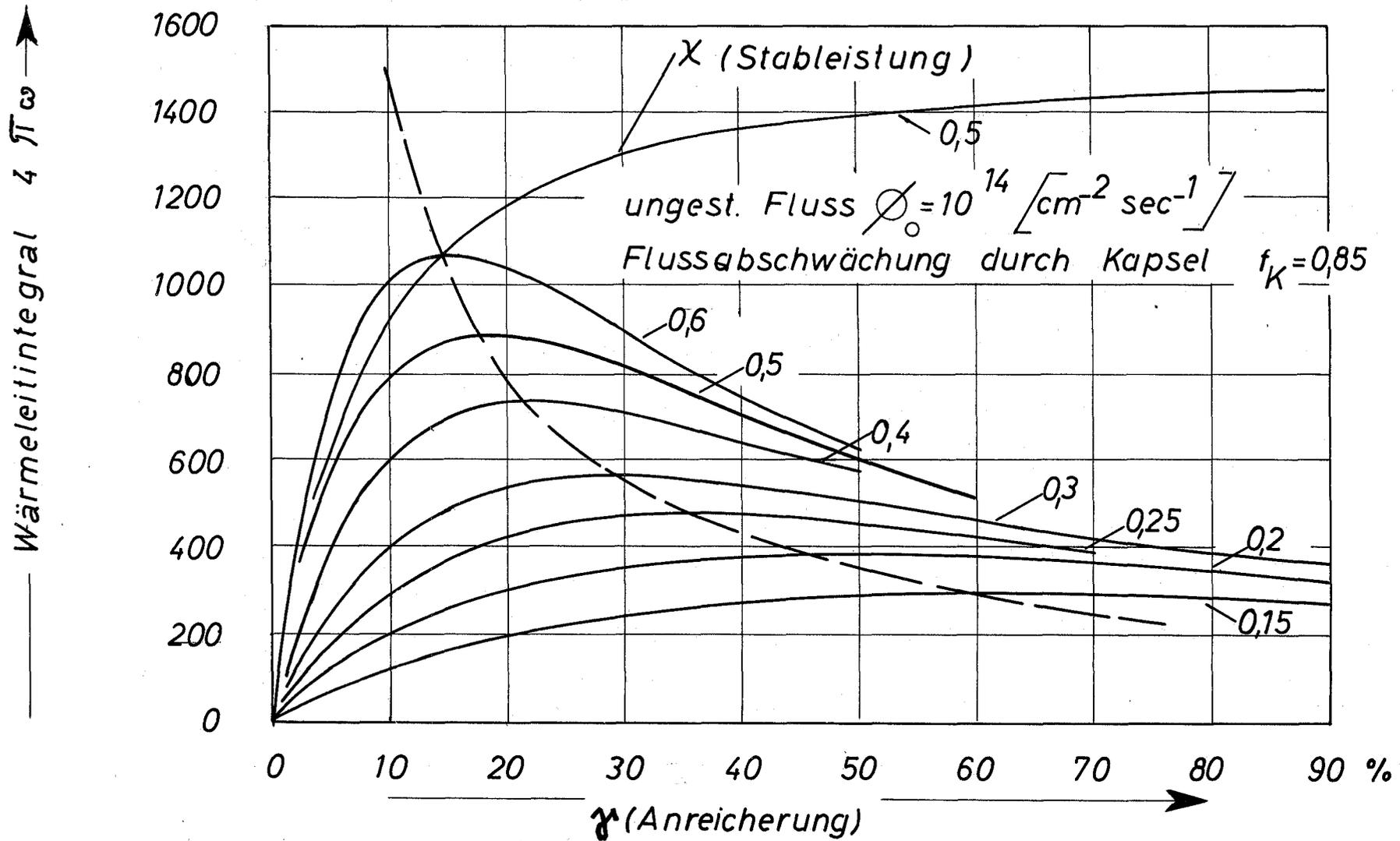
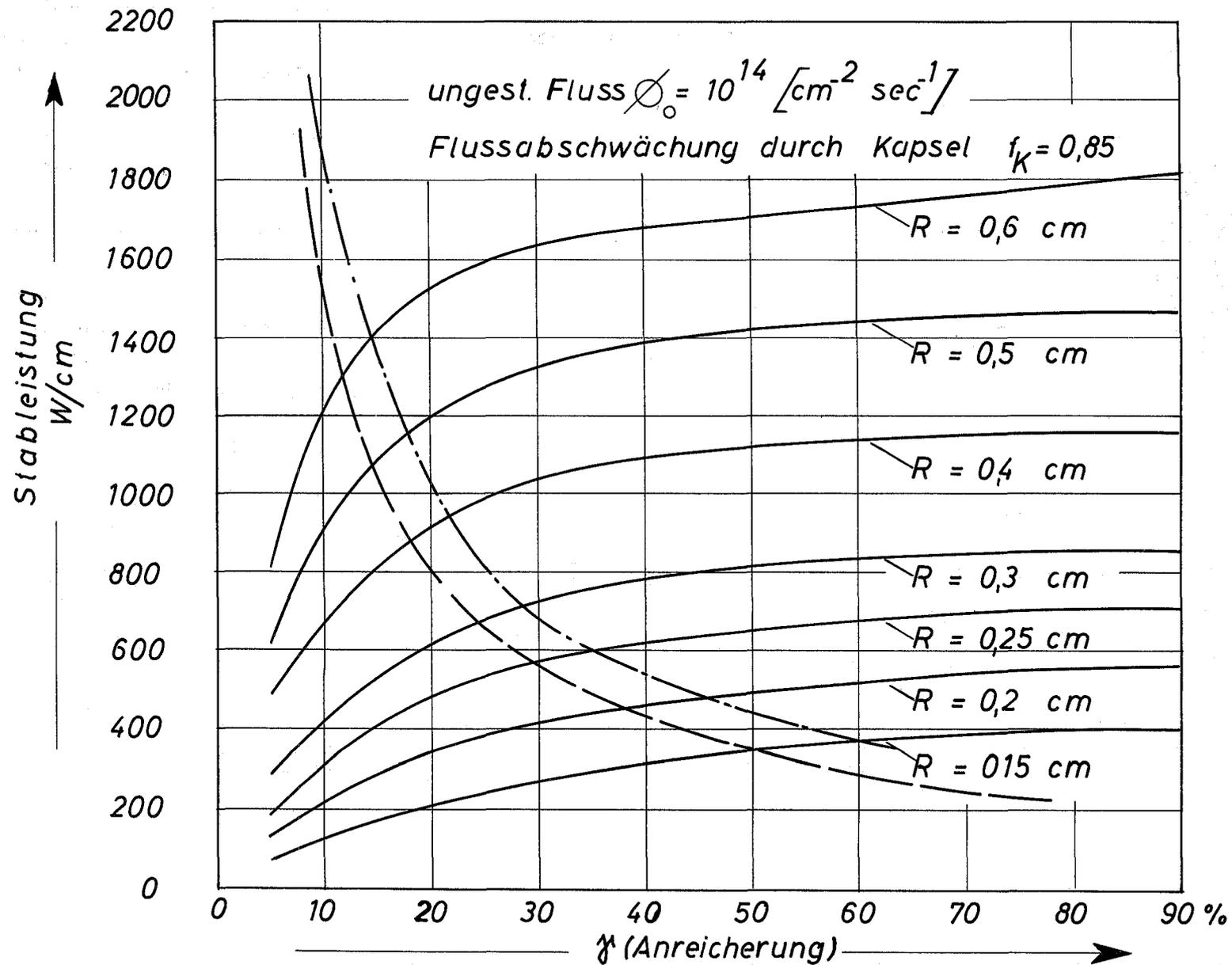
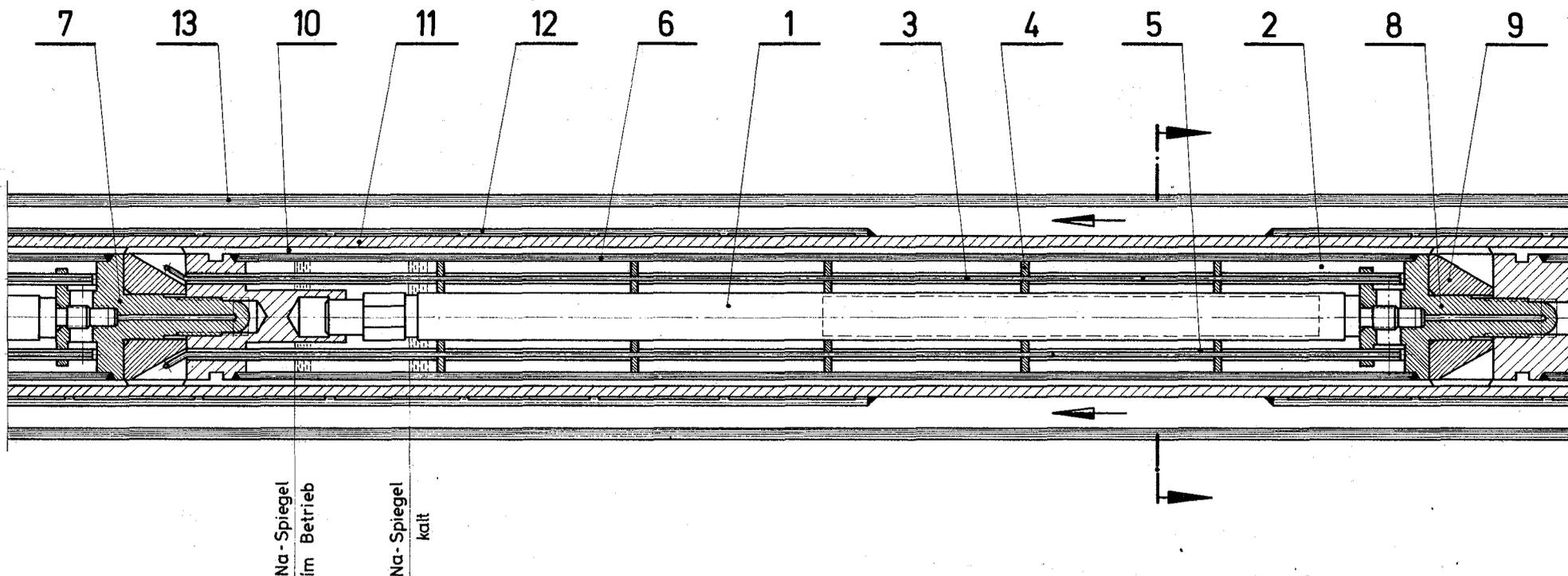


Fig.4 Stableistung in Abhängigkeit von der Anreicherung für verschiedene Radien R.





- 1 Brennstabprüfling mit Spaltgasplenum 7.4 mm Can ϕ
- 2 Na- bzw. NaK - Spalt 5.3 mm dick
- 3 Thermoelement 1mm ϕ in Fingerhutröhrchen
- 4 Zentrierplatten
- 5 Distanzhalter
- 6 Edelstahlkapsel 20 mm ϕ x 1mm Wand
- 7 Endstopfen
- 8 Na - Einfüllstopfen
- 9 Zwischenstück
- 10 Pb - Bi - Spalt 1.5 mm dick
- 11 äußere Kapsel 26 mm ϕ x 1.5 mm Wand
- 12 Wärmedämmung
- 13 Wasserführungsrohr 40 mm ϕ x 2 mm Wand

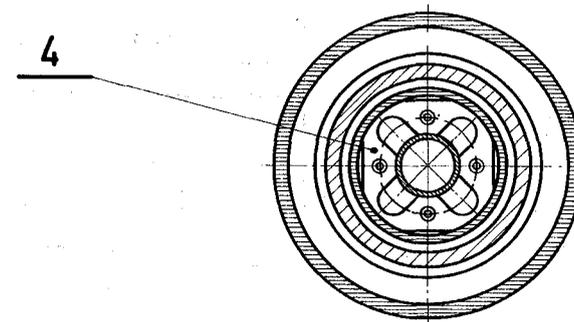
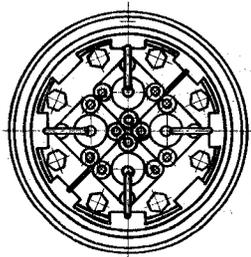
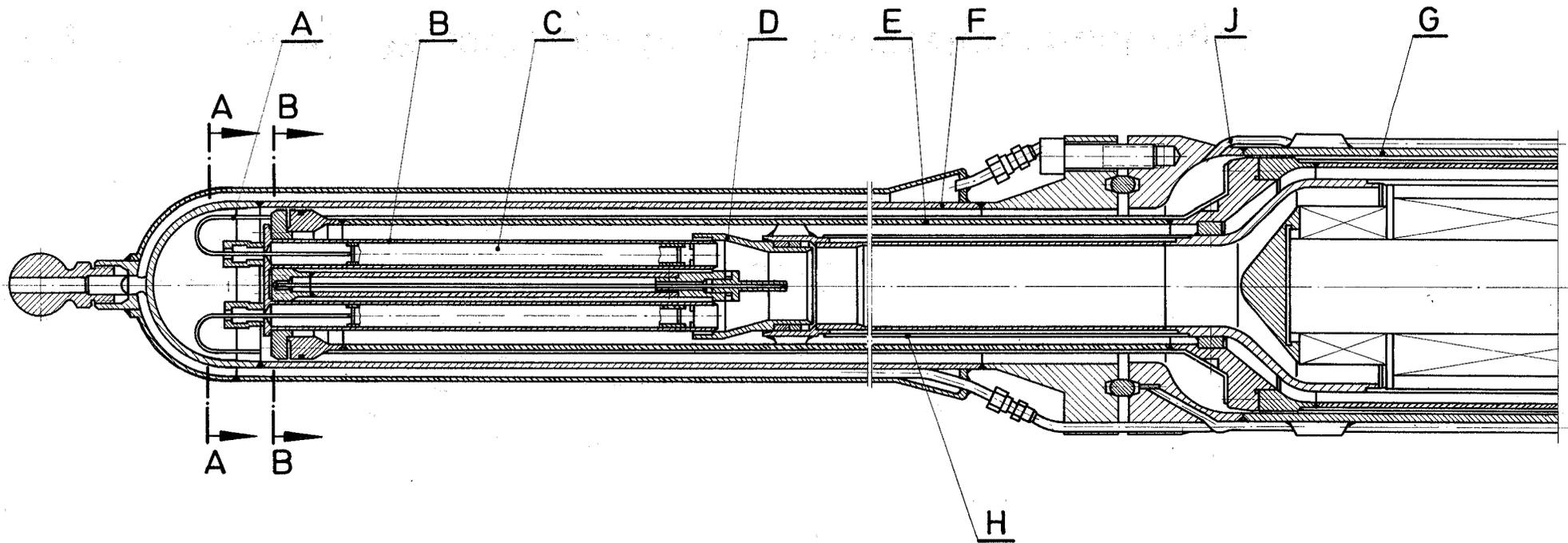
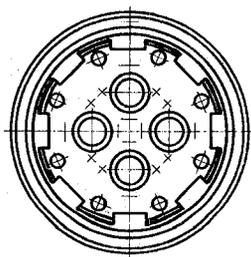


Fig. 5

Schnitt durch die Na - Pb / Bi - Kapsel



Schnitt A-A

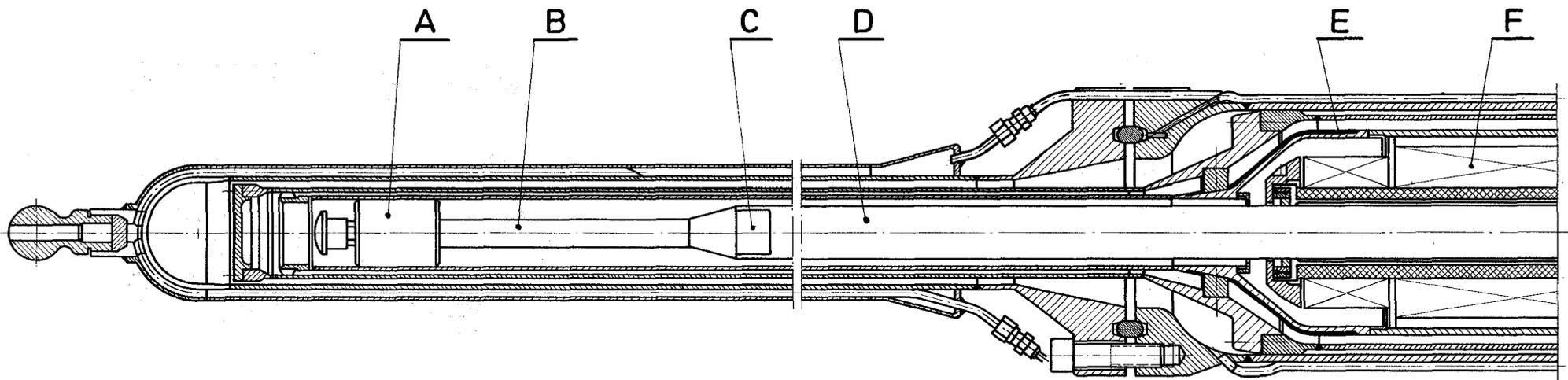


Schnitt B-B

- A Meßleitungen für Druck und Temperatur
- B Hüllrohr
- C Prüfling
- D Prüflingshalterung
- E Versuchseinsatz
- F Druckrohr-Oberteil (Zircaloy 2)
- G Druckrohr-Unterteil (Nr. 4541)
- H Thermo - Schild
- J Helium - Spüleleitung

Fig. 6

He - Loop - Bestrahlungseinsatz



- A Gasführungs - und Regelkolben
- B Prüfling mit Gasführungsrohr
Thermoelementen und Kapillarrohr
- C Prüflingseinsatz
- D Prüflingshalterung
- E Cadmium - Schirm
- F Kombiniertes Vor-, Feinst- und Halogen-Filter

Fig. 7 Spezial - Versuchseinsatz für Kurzzeitbestrahlungen

XII. DIE NACHUNTERSUCHUNG BEI BRENNELEMENT-
BESTRAHLUNGSEXPERIMENTEN

von

D. Geithoff

Inhalt:

1. Einleitung
2. Brennstoffproben im Bestrahlungsprogramm des Projektes
Schneller Brüter
3. Isolierung der Prüflinge
4. Untersuchungen an unzerstörten Prüflingen
 - 4.1 Visuelle Inspektion, Fotografie
 - 4.2 Dichtheitsprüfung
 - 4.3 Vermessung
 - 4.4 Durchleuchtung
 - 4.5 Gamma-Scanning
 - 4.6 Autoradiografie mit Lochkamera
5. Untersuchungen an punktierten Prüflingen
 - 5.1 Freies Spaltgas
 - 5.2 Freies Volumen
6. Untersuchungen an zerlegten Prüflingen
 - 6.1 Gebundenes Spaltgas
 - 6.2 Abbrand
 - 6.3 Keramografie
 - 6.4 Kontakt-Autoradiografie
7. Spezielle Untersuchungen

1. Einleitung

Die Entwicklung von Kernbrennelementen erfordert die Prüfung sowohl des Brennstoffs als auch der Hülle in Bestrahlungsversuchen. Eine solche Eignungsprüfung kann z.B. in einem sogenannten "performance test" bestehen, bei dem man für die gewählte Parameterkonstellation eines Prüflings nur eine pauschale ja-nein Antwort erhält. Weit häufiger jedoch sucht man in den Nachuntersuchungen die Antwort auf viele Detailfragen, die nur in einem umfassenden Untersuchungsprogramm gewonnen werden können.

Das Nachuntersuchungsprogramm für Brennstoffproben ist in ein allgemeines Grundprogramm und ein Spezialprogramm aufgliedert. Zum Grundprogramm zählen die in Kapitel 4 bis 6 aufgeführten Untersuchungspunkte. Jeder Brennstoffprüfling, der bestrahlt wurde, durchläuft dieses Programm, wobei gewisse Untersuchungen manchmal ausfallen, wie z.B. Abbrand- und Spaltgasbestimmungen bei Kurzzeit-Proben. Daneben läuft ein spezielles Untersuchungsprogramm (Kapitel 7), das sich stärker an die Grundlagenforschung anlehnt, und außerdem einen verhältnismäßig großen Zeit- und Arbeitsaufwand beansprucht. Diesen Untersuchungen werden nur besonders wichtige Proben zugeführt.

Im folgenden soll das Nachuntersuchungsprogramm für das Projekt Schneller Brüter (PSB) im einzelnen besprochen werden. Soweit Untersuchungsergebnisse bereits vorliegen, wird sich diese Besprechung an ihnen orientieren. Bei allen hier behandelten Fällen handelt es sich um reine Brennstoffuntersuchungen, Hüllmaterial wurde nicht mit untersucht.

2. Brennstoffproben im Bestrahlungsprogramm des Projektes

Schneller Brüter

Die folgende Zusammenstellung gibt einen Überblick über die bisher bestrahlten Prüflinge:

Äußerlich werden 4 Typen unterschieden:

- a) Kapsel-Prüfling mit 12 mm Durchmesser
- b) Kapsel-Prüfling mit 10 mm Durchmesser

- c) Loop-Langzeit-Prüfling mit 10 mm Durchmesser
- d) Loop-Kurzzeit-Prüfling mit 12 mm Durchmesser

Hinsichtlich des inneren Aufbaus kommt noch eine 5. Variante hinzu: Kapsel-Prüflinge mit 12 mm Durchmesser mit und ohne Spaltgasplenum.

Die Prüflinge haben folgende Brennstoffdaten:

Zusammensetzung: UO_2
 UO_2/Mo
 UO_2/CeO_2

Brennstoff-Form: Pulver

Beschichtetes Pulver

Tabletten: geschliffen, ungeschliffen,
 Preßmulde (Dishing) an einer und beiden
 Seiten, ohne Preßmulde

Dichte: 85 bis 93 % d.th.D.

Spalt: 60 bis 250 μ

3. Isolierung der Prüflinge

Der erste Schritt zur Untersuchung der Brennstoffprüflinge ist ihre Isolierung. Hierbei bietet insbesondere das in den Bestrahlungskapseln als Wärmeüberträger verwendete Pb-Bi-Eutektikum Schwierigkeiten. Ein umfangreicher Isolierungsprozess, der als Einzelschritte mechanische Demontage, Ausschmelzen und Abbeizen enthält, soll dafür sorgen, daß der Prüfling unbeschädigt wiedergewonnen werden kann. Das unbeschädigte Wiedergewinnen ist auch aus anderen Gründen nicht immer ganz erfolgreich, wie in Fig.1 zu sehen ist. Der Prüfling ist während des Betriebs aufgeschmolzen, so daß das Pb-Bi-Eutektikum bis zum Brennstoff vorgedrungen ist.

4. Untersuchungen an unzerstörten Prüflingen

4.1 Visuelle Inspektion, Fotografie

Als einer der wichtigsten Untersuchungsschritte sollte die visuelle Inspektion eines Prüflings unter optimalen Bedingungen erfolgen. Die direkte Beobachtung durch Periskope oder Zellenfenster ist einer indirekten Beobachtung durch Fernsehgeräte

vorzuziehen. Auch muß dafür gesorgt werden, daß das Untersuchungsobjekt ausreichend beleuchtet wird. Die früher verwendeten Na-Dampf-Lampen mit monochromatischem Licht werden mehr und mehr durch Jod-Quarz-Lampen ersetzt, die bei ähnlich guter Lichtstärke auch Farben erkennen lassen.

In den Heißen Zellen des Kernforschungszentrums ist zur Zeit noch kein ausreichend lichtstarkes Periskop vorhanden. Die visuelle Untersuchung wird daher durch Zellenfenster unter Zuhilfenahme von Ferngläsern durchgeführt. Einen Eindruck von den bereits bei diesem Untersuchungsschritt erkennbaren Veränderungen der bestrahlten Prüflinge geben die folgenden Abbildungen. In Fig.2 erkennt man, daß der Spaltgasraum oberhalb der Brennstoffsäule stark eingedrückt ist. In Fig.3 sieht man Korrosionsspuren an der Hüllenaußenseite. Zur Unterstützung der Beobachtung und zur Dokumentation des Gesehenen wird jeder Prüfling fotografiert. Eine nachträgliche sorgfältige Betrachtung der Fotografien bringt mitunter zusätzliche Informationen, wie z.B. aus Fig.4. Die Frage, ob die in der Bestrahlungskapsel verwendeten Thermoelementbügel vollkommen aufgelöst oder nur abgerissen wurden, konnte durch das Auffinden der Bügel im Bild geklärt werden. Als Fehlerquelle bei der visuellen Inspektion ist die optische Verzerrung durch die dicken Glasfenster zu berücksichtigen. So zeigte sich z.B. in einem Fall, daß ein ausschließlich in der Mitte aufgebeulter Prüfling bei der späteren Vermessung vollkommen gerade war.

4.2 Dichtheitsprüfung

Vor der zerstörenden Untersuchung wird jeder Prüfling einer Dichtheitsprüfung unterworfen, wenn nicht schon bei der visuellen Inspektion eine Beschädigung an der Hülle zu sehen ist. Mehrere Methoden der Lecksuche stehen zur Auswahl:

a) Spaltgas-Methode

Der Prüfling wird in eine gasdichte Kammer überführt, die anschließend ausgepumpt wird. Das abgepumpte Gas leitet man über eine Kohlefalle, in der vorhandenes Spaltkrypton festgehalten wird. Spaltgas-Aktivität in der Kohlefalle zeigt ein Leck an.

b) Wasserblasen-Methode

Der Prüfling wird in heißes Wasser getaucht und nach dem Abtrocknen mit einer 500 Watt Lampe örtlich stark erhitzt. Blasenaustritt an der Schadensstelle zeigt das Leck an.

c) Glykol-Methode

Der Prüfling wird in einem transparenten Gefäß in Glykol getaucht, wobei er von der Flüssigkeit ganz bedeckt sein muß. Evakuiert man nun das Gefäß, so steigen von der Schadensstelle Bläschen auf.

d) Stickstoff-Methode

Zunächst wird der Prüfling in flüssigen Stickstoff bis zum Erreichen des thermischen Gleichgewichts getaucht. Überführt man ihn anschließend in einen Behälter mit Alkohol, so steigen Bläschen von eingeschlossenem Stickstoff von der Schadensstelle auf.

Wir haben uns für die Stickstoff-Methode entschieden. Vorversuche zeigten, daß eine Leckrate von 5×10^{-5} Torr l/sec deutlich erkennbar ist. Der Ort des Lecks wird bei dieser Methode sichtbar. Alle bisher untersuchten Prüflinge, die nicht während des Betriebs aufgeschmolzen sind, zeigten keine Lecks. Auch die Prüflinge mit eingedrücktem Spaltgasraum waren weiterhin gasdicht.

4.3 Vermessung

Die Vermessung dient zur Beantwortung der Frage, ob die Hülle verformt wurde. Beim zylinderförmigen Brennstoffprüfling werden die Länge und der Durchmesser entlang der Länge gemessen. Ausgangspunkt der Vermessung ist nicht nur eine maßgerechte Produktion, sondern auch eine exakte Vermessung vor der Bestrahlung, möglichst mit dem gleichen Meßgerät.

Die Grenzen der Genauigkeit liegen in den Maßtoleranzen der Rohre. Bei vorheriger Eigenmessung liegen die Grenzen bei der Empfindlichkeit der verwendeten Meßmaschine. In den Spezifikationen der Kapselprüflinge sind Wandstärketoleranzen von 100μ zugelassen. Der Durchmesser hat damit eine Toleranz von $\pm 200 \mu$. Die tatsächlich gemessenen Schwankungen betragen an den Schweißnähten bis zu 240μ .

Fig.5 zeigt die Technik der Vermessung. Der Prüfling wird zwischen 2 Dorne eingespannt und durch fahrbare Taster mit elektrischer Übertragung vermessen. Die Meßdaten werden als Diagramm geschrieben. Für die Längenmessung wird der Maßstab 1:1, für die Dicke der Maßstab 1:50 gewählt. Als Taster dient eine Kugel von 3 mm Durchmesser. Daher ist eine Messung der Feinstruktur der Oberfläche nicht möglich. Fig. 6 zeigt das Schreiberdiagramm eines geraden, jedoch leicht außermittig eingespannten Prüflings. Schwierigkeiten bereitet das zentrische Einspannen des Prüflings in die Meßbank. Deshalb wurden vorher an den Stirnseiten Präzisionseinsenkungen nach DIN angebracht. In Fig.7 wird neben dem außermittigen Einspannen als weitere Fehlerquelle die restlose Entfernung von anhaftenden PbBi demonstriert. Nach sorgfältigem Abbeizen hat der Prüfling dann eine wesentlich glattere Oberfläche wie Fig. 8 zeigt. Das Beispiel eines stark verformten Prüflings zeigt Fig.9. Der Stab ist stark durchgebogen und an einem Ende muldenförmig eingedrückt.

4.4 Durchleuchtung

Bei bestrahlten Brennstoffprüflingen mit einer, wie man weiß, sehr veränderlichen Innenstruktur ist man verständlicherweise daran interessiert, mit Hilfe einer Röntgen-Aufnahme den inneren Aufbau noch vor der zerstörenden Untersuchung des Prüflings kennenzulernen. Hier stellt sich dem Durchleuchten allerdings eine Schwierigkeit entgegen. Der Prüfling selbst sendet, durch die Bestrahlung im Reaktor aktiviert, elektromagnetische Strahlung aus, und zwar in dem gleichen Energiegebiet, in dem man üblicherweise auch durchleuchtet, nämlich im Gebiet der weichen Röntgeneigenstrahlen und der etwas härteren elektromagnetischen Strahlen in der Gegend von einigen Hundert KeV bis zu etwa 1,5 MeV, wie sie von radioaktiven Strahlenquellen ausgesandt werden. Damit schwärzt die Strahlung des Prüflings bei den uns interessierenden Abbränden den Röntgenfilm bereits so stark, daß eine zusätzliche Durchstrahlung von außen keine Zeichnung auf den Film bringt.

Man kann diesen Einfluß der unerwünschten Eigenstrahlung nun auf mehrfache Art unterlaufen, um trotzdem noch ein erträglich gutes Bild des Prüflings auf den Film zu bringen.

Es ist hier nicht der Ort, alle Durchleuchtungsmethoden ausführlich darzulegen und sie einander gegenüberzustellen. Ich möchte nur einige herausgreifen und ihr Prinzip kurz erläutern. Bei der Röntgenblitzröhre wird in einer kurzen Zeitspanne von ca. $1/\mu$ sec von einer Röntgenröhre 200 oder 400 keV Strahlung mit hoher Intensität emittiert. Der zu durchleuchtende Prüfling und der Röntgenfilm werden während der Blitzdauer durch den Strahlenkegel geführt (mit einer Geschwindigkeit von mehr als 10 m/sec) und nachher schnell wieder gegeneinander abgeschirmt. Der strahlende Prüfling sieht den Film nur für sehr kurze Zeit und kann dadurch nur eine geringe Untergrundschwärzung erzeugen. Aus dieser kurzen Skizzierung ist schon zu sehen, daß für den Schnelltransport von Film und Prüfling ein hoher Aufwand an mechanischer Präzision getrieben werden muß, wenn die Bildqualität ausreichend sein soll. Dieser Aufwand schlägt sich sowohl in einem hohen Preis als auch in einem großen Raumbedarf nieder.

Die Neutronenradiografie ist eine weitere Durchleuchtungsmethode. Hier verwendet man Neutronen als Strahlenart, und als Film dient eine Goldfolie, die jetzt entsprechend aktiviert wird. Die Gammastrahlung des Prüflings stört diese Durchleuchtung überhaupt nicht. Das latente Bild auf der Goldfolie wird über die normale Autoradiografie, d.h. durch Auflegen auf das übliche Filmmaterial übertragen. Sieht man einmal von der Bildqualität ab, so sind als Schwächen dieser Methode aufzuzählen: Lange Belichtungszeiten für das latente Bild, die Notwendigkeit mit ebenfalls erheblichem Zeitaufwand umzukopieren und als Neutronenquelle einen Reaktor zu benutzen.

Wohl am besten geeignet für eine Durchleuchtung ist ein Betatron. Es emittiert eine sehr harte Gamma-Strahlung, die bei den angebotenen Materialprüfgeräten 17 MeV beträgt. Die Gamma-Strahlung ist eine Röntgenbremsstrahlung, die dadurch erzeugt wird, daß hochbeschleunigte Elektronen auf ein Platin-Target geschossen werden. Die mittlere Gamma-Energie liegt bei ungefähr 40 % der Maximalenergie, bei unserem Betatron also bei etwa 7 MeV. Durch die besondere Anordnung des Platin-Targets kann man einen vergleichsweise kleinen Brennfleck erzeugen, der in der Gegend von einem Zehntel Quadratmillimeter liegt, was natürlich der Bildqualität

zugute kommt. Die Eigenstrahlung des Prüflings unterläuft man durch die unterschiedlichen Absorptionscharakteristiken beider Strahlungen in Stahl. Der Absorptionskoeffizient für Gamma-Strahlen in Stahl zeigt folgenden Verlauf: In der Gegend von 5-15 MeV, genauer gesagt bei 8 MeV, findet man ein flaches Minimum. Die Halbwertsdicke liegt relativ hoch, bei 3,2 cm. Stahl ist also weitgehend durchlässig für die Betatron-Gamma-Strahlung. Hingegen liegt die Halbwertsdicke für 0,5 MeV Gamma-Strahlung bei 1 cm Stahl. Mit 9 cm Stahl schwächt man die Prüflings-Gamma-Strahlung, grob gesagt, um den Faktor 100 stärker als die Betatron-Strahlung.

Wir betrachten im folgenden einige Betatron-Aufnahmen: In Fig. 10 sieht man einen Tablettenbrennstoff, bei dem trotz Bestrahlung die Pressmulde (Dishing), an einer Tabletten-Stirnseite noch gut zu erkennen ist. Der schwarze Strich im rechten Teil des Bildes ist das Rh-Plättchen am Ende der Brennstoffsäule. Es hat sich offenbar aus seiner Halterung im Stopfen gelöst.

In Fig. 11 ist nun deutlich ein Zentralkanal zu sehen. Die Pressmulden sind bis auf einen schmalen Spalt zusammengedrückt. Der Zentralkanal verläuft nicht ganz zentrisch, sondern beschreibt eine leichte Schlangenlinie.

In Fig. 12 sieht man wieder einen Pulver-Prüfling mit Zentralkanal. Am Ende des Kanals befindet sich eine sackförmige Erweiterung. Die Brennstoffsäule ist geschrumpft und damit vom Rh-Plättchen abgerückt. Der Neutronen-Absorber ist nicht mehr voll wirksam, wodurch sich die Leistung im Säulenende erhöht. Im Gamma-Scanning sieht man am Ende eine Spitze.

Fig. 13 zeigt einen Tablettenprüfling, dessen Zentralkanal eine Blasenkette bildet. Die Blasen haben ihren größten Durchmesser an der Kreuzung mit den Tablettenstirnflächen und stehen miteinander in loser Verbindung.

Vollkommen strukturlos ist der Brennstoff in folgender Fig. 14. Die hohe Wärmeleitfähigkeit des mit Molybdän beschichteten UO_2 -Pulvers hat die Ausbildung einer Hochtemperaturstruktur verhindert.

4.5 Gamma-Scanning

Das Gamma-Scanning ist eine Untersuchungsmethode, die mit einem relativ bescheidenen Aufwand an Gerät und Arbeitszeit eine Reihe wertvoller Informationen über den Brennstoffprüfling liefert. Ihr Prinzip beruht auf der Messung der Spaltprodukt-Gamma-Strahlung eines bestrahlten Prüflings entlang seiner Längsachse. In der Praxis verläuft diese Messung wie folgt: Der aktivierte Prüfling wird als Strahlenquelle kontinuierlich oder in kleinen Schritten an einem Spaltkollimator vorbeigezogen. Jenseits des Kollimatorspalts befindet sich ein Gamma-Detektor samt Impulsanalysator und Ratemeter, der die Intensität der durch den Spalt kommenden Gamma-Strahlung mißt und in einem Diagramm gegen die Prüflingslänge aufträgt. Die Güte eines solchen Diagramms hängt unter anderem sehr stark von den Dimensionen des Kollimatorspalts ab. Bei uns hat der Spalt folgende Abmessungen: 0,5 x 20 x 700 mm.

Die Messung an einem Prüfling beginnt mit der Aufnahme seines Gamma-Spektrums. Soweit nicht axiale Spaltproduktwanderungen stattgefunden haben, kann ein beliebiger Ort für die Aufnahme ausgewählt werden. Nach einem Blick auf das Spektrum wird entschieden, welche Energiebereiche abgetastet werden sollen. Am häufigsten wird eine Gesamt-Gamma-Messung durchgeführt, bei der alle Gamma-Quanten oberhalb einer bestimmten Schwelle (z.B. 500 KeV) zusammen gemessen werden. In unserem Gamma-Scanning-Programm werden zwei Energiebereiche, ein niederer um 100 KeV und ein höherer zwischen 600 und 800 KeV, abgetastet.

Fig.15 zeigt das Gamma-Diagramm (600-800 KeV Energiebereich) eines Tablettenprüflings. Drei wichtige Aussagen sind dem Diagramm unmittelbar zu entnehmen, Länge der Brennstoffsäule, relativer Abbrand bzw. Leistungsprofil und ein Hinweis auf den Zustand des Brennstoffs. Aus der Literatur geht hervor, daß die Länge der Brennstoffsäule bis auf 250 μ genau vermessen werden kann. Bei unseren Prüflingen wird eine genaue Messung nicht durchgeführt, da die Röntgendurchleuchtung Aufschluß über eine Veränderung der Brennstoffsäule gibt. Bezüglich des Leistungsprofils zeigt der hier betrachtete Prüfling eine besonders hohe Differenz zwischen Maximum (am oberen Ende) und Minimum. Am unteren Ende erbrachte der Prüfling nur etwa 75 % seiner Maximalleistung.

Die Feinstruktur des Gamma-Profiles zeigt in Fig.15 deutlich, daß es sich um Tabletten-Brennstoff handelt. Die Pressmulden an den Stirnseiten der einzelnen Tabletten sind durch kurze Einschnitte im Gamma-Profil gekennzeichnet. Tiefe Einschnitte im oberen Teil weisen auf große Radialrisse bzw. auf die Zerstörung der Tabletten hin.

Die oben erläuterten Informationen über den Brennstoff erhält man bei einem geringen Aufwand an Ausrüstung und Arbeitszeit. Geht man zu komplizierteren Meßeinrichtungen (Germanium-Detektoren, Multikanalimpulsanalysatoren) über, so lassen sich noch weitere Informationen, z.B. über den absoluten Abbrand und die Spaltproduktwanderung gewinnen.

4.6 Autoradiografie mit Lochkamera

Eine andere Möglichkeit, Aufschluß über den Zustand des Brennstoffs eines Prüflings zu erhalten, ist die Abbildung mit Hilfe einer Lochkamera. Dabei läßt man, analog zur optischen Lochkamera, die vom Prüfling emittierten Gamma-Strahlen durch eine Lochblende auf einen Film fallen. Wie auch im optischen Bereich ist diese Kamera extrem lichtschwach und nur bei sehr aktiven Prüflingen erreicht man erträgliche Expositionszeiten. Weiter zu erwähnen ist, daß die Bildqualität unbefriedigend ist, einmal weil man keine saubere Lochblende aus vollkommen gammadurchlässigem Material herstellen kann und zum anderen wegen der räumlichen und nicht flächenhaften Ausdehnung des Prüflings. Daher ist die Autoradiografie mit der Lochkamera nur eine unbedeutende Nachuntersuchungsmethode, die gewöhnlich nur zum Auffinden eines Prüflings in einer großen Bestrahlungskapsel dient.

In unserem Nachuntersuchungsprogramm war ursprünglich auch diese Autoradiografie vorgesehen. Wir sind aber, seit wir die Prüflinge mit dem Betatron durchleuchten können, nicht mehr auf die Ergebnisse dieser Methode angewiesen.

5. Untersuchung an punktierten Prüflingen

Nach der zerstörungsfreien Untersuchung wird der Prüfling zur Gasentnahme von der Stirnseite mit einem Bolzen angeschossen. Ein erfolgreiches Anschießen ist erschwert, wenn der Brennstoff unverändert und damit mechanisch stabil bleibt. Dann ist ein Anbohren der Mantelfläche zur Umgehung dieser Schwierigkeiten unumgänglich.

5.1 Freies Spaltgas

Die Spaltgasfreisetzung hat stets einen entscheidenden Einfluß auf die Auslegung von Brüter-Brennstäben gehabt. Während anfangs eine möglichst geringe Freisetzungsrates angestrebt wurde, um den Gasdruck auf die Hülle klein zu halten, erscheint heute eine möglichst hohe Freisetzung wünschenswert, da damit das Feststoff-Schwellen des Brennstoffes vermindert wird. In jedem Fall ist es wichtig, die Menge und den Druck des während der Bestrahlung freigesetzten Spaltgases zu bestimmen.

Nach dem Anschießen des Prüflings läßt man das entweichende Spaltgas in einen expandierenden Rezipienten expandieren. Daher muß das Volumen des Rezipienten groß gegen das Volumen des Prüflings und der Leitung sein. Das Spaltgas wird dann im He-Gasstrom gaschromatographisch getrennt und Kr und Xe quantitativ bestimmt. Die Erfassungsgrenzen für die Gase liegen bei $0,5 \text{ mm}^3$. Anschließend wird das Gas durch eine geeichte Ionisationskammer geleitet und die Spaltgasaktivität gemessen. Bei länger abgeklungenen Prüflingen ist nur noch das Kr aktiv, und zwar durch das Isotop Kr^{85} mit 10,6 Jahren Halbwertszeit (längste Halbwertszeit von Spalt-Xenon ist 5,3 d bei Xe 133). Die Aktivitätsmessung ist empfindlicher als die Gaschromatografie. Noch wenige $\mu\text{C Kr}^{85}$ lassen sich ausreichend genau bestimmen. Die niedrige Erfassungsgrenze ist jedoch für unsere Gasbestimmungen unerheblich, da das Spaltgas uns nur interessiert, wenn es in größeren Mengen vorhanden ist.

Eine zusätzliche Aktivitätsmessung macht die Kontrolle der Volumenmessung möglich. Theoretisch soll die spezifische Aktivität des Spaltkryptons weitgehend konstant sein, wenn nur ein spalt-

bares Nuklid da ist. Lediglich der Abfall des 10,6 Jahre-Nuklids ist zu berücksichtigen. Der Sollwert der spezifischen Aktivität, der $115 \mu\text{C}/\text{mm}^3$ beträgt, errechnet sich aus den Spaltausbeuten. Bei Berücksichtigung der Abklingzeit von ca. 1 1/2 Jahren bei den zur Zeit untersuchten Prüflingen sollten wir eine spezifische Aktivität von rund $105 \mu\text{C}$ finden. Die tatsächlich gefundenen Werte streuen um $83 \mu\text{C}/\text{mm}^3$. Das hat seine Ursache darin, daß eine Eichung von Kr^{85} recht schwer ist und geeichtes Kr-Gas zur Zeit nicht erhältlich ist. In Anbetracht dieser Schwierigkeiten ist die Eichung des Meßgerätes mit 20 % Minus als ausreichend zu bezeichnen. Läßt man für die Aktivitätswerte eine Fehlergrenze von $\pm 10 \%$ zu, so fallen von 81 Messwerten ca. 70 % in diesen Bereich. Beim Rest gibt es eine ganze Anzahl Ausreißer. Eine weitere Überwachung der Gasmessungen ist durch die Beobachtung des Xe/Kr-Verhältnisses gegeben. Dieses Verhältnis ist wegen des Neutroneneinfangs von Xe^{135} und Xe^{133} stark neutronenflußabhängig. Es schwankt zwischen 5,8 bei $\Phi = 10^{12} \text{ n/cm}^2\text{s}$ und 7,2 bei $\Phi = 10^{14} \text{ n/cm}^2\text{s}$. Der Maximalwert, bei dem alles Xe^{133} und Xe^{135} in stabiles Xe umgewandelt wird, liegt bei $\Phi = 5 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$ und 8,9.

Beim Punktiergas liegt dieses Verhältnis in der Regel zu tief. Daraus läßt sich jedoch nicht ableiten, daß Spalt-Xe bevorzugt im Brennstoff zurückgehalten wird, denn beim darauffolgenden Spülen mit He klappt das Verhältnis um. Das Spülgas enthält zuviel Xenon. Wir behandeln im folgenden den zweiten Anteil des freien Spaltgases, das Spülgas.

Spült man den punktierten Prüfling mit He, nachdem man ihn von der anderen Stirnseite angebohrt hat, so kommt mehr Spaltgas heraus, als man nach der Volumenbilanz beim Punktieren erwarten dürfte. Es sind gewöhnlich 5-10 %, manchmal aber auch bis über 20 % des freien Spaltgases, denen hier durch Spülen nachgeholfen werden muß. In 7 von 10 Analysen findet man, wie schon vorher erwähnt, einen höheren Xe-Anteil als beim Punktiergas. Möglicherweise liegt eine Adsorption vor. Punktier- und Spülgas bilden zusammen das freie Spaltgas. Die bisher untersuchten 12 Prüflinge sind hinsichtlich ihres Abbrandes und ihrer Brennstoffzusammensetzung noch zu verschieden, als daß man für einen bestimmten Brennstofftyp jetzt schon gültige Aussagen über die

Spaltgasfreisetzung machen könnte. (UO_2 -Tabletten, UO_2 -Pulver, UO_2 -Mo-Pulver, UO_2 - CeO_2 -Tabletten) Sie waren aber alle auf eine Stabileistung von etwa 350 W/cm ausgelegt, so daß man einen vorläufigen und vorsichtigen Vergleich wagen kann. Bei UO_2 -Pulverbrennstoff liegt der Anteil des freien Spaltgases zwischen 45 und 55 %. Für UO_2 -Tablettenbrennstoff liegen noch keine Daten vor. Die molybdänhaltigen Prüflinge zeigten wesentlich kleinere Freisetzungsraten, was ja auch im Hinblick auf die niedrigere Zentraltemperatur zu erwarten war. Freisetzungsraten unter 5 % wurden gemessen. Bei den CeO_2 -haltigen Prüflingen liegt der Anteil des freien Spaltgases ebenfalls niedrig, bei knapp 10 %, obwohl sie durch die geringere Wärmeleitfähigkeit des Oxyd-Gemisches und die damit gegenüber reinem UO_2 erhöhte Zentraltemperatur eigentlich höher als beim UO_2 sein sollte. Indessen konnte man bei den keramografischen Schlifffbildern auch keine Anzeichen von erhöhter Zentraltemperatur feststellen.

5.2 Freies Volumen

Zusammen mit der Spaltgasmenge ist das freie Volumen die Grundlage für die Berechnung des Spaltgasdrucks. Aus den Innenabmessungen der Hülle und der Dichte des eingefüllten Materials ist das Brutto-Leervolumen zu ermitteln. Voraussetzung ist allerdings eine spezifikationsgemäße Füllung der Hülle ohne Hohlräume. Die Bestimmung des freien Volumens erfolgt durch Expansion oder Kompression eines vorher bekannten Volumens, mit dem das Innere des Prüflings in Verbindung steht.

Die bisher gemessenen freien Volumina umfassen nicht das ganze Brutto-Leervolumen. Dies ist dadurch zu erklären, daß ein Teil des Bruttovolumens in Form von geschlossenen Poren vorliegt. Bei den Kapsel-Prüflingen lag das erfassbare freie Volumen bei den bisher untersuchten Prüflingen zwischen 65 und 75 % des Brutto-Leervolumens. Einige Außenseiter brachten es auf 55 % bzw. auf 89 %. Ein Zusammenhang zwischen erfassbarem freiem Volumen und Abbrand läßt sich nicht erkennen. Überraschenderweise spielt es auch keine Rolle, ob der Brennstoff in Tablettenform, als einvibriertes Pulver oder mit Zusätzen von Mo bzw.

CeO₂ vorliegt. Bisher waren die Bestrahlungsbedingungen für die Kapselversuchseinsätze jedoch noch zu unterschiedlich (Abbrand, Zahl der Abschaltungen), um kleinere Unterschiede bei verschiedenen Brennstoff-Formen beobachten zu können.

6. Untersuchungen an zerlegten Prüflingen

Nachdem die Untersuchungen am unzerstörten Prüfling abgeschlossen sind, wird für jeden Prüfling ein spezieller Zerschneideplan aufgestellt. Dieser Zerschneideplan orientiert sich im wesentlichen an den Betatron-Aufnahmen, dem Gamma-Profil und an einigen allgemeineren Gesichtspunkten. Für Spaltgasuntersuchungen werden jeweils 2 Stücke herausgeschnitten. Abbrand-Analyse und Korngrößenbestimmung kommen mit je einer Probe aus. Die ursprünglich veranschlagten 3 keramografischen Schriffe pro Stab wurden bei besonders interessanten Prüflingen bis auf 6 erhöht.

6.1 Gebundenes Spaltgas

Die für die Gasbestimmung abgeschnittenen Brennstoffstücke werden von dem Hüllring befreit und der bröckelige Brennstoff in eine Mahlkapsel eingewogen. In einer Schwingmühle wird anschließend ca. 2 Stunden gemahlen, die Kapsel in einem geschlossenen Gehäuse geöffnet und das freigesetzte Spaltgas, wie bereits besprochen, gaschromatografisch bestimmt. Um den Mahlprozess zu kontrollieren, wird an einer Parallelprobe die Teilchengröße, genau gesagt die spezifische Oberfläche, des gemahlten Brennstoffs in einer BET-Apparatur bestimmt. Die bisher gemessenen spezifischen Oberflächen lagen zwischen 2,8 und 4,0 m²/g Brennstoff. Rechnet man einmal diese Werte in Teilchengrößen um, etwa unter der Annahme, daß alle Teilchen gleichmäßig und kugelig sind, so kommt man zu den extrem kleinen Durchmessern von 0,1 - 0,2 μ . Als letzter Schritt wird das gemahlene Pulver in Salpetersäure gelöst und abermals Spaltgas bestimmt. Auf diese Weise erhält man von einem Prüfling drei Spaltgasfraktionen:

- a) Freies Spaltgas (Punktier- und Spülgas)
- b) Mahl-Spaltgas
- c) Löse-Spaltgas

Spaltgasbilanzen haben, als Einzelwerte, kein großes Gewicht. Ihre Bedeutung tritt erst bei einer größeren Zahl von Meßdaten zu Tage, da die Einzelwerte mitunter erheblich schwanken. Lediglich zur Illustration möchte ich hier einige Beispiele anführen:

Prüfling	freies Spaltgas	Mahl-Spaltgas	Löse-Spaltgas
UO ₂ -Pulver	52 %	11 %	37 %
UO ₂ -Pulver	54 %	15 %	31 %
UO ₂ -Mo-Tabletten	5 %	10 %	85 %
UO ₂ -Mo-Pulver	-	8 %	92 %
UO ₂ -Mo-Pulver	-	16 %	84 %
UO ₂ -CeO ₂ -Tabletten	11 %	23 %	66 %

Aus diesen Werten schon Gesetzmäßigkeiten herauszulesen, wäre noch verfrüht. Die Proben hatten auch einen zu unterschiedlichen Abbrand.

6.2 Abbrand

Da eine der wichtigsten Fragen bei der Brennelemententwicklung die Frage nach dem maximal erreichbaren Abbrand ist, ist die Bestimmung des Abbrandes in Brennstoffproben bedeutsam. Wir geben im folgenden die wichtigsten Abbrandmaße und ihre Umrechnungen an:

- a) At.% Schwere Atome Abbrand
- b) $\frac{Mw_{d_{th}}}{t}$ (schwere Elemente)
- c) $\frac{\text{Spaltungen}}{\text{cm}^3}$ (100% dichter Brennstoff)

Manchmal bezieht man die thermische Energie auch auf t Brennstoff. Bei amerikanischen Angaben ist zu beachten, daß mit t die (US short)ton = 907 kg = 0,907 (metrische) ton gemeint ist. In die Umrechnungsbeziehungen geht u.a. das Molekulargewicht und die Dichte ein. Daher sind die Umrechnungsfaktoren vom Brennstoffmaterial abhängig. Wenn man für die pro Spaltung erzeugte thermische Energie 205 MeV zugrundelegt $\underline{1,27}$, erhält man für UO₂ (Molekulargewicht: 270 g/mol und theoretische Dichte 10,96 g/cm³):

$$1 \text{ At.}\% \text{ Schwere Atome Abbrand} \hat{=} \\ 9600 \frac{\text{MWd}_{\text{th}}}{\text{g}(\text{schwere Elemente})} \hat{=} 2,45 \cdot 10^{20} \frac{\text{Spaltungen}}{\text{cm}^3 (100\% \text{ dichtes } \text{UO}_2)}$$

Es existiert eine Vielzahl von Methoden zur Bestimmung des Abbrandes, die man in 3 Gruppen aufteilen kann.

Die erste Gruppe umfasst die indirekten Methoden. Der Abbrand wird hier errechnet, z.B. aus Brennstoffzusammensetzung, Bestrahlungszeit und Neutronenfluß, wobei der genaue Neutronenfluß durch Sonden festgestellt wird. Bei einer anderen Methode wird die Reaktorleistung und Bestrahlungszeit zur Abbrandberechnung herangezogen.

In einer zweiten Gruppe finden sich alle die Methoden, bei denen der zurückbleibende Brennstoff, genauer gesagt, die zurückbleibenden schweren Atome massenspektrometrisch analysiert werden. Selbst bei massenspektrometrischer Genauigkeit werden diese Abbrand-Bestimmungsmethoden ungenau, wenn der Abbrand sehr klein, d.h. unter 5000 MWd/t wird. In einer Studie der General Electric Co. [3] wird angegeben, daß der optimale Bereich für diese Methoden zwischen 0,5 und 1,5 % Abbrand liegt. Der gesamte Fehler beträgt dann nur ca. 6-8 %.

Die dritte Gruppe schließlich umfaßt alle Methoden, bei denen einzelne Spaltprodukte bestimmt werden und über die bekannte Spaltausbeute dann der Gesamt-Abbrand ermittelt wird. Schätzungsweise 90 % der Abbrandbestimmungen werden über Spaltproduktanalysen durchgeführt. Wir wollen hier nur die radioaktiven Spaltprodukte betrachten, die sich wegen ihrer geringen Nachweisgrenze für eine Abbrandanalyse besonders bei niederen Abbränden geradezu anbieten. Nicht jedes Spaltprodukt ist jedoch als Abbrandindikator geeignet. Ein guter Abbrandindikator sollte folgende Eigenschaften haben: a) lange Halbwertszeit, b) hohe Spaltausbeute, c) gleichbleibende Spaltausbeute für schnelle und thermische Spaltung, d) einfache Chemie der Abtrennung, e) gut bekanntes Zerfallsschema usw. Sieht man unter den eben angedeuteten Gesichtspunkten die 200 Spaltnuklide aus, so bleibt beinahe nur noch das Cs¹³⁷

übrig. Selbstverständlich kann man in bestimmten Fällen die strengen Forderungen einschränken, so daß auch Sr^{90} , Ce^{144} und selbst das vergleichsweise kurzlebige Zr^{95} einbezogen werden können. Der einzige wesentliche Nachteil des Cs, seine radiale Wanderung, wird dadurch ausgeglichen, daß verhältnismäßig große Brennstoffproben entnommen werden, die über den ganzen radialen Querschnitt des Prüflings verlaufen und damit An- und Abreicherungs-zonen gleich erfassen. Eine Abbrandbestimmung an Mikroproben ist also nicht sinnvoll.

Die Abbrandanalysen im PSB-Programm sind eben erst angelaufen. In einem Prüfling wurden die Spaltprodukte Cs^{137} , Sr^{90} und Ce^{144} gleichzeitig bestimmt und zur Abbrandberechnung herangezogen. Erstaunlicherweise hat sich gezeigt, daß auch die aus einer anderen Untersuchungsstufe stammende Spaltgaskonzentration im Brennstoff zur Abbrandberechnung verwendet werden kann. Der auf Grund des Kr^{85} -Gehalts ermittelte Abbrand kam in dem oben erwähnten Prüfling dem voraus berechneten am nächsten.

6.3 Keramografie

Die Veränderung der Struktur des Brennstoffs als Ergebnis, insbesondere der Temperaturverteilung während des Reaktorbetriebes, wird mit Hilfe der Keramografie sichtbar gemacht. Dabei bedient man sich konventioneller Präparationsmethoden für die Herstellung der Keramik-Schliffe. Die Brennstoffproben werden durch Ausgießen mit Epoxy-Harzen verfestigt, anschließend geschliffen, poliert und, wenn notwendig, geätzt. Eine Beurteilung und Auswertung der Schliffbilder wird am Metall-Mikroskop vorgenommen. Zur Untersuchung der Brennstoffstruktur unserer Prüflinge wurde ein Schnittschema aufgestellt. Gemäß diesem werden von jedem Prüflingsstab in Standardpositionen drei Querschnitte präpariert und ausgewertet. Zur Untersuchung besonderer Phänomene werden zusätzliche Querschnitte und in steigendem Maße auch Längsschnitte angefertigt.

Einen Überblick über die bisher untersuchten Brennstoffstrukturen für Pulver- und Tablettenbrennstoff geben die nachfolgenden Abbildungen.

In Fig.16 sieht man einen Querschnitt durch einen Pulver-Prüfling. Das ursprünglich als Pulver eingerüttelte UO_2 ist in der Mittelzone zu einem kompakten breiten Ring verdichtet. Im Zentrum hat sich ein Zentralkanal gebildet. In der Nähe der Hülle ist hingegen die Pulverstruktur unverändert geblieben.

In Fig.17 erkennt man einen Längsschnitt durch das untere Ende eines Pulverprüflings. Um den glattwandigen Zentralkanal, der an seinem Ende eine sackförmige Erweiterung bildet, schließt sich eine verdichtete Mittelzone an, die sich bis in die großen Partikel der Randzone fortsetzt. Durch die radialen Risse ist feinkörniger Brennstoff aus der Außenzone in den Zentralkanal gelangt.

In Fig.18 sieht man einen Querschnitt durch einen Tabletten-Prüfling. Der typische Zentralkanal ist von einer breiten Zone starken Kornwachstums umgeben, die bis zu einer schmalen Übergangszone reicht. Unmittelbar an der Hülle befindet sich die von Radialrissen durchzogene ursprüngliche Sinterzone.

In Fig.19 ist die Zentralzone eines Tablettenprüflings ersichtlich. Unmittelbar an den Zentralkanal anschließend liegen die langgestreckten Stengelkristalle. Ihre Porosität ist wesentlich kleiner als die des ursprünglichen Sintergefüges, sie steigt jedoch in der Nähe des Zentralkanals wieder an.

In Fig.20 erkennt man den Querschnitt durch die Zentralzone eines Tablettenprüflings. Wohlausgeprägte Linsenblasen sind in Richtung des Temperaturgradienten auf den Zentralkanal zu gewandert. An den Seiten dieser Linsenblasen haben sich dünne Blasketten abgelöst. Sie zeigen die Begrenzung der durch den Wanderungsprozess erzeugten Stengelkristalle.

6.4 Kontakt-Autoradiografie

Eine weitere Auswertemöglichkeit der keramografischen Schlicke bietet die Kontakt-Autoradiografie. Das Prinzip ist einfach. Eine fotografische Platte wird entweder in der Dunkelheit direkt oder bei normaler Beleuchtung eingepackt in eine lichtdichte

aber sehr dünne Folie, auf den Schliff gelegt und damit der Beta- und Gamma-Strahlung des Brennstoffs ausgesetzt. Man entwickelt anschließend und erhält so ein Bild von der Verteilung der Spaltprodukte in der Querschnittsfläche.

Die Kenntnis einer solchen Verteilung ist wichtig zur Beurteilung der Frage, ob eine Brennstoffzone geschmolzen war, denn das Schmelzen ist gewissermaßen ein Reinigungsvorgang, bei dem die Spaltprodukte, ähnlich wie beim Zonenschmelzen, im letzten flüssigen Rest angereichert werden. Unbekannte Einschlüsse im Brennstoff sind leichter zu identifizieren, wenn bekannt ist, ob in den fraglichen Gebieten hohe oder niedere Spaltprodukt-Konzentrationen herrschen. Versuche zur Beta-Gamma-Autoradiografie, die bei uns erst vor kurzem begonnen wurden, haben bisher noch nicht zu brauchbaren Bildern geführt.

Dagegen hat die Alpha-Autoradiografie bereits brauchbare Bilder geliefert. Die Alpha-Autoradiographie beruht auf einem ganz anderen Prinzip und ist selektiv für die Alpha-Strahlung. Als Film dient normales Zelluloid, also eine nitrierte Zellulose. Wie üblich wird das Zelluloid allerdings ohne Abdunkelung auf den Schliff gebracht. Die emittierten Alpha-Teilchen brennen richtige Löcher in das Material. Diese Löcher werden dann mit NaOH entwickelt. Der Mechanismus dieser Entwicklung ist unbekannt. Beta-Strahlen mit ihrer wesentlich geringeren Ionisationsdichte brennen keine Löcher. Ein Beispiel für eine Alpha-Autoradiografie sehen Sie im folgenden Bild (Fig.21).

Es handelt sich hier um einen beim Betrieb aufgebrannten Kapsel-Prüfling. Das PbBi der Kapsel ist dabei in den Zentralkanal und die einmündenden Radialrisse hineingelaufen. PbBi ist durch die (n, γ) -Bildung von Polonium α -aktiv und damit hier gut zu erkennen. Erhöhte Alpha-Aktivität zeigt sich auch außen an der Hülle. Der Außenrand des Brennstoffs hat ebenfalls einen helleren Ton. Möglicherweise wurde hier bereits etwas Pu gebildet.

7. Spezielle Untersuchungen

Wie schon eingangs erwähnt werden parallel zu den Standard-Untersuchungen an besonders interessanten Einzelproben spezielle Untersuchungen durchgeführt. Radiochemische Spaltproduktbestimmungen, Untersuchungen der Röntgenfeinstruktur und analytische Arbeiten mit einer Mikrosonde sind hier die wesentlichsten Arbeitsrichtungen.

Im folgenden sollen die radiochemischen Spaltproduktbestimmungen kurz umrissen werden. Ziel dieser Arbeiten ist eine detaillierte Kenntnis der Wanderung aller wichtigen bei der Spaltung gebildeten Nuklide bzw. Elemente in der Brennstoffmatrix. Zu diesem Zweck werden nach der Bestrahlung aus einem Brennstoffprüfling eine Reihe von kleinen Materialproben (ca. 1-2 mm³) mit Hilfe eines Ultraschallhammers entnommen und auf bestimmte Spaltprodukte hin analysiert. Fig. 22 zeigt eine solche Spaltproduktverteilung für einen Brennstoff-Säulenquerschnitt. Die stark durchgebogene Kurve für das Cs¹³⁷ läßt eine Abreicherung des Nuklids in der Brennstoffmitte verbunden mit einer Anreicherung in der Außenzone erkennen. Für Ce¹⁴⁴ ist ein solcher Effekt nicht eindeutig erkennbar. Es ist vorgesehen, sechs weitere Radionuklide in dieser Richtung zu untersuchen, um ein möglichst vollständiges Bild der Spaltproduktverlagerungen zu bekommen.

Beinahe alle speziellen Untersuchungen zielen daraufhin, den Zustand und das Verhalten des Brennstoffs bei hohen und höchsten Abbränden detaillierter kennenzulernen. Die bisher erreichten Abbrände sind programmgemäß noch nicht hoch genug, als daß diese Untersuchungen mehr als vorläufige Ergebnisse hätten liefern können.

Literatur

- [1] J.E. REIN und W.J. MAECK: Burnup Determination of Nuclear Fuels, IDO-14646 (1964)
- [2] B.F. RIDER et al.: The Determination of Uranium Burnup in MWd/ton, GEAP-3373
- [3] B.F. RIDER und C.P. RUIZ: The Determination of Atom Per Cent Fission in Uranium Fuel, Progr. in Nucl. Energy, Vol. 3, 1-3 (1963)

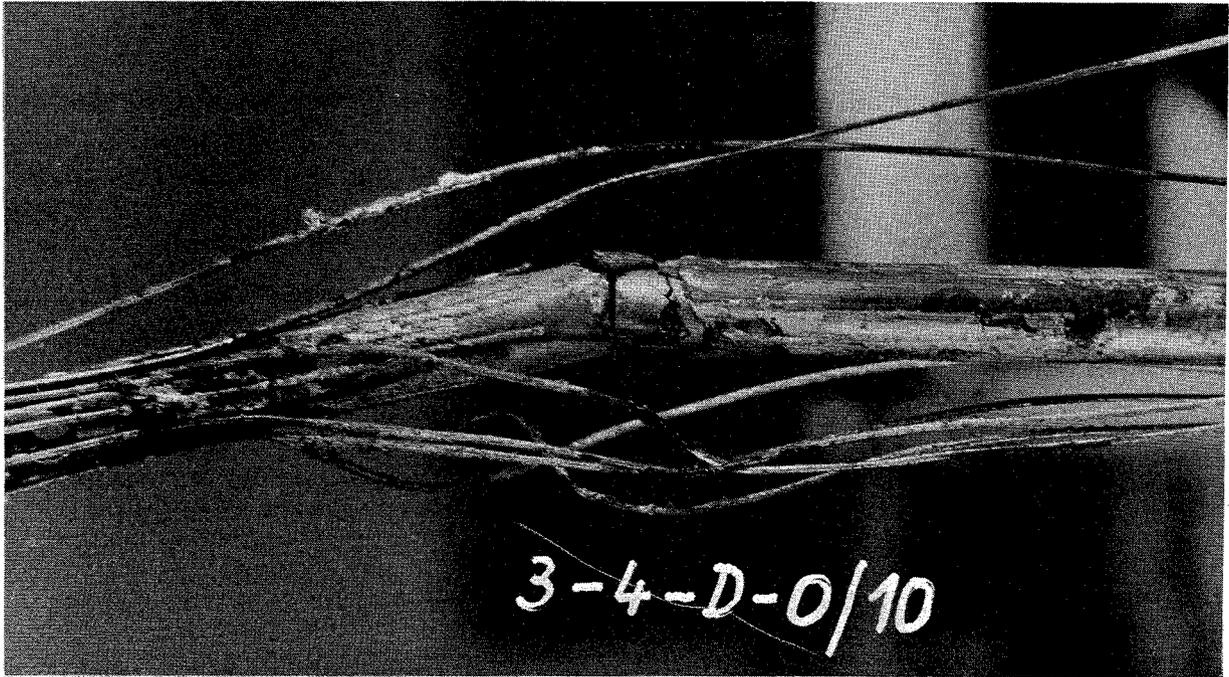


Fig.1

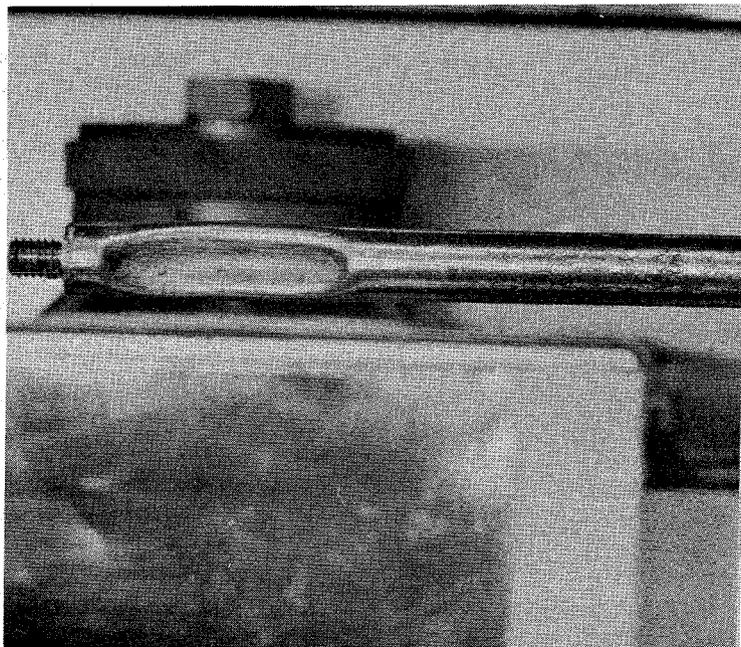


Fig.2



Fig. 3

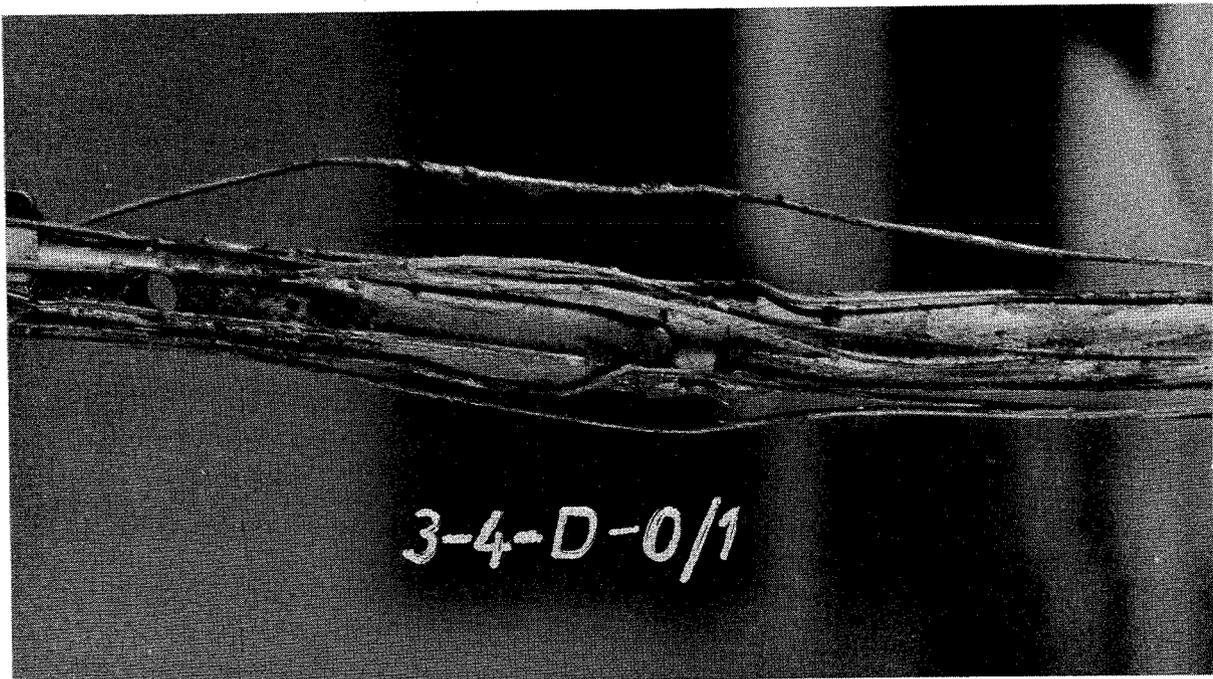


Fig.4

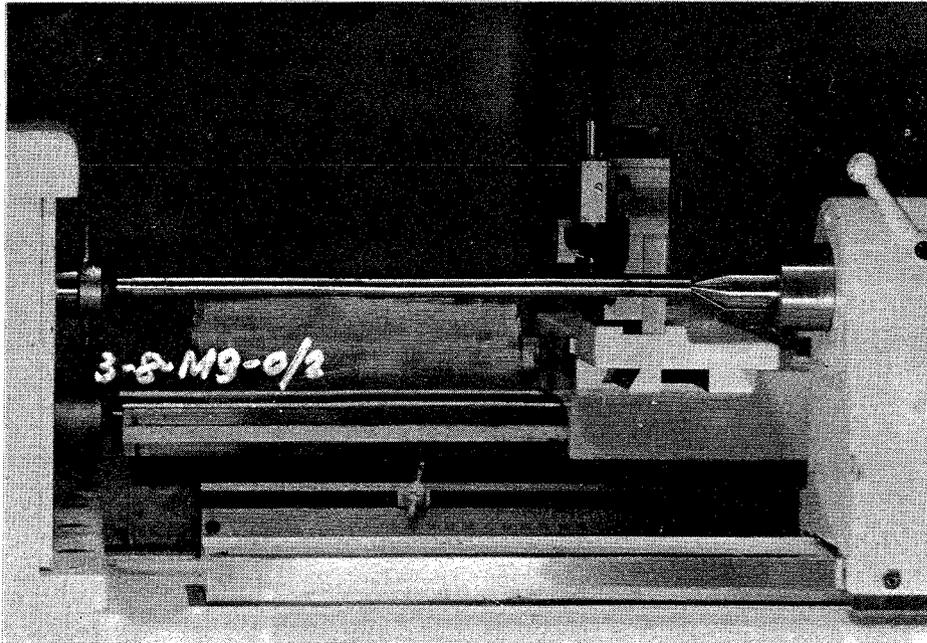


Fig. 5

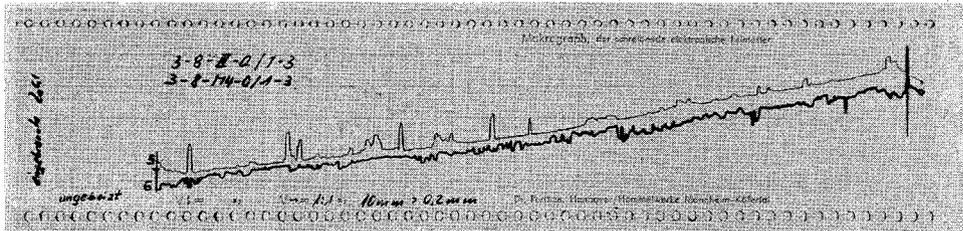


Fig. 6

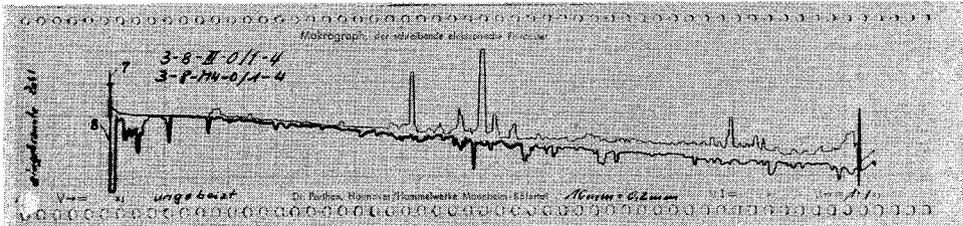


Fig. 7

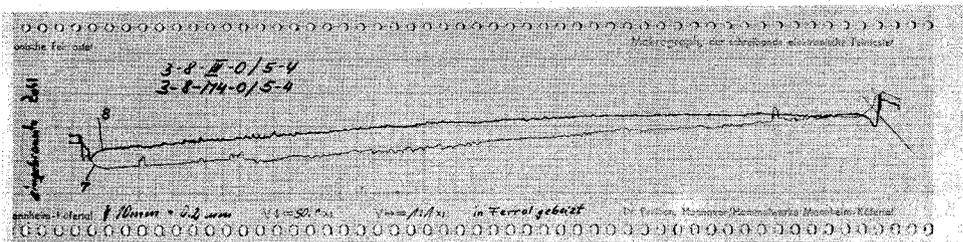


Fig. 8

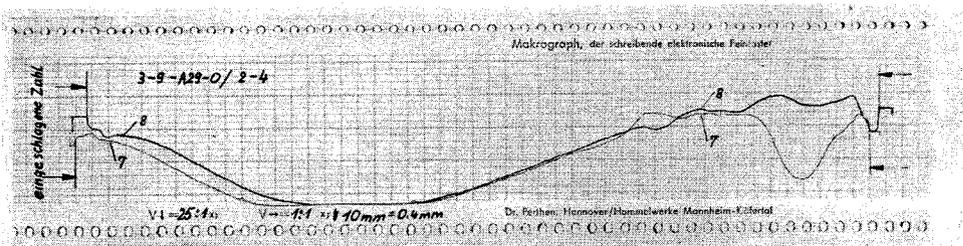


Fig. 9

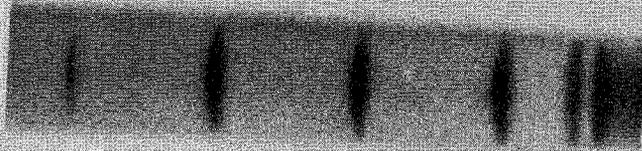


Fig. 10

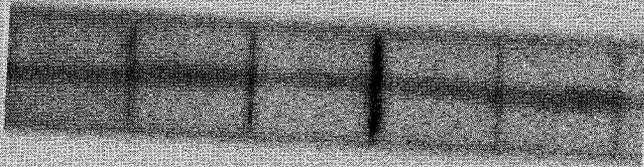


Fig. 11

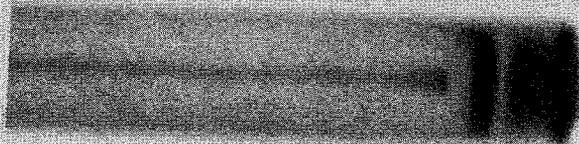


Fig. 12

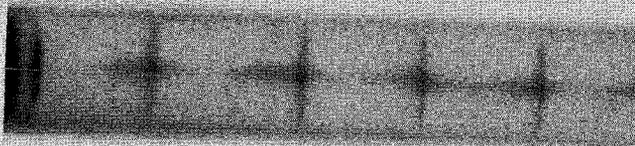


Fig. 13

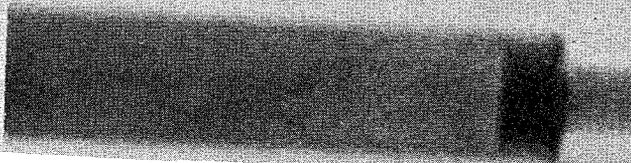
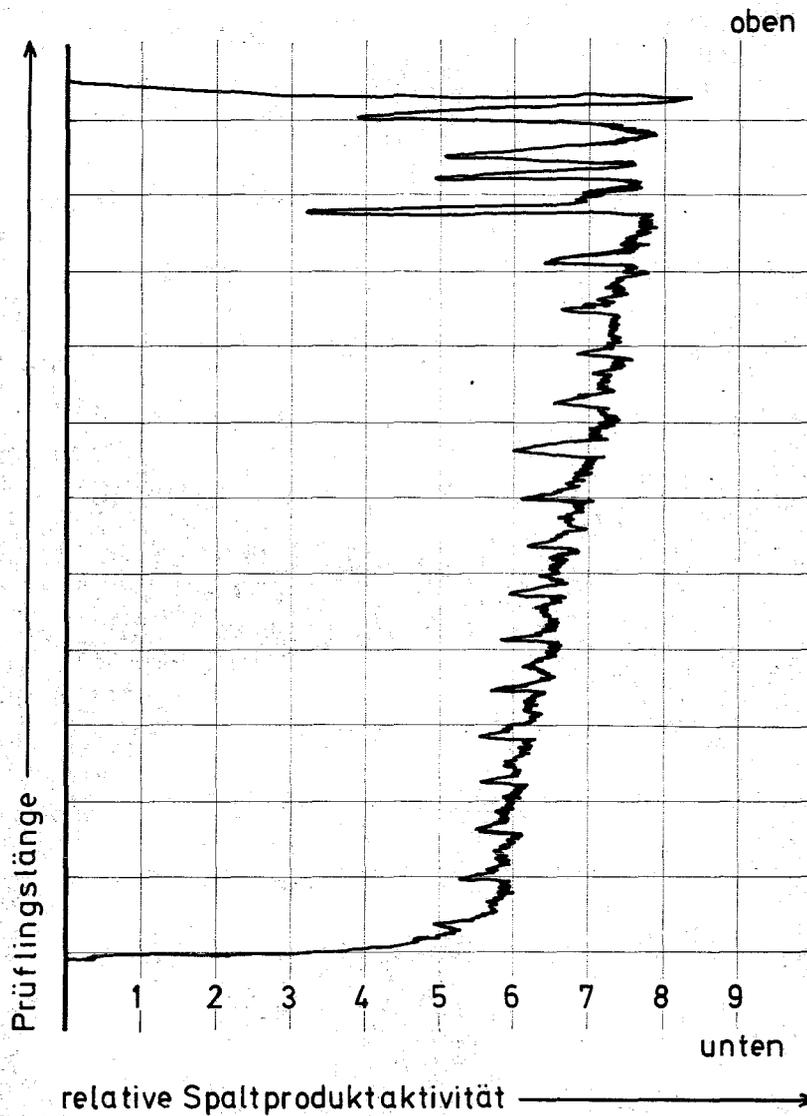


Fig. 14

Fig. 15 Aktivitätsprofil eines Tabletten-
prüflings



Messbereich 600 - 800 KeV

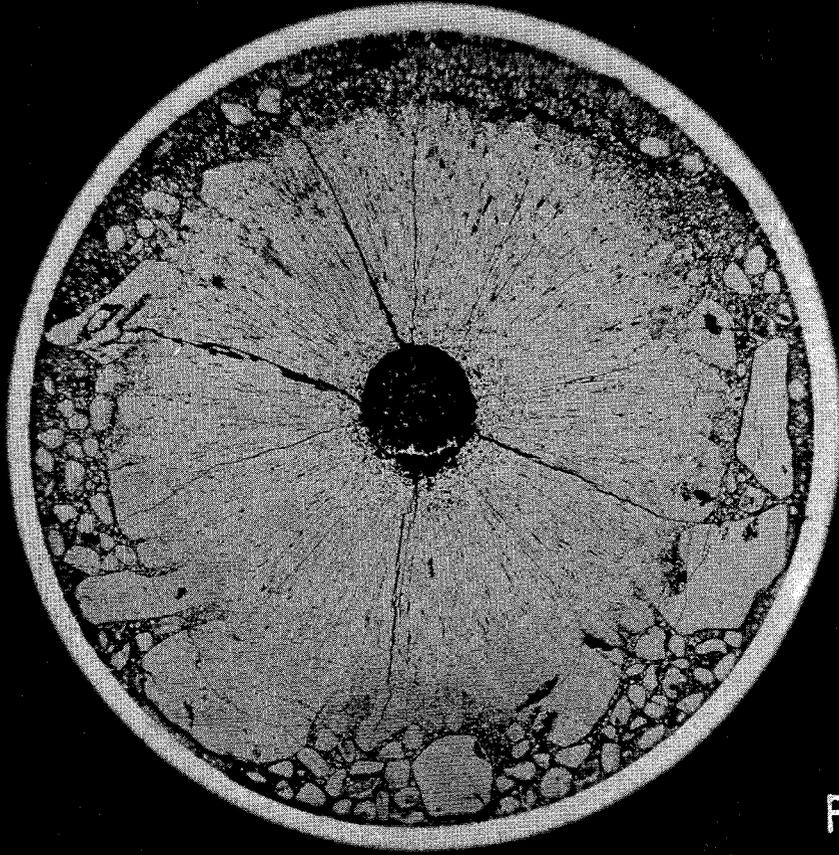


Fig. 16

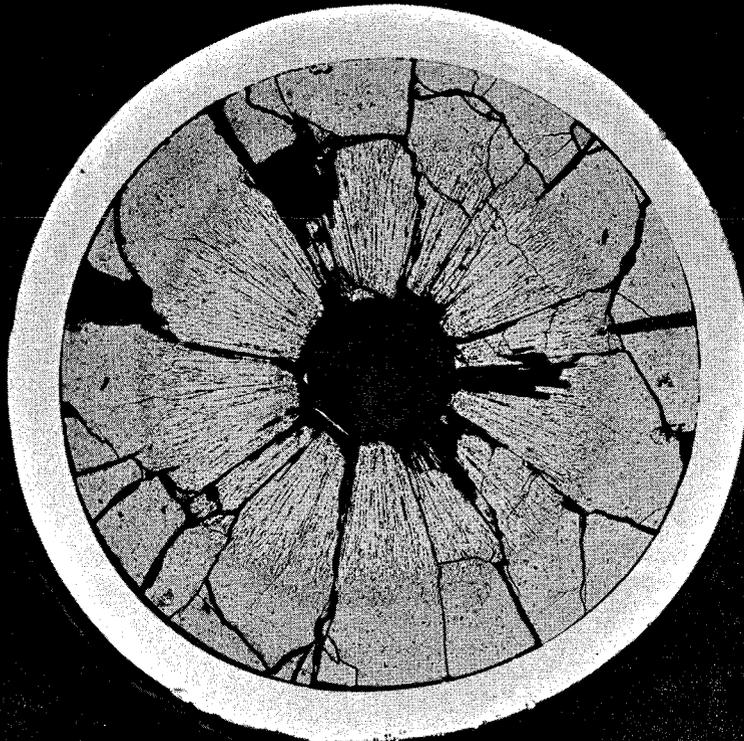


Fig. 18

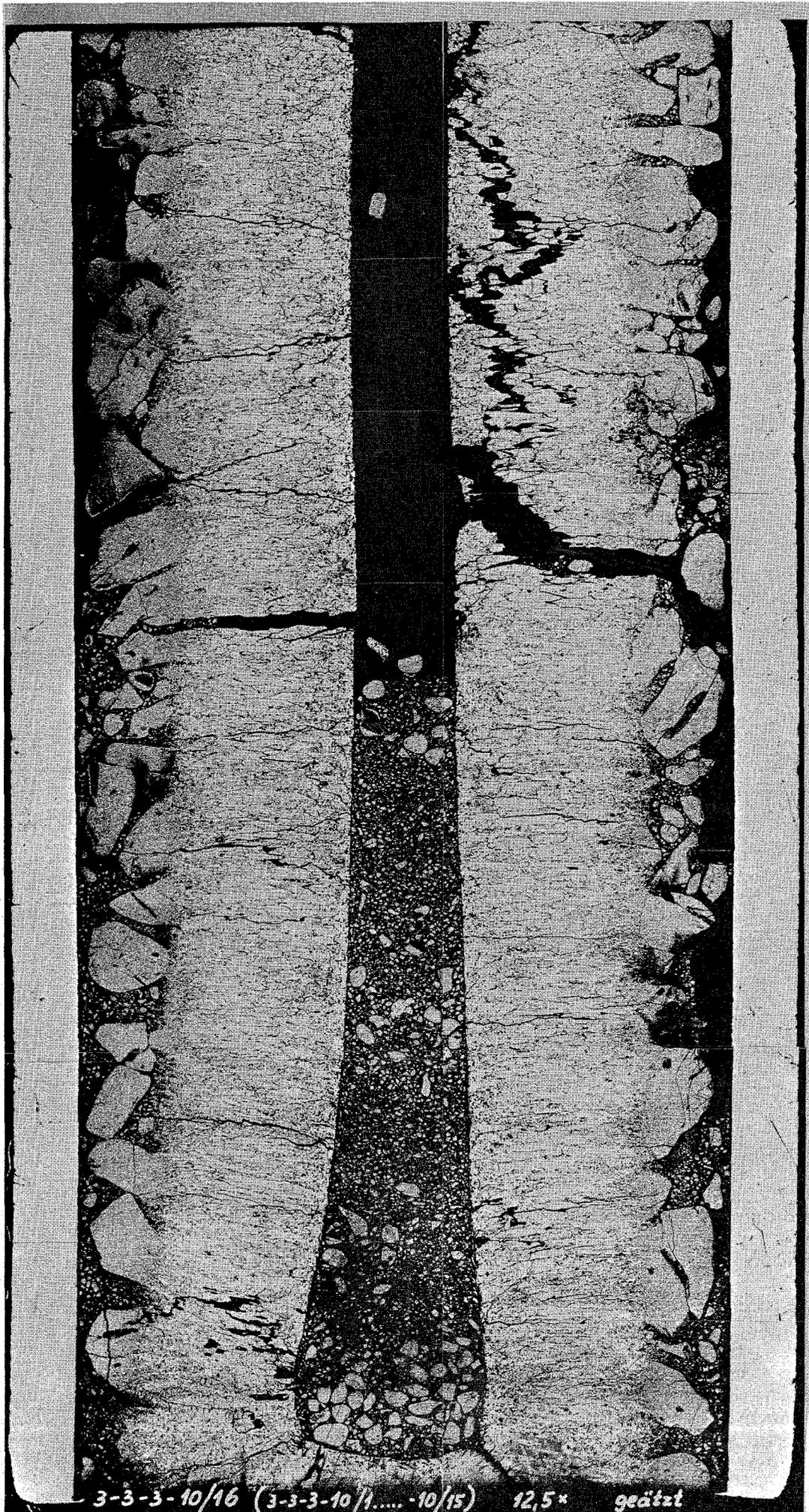


Fig. 17

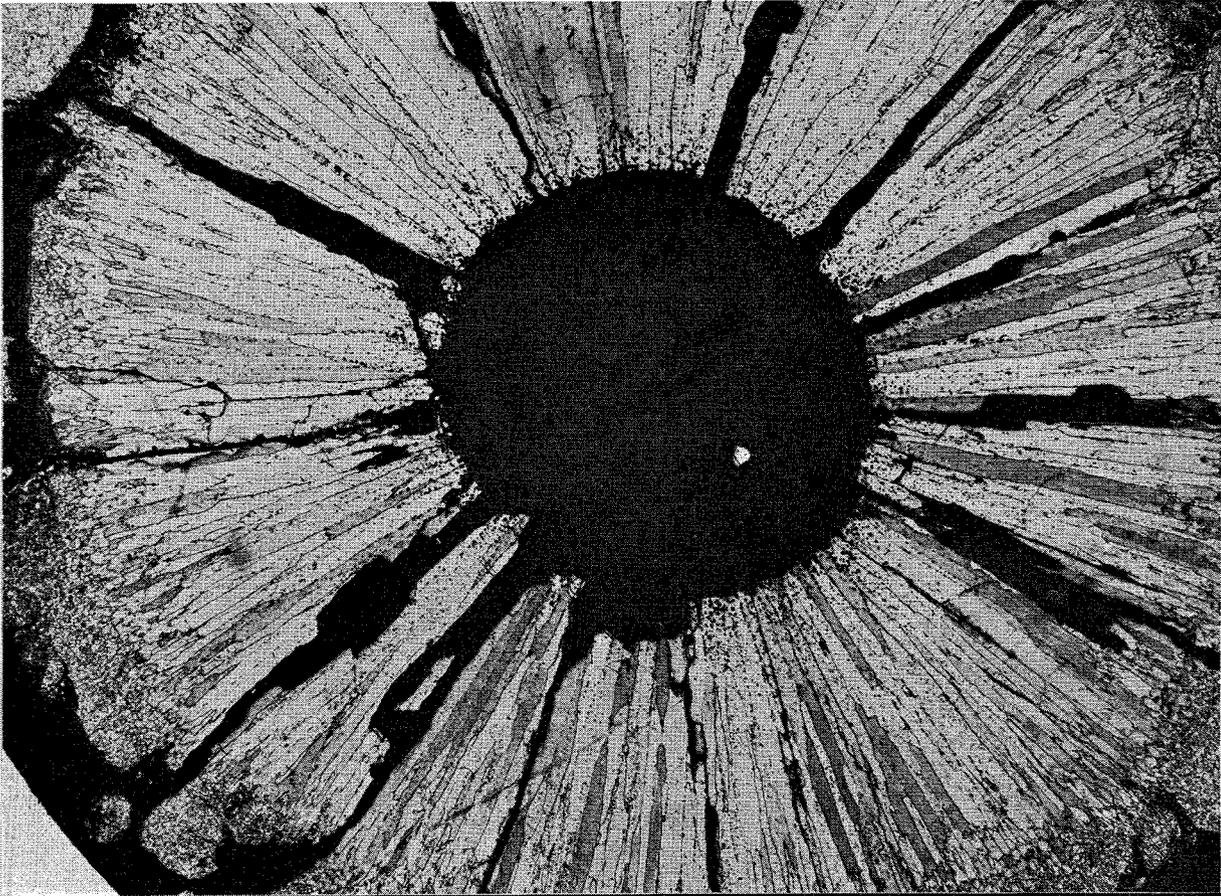


Fig.19

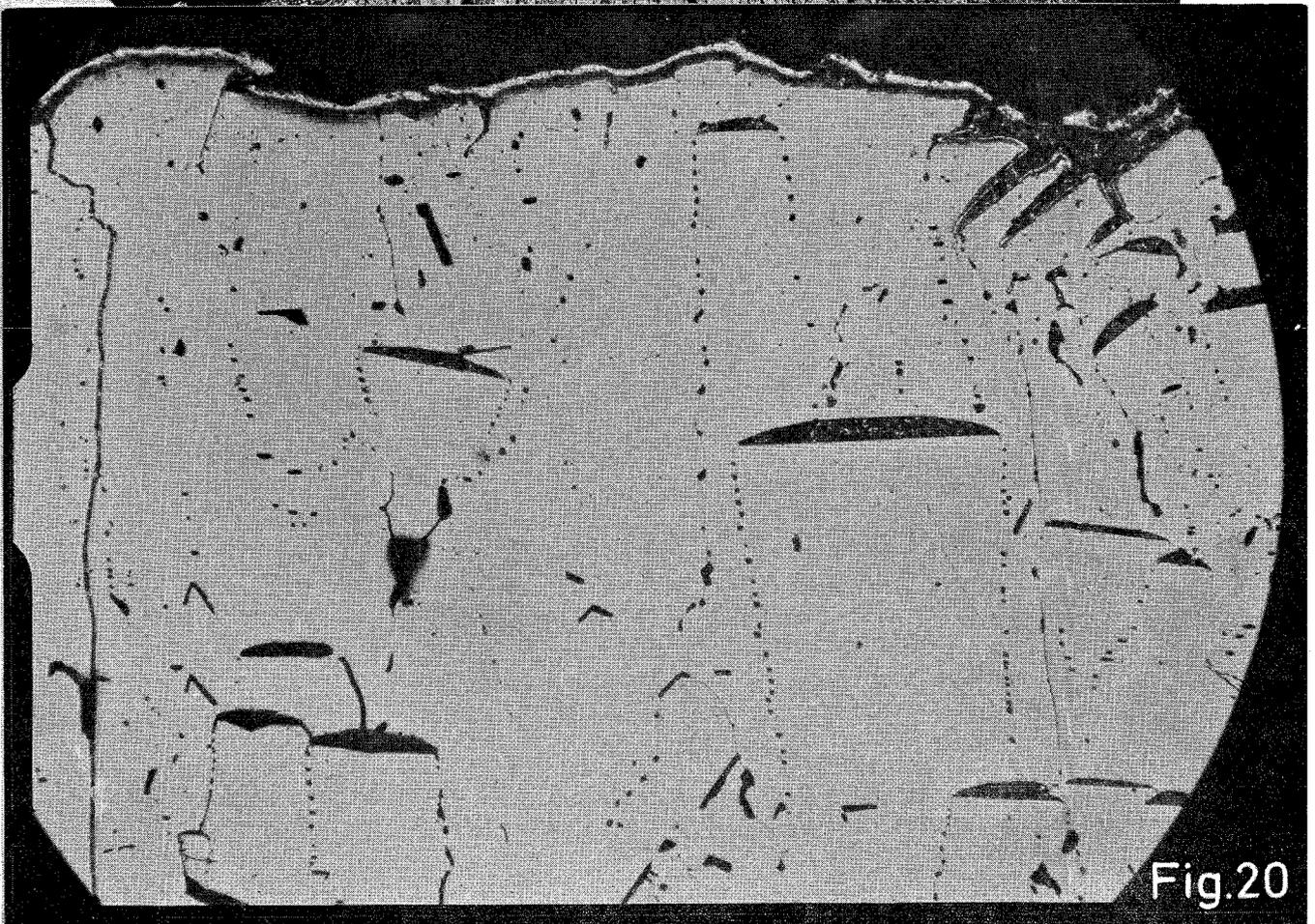


Fig.20

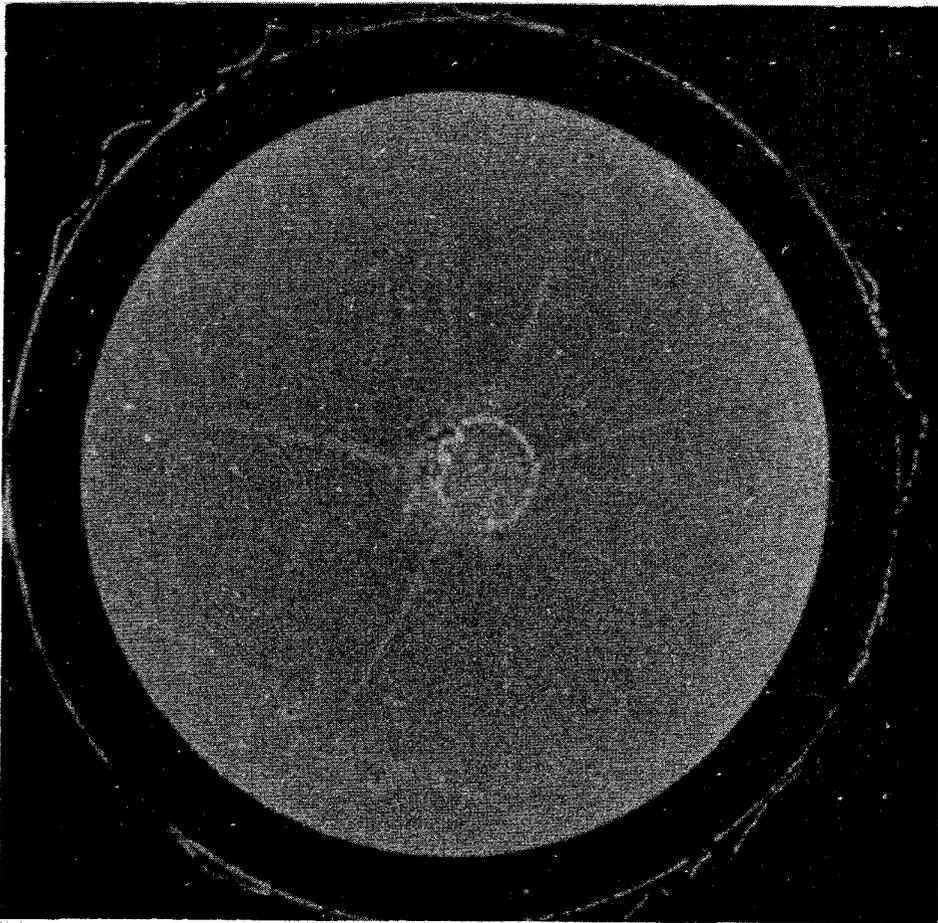


Fig.21

Fig.22 Spaltproduktprofil für Cs^{137} und Ce^{144} 

**XIII. THEORETISCHE BEZIEHUNGEN FÜR Brennelementauslegung
UND Brennelementkosten**

von

K. Kummerer

Inhalt:

1. Einleitung
2. Brennstoffspezifikationen aus Volumenbilanzen
 - 2.1 Totale Schwellvolumenbilanz
 - 2.2 Separate Schwellvolumenbilanzen
 - 2.3 Grenzbedingungen
 - 2.4 Numerische Beispiele
 - 2.5 Lokale Optimalisierung
3. Die Fabrikationskosten von Brennstäben
 - 3.1 Problemstellung
 - 3.2 Parameteranalyse der Brennstoffkosten
 - 3.3 Blanketkosten und mittlere spezifische Kosten
 - 3.4 Numerische Auswertung und Diskussion
4. Das Problem der Brennelement-Theorie

Literatur

1. Einleitung

Das ganze Seminar mit seinen einzelnen Referaten kann nach 3 wesentlichen Leitlinien geordnet werden, nämlich

- es sollte eine zusammenfassende Darstellung der stofflichen Erscheinungen, eine Phänomenologie des Brennelementverhaltens gegeben werden,
- es sollten die Funktions- und Fabrikationsparameter in ihrer Wechselwirkung, hauptsächlich aber bezüglich der Empfindlichkeit der wechselseitigen Beeinflussung herausgearbeitet werden,
- es sollten für diese Parameter funktionelle Beziehungen hergeleitet werden, welche die stofflichen Erscheinungen beschreiben.

Die letztgenannten funktionellen Beziehungen stellen erste Elemente einer umfassenden Brennelement-Theorie dar. Die theoretischen Bemühungen erstrecken sich aber nicht nur auf den rein technisch-wissenschaftlichen Bereich, auch die Probleme der ökonomischen Optimierung lassen sich analytisch behandeln.

In diesem Zusammenhang sei rückblickend auf mehrere theoretische Ansätze hingewiesen, die im Laufe des Seminars neu entstanden oder erneut akzentuiert wurden. Sie beziehen sich auf

- die Wärmeleitfähigkeit im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle
- den Zusammenhang zwischen der Schmierdichte des Brennstoffes und dem maximal erreichbaren Abbrand
- Diffusions- und Kriechmodelle im oxydischen Brennstoff
- Brennstoffzyklus - Optimierung
- das Kriechverhalten der Hülle

Im vorliegenden Referat sollen nun noch zwei theoretische Beiträge angeführt werden, nämlich

- die Herleitung von Brennstoffspezifikationen aus Volumenbilanzen
- die analytische Darstellung der Fabrikationskosten von Brennstäben.

Die beiden Beispiele aus sehr verschiedenen Denkbereichen erheben mit ihren Ergebnissen natürlich nicht den Anspruch letztgültiger

Aussagen. Sie sollen vielmehr die Arbeitsweise deutlich machen, mit der die außerordentlich komplexe Phänomenologie zu durchdringen ist.

2. Brennstoffspezifikationen aus Volumenbilanzen

Unter der Annahme, daß in einem Brennstab keinerlei Wechselwirkungskräfte zwischen Brennstoff und Hülle auftreten (oder nur solche Kräfte, die für eine bestimmte Modellvorstellung vernachlässigbar klein sind), werden für den Brennstoffbereich Volumenbilanzen für die festen und die nicht ins Gasplenum abziehenden gasförmigen Spaltprodukte aufgestellt, aus denen für die Ausgangsdichte und Ausgangskonfiguration des Brennstoffes Bestimmungsstücke gewonnen werden können.

2.1 Totale Schwellvolumenbilanz

Eine derartige Bilanz war bereits der Ausgangsschritt einer entsprechenden Betrachtung in Beitrag V und hat dort zu einer "Abbrandformel" geführt. Diese Bilanz wird hier in eine etwas allgemeinere Form gebracht, um mit den nachfolgenden separaten Volumenbilanzen vergleichbar zu werden.

Der Grundgedanke ist hierbei, daß beim maximal zulässigen Abbrand der "Schwellvolumenbedarf" für die nicht entweichenden Spaltprodukte gerade gleich dem im Brennstoffabschnitt für ein Schwellen verfügbaren Volumen wird. Letzteres setzt sich aus folgenden Anteilen zusammen:

V_G (cm^3/cm)	äußeres Hohlvolumen im Brennstoffbereich, z.B. Spalt zwischen Brennstoff und Hülle
V_D (cm^3/cm)	inneres, makroskopisches Hohlvolumen im Brennstoffbereich, z.B. Einsenkung ("dishing") der Tabletten
V_P' (cm^3/cm)	inneres, mikroskopisches Hohlvolumen (Poren), soweit für das Schwellen verfügbar.

Der gesamte Schwellvolumenbedarf ist gegeben durch

V_R (cm³/cm) den Platzbedarf der festen Spaltprodukte
 V_S (cm³/cm) den Platzbedarf der nicht entweichenden
 gasförmigen Spaltprodukte.

Damit ergibt sich als Ansatz für die Volumenbilanz:

$$V_G + V_D + V'_P = V_R + V_S \quad (1)$$

Um zu einem Ausdruck für das verfügbare Porenvolumen V'_P zu kommen, teilen wir das ganze Brennstoffvolumen V_F in 3 Teile

$$V_F = V_{pl} + V_{kr} + V_{tt} \quad (2)$$

wobei bedeutet

V_{pl} (cm³/cm) den plastischen Brennstoffbereich

V_{kr} (cm³/cm) den Kriechbereich

V_{tt} (cm³/cm) den starren Tieftemperaturbereich

Jeder dieser Bereiche weist die einheitliche Brennstoffporosität p auf, die mit der relativen Brennstoffdichte ρ_F (in % der theoretischen Dichte) einfach verknüpft ist:

$$p = 1 - \rho_F \quad (3)$$

Die Poren in den 3 Bereichen sind nun verschieden verfügbar für das Spaltproduktschwellen. Dies wird durch die Verfügbarkeitsfaktoren

l für den plastischen Bereich

m für den Kriechbereich

n für den Tieftemperaturbereich

angegeben. Somit ergibt sich für das verfügbare Porenvolumen

$$V'_P = p(l V_{pl} + m V_{kr} + n V_{tt}) \quad (4)$$

Die Volumenanteile der 3 Brennstoffbereiche sind nun durch

χ (W/cm)	die Stableistung
T_a ($^{\circ}$ C)	die Temperatur an der Brennstoffoberfläche
T_{kr} ($^{\circ}$ C)	die als scharf angenommene Temperaturgrenze zwischen Tieftemperatur- und Kriechbereich
T_{pl} ($^{\circ}$ C)	die (ebenfalls als scharf angenommene) Grenze zwischen Kriechbereich und plastischem Brennstoff

festgelegt wie folgt:

$$\left. \begin{aligned} V_{pl} &= \alpha \cdot V_F \\ V_{kr} &= \beta \cdot V_F \\ V_{tt} &= \gamma \cdot V_F \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

mit $\alpha + \beta + \gamma = 1$. Die zuletzt eingeführten Bruchteile α, β, γ werden nun für den Fall konstanter Wärmequellendichte, wie sie im schnellen Neutronenfluß praktisch vorliegt, berechnet. Die radiale Temperaturverteilung $r = r(T)$ im Stabquerschnitt ist dann gegeben durch

$$r^2 = r_F^2 \left\{ 1 - \frac{4\pi}{\chi} \int_{T_a}^T kdT \right\} \quad (6)$$

wobei k die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes und r_F den Außenradius des Brennstoffzylinders darstellen. Durch Einführen der Wertepaare in (6)

$$T = T_{kr} \longrightarrow r = r_{kr}$$

$$T = T_{pl} \longrightarrow r = r_{pl}$$

ergeben sich die Bereichsbruchteile zu

$$\left. \begin{aligned} \alpha &= \frac{r_{pl}^2}{r_F^2} = 1 - \frac{4\pi}{\chi} \int_{T_a}^{T_{pl}} kdT \\ \beta &= \frac{r_{kr}^2 - r_{pl}^2}{r_F^2} = \frac{4\pi}{\chi} \int_{T_{kr}}^{T_{pl}} kdT \\ \gamma &= \frac{r_F^2 - r_{kr}^2}{r_F^2} = \frac{4\pi}{\chi} \int_{T_a}^{T_{kr}} kdT \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

Nachdem nun alle Bestimmungsstücke für das verfügbare Porenvolumen definiert sind, wird dieses schließlich mit (3), (4) und (5) zu

$$V_P' = (1 - \varrho_F) (\alpha l + \beta m + \gamma n) V_F = (1 - \varrho_F) g \cdot V_F \quad (8)$$

unter weiterer Einführung der Abkürzung

$$g = \alpha l + \beta m + \gamma n \quad (9)$$

Jetzt sind die Ausdrücke V_R und V_S für den Schwellvolumenbedarf näher auszuführen. Beide sind proportional zum

Abbrand A (MWd pro kg Schwermetall)

Der Platzbedarf für die festen Spaltprodukte ist weiterhin proportional zum 100 % dichten Festkörpervolumen

$$V_R = \varrho_F V_F h_R A \quad (10)$$

wobei die Konstante

h_R (kg/MWd) das relative Schwellvolumen infolge der festen Spaltprodukte

darstellt. Der Platzbedarf für den nicht entweichenden Teil der Spaltgase tritt nur im Kriechbereich auf und ist diesem proportional

$$V_S = \beta V_F h_S A \quad (11)$$

und hier ist die Konstante

h_S (kg/MWd) das relative Spaltgasswellen im Kriechbereich

Nun läßt sich der Ansatz (1) mit Realität erfüllen. Unter Einführung von (8), (10) und (11) ergibt sich als maximale Brennstoffdichte

$$\varrho_F = \frac{\frac{V_G + V_D}{V_F} + g - \beta h_S A}{g + h_R A} \quad (12)$$

Hierzu gehören die Abkürzungen g sowie α , β und γ , wobei in letzteren die Integrale von (7) durch Einführung der konstanten mittleren Wärmeleitfähigkeit \bar{k} aufgelöst werden. Somit:

$$\left. \begin{aligned}
 \alpha &= 1 - \frac{4\pi \bar{k}}{\chi} (T_{pl} - T_a) \\
 \beta &= \frac{4\pi \bar{k}}{\chi} (T_{pl} - T_{kr}) \\
 \gamma &= \frac{4\pi \bar{k}}{\chi} (T_{kr} - T_a) \\
 g &= \alpha \ell + \beta m + \gamma n
 \end{aligned} \right\} (13)$$

Formel (12) wird nun numerisch ausgewertet. Als Beispiel wird genommen:

$$\begin{aligned}
 \chi &= 400 \text{ W/cm} ; \quad \bar{k} = 0,023 \text{ W/cm}^\circ\text{C} \\
 T_a &= 900^\circ\text{C} ; \quad T_{kr} = 1300^\circ\text{C} ; \quad T_{pl} = 1700^\circ\text{C} \\
 \ell &= 0,8 ; \quad m = 0,5 ; \quad n = 0,3 \\
 h_R &= 1,6 \cdot 10^{-3} \text{ kg/MWd} ; \quad h_S = 0,4 \cdot 10^{-3} \text{ kg/MWd}
 \end{aligned}$$

Die Beziehungen (13) liefern damit als Eingabedaten für (12)

$$\begin{aligned}
 \alpha &= 0,448 \\
 \beta &= 0,276 & g &= 0,589 \\
 \gamma &= 0,276
 \end{aligned}$$

Fig.1 bringt die graphische Darstellung von $\mathcal{S}_F(A)$ und zwar für 3 Fälle, nämlich

$$\begin{aligned}
 \text{Fall 1:} \quad V_G &= 0 ; & V_D &= 0 \\
 \text{Fall 2:} \quad V_G &= 0,03 \cdot V_F ; & V_D &= 0 \\
 \text{Fall 3:} \quad V_G &= 0,03 \cdot V_F ; & V_D &= 0,02 \cdot V_F
 \end{aligned}$$

In Fall 1 entspricht die Brennstoffdichte der Schmierdichte. Diese darf bei 400 W/cm und einem Abbrand von z.B. 60 MWd/kg U+Pu also nicht höher als 85 % der th.D. genommen werden.

2.2 Separate Schwellvolumenbilanzen

Die hier folgenden Überlegungen setzen voraus, daß die totale Volumenbilanz, wie sie in 2.1 diskutiert wurde, erfüllt ist, sozusagen als notwendige Bedingung. Auch hinreichend ist diese aber nur

unter der begleitenden Annahme, daß die für das Schwellen zur Verfügung stehenden Hohlvolumina nicht örtlich gebunden, sondern radial frei verschieblich sind. Diese Annahme ist nun bei den üblichen Brennstofftemperaturen zwar sicherlich weitgehend erfüllt, aber nicht selbstverständlich.

Um die Züge eines verfeinerten Brennstoffmodells zu diskutieren, wird nun angenommen, daß die freie Volumenverschieblichkeit nicht mehr gewährleistet ist. Es ist immerhin denkbar, daß dies in den "kalten" Teilen der Brennstäbe, also z.B. in Bereichen um und unter 300 W/cm Stableistung der Realität nahe kommt.

Bei vollständiger lokaler Blockierung der Hohlvolumina müßte man dann eine Anfangsverteilung fordern, die genau dem lokalen Schwellbedarf genügt, also z.B. eine genau gleichmäßige Verteilung über den ganzen Hüllinnenquerschnitt. So ein Brennstoff ist praktisch nicht herstellbar - wegen der radial verschiedenen Porenverfügbarkeiten müßte die Porosität radial sich ändern - und sicher auch nicht notwendig. Ein sinnvoller Zwischenweg für die praktische Auswertung des verfeinerten Modells teilt das ganze Hüllinnenvolumen (Brennstoff + Hohlräume) in 2 Zonen ein, deren Grenzen nicht verschieblich sind. Entsprechend Fig.2 ergibt sich

- eine äußere Zone (Z_1) mit dem "starren" Brennstoffvolumen V_{tt} und dem Spalt V_G
- eine innere Zone (Z_2) mit dem Kriechbereich V_{kr} , dem plastischen Bereich V_{pl} und einem evt. Hohlvolumen (z.B. Einsenkung oder zentrales Loch) V_D

Die in beiden Zonen verfügbaren Schwellvolumina sind

$$\begin{aligned} Z_1 &= V_G + p n V_{tt} \\ Z_2 &= V_D + p (\ell V_{pl} + m V_{kr}) \end{aligned} \quad (14)$$

Die separate Schwellvolumenbilanz für die äußere Zone setzt Z_1 aus (14) in Vergleich mit dem dort herrschenden Schwellvolumenbedarf analog zu (10); Ergebnis mit $\rho_F = 1 - p$:

$$V_G + n p \gamma V_F = (1-p) \gamma V_F h_R A \quad (15)$$

Hierin wird nun die Porosität p nicht durch die Brennstoffdichte ρ_F ersetzt, sondern durch die Schmierdichte ρ_S (% der th.D.). Dabei ist es nötig, den Hüllinnenradius R einzuführen gemäß der Beziehung:

$$(1-p) V_F = \tilde{W} R^2 \rho_S \quad (16)$$

(16) in (15) eingesetzt ergibt als Gleichung für die äußere Zone:

$$V_G + \gamma^n V_F = \tilde{W} R^2 \rho_S \gamma (n + h_R A) \quad (17)$$

Für die innere Zone muß Z_2 aus (14) mit 2 Ausdrücken analog zu (10) und (11) zusammengeführt werden:

$$V_D + p V_F (\alpha l + \beta m) = (1-p) (\alpha + \beta) V_F h_R A + \beta V_F h_S A \quad (18)$$

Formel (18) wird dann noch mit (16) umgebildet mit dem Ergebnis:

$$V_D + (\alpha l + \beta m - \beta h_S A) V_F = \tilde{W} R^2 \rho_S [\alpha l + \beta m + (\alpha + \beta) h_R A] \quad (19)$$

Dazu kommt noch eine dritte triviale Bilanz:

$$V_G + V_D + V_F = \tilde{W} R^2 \quad (20)$$

Die 3 Gleichungen (17), (19) und (20) eignen sich zur Ermittlung der 3 Unbekannten V_G , V_D und V_F . Nach der im Prinzip einfachen algebraischen Auflösung formieren sich die folgenden Resultate

- für das gesamte Brennstoffvolumen:

$$V_F = \tilde{W} R^2 \frac{1 - \rho_S (g + h_R A)}{1 + \beta h_S A - g} \quad (21)$$

- für das Hohlvolumen in der äußeren Zone:

$$V_G = \tilde{W} R^2 \frac{\rho_S \gamma [n(1 + \beta h_S A) + h_R A (1 + n + \beta h_S A - g)] - \gamma^n}{1 + \beta h_S A - g} \quad (22)$$

- für das Hohlvolumen in der inneren Zone

$$V_D = \tilde{W} R^2 \frac{\rho_S h_R A [1 - \gamma(1 + n + \beta h_S A - g)] + (1 - \rho_S \gamma^n) \beta h_S A - (1 - \rho_S)(g - \gamma^n)}{1 + \beta h_S A - g} \quad (23)$$

Daraus werden nun Größen abgeleitet, die für die Spezifikationen des Brennstoffs praktisch bedeutsam sind, nämlich

$$- \text{ die Brennstoffdichte } \rho_F = \frac{\tilde{V}_R^2}{V_F} \cdot \rho_S \quad (24)$$

$$- \text{ der Anteil an innerem Hohlraum } H = \frac{V_D}{\tilde{V}_R^2} \quad (25)$$

$$- \text{ der Anteil an äußerem Hohlraum } G = \frac{V_G}{\tilde{V}_R^2} \quad (26)$$

$$- \text{ das äußere Schwellmaß } d = \frac{V_G}{2FR} \quad (27)$$

Dabei gibt das eben definierte "äußere Schwellmaß" die nötige radiale Anfangsspaltbreite zwischen Brennstoff und Hülle bei Tablettenbrennstoff oder ein äquivalentes voll nutzbares Hohlvolumen in der äußeren Brennstoffzone an.

2.3 Grenzbedingungen

Die praktische Auswertung dieser mit den separaten Schwellvolumenbilanzen erzielten Ergebnisse muß natürlich in einem sinnvollen Anwendungsbereich erfolgen. Es lassen sich allgemeine Grenzbedingungen formulieren, die dies gewährleisten und so ausschließen, daß Volumina negativ werden und dgl. Es zeigt sich, daß 4 derartige Bedingungen ziemlich zwanglos aufzustellen sind:

1. Der innere Hohlraum H kann nicht negativ werden, d.h.
 $V_D \geq 0.$
2. Der äußere Hohlraum G kann ebenfalls nicht negativ werden, d.h. $V_G \geq 0.$
3. Das Brennstoffvolumen kann nicht größer als das Hüllinnen-
volumen sein, d.h. $V_F \leq \tilde{V}_R^2.$
4. Die Brennstoffdichte kann nicht größer als 1 werden,
d.h. $\rho_F \leq 1.$

Aus diesen Bedingungen folgen durch Einführung der ermittelten Beziehungen für V_D , V_G und V_F nach (23), (22) und (21) Ungleichungen, die den Abbrand eingrenzen. Dabei werden die in A quadratischen

Glieder vernachlässigt, da sie sehr wenig Einfluß haben. Es ergibt sich für

$$- V_D \geq 0 : \quad A \geq \frac{(1 - \rho_s) (g - \gamma^n)}{\rho_s h_R [1 - \gamma^{(1+n-g)}] + (1 - \rho_s) \gamma^n \beta h_s} \quad (28)$$

$$- V_G \geq 0 : \quad A \geq \frac{(1 - \rho_s) n}{\rho_s [h_R (1+n-g) + n \beta h_s]} \quad (29)$$

$$- V_F \leq \bar{v}_R^2 : \quad A \geq \frac{(1 - \rho_s) g}{\rho_s h_R + \beta h_s} \quad (30)$$

$$- \rho_F \leq 1 : \quad A \leq \frac{1 - \rho_s}{\rho_s (h_R + \beta h_s)} \quad (31)$$

Die zuletzt angeführte Bedingung (31) ist dabei von prinzipieller Bedeutung. Sie gibt - im wesentlichen abhängig von der Schmierdichte ρ_s - eine obere Grenze des Abbrandes an, unterhalb der eine Brennstabauslegung nach dem Zweizonenmodell möglich ist. Dabei ist die Grenze selbst nur dann erreichbar, wenn die Brennstoffdichte 100 % der theoretischen Dichte ist und somit alles Leervolumen in offenen Hohlräumen konzentriert ist. Dieser Grenzfall wird möglicherweise bei einvibriertem erschmolzenem Oxydpulver angenähert. Ein numerisches Beispiel dieser Grenzbedingung (31) ist für den Fall $\chi = 300 \text{ W/cm}$ und $T_a = 800^\circ\text{C}$ - die anderen nötigen Zahlenwerte gemäß 2.1 - in Fig.3 dargestellt.

Die 3 anderen Beziehungen (28), (29) und (30) geben untere Abbrandgrenzen an. Dies ist aber nur dahingehend zu interpretieren, daß unterhalb dieser Grenzen die Anwendung dieses Brennstoffmodelles nicht sinnvoll ist. Natürlich ist jeder beliebig niedrige Abbrand hinsichtlich des Volumenbedarfs für die Spaltprodukte vorteilhaft. In Fig.4 werden diese unteren Grenzbedingungen wieder für den numerischen Fall $\chi = 300 \text{ W/cm}$ und $T_a = 800^\circ\text{C}$ ausgewertet. Von praktischer Bedeutung ist nur die oberste dieser Grenzen, im vorliegenden Fall diejenige aus $V_D \geq 0$.

2.4 Numerische Beispiele

Für die praktische Auswertung der separaten Schwellvolumenbilanzen werden nun Beispiele zu den formelmäßigen Ergebnissen - Formeln (21) bis (27) - angegeben. Dabei setzen wir folgende "Konstanten" als bekannt voraus:

$$\begin{aligned}\bar{k} &= 0,023 \text{ W/cm } ^\circ\text{C} \\ T_{kr} &= 1300^\circ\text{C} ; T_{pl} = 1700^\circ\text{C} \\ \varrho &= 0,8 ; m = 0,5 ; n = 0,3 \\ h_R &= 1,6 \cdot 10^{-3} \text{ kg/MWd} ; h_S = 0,4 \cdot 10^{-3} \text{ kg/MWd}\end{aligned}$$

Prinzipiell variable Eingabedaten sind:

$$R, \varrho_S, T_a, \chi, A$$

Gesucht wird in Abhängigkeit von diesen Variablen

- die Brennstoffdichte ρ_F
- der innere Hohlraum H
- der äußere Hohlraum G
- bzw. das Schwellmaß d

Für eine graphische Darstellung halten wir hier 3 der variablen Parameter ganz fest, nämlich

$$\begin{aligned}R &= 0,26 \text{ cm} \\ T_a &= 800^\circ\text{C} \\ \chi &= 300 \text{ W/cm}\end{aligned}$$

Für die Schmierdichte ϱ_S werden zwei diskrete Werte betrachtet:

$$\begin{aligned}\varrho_S &= 0,85 \text{ (Fig.5)} \\ \varrho_S &= 0,95 \text{ (Fig.6)}\end{aligned}$$

In den beiden Figuren 5 und 6 sind dann die gesuchten Größen ρ_F , H, G und d in Abhängigkeit vom Abbrand A aufgetragen. Gemäß den Figuren 3 und 4 ist der hier ausgewertete Bereich auch sinnvoll, für die Schmierdichte $\varrho_S = 0,85$ erlauben die Grenzbedingungen einen Abbrand zwischen etwa 50 und 100 MWd/kg, für $\varrho_S = 0,95$ liegt der Bereich nur zwischen 15 und 30 MWd/kg.

Man muß sich darüber im klaren sein, daß die Kurven in den Figuren 5 und 6 nicht die einzigen Möglichkeiten der Brennstoffauslegung angeben, wohl aber jeweils die unter dem Gesichtspunkt der unbedingt

nötigen Brennstoffdichte optimalisierte Konstellation. Wenn also z.B. bei 85 % Schmierdichte 70 MWd/kg U+Pu an Abbrand erforderlich ist, dann muß die Brennstoffdichte - d.h. z.B. die Tablettendichte - 91,4 % th.D. sein. Für den inneren Hohlraum, z.B. in Form einer Ein-senkung in den Tabletten, ist 3,6 % nötig. Der äußere Hohlraum, z.B. in Gestalt des Spaltes zwischen Brennstofftablette und Hüllrohr, muß 3,4 % des Gesamtvolumens aufweisen. Natürlich bleibt dieses Abbrandziel auch erreichbar, wenn über diese Forderungen hinaus die Tablet-tendichte noch höher gewählt wird und dementsprechend auch die freien Hohlräume noch größer sind.

2.5 Lokale Optimalisierung

Während sich die numerische Auswertung der separaten Schwellvolumenbilanzen in 2.4 auf eine bestimmte repräsentative Stelle des Brennstabes - an der eben $T_a = 800^\circ\text{C}$ und $\chi = 300 \text{ W/cm}$ herrscht - bezog, kann man das System der ermittelten mathematischen Beziehungen auch in flexibler Weise ausnützen. In erster Linie bietet sich hierbei eine axiale Optimalisierung in der Weise an, daß jedem Stababschnitt die höchstmögliche Schmierdichte zugeteilt wird. Es ist hierbei der funktionelle Zusammenhang

$$Q_s = Q_s(\chi, A, T_a; Q_F, H, G)$$

bei konstantem R in Richtung Q_s zu maximalisieren. Dieser Zielrichtung liegt der Gedanke zugrunde, durch zunehmende Dichte an den großen kälteren Abschnitten eines Brennstabes die mittlere Schmierdichte zu erhöhen. Dies würde

- zur axialen Flußabflachung beitragen,
- die kritische Masse der Spaltzone erniedrigen,
- die interne Brutrate erhöhen.

Eine andere Stufe der lokalen Optimalisierung hat sich der radial verschiedenen Beanspruchung in der Reaktorspaltzone anzunehmen. Der Effekt der radialen Flußabflachung, wie er in den großen Schnellbrüter-Referenzentwürfen durch Aufteilung in 2 Zonen verschiedener Spaltstoffanreicherung erreicht wird, ließe sich durch lokale Anpassung der anderen Brennstoffspezifikationen weiter akzentuieren.

3. Die Fabrikationskosten von Brennstäben

Das Ziel dieser Studie ist es, für Brennstäbe die Abhängigkeit der Fabrikationskosten von verschiedenen bedeutsamen Parametern zu analysieren und formelmäßig darzustellen; dabei wird vielfach auf eine detaillierte Kostenanalyse verwiesen, die kürzlich auf einem Symposium vorgelegt wurde [1]. Wir wiederholen hier die wichtigsten Einzelheiten der Herleitung und der Ergebnisse und fügen weiterhin einen zusätzlichen Vergleich mit früheren Kostenhypothesen an. Die ganze numerische Auswertung bezieht sich auf Zahlenbereiche, die für schnelle Reaktoren typisch sind.

3.1 Problemstellung

Die Fabrikationskosten der Brennstäbe sollen in Bezug auf die jeweils enthaltene Menge an Uran und Plutonium ("Gehalt von Schwermetall") spezifiziert werden. Im einzelnen sollen angegeben werden

- die spezifischen Brennstoffkosten F (DM/kg U+Pu), die sich auf die Menge U+Pu in der Spaltzone des Brennstoffes beziehen,
- die spezifischen Achsialblanketkosten B (DM/kg U), welche die zusätzlichen Kosten für die achsialen Brutmäntel - bezogen auf die dortige Menge an U - enthalten,
- die mittleren spezifischen Kosten K (DM/kg U+Pu), welche den auf die Gesamtmenge an U+Pu bezogenen Mittelwert aus den Bereichskosten B und F darstellen.

Eine grundsätzliche Annahme für die Stabauslegung, die der Kostenanalyse zugrunde liegt, ist die "integrierte" Konstruktion des Stabes mit einer Brennstoffzone, achsialen Brutmänteln und einem Spaltgasraum. Alle wesentlichen Stabmerkmale entsprechen dem Referentwurf für einen 1000 MWe natriumgekühlten schnellen Brüter [2]. Eine typische Längenverteilung der Stabbereiche ist in Fig.7 dargestellt. Der für die Berechnungen herangezogene typische Brennstoff besteht aus Mischoxidtabletten mit 15 % PuO_2 und einer Schmierdichte von 85 % der theoretischen Dichte. Die Hülle besteht aus Edelstahl mit einer Wandstärke von 0,35 mm.

Von der Vielzahl der Einflußgrößen werden die nachfolgenden Parameter mit den angegebenen Bereichen bei den Kostenanalysen im

Detail berücksichtigt:

- Brennstoffdurchmesser d (in mm), definiert als der Hüllinnen-
durchmesser
Bereich $5,0 \leq d \leq 8,0$ mm
- Brennstofflänge L_F (in mm), ohne Endkappen und Spaltgas-
raum
Bereich $400 \leq L_F \leq 1200$ mm
- Achsialblanketlänge L_B (in mm), setzt sich evt. aus oberem
und unterem Brutmantel zusammen
Bereich $300 \leq L_B \leq 900$ mm
- Fabrikationskapazität C_F an Pu-haltigem Brennstoff (in t/Jahr
an UO_2 - PuO_2)
Bereich $10 \leq C_F \leq 100$ t/Jahr

Nicht berücksichtigt in den Kostenberechnungen ist der Preis für das U- und Pu-Ausgangsmaterial, ebenso keine Pachten und Zinsen für das Pu während der Verarbeitung. Auch der Wert für die Pu-Verluste ist nicht eingeschlossen. Doch wird eine Arbeitsweise verlangt, bei der die Verlustrate unter 1 % liegt. Vorausgesetzt wird das gegenwärtige europäische Kosten- und Preisniveau und der Ablauf einer kontinuierlichen Produktion mit 100 % Auslastung der Kapazität. Schließlich ist auch die Assemblierung fertiger Brennstäbe zu Brennelementbündel nicht in den hier angeführten Kosten enthalten.

3.2 Parameteranalyse der Brennstoffkosten

Als Ausgangsdaten für die Kostenanalyse standen die von den Firmen NUKEM/ALKEM numerisch kalkulierten Fabrikationskosten zur Verfügung [3], und zwar für die einzelnen Parameterkonstellationen

$$\begin{aligned} d &= 5, 6 \text{ und } 7 \text{ mm} \\ L_F &= 525 \text{ und } 955 \text{ mm} \\ C_F &= 20 \text{ und } 100 \text{ t } UO_2\text{-}PuO_2\text{/Jahr} \end{aligned}$$

In Tabelle 1 sind diese Zahlenwerte, aufgegliedert nach den 8 Kosteninkrementen F_1 bis F_8 , zusammengefaßt. Aus diesen Zahlenwerten lassen sich numerische Formeln für die einzelnen Inkremente

herleiten, Tabelle 2 zeigt als Beispiel den Fall für 100 t/Jahr Brennstoffkapazität. Kombiniert führen diese Inkremente nach leichter Abrundung einiger Koeffizienten zu der allgemeinen Endformel:

$$F = P \left\{ 150 + \frac{1925}{d} + 1470 \left(\frac{1}{d} + \frac{6,5}{d^2} \right) \left(1 - \frac{L_F}{1500} \right) \right\} \quad (32)$$

Dabei ist P der kapazitätsabhängige Faktor:

$$P = \left(\frac{100}{C_F} \right)^{0,4} \quad (33)$$

Der Faktor P entspricht in seiner Form einem Potenzgesetz der Gesamtkosten mit einem "Degressionsexponenten" von 0,6. Dies deckt sich mit den Erfahrungen in der chemischen Fabrikationstechnik.

3.3 Blanketkosten und mittlere spezifische Kosten

Die zusätzlichen spezifischen Kosten für axiale Brutmäntel hängen nicht von deren Länge L_B ab, da die benötigte Menge an UO_2 und der Zusatzbedarf an Hüllrohr dieser Länge streng proportional sind. Es genügt hier, die 3 Kosteninkremente gemäß Tabelle 3 heranzuziehen. Für die Herleitung einer analytischen Beziehung beschränken wir uns nur auf die 100 t/Jahr-Werte, da UO_2 für Schnellbrüterzwecke wohl immer aus einer Großproduktion für thermische Reaktoren abgezweigt wird. Das einfache Ergebnis lautet:

$$B = \frac{934}{d} + \frac{1243}{d^2} \quad (34)$$

Die mittleren spezifischen Kosten ergeben sich schließlich durch entsprechende Wichtung aus F und B:

$$K = \frac{L_F}{L_F + L_B} \cdot F + \frac{L_B}{L_F + L_B} \cdot B \quad (35)$$

3.4 Numerische Auswertung und Diskussion

Die numerische Auswertung für die spezifischen Brennstoffkosten F gemäß (32) ist in Fig.8 graphisch dargestellt, und zwar für verschiedene Werte der Brennstofflänge L_F . Die Kapazitätsabhängigkeit nach (33) bringt Fig.9 und die spezifischen Blanketkosten nach (34) Fig.10.

Abschließend ist ein Vergleich mit einfacheren Kostenhypothesen angestellt. Eine derartige frühere Hypothese nahm an, daß die Fabrikationskosten eines einzelnen Brennstabes (bei konstanter Länge) konstant und somit unabhängig vom Brennstoffdurchmesser seien. Dies ist gleichbedeutend mit der Annahme, daß die hier hergeleiteten spezifischen Brennstoffkosten proportional zu $1/d^2$ wären. Um unsere Kostenformeln mit derartigen einfachen Hypothesen praktisch vergleichen zu können, stellen wir den tatsächlichen Kurvenverläufen für F, B und K hypothetische Kurven gegenüber, die von identischen Werten im Referenzpunkt $d = 6$ mm ausgehen. Der Kurvensatz F', B', K' gibt die Hypothese einer reinen $1/d$ -Abhängigkeit wieder, während der Satz F'', B'', K'' die Hypothese der konstanten Stabkosten verkörpert, also

$$\begin{aligned} F', B', K' &\sim \frac{1}{d} \\ F'', B'', K'' &\sim \frac{1}{d^2} \end{aligned} \quad (36)$$

In Fig.11 sind die spezifischen Brennstoffkosten mit dem Vergleich zwischen F, F' und F'' dargestellt, in Fig.12 sind die Blankettkosten B, B' und B'' aufgetragen und in Fig.13 die mittleren spezifischen Kosten K, K' und K''.

In dem ausgewählten Zahlenbeispiel $L_F = 1000$ mm tritt fast keine $1/d^2$ -Abhängigkeit mehr auf. Die hier kalkulierten Kostenarten kommen der $1/d$ -Abhängigkeit viel näher als der alten Hypothese der konstanten Stabkosten. Es ist aber immerhin im Auge zu behalten, daß der $1/d^2$ -Einfluß bei abnehmender Brennstofflänge gemäß (32) wieder zunimmt, wenn er auch in keinem Falle übermäßig werden kann.

Einige Schlußbemerkungen sollen die weitere und allgemeine Anwendbarkeit der bei dieser Studie erzielten Ergebnisse kommentieren wie folgt:

- a) Die absolute Genauigkeit der Kostenarten ist naturgemäß beschränkt, es werden sicherlich Änderungen im Zuge der weiteren Entwicklung und Erfahrung auftreten. Die relative Genauigkeit, z.B. für einen Vergleich verschiedener Brennstoffdurchmesser, ist sicherlich viel höher.

- b) Den Studien lag ein Pu-Gehalt von 15 Gew.% PuO₂ zugrunde. Es wird angenommen, daß sich die Kosten nur wenig ändern, wenn ein anderer Pu-Gehalt im Bereich zwischen etwa 10 und 20 % PuO₂ aktuell ist.
- c) Wenn anderes Hüllmaterial als die hier betrachtete Edelstahlklasse, z.B. eine Ni-Basislegierung mitkalkuliert werden soll, dürften die Kosteninkremente F₅ und B₃ spürbar ansteigen, insbesondere wenn das Material nicht marktgängig ist.
- d) Als Brennstoff-Form wurden hier Tabletten angenommen. Bei vibriertem Pulverbrennstoff lassen erste grobe Schätzungen ein ähnliches Kostenniveau erwarten. Es besteht aber noch viel zu wenig Erfahrung für eine einigermaßen verlässliche Aussage.
- e) Die hier vorausgesetzte 100%ige Auslastung der Fabrikationsanlage stellt einen Idealfall dar. Es ist sicher, daß eine niedrigere Auslastung von z.B. 75 % höhere Kosten erzwingt.
- f) Es kann angenommen werden, daß die Verarbeitung von "schmutzigem" Plutonium, wie es der Brennstoffkreislauf eines schnellen Brütters verlangt, ohne wesentliche Mehrkosten erfolgen kann, wiewohl die Strahlenbelastung durch die höheren Pu-Isotope eine entsprechende Modifizierung einzelner Fabrikationsschritte verursachen wird.

4. Das Problem der Brennelement-Theorie

Trotz aller theoretischen Ansätze ist bis zu einer geschlossenen Brennelement-Theorie noch ein weiter Weg zurückzulegen. Es gelingt aber zunehmend, die Begriffe präziser zu fassen, um damit erst einmal das Problem richtig zu formulieren. Das Wesentliche dabei ist der funktionelle Zusammenhang zwischen den verschiedenen Parametergruppen. Es können 3 solche Gruppen unterschieden werden, nämlich

- die Funktionsparameter E
- die Fabrikationsparameter S
- die ökonomischen Parameter P

Dabei versteht man unter den Funktionsparametern im wesentlichen die gewünschte betriebliche Beanspruchung und unter den Fabrikationsparametern die Elemente der Herstellungsspezifikationen, siehe Beitrag I, Tabelle I. Die ökonomischen Parameter umfassen z.B. die spezifische Brennstoffbelastung, die Fabrikationskosten und ähnliche Elemente des Brennstoffkreislaufes. Wenn nun unter E, S und P Vektoren mit der jeweils nötigen Komponentenzahl verstanden werden, ist die Formulierung des Problems der Brennelement-Theorie gegeben durch

$$S = M (E, P)$$

wobei die Matrix M die Vektoren verknüpft. Das Problem ist gelöst, wenn die Struktur der Matrix M analytisch ermittelt ist. Vorerst beschränken sich die Untersuchungen hauptsächlich auf einen technischen Teilbereich der gestellten Gesamtaufgabe, nämlich auf den Zusammenhang

$$S = M' (E)$$

wobei die gesondert betrachteten ökonomischen Parameter als Randbedingungen vorgegeben werden. Die bisher formulierten analytischen Ergebnisse stellen somit Einzelbeziehungen zwischen verschiedenen Komponenten der definierten Vektoren dar. Die tatsächliche Lösung des Gesamtproblems ist eine langfristige Aufgabe, für die gezielte Einzelexperimente bei definierter Herstellungstechnik unter rationaler ökonomischer Durchdringung das Ausgangsmaterial liefern müssen.

Literatur

- [1] KUMMERER, K.: Production Cost Parameter Analysis for Fast Reactor Fuel Elements, IAEA Symposium on the Use of Plutonium as a Reactor Fuel, Brüssel, 1967, KFK-576
- [2] SMIDT, D., MÜLLER, A.: Referenzstudie für den 1000 MWe natriumgekühlten schnellen Brutreaktor (Na1), 1964, KFK-299
- [3] Alpha-Chemie und -Metallurgie GmbH (ALKEM) und Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH (NUKEM), Interner Bericht

Tabelle 1 Numerische Ausgangsdaten für die Brennstoffkosten F in Deutsche Mark (DM) pro kg U und Pu

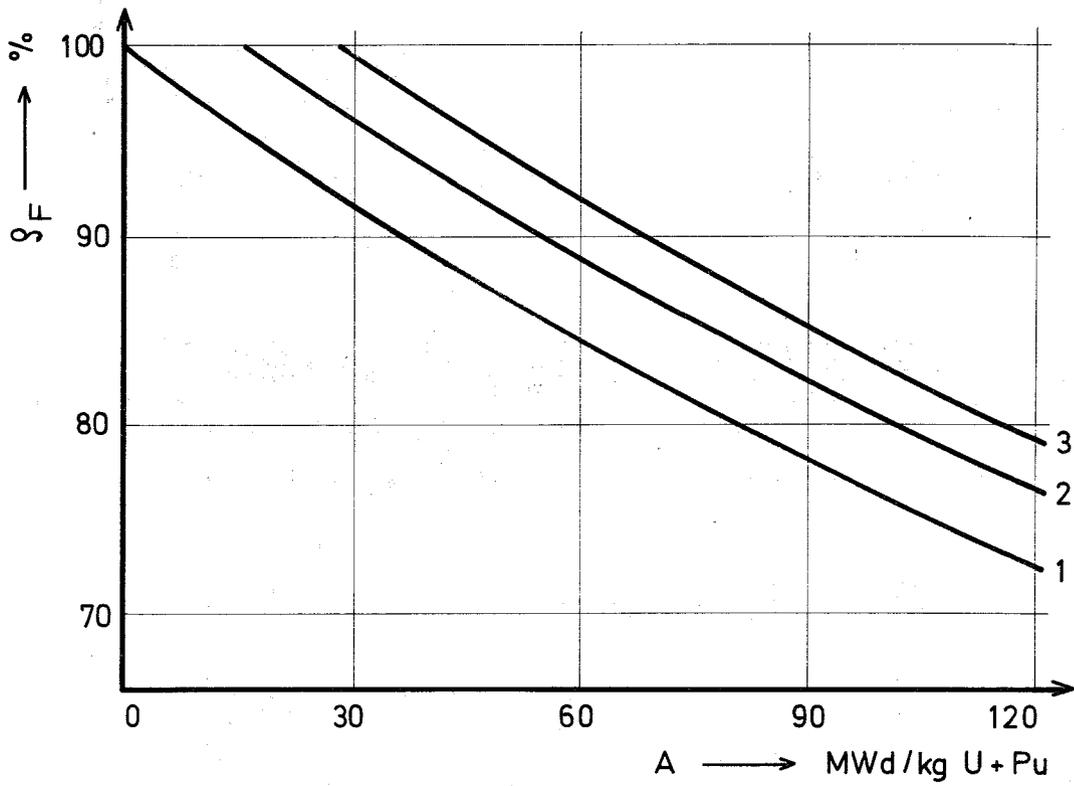
Fabrikationskapazität C_F		20 t Mischoxid pro Jahr						100 t Mischoxid pro Jahr					
Brennstofflänge L_T (mm)		525			955			525			955		
Brennstoffdurchmesser d (mm)		5	6	7	5	6	7	5	6	7	5	6	7
F_1	Kosten für UO_2 -Pulver	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35
F_2	Herstellung des PuO_2 -Pulvers	152	152	152	152	152	152	59	59	59	59	59	59
F_3	Herstellung der Tabletten	363	300	252	363	300	252	171	152	131	171	152	131
F_4	Pu-Analysen	84	84	84	84	84	84	50	50	50	50	50	50
F_5	Hüllrohre	179	129	97	152	111	83	133	96	73	114	82	62
F_6	Stabherstellung	569	438	334	344	262	205	322	240	188	193	146	113
F_7	Kontrollkosten	215	162	127	122	93	72	111	83	66	60	46	38
F_8	Sonstige Kosten	257	239	223	229	215	205	100	92	86	93	82	79
$F = \sum_r F_r$ Summe		1854	1539	1304	1481	1252	1088	981	807	688	775	652	567

Tabelle 2 Inkremente der Brennstoffkosten für die Kapazität 100 t Mischoxid pro Jahr

$$\begin{aligned}
 F_1 &= 35 \\
 F_2 &= 59 \\
 F_3 &= \frac{1072}{d} - \frac{1085}{d^2} \\
 F_4 &= 50 \\
 F_5 &= \left(\frac{126}{d} + \frac{2695}{d^2} \right) \left\{ 1 - 3.40 \times 10^{-4} (L_F - 525) \right\} \\
 F_6 &= \left(\frac{581}{d} + \frac{5145}{d^2} \right) \left\{ 1 - 9.23 \times 10^{-4} (L_F - 525) \right\} \\
 F_7 &= \left(\frac{230}{d} + \frac{1627}{d^2} \right) \left\{ 1 - 10.29 \times 10^{-4} (L_F - 525) \right\} \\
 F_8 &= \left(\frac{857}{d} - \frac{1785}{d^2} \right) \left\{ 1 - 2.02 \times 10^{-4} (L_F - 525) \right\}
 \end{aligned}$$

Tabelle 3 Numerische Ausgangsdaten für die Blanketkosten B in Deutsche Mark (DM) pro kg U

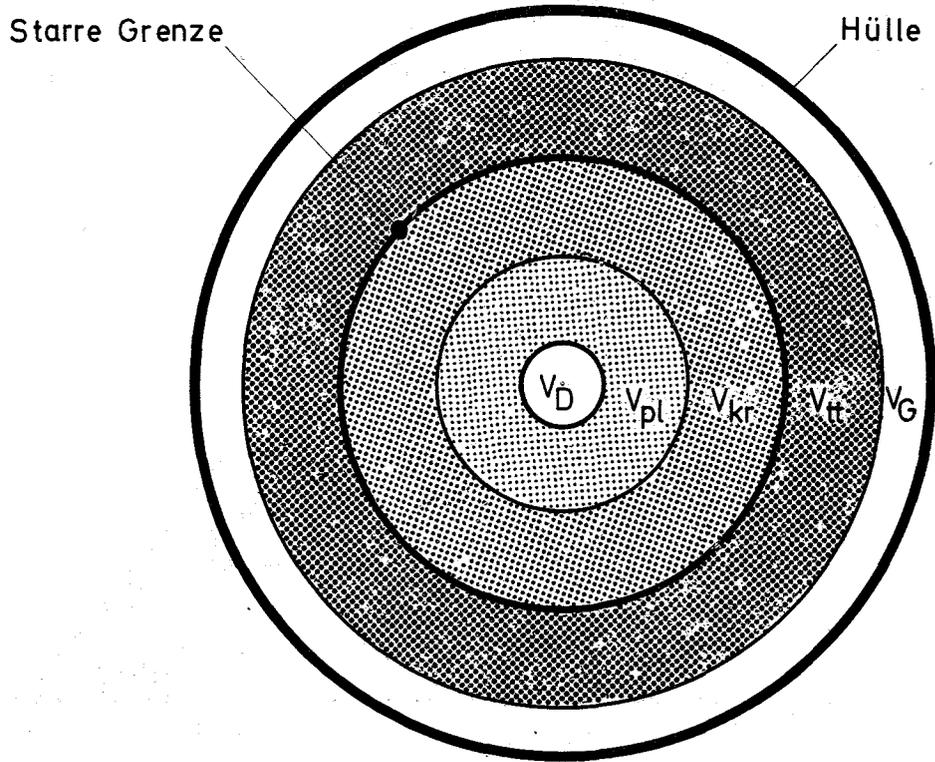
Fabrikationskapazität	20 t UO ₂ pro Jahr			100 t UO ₂ pro Jahr		
	5	6	7	5	6	7
B ₁ Brutstoffdurchmesser (mm)	5	6	7	5	6	7
B ₁ Kosten für UO ₂ -Pulver	41	41	41	41	41	41
B ₂ Herstellung der Tabletten	51	48	42	51	48	42
B ₃ Umhüllung	61	45	34	45	33	25
B = $\sum_{r=1}^3 B_r$ Summe	153	134	117	137	122	108



	Spalt	Einsenkung
Kurve 3	3 %	2 %
Kurve 2	3 %	0
Kurve 1	0	0

für $\chi = 400 \text{ W/cm}$, $T_d = 900 \text{ }^\circ\text{C}$

Fig.1 Maximale Brennstoffdichte



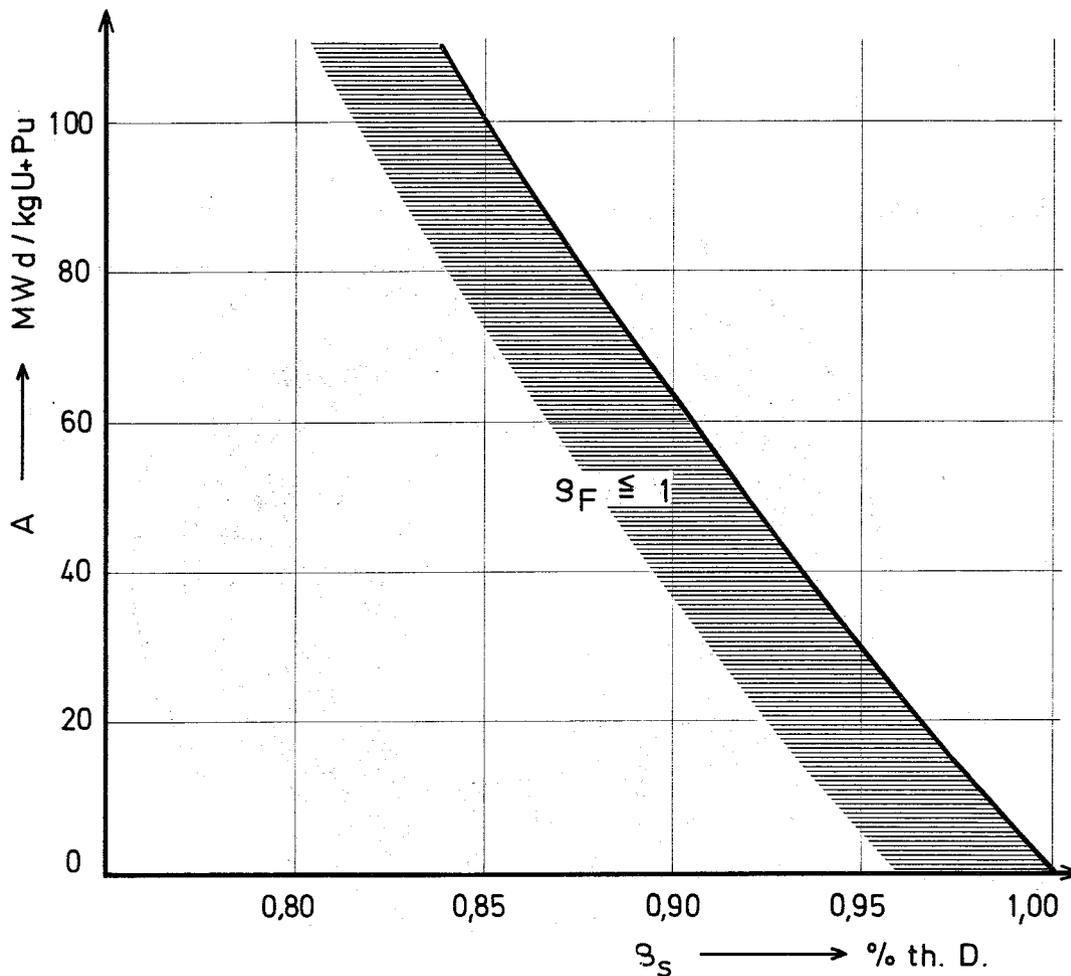
Äußere Zone :

	Spalt	V_G
	Starrer Brennstoff	V_{tt}

Innere Zone :

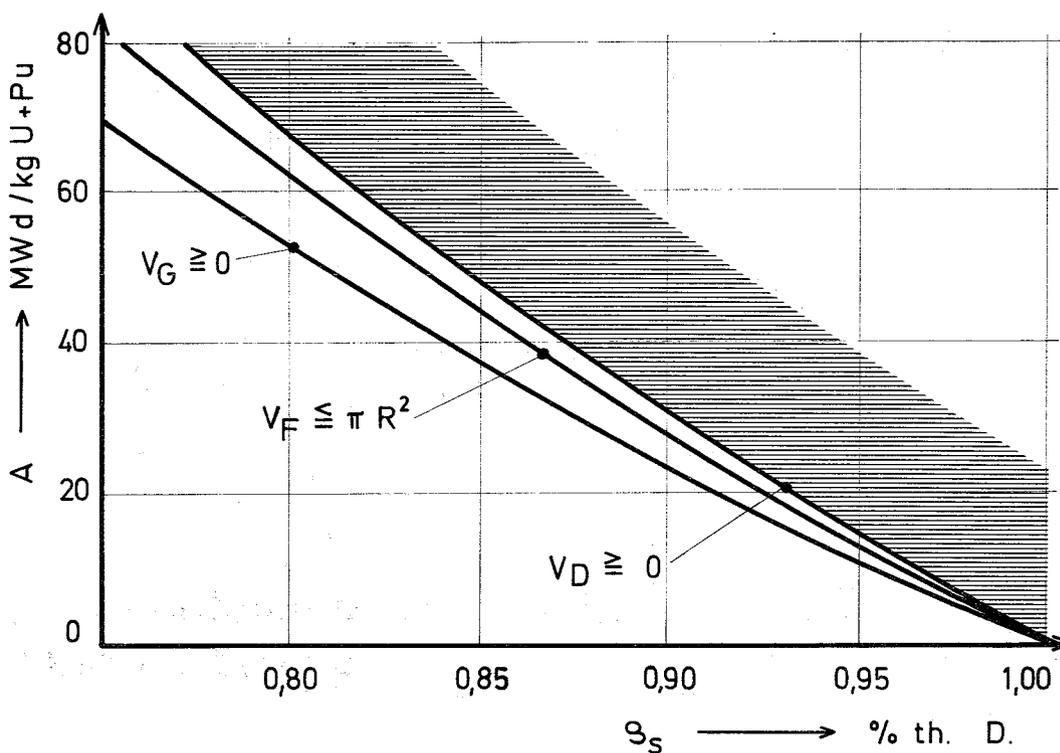
	Kriechbereich	V_{kr}
	Plastischer Brennstoff	V_{pl}
	Hohlraum	V_D

Fig. 2 Zoneneinteilung des Brennstoff-
querschnittes



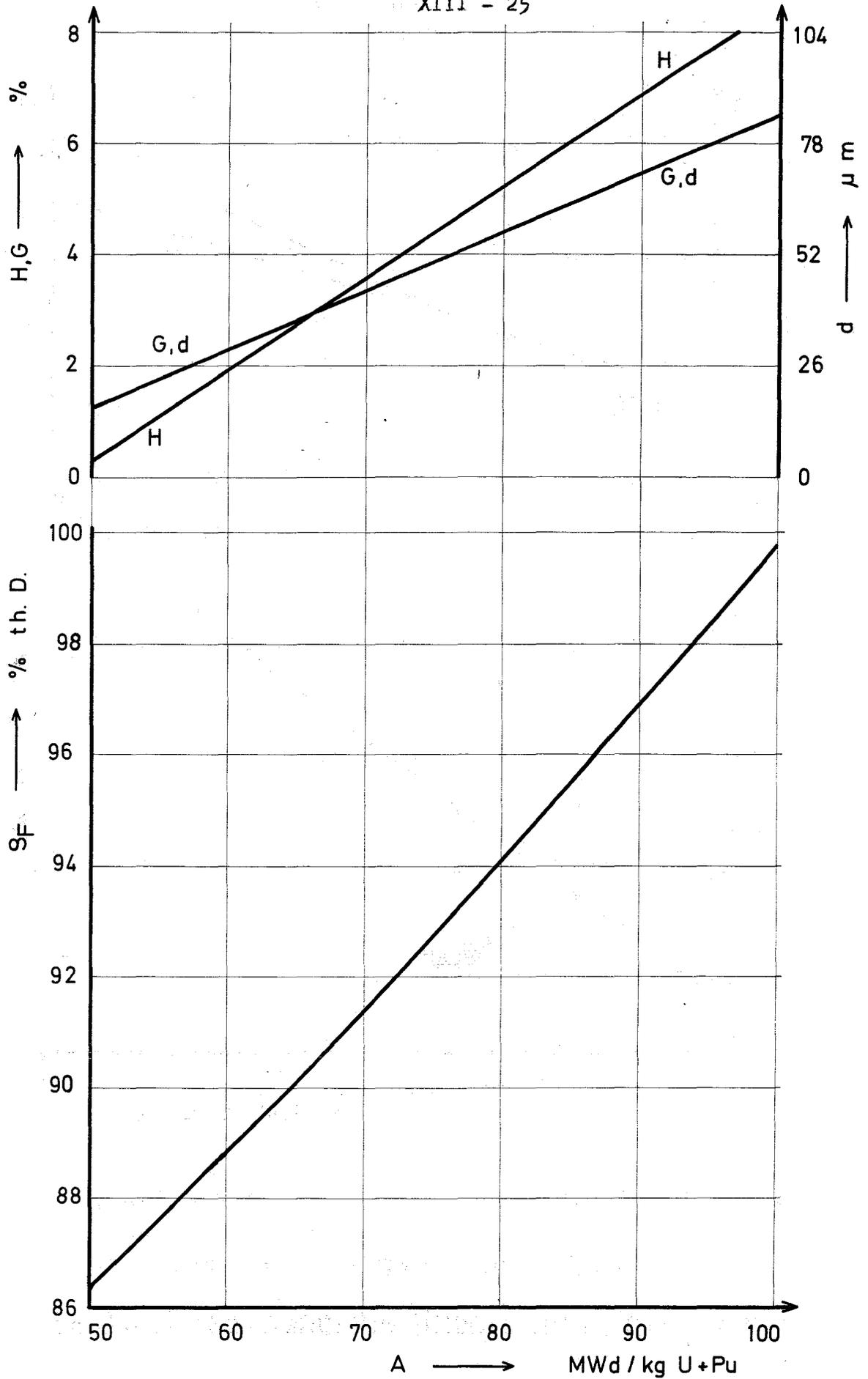
für $\chi_s = 300 \text{ W/cm}$; $T_a = 800 \text{ }^\circ\text{C}$;

Fig.3 Obere Abbrandgrenze



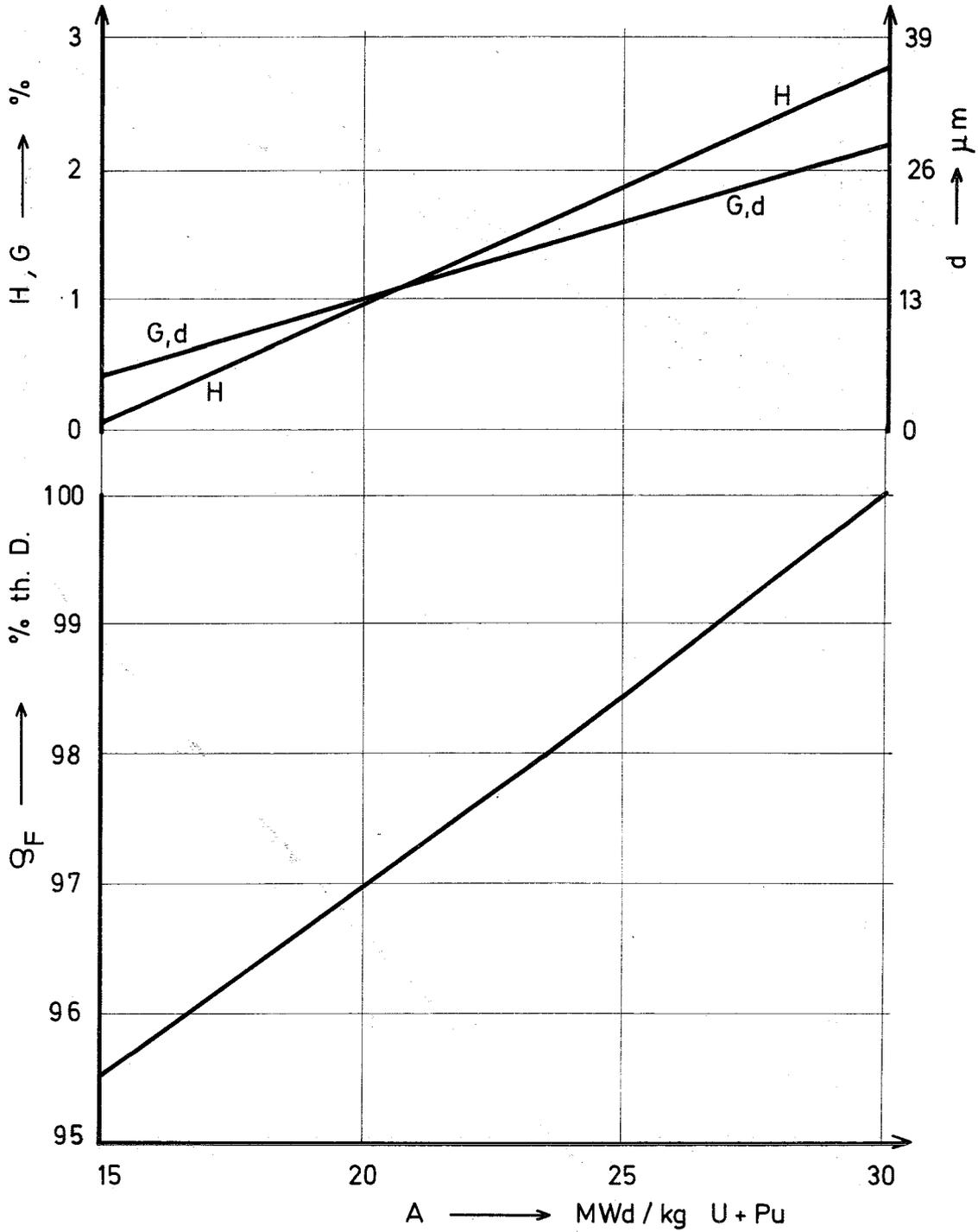
für $\chi_s = 300 \text{ W/cm}$; $T_a = 800 \text{ }^\circ\text{C}$;

Fig.4 Untere Abbrandgrenzen



$\chi_c = 300 \text{ W/cm}; T_d = 800^\circ\text{C}; R = 0,26 \text{ cm}$

Fig.5 Optimale Spezifikationen bei $S_s = 0,85$



$\chi = 300 \text{ W/cm}, T_d = 800^\circ\text{C}, R = 0,26 \text{ cm},$

Fig. 6 Optimale Spezifikationen bei $Q_s = 0,95$

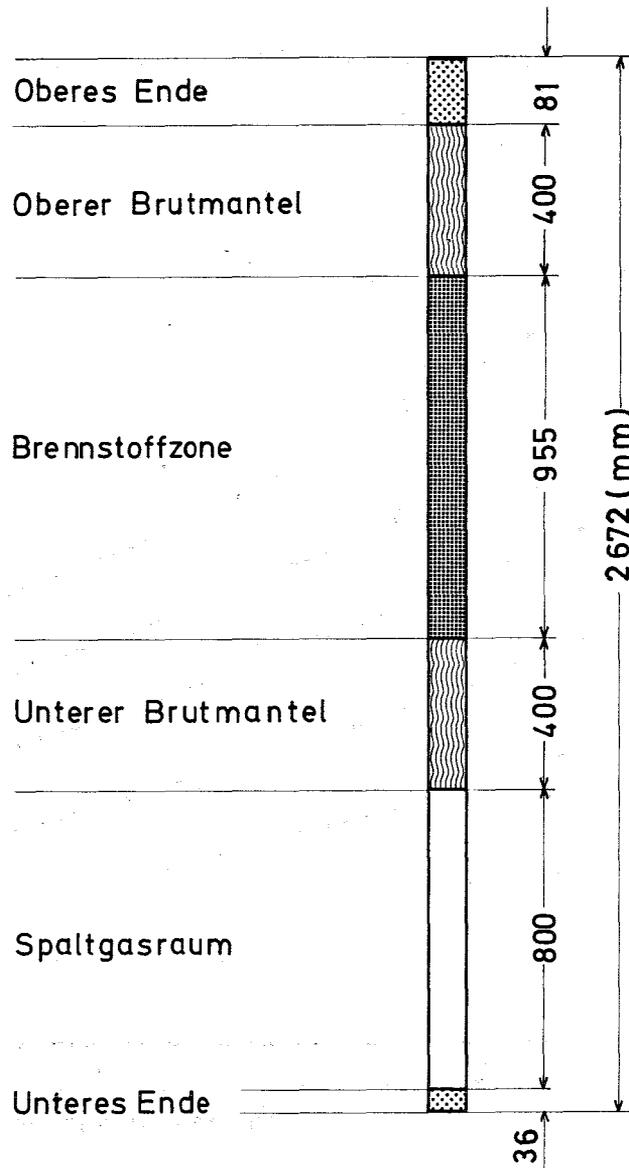


Fig.7 Längenverteilung beim
„Na 1“ Brennstabentwurf

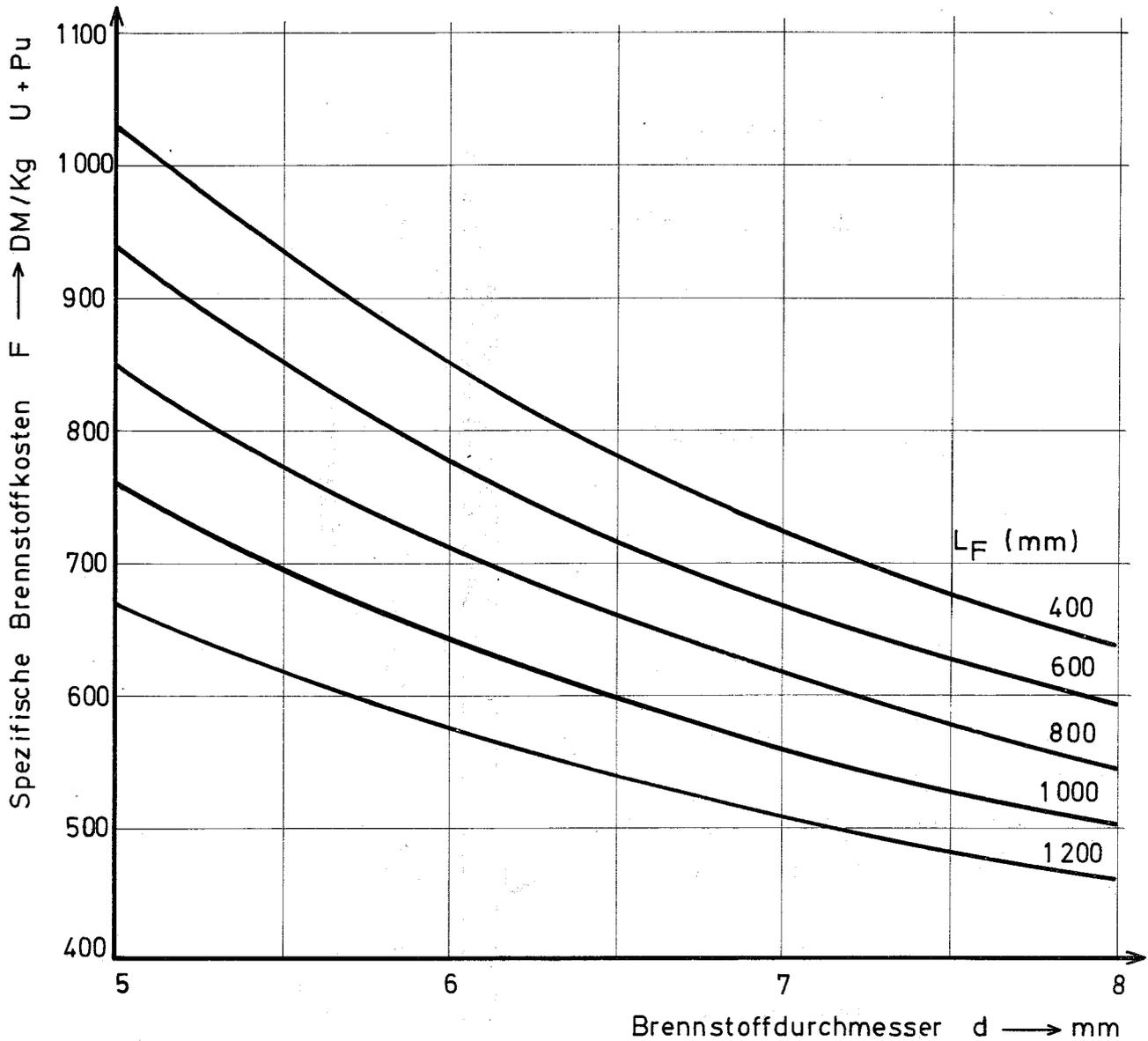


Fig.8 Spezifische Brennstoffkosten bei der Fabrikationskapazität von 100 t UO₂-PuO₂ pro Jahr

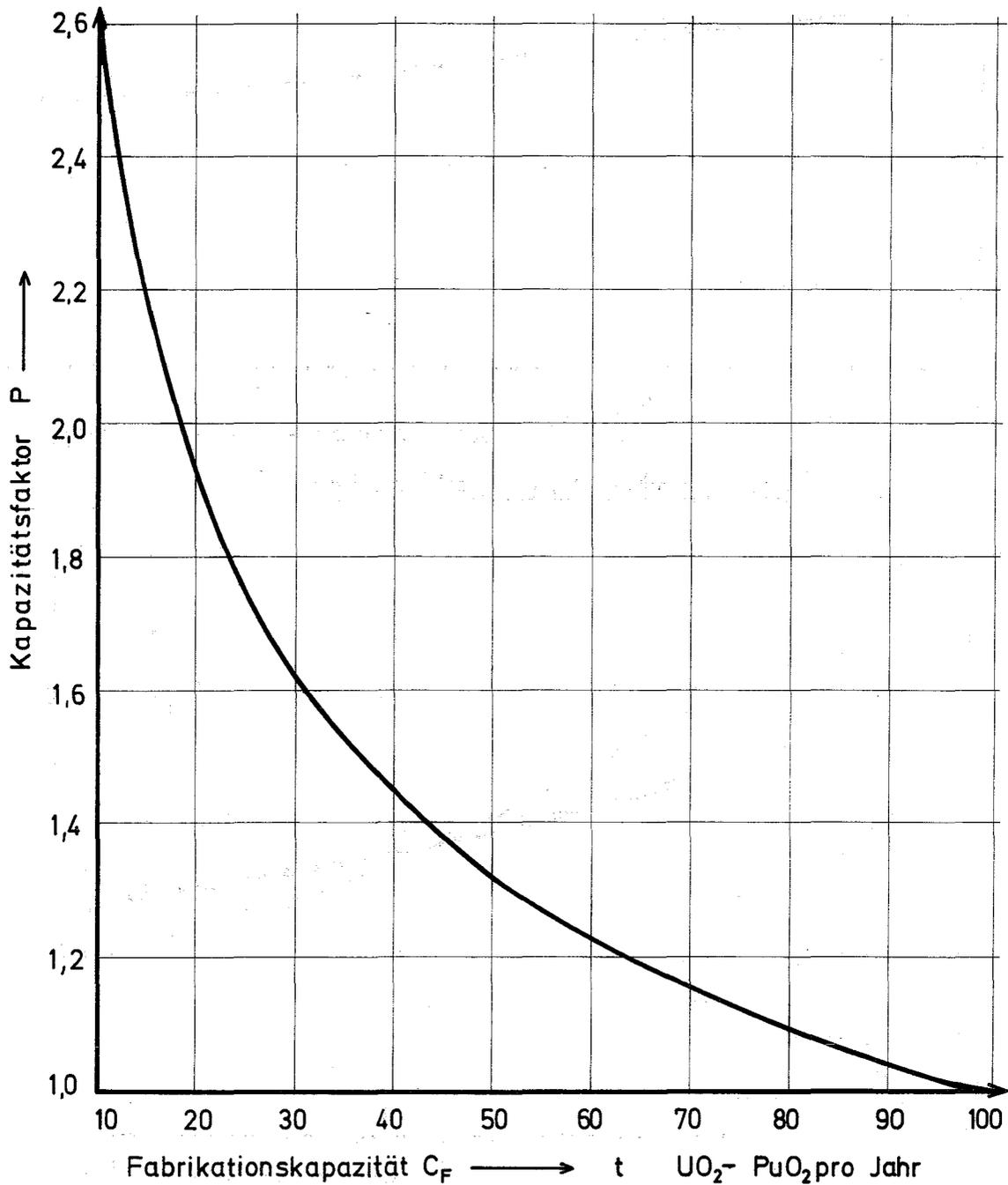


Fig. 9 Kapazitätsabhängigkeit der spezifischen Brennstoffkosten

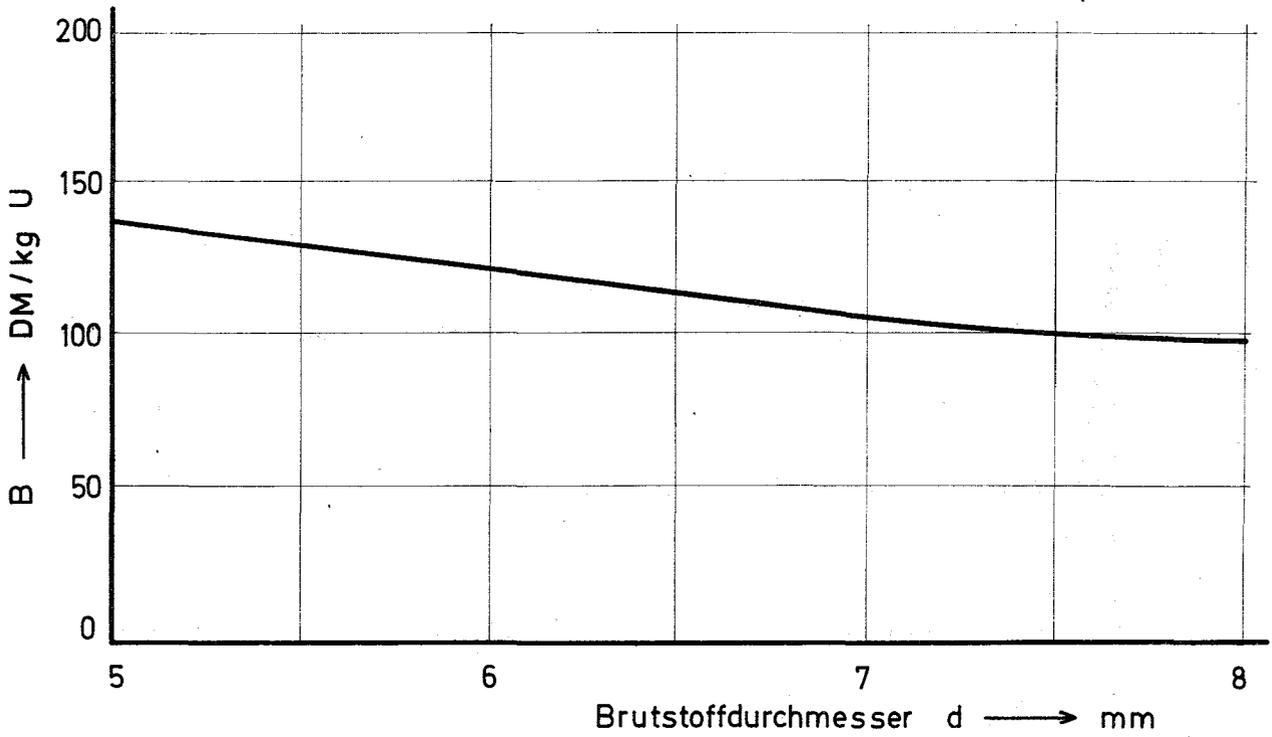
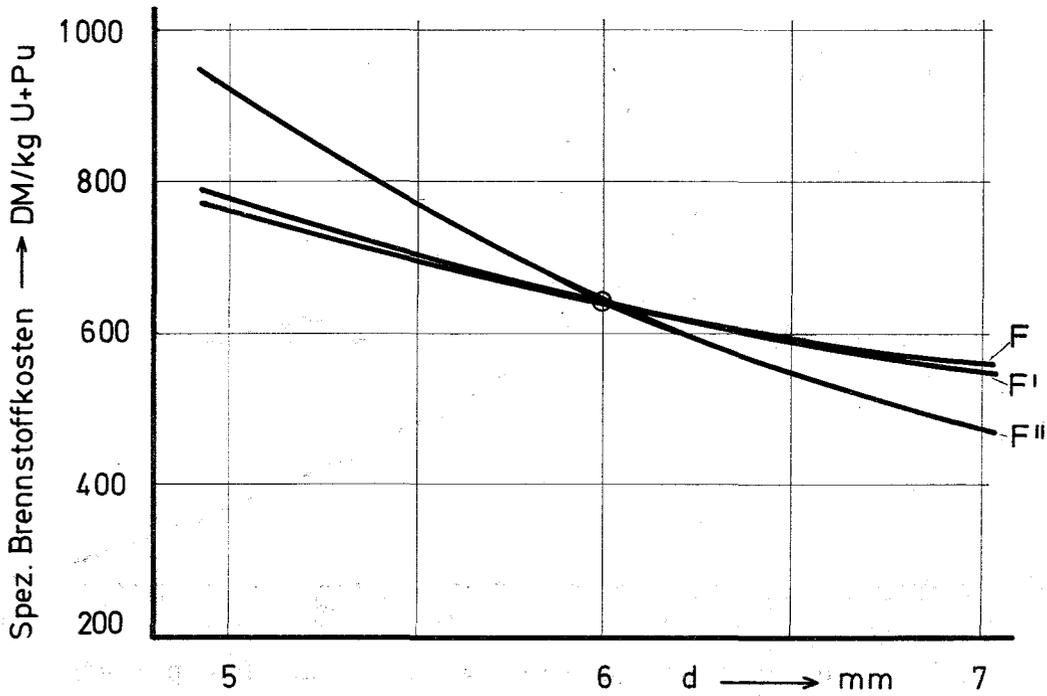


Fig. 10 Spezifische Blanketkosten B



$C_F = 100t \text{ UO}_2 - \text{PuO}_2 \text{ pro Jahr, } L_F = 1000 \text{ mm,}$

Fig. 11 Vergleich der Kostenhypothesen für die spezifischen Brennstoffkosten

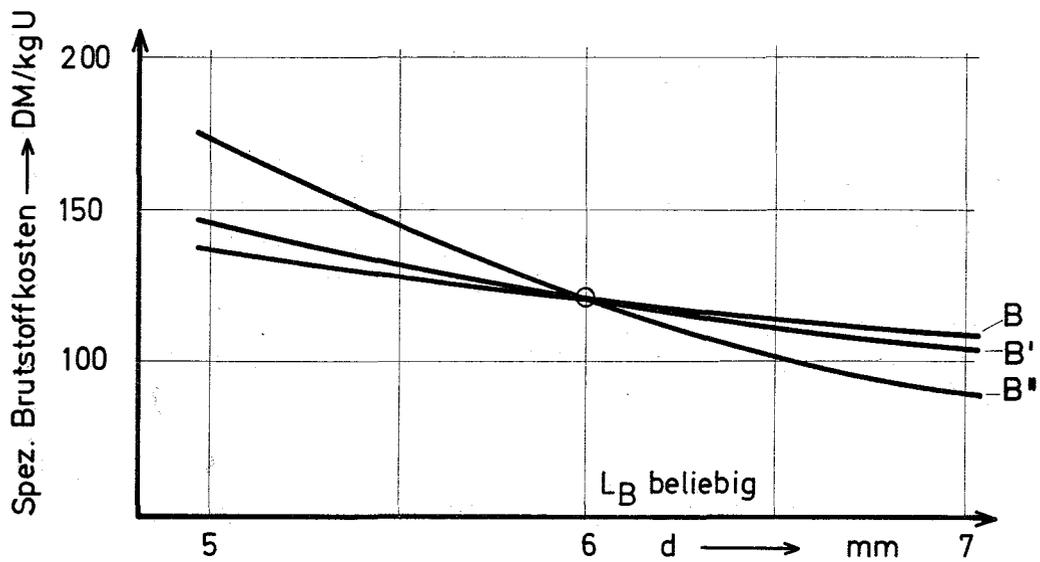
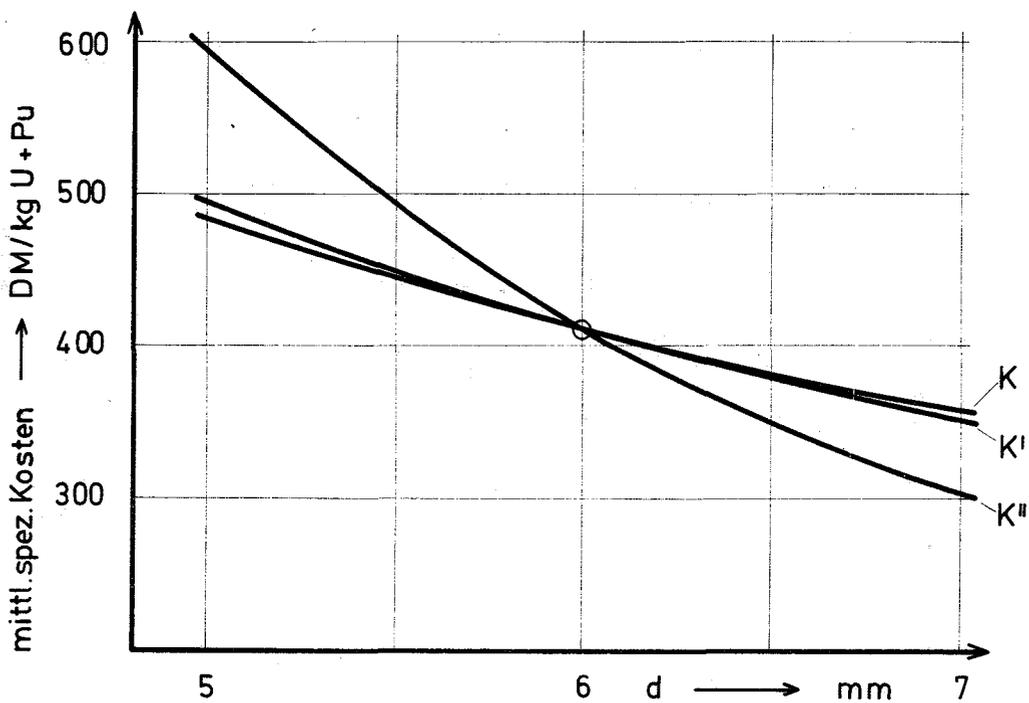


Fig.12 Vergleich der Kostenhypothesen für die spezifischen Brutstoffkosten



$C_F = 100t \text{ UO}_2 - \text{PuO}_2 \text{ pro Jahr}; L_F = 1000\text{mm}; L_B = 800\text{mm};$

Fig.13 Vergleich der Kostenhypothesen für die mittleren spezifischen Kosten