

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

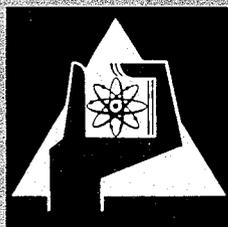
März 1968

KFK 780

Institut für Reaktorentwicklung

Bestrahlung von Brennstäben in instrumentierten Blei-Wismut-Kapseln
Irradiation of fuel pins in instrument-equipped lead-bismuth capsules

H. E. Häfner



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

Bestrahlung von Brennstäben in instrumentierten Blei-Wismut-Kapseln*

Irradiation of fuel pins in instrument-equipped lead-bismuth capsules

H. E. Häfner Institut für Reaktorentwicklung, Kernforschungszentrum Karlsruhe

1. Aufgabenstellung und Allgemeines

Im Brennelement-Entwicklungs-Programm des Karlsruher Projektes »Schneller Brüter« ist eine Reihe von Brennstab-Bestrahlungs- bzw. Abbrand-Experimenten vorgesehen. Unter anderem sollte eine Bestrahlungsmöglichkeit geschaffen werden, die es erlaubt, mit relativ geringem Aufwand auf normalen Brennelementpositionen im Reaktor FR 2 eine größere Anzahl von Brennstabprüflingen mit verschiedenen Brennstoffvarianten einzusetzen [1].

In einer ersten Phase war vorgesehen, Brennstäbe mit oxydischem Brennstoff und relativ großem Hüllrohrdurchmesser von 10 bis 12 mm bei mäßigen Leistungsdichten zu bestrahlen. Dafür erschienen Bestrahlungskapseln einfacher Grundkonzeption, bei denen Brennstabdurchmesser und Betriebsbedingungen in gewissen Grenzen leicht variiert werden können, besonders zweckmäßig.

Die an das Experiment gestellten Anforderungen wurden vom Versuchsziel und überwiegend vom Reaktorbetrieb bestimmt: Es sollte eine relativ große Zahl von Brennstäben mit 8,6 bzw. 10 mm Brennstoffdurchmesser (entsprechend 10 und 12 mm Hüllrohräußerdurchmesser) und 240 mm Länge bei Stabileistungen bis 500 W/cm und Hüllrohroberflächentemperaturen um 500 °C bestrahlt werden. Ein Teil der Brennstäbe sollte einen Spaltgasraum haben. Im Hinblick auf die relativ geringen Leistungsdichten war ein Abbrand von 15000 MWd/t vorgesehen. Bis zu vier Brennstäbe sollten übereinander in einer Kapsel sitzen. Der Kapselaufbau sowie die Montage und Handhabung der Kapsel sollten möglichst einfach sein.

Es war anzustreben, an möglichst vielen Stellen entlang der Brennstäbe die Hüllrohroberflächentemperaturen zu messen und kontinuierlich zu registrieren. Eine Temperaturkonstanz war nicht gefordert, so daß eine aufwendige Temperaturregelung entfallen konnte. Eine Temperatureinstellung in den gegebenen Grenzen (entsprechend dem radialen Leistungsverlauf im Core) durch Umpositionierung der Kapselversuchseinsätze (KVE) innerhalb des Reaktors war jedoch von Anfang an ins Auge zu fassen. Der KVE sollte deshalb, aber auch um zusätzliche Hilfseinrichtungen zu sparen, wie ein Brennelement (BE) behandelt und ausgewechselt werden können. Hinsichtlich der Kühlung im normalen Betrieb wie in Notfällen oder bei Störungen und auch hinsichtlich der D₂O-Proben-Entnahme für die Spaltprodukt-Detektionsanlage sollte der KVE identisch sein mit dem BE. Zur betrieblichen Überwachung war auch eine Kühlmitteldurchflußmessung und eine Messung der Kühlmittelaustrittstemperatur wie beim BE gefordert. Die KVE sollten also dem Sicherheitssystem des FR 2 angepaßt und eingegliedert werden und eine ähnliche Betriebssicherheit bieten wie normale BE. Insbesondere bestand die Forderung nach größtmöglicher Sicherheit gegen chemische Reaktionen zwischen dem Reaktorkühlmittel und dem Wärmeübertragungsmedium in der Kapsel bei einem eventuellen Kapselriß.

Ein möglichst günstiger Reaktivitätsbeitrag des KVE war erwünscht, und aus Gründen der Stabilität des Reaktors sollte Sieden an der Kapseloberfläche vermieden werden.

Aus diesen Forderungen, insbesondere in sicherheitstechnischer Hinsicht, entstand in den Jahren 1963 und 1964 ein erster Kapseltyp, der die eutektische Blei-Wismut-Legierung mit einem Schmelzpunkt von etwa 125 °C als wärmeübertragendes Medium verwendet. In der gleichen Zeit wurden die notwendigen Meßeinrichtungen, die Montagehilfseinrichtungen und eine 20 t schwere Transportflasche zum Transport der maximal 3 m langen bestrahlten Kapseln zu den heißen Zellen beschafft, die Sicherheitsberichte erstellt und Vorversuche durchgeführt. Seit Anfang 1965 wurden 17 Kapseln dieses Typs mit insgesamt 55 Brennstabproben bestrahlt und in den heißen Zellen untersucht. Die Erhöhung der Reaktorleistung im Jahre 1965 hatte eine mehrmonatige Unterbrechung der Versuche zur Folge. Es waren bisher maximal 10 Bestrahlungskapseln gleichzeitig im Reaktor. Die Meßeinrichtung und die Sicherheitsschaltung sind für 12 Kapseln vorhanden, werden jetzt aber für den gleichzeitigen Einsatz von 18 Bestrahlungskapseln erweitert.

2. Beschreibung des Kapselversuchseinsatzes

Ein KVE gleicht in seinem äußerlichen Aufbau weitgehend einem normalen BE; er setzt sich zusammen aus der eigent-

1. Introduction

The fuel element development programme of the Karlsruhe "fast breeder" project includes a series of experiments on the irradiation and burn-up of fuel pins. One of the problems was the development of irradiation methods making it possible, at a relatively low cost, to place a large number of fuel pin specimens with different fuel variants in normal fuel element positions in the FR 2 reactor [1].

In a first phase of these experiments it was planned to irradiate fuel pins with an oxide fuel and a relatively large can diameter (10 to 12 mm) at moderate power densities. Irradiation capsules of a simple basic design, lending themselves easily to variations of the fuel pin diameter and of operational conditions, were deemed particularly appropriate for this purpose.

The experimental requirements were governed by the aims of the experiments and by the operation of the reactor. A relatively large number of 240 mm long fuel pins with a fuel slug diameter of 8,6 and 10 mm (corresponding to an outside can diameter of 10 and 12 mm) had to be irradiated at a power per unit length of up to 500 W/cm and a can surface temperature of about 500 °C. Some of the fuel pins had to have a fission gas plenum. In view of the relatively low power densities, the burn-up was to be limited to 15000 MWd/t. Each capsule had to accommodate up to four fuel pins one above the other. The design as well as the assembly and the handling of the capsules had to be as simple as possible.

It was required to measure and continuously record the can surface temperature at as many points along the fuel pins as possible. It was not required to maintain a constant temperature, so that an expensive temperature control system was not needed. However, the need to regulate the temperature within certain limits (corresponding to the radial power profile in the core) by re-positioning the experimental irradiation rigs (EIR) within the reactor, had to be borne in mind from the start. For this reason, and also in order to avoid the need for additional auxiliary devices, the EIR had to be handled and exchanged in the same manner as the normal fuel elements (FE). The EIR had to be identical with the FE in respect of cooling in normal operation as well as in malfunctions or emergencies, and also in respect of D₂O sampling for the fission products detection system. Flow measurements and outlet temperature measurements of the coolant for operational monitoring were required for the EIR as for the FE. The EIR had to be adapted to, and incorporated in, the safety system of the FR 2, and had to have an operational safety equivalent to that of the normal FE. Particular emphasis was placed on the highest possible safety against chemical reactions between the reactor coolant and the heat transfer medium in the capsule in case of a capsule rupture.

The most favourable possible contribution to reactivity by the EIR was desirable. Boiling at the surface of the capsule was to be avoided for reasons of reactor stability.

These requirements, particularly the requirements with respect to safety, led to the development in 1963 and 1964 of a first capsule type using as heat transfer medium the eutectic lead-bismuth alloy with a melting point of about 125 °C. The necessary measuring instruments, auxiliary assembly devices, and a 20 t transport flask for transporting irradiated capsules up to 3 m long to the hot cells, were also obtained during that time, safety reports were prepared and preliminary tests were carried out. Since the beginning of 1965, 17 capsules of this type with a total of 55 fuel pin specimens have been irradiated and examined in the hot cells. The stepping up of the reactor power in 1965 resulted in an interruption of these experiments for several months. The highest number of irradiation capsules placed in the reactor at the same time up to now has been 10. Measurement facilities and safety circuits are available at present for 12 capsules and are being extended for the simultaneous irradiation of 18 capsules.

2. Description of the experimental irradiation rig

The EIR (see figure) is externally very similar to a normal FE and consists of an interchangeable irradiation capsule, a top part and the coolant circulation system.

* 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.

lichen auswechselbaren Bestrahlungskapsel, dem Oberteil und der Kühlwasserführung (Fig.). Das *Oberteil*, bestehend aus Kopfstück und Mittelstück, kann bei jedem neuen Bestrahlungsversuch wieder verwendet werden. Das *Kopfstück* stellt im wesentlichen einen Abschirm-

The *top part*, consisting of a head piece and a centre piece, can be re-used for each new irradiation experiment. The *head piece* is essentially a shielding plug through which instrument leads in cranked pipes are led out of the reactor. The *centre piece* is a Woltmann wheel housing an electro-

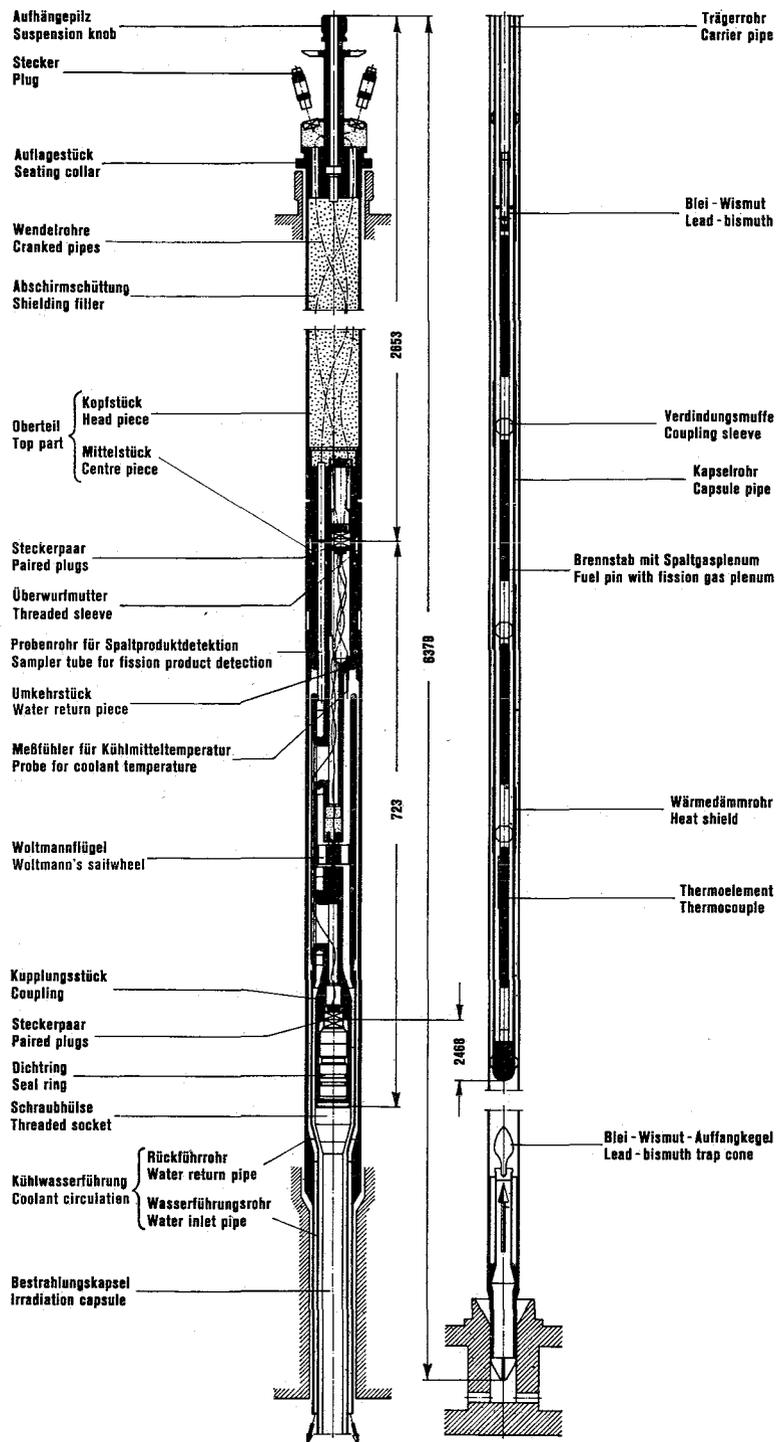


Fig.: Schematische Darstellung des Kapselversuchseinsatzes

Fig.: Schematic representation of the fuel-pin irradiation rig

stopfen dar, durch den die Meßleitungen in gewendelten Rohren aus dem Reaktor herausgeführt werden. Im *Mittelstück* ist ein Woltmannflügel mit elektromagnetischem Impulsgeber zur Messung der Kühlmitteldurchflußmenge, ein Thermolement zur Messung der Kühlmittelaustrittstemperatur und ein D_2O -Proben-Entnahmerohr für die Hüllrohr- bzw. Kapselschädendetektion untergebracht.

magnetic pulse generator for measuring the flow of coolant, a thermocouple for measuring the outlet temperature of the coolant and a D_2O sampler tube for the detection of can and capsule leaks.

The *water inlet pipe* forms the necessary cooling channel for the capsule which is directly surrounded by moderator water. This channel ends at the bottom with a precision-machined

Das Wasserführungsrohr bildet den erforderlichen Kühlkanal für die Kapsel und ist unmittelbar vom Moderatorwasser umgeben. Es endet unten mit einem präzise bearbeiteten Fußrohr, das in jede Hülse im Kühlmittelverteilerboden des Reaktortanks hineinpaßt. Damit wird der KVE an den D₂O-Kreislauf angeschlossen und darüber hinaus gut geführt. Der KVE kann sich nach unten frei ausdehnen. Nach oben schließt sich an das Wasserführungsrohr über eine Schraubverbindung das Wasserrückführrohr an, das seinerseits mit dem Oberteil über ein leicht lösbares Rundgewinde verschraubt ist. Die Bestrahlungskapsel besteht im wesentlichen aus einem maximal 3 m langen Rohr aus Zircaloy 2, in dessen unterem Ende 2 bis 4 Brennstabprüflinge übereinander angeordnet sind. An ihrem oberen Ende, dem Kapselkopf, ist die Kapsel durch einen temperaturbeständigen, gasdichten und druckfesten 26poligen Edelstahl-Keramik-Stecker von 1 Zoll Durchmesser verschlossen, über den die Meßleitungen aus der Kapsel herausgeführt werden. Die einzelnen Brennstäbe sind durch Gewindemuffen miteinander fest verschraubt, die gleichzeitig die Zentrierung der Stäbe in der Kapsel gewährleisten. Die Brennstabsäule ist unten in der Kapsel fest fixiert und kann sich im Betrieb nach oben frei ausdehnen.

Um zu gewährleisten, daß während des Betriebes die Blei-Wismut-Säule auch an den Zwischenstücken zwischen den Brennstoffzonen und in Höhe des Spaltgasplenums flüssig wird, sind auf das Kapselrohr Wärmedämmungen aufgeschweißt worden. Das sind Rohrhülsen, die innen eine Hinterdrehung bestimmter Tiefe haben, wodurch sich ein Gasspalt definierter Breite, abhängig von der gewünschten Innentemperatur, zwischen Kapselrohr und Hülse ergibt.

Es kann an 10 Stellen innerhalb der Kapsel die Temperatur gemessen werden. Für die Temperaturmessung werden Miniaturthermoelemente von 1 mm Manteldurchmesser mit elektrisch isolierten Meßstellen und Chromel-Alumel-Adern verwendet. Die Thermolemente werden hinter der Meßstelle mit Blechbügeln durch Punktschweißung fest mit der Brennstabhülle verbunden. Am oberen Brennstoffende des obersten Brennstabes ist eine Flüssigmetall-Füllstanddetektion angebracht. Diese besteht aus 3 Thermolementen, die im Falle eines Kapsellecks, d. h. beim Absinken des Blei-Wismut-Füllstandes unter diese Thermolemente, eine hohe Thermospannung liefern würden, weil die Brennstabtemperatur infolge gestörter Wärmeabfuhr stark ansteigt. Über ein 2-von-3-Sicherheitsystem würde dann der Reaktor abgeschaltet werden.

Entsprechend den Brennstabdurchmessern von 10 und 12 mm ergaben sich zwei Ausführungen der Kapsel. Ausführung 1 (12 mm) hat ein Kapselrohr von 26 mm Außendurchmesser und 2 mm Wanddicke. Ausführung 2 (10 mm) hat 19 mm Kapselrohrdurchmesser und 2 mm Wanddicke. Bei Ausführung 2 beträgt die Blei-Wismut-Schichtdicke 2,5 mm, bei Ausführung 1 wurde, um die Flüssigmetall-Konvektion in Grenzen zu halten, die Blei-Wismut-Füllung durch ein Zwischenrohr von 19 mm Außendurchmesser und 1 mm Wanddicke in zwei Schichten (innen 2,5 mm, außen 1,5 mm) unterteilt.

3. Montage der Kapseln und Prüfungen

Montage und Prüfungen der Kapseln erfolgen nach einem sehr detaillierten und umfangreichen Plan in Form einer Checkliste. Es soll hier nicht der gesamte Montage- und Prüfungsablauf geschildert, sondern nur auf einige Besonderheiten eingegangen werden.

Während der Montage wird selbstverständlich besonderer Wert auf größtmögliche Sauberkeit des Arbeitsplatzes sowie aller zu montierenden und zur Montage notwendigen Teile und Hilfseinrichtungen gelegt. Die zu montierenden Teile werden soweit wie möglich schon vor Montagebeginn eingehenden Prüfungen hinsichtlich Maßhaltigkeit, Dichtigkeit und elektrischer Funktionstüchtigkeit unterzogen. Während der Montage wird nach jedem Arbeitsschritt eine Prüfung vorgenommen, um die u. U. während des vorhergegangenen Montageablaufs eingetretenen Fehler möglichst frühzeitig erkennen und beheben zu können. Nur so ist gewährleistet, daß ein fertigmontierter Versuchseinheit auch voll betriebsbereit ist und nicht Mängel aufweist, die zu diesem Zeitpunkt nicht mehr behoben werden können.

Da die Wärmestromdichten bei diesem Kapseltyp mit maximal 160 W/cm² relativ niedrig sind, können die Thermolemente, ohne gefährliche Hot Spots befürchten zu müssen, direkt auf der Brennstabhülle befestigt werden.

foot pipe fitting into any socket of the coolant distributor bottom of the reactor tank. The EIR is thus connected to the D₂O circulation. The EIR is free to expand downwards. At the top, the water inlet pipe is connected by a threaded coupling to the water return pipe which, in turn, is connected to the top part of the EIR by an easily disconnectable threaded socket.

The irradiation capsule consists in essence of a pipe in Zircaloy 2 and is up to 3 m long. Two to four fuel pin specimens are arranged one above the other in the bottom part of this tube. At its top end, the capsule head, the capsule is closed by a 1 inch diameter heat resistant, gas-tight and pressure resistant 26-pole plug in stainless steel and ceramic through which the instrument leads are led out of the capsule. The individual fuel pins are firmly held together by threaded bushes which also ensure the centring of the pins in the capsule. The column of fuel pins is firmly fixed at the bottom end of the capsule and is free to expand upwards in operation.

In order to ensure that the lead-bismuth column remains liquid in operation not only at the fuel pins but also at their couplings and at the region of the fission gas plenum, the capsule tube is provided with welded-on heat shields. These are precision-machined pipe sleeves forming between the capsule pipe and the sleeve a gap of a definite width depending on the desired internal temperature.

The temperature can be measured at 10 points inside the capsule by means of miniature thermocouples with 1 mm sheath diameter, electrically insulated hot welds and chromel-alumel leads.

The thermocouples are firmly attached to the fuel cans, behind the point of measurement, by means of tack-welded strip yokes. A molten metal level detector is located at the top end of the fuel slug of the topmost fuel pin. This consists of 3 thermocouples. If, in case of a capsule leak, the level of the lead-bismuth column will sink below these thermocouples, the fuel pin temperature will rise sharply owing to the disturbed heat removal. The reactor will then be shut down via a 2-out-of-3 safety system.

The capsules are of two types, for fuel pins of 10 and 12 mm diameter respectively. Type 1 (for 12 mm pins) has a capsule pipe of 26 mm external diameter and 2 mm wall thickness. Type 2 (for 10 mm pins) has a capsule pipe of 19 mm external diameter and 2 mm wall thickness. In type 2, the lead-bismuth layer is 2,5 mm thick. In type 1, however, in order to limit convection in the molten metal, the lead-bismuth filling is divided into a 2,5 mm thick inner layer and a 1,5 mm thick outer layer by means of a 1 mm thick separator pipe of 19 mm external diameter.

3. Assembly and checking of capsules

The assembly and checking of capsules follows a very detailed and extensive procedure set down in a check list. Only a few particularly significant aspects of this procedure are discussed below.

During assembly it is, of course, particularly important to ensure the greatest possible cleanliness of the working space and of all the parts and auxiliary devices to be assembled or used for assembly. The parts to be assembled are subjected, prior to assembly as far as possible, to detailed checks with respect to dimensional stability, tightness and electric function. During assembly, checks are carried out after completion of each step in order to detect and correct as early as possible any defects which may have arisen in the preceding operations. This is the only way to ensure that an assembled EIR is fully operational and is free from defects which can no longer be corrected at this stage.

As the heat flow densities, not exceeding 160 W/cm² for capsules of this type, are relatively low, the thermocouples may be fastened directly to the fuel cans without fear of any dangerous hot spots.

The thermocouples are fastened by means of stainless steel strips about 1 mm wide and about 0,2 mm thick placed over the thermocouples as yokes and welded directly to the fuel can. The sheath of the thermocouple is thus pressed firmly against the can of the fuel pin.

As the point at which the temperature is actually measured is at a distance of about 0,5 mm from the fuel can, the measured temperature differs from that at the surface of the fuel can by a margin corresponding to the radial

Zur Thermoelementbefestigung dienen Blechstreifen aus Edelstahl von etwa 1 mm Breite und etwa 0,2 mm Dicke, die als Bügel über die Thermoelemente gelegt und direkt mit der Brennstabhülle verschweißt sind. Das Mantelthermoelement ist also fest an die Brennelementhülle gepreßt.

Da die eigentliche Temperaturmeßstelle etwa 0,5 mm Abstand zur Brennstabhülle hat, liegt eine Abweichung des Meßwertes zur wahren Brennstaboberflächentemperatur vor, die dem radialen Temperaturabfall im Blei-Wismut-Spalt dieser Dicke entspricht. Die durchgeführten Eichversuche ergaben eine gute Übereinstimmung mit der rechnerischen Abweichung.

Für die Blei-Wismut-Einfüllung in die maximal 3 m lange Kapsel dient ein senkrecht stehender Vakuum-Rohröfen eigener Entwicklung. In diesem Ofen wird die Kapsel mit den eingeführten Brennstäben und Thermoelementen vor dem Einfüllen des Flüssigmetalls 12 bis 15 h bei 200 bis 250 °C und etwa 10^{-5} Torr ausgeheizt. Gleichzeitig wird auch das zuvor schon besonders gereinigte Blei-Wismut (PbBi) in einem Schmelztiegel innerhalb des Rohröfens unter gleichen Bedingungen nochmals ausgeheizt. Dadurch ist eine hohe Reinheit aller zu benetzenden Oberflächen und des Flüssigmetalls selbst von adsorbierten Gasen und flüchtigen Bestandteilen gewährleistet. Durch Öffnen eines Kugelventils wird das flüssige PbBi langsam, fast in Tropfen, in die heiße Kapsel geleitet und durchfällt in dieser eine Höhe von 2 bis 3 m, ehe es die Kapsel langsam von unten her füllt. Dadurch müßte auf jeden Fall das PbBi von letzten Gasblasen befreit werden. Nach dem Einfüllen wird der Ofen und damit auch die Kapsel mit Reinstargon geflutet.

Die Kapsel wird anschließend in noch heißem Zustand langsam in ein Wasserbad abgesenkt. Allein durch dieses von unten nach oben gerichtete Erstarren des PbBi ist eine entlang der Brennstäbe lunkerfreie Schicht zu erreichen. Die Lunkerfreiheit und die richtige Einfüllhöhe werden durch Röntgen mit einer Iridium-Quelle von etwa 9 Ci einwandfrei nachgewiesen. Einzelne Lunker treten stets nur unter den Wärmedämmungen, durch die der radiale Wärmeabfluß beim Erstarren behindert wird, also an Stellen auf, wo sie nicht gefährlich sind. Der lunkerfreie Einguß erscheint notwendig, um definierte Ausgangsbedingungen für jede Kapsel zu haben und vor allem die Einfüllhöhe kontrollieren zu können. Er hat als Nachteil allerdings zur Folge, daß bei der ersten Inbetriebnahme im Reaktor infolge Schmelzexpansion u. U. entweder Brennstabhüllen eingebault werden oder das Kapselrohr da eine geringe Aufweitung (maximal 1%) erfährt, wo infolge des axialen Leistungsverlaufs des Reaktors das PbBi zuerst flüssig wird. Dieser Effekt tritt jedoch nur beim ersten Anheizen auf, da sich beim darauffolgenden Reaktorabschalten eine gewisse Lunkerverteilung einstellt. Bei jedem weiteren Anheizen wird dann die Schmelzexpansion von den Lunkern aufgenommen.

4. Betriebserfahrungen und Nachuntersuchungen

Beim Einsatz der ersten Kapselversuchseinsätze, Anfang 1965, traten häufig Schwierigkeiten durch den Ausfall von Thermoelementen infolge Masseschluß und Thermoelementbruch auf. Wegen Ausfall von 2 der 3 Thermoelemente der Sicherheitschaltung mußte einige Male ein Versuchseinsatz vorzeitig aus dem Reaktor genommen werden. Nach einigen Verbesserungen der Montagetechnik, insbesondere der Anlöttechnik für die Thermoelementadern, konnten diese Schwierigkeiten fast gänzlich behoben werden. Heute tritt nur noch selten ein Masseschluß an einem Thermoelement auf, vermutlich nur noch durch Eindringen von Flüssigmetall infolge Korrosion des Mantelmaterials. Örtliche Überhitzungen infolge Lunker treten vereinzelt auch heute noch auf, ohne jedoch im allgemeinen einen Burnout der Brennstabhülle zur Folge zu haben. Bisher wurde nur in zwei Fällen ein Reaktorschnellschluß durch Überhitzungen im Bereich der 3 Sicherheitsthermoelemente, also am oberen Brennstabsäulenende, ausgelöst, und zwar beide Male während des Reaktorstarts auf volle Leistung nach vorhergegangenem schnellem Reaktorabschalten. Das PbBi dieser 2 KVE wurde in einem Rohröfen in der heißen Zelle am FR 2 wieder aufgeschmolzen. Beim darauffolgenden Wiedereinsatz im Reaktor stellten sich wieder normale Temperaturen ein, was darauf hinweist, daß sich beim schnellen Reaktorabschalten am oberen Brennstabsäulenende, in Höhe des PbBi-Spiegels, durch Erstarrungsschrumpfen Lunker gebildet hatten, die im Reaktor nicht wieder aufschmolzen. In einigen Fällen ging eine Überhitzung langsam zurück, so daß es den Anschein hatte, daß ein Lunker durch von oben nachtropfendes PbBi langsam aufgefüllt wurde.

drop of temperature in a lead-bismuth gap of this thickness. The out of pile tests which were carried out were in good agreement with the calculated values.

The capsule, which is up to 3 m long, is filled with lead-bismuth in an upright tubular vacuum oven developed by us. The capsule, already containing the fuel pins and the thermocouples but no PbBi, is heated in this oven for 12 to 15 hours at 200 to 250 °C under about 10^{-5} Torr. At the same time the already specially purified PbBi is heated again in a crucible inside the oven under the same conditions. This ensures a high degree of freedom of all the surfaces to be wetted, and of the molten metal itself, from any adsorbed gas and volatile components. A ball valve is then opened and the molten PbBi is introduced slowly, almost drop by drop, into the hot capsule; it falls through a height of 2 to 3 m and fills the capsule slowly from the bottom up. This certainly frees the PbBi of any remaining gas bubbles. After filling, the oven and therefore also the capsule are flooded with very high purity argon.

The capsule, still in the hot state, is lowered slowly into a water bath. It is only by means of this progressive solidification of the PbBi from the bottom upwards that it is possible to achieve a cavity-free layer along the fuel pins. The absence of cavities and the correct filling level are checked with certainty by X-ray inspection using an iridium source of about 9 Ci. Isolated cavities always occur only under the heat shields which prevent the radial removal of heat during solidification, i. e., at locations where they are not dangerous. A cavity-free filling is considered necessary in order to have clearly defined initial conditions for each capsule and, above all, in order to control the filling level. On the other hand, the absence of cavities has the disadvantage of causing, in the course of the first irradiation in the reactor, occasional buckling inwards of the fuel cans or a slight (up to 1%) swelling of the capsule tube. This is due to the expansion of the PbBi in melting and occurs at locations where the Pb/Bi melts first owing to the axial power profile of the reactor. However, this occurs only in the first heating because a certain distribution of cavities takes place when the reactor is shut down the next time. In all subsequent heatings the melting expansion is taken up by the cavities.

4. Operational experience and post-irradiation examinations

The first experimental irradiation rigs used early in 1965 frequently caused difficulties by failure of thermocouples owing to earthing and thermocouple fracture. The failure of 2 out of 3 thermocouples of the safety system made it necessary several times to take an EIR prematurely out of the reactor. These difficulties were later overcome almost completely by improvements of the assembly technique, especially of the soldering technique for connecting the thermocouple leads. At present, earthing of a thermocouple occurs rarely, presumably only owing to penetration of molten metal following corrosion of the thermocouple sheath. Local overheating due to cavities still occurs occasionally but does not as a rule result in a burnout of the fuel pin can. Up to now there have been only two cases of reactor scram due to overheating in the zone of the 3 safety thermocouples, i. e., at the top end of the fuel pin column; both instances occurred as the reactor was being started up to full power after a previous scram. The PbBi of these two EIR was melted again in a tubular oven in the hot cell at the FR 2. When these EIR were again introduced into the reactor, the temperature readings were normal. This indicates that, in the reactor scram preceding the overheating, cavities were formed at the top end of the fuel pin column owing to solidification shrinkage, which were not eliminated in the subsequent heating in the reactor. In some cases overheating subsided gradually, creating the impression that a cavity was slowly filled up by PbBi dripping from above.

When a new EIR was placed into the reactor, relatively wide temperature fluctuations (± 20 deg) were often observed initially at some points. In all cases, however, the temperature readings settled down considerably (to ± 5 deg) within a few days. As a rule, there was also a certain drop of the temperatures during irradiation which has not yet been satisfactorily explained. The maximum duration of irradiation of an EIR up to now has been 240 full load days (about 6000 hours).

Häufig traten beim Einsatz eines neuen KVE anfangs relativ starke Temperaturschwankungen (± 20 grad) an einzelnen Meßstellen auf. In allen Fällen trat jedoch nach einigen Tagen eine weitgehende Beruhigung (± 5 grad) der Temperatur anzeige ein. Im allgemeinen tritt auch während der Betriebsdauer eine gewisse Abnahme der Temperaturen auf, die noch nicht befriedigend erklärt werden kann. Die maximale Betriebsdauer eines KVE war bisher 240 Vollasttage (etwa 6000 h).

Die Nachuntersuchungen in den heißen Zellen ergaben folgendes:

1. In 4 von 17 bestrahlten und nachuntersuchten Kapseln hatte der oberste Brennstab an seinem oberen Ende infolge Überhitzung einen Burnout. Neben den 4 Ausbränden traten noch an 3 Brennstäben Lecks infolge starker Wärmedehnungen oder Schrumpfungen an den insgesamt 55 bestrahlten Brennstäben auf (siehe 3). Ein Prüflingsleck führte jedoch nie zu einer Gefährdung des Reaktors, obwohl einige KVE mehrere Wochen mit offener Hülle bestrahlt wurden. In keinem Fall sind Spaltprodukte aus einer Kapsel in das Kühlwasser des Reaktors ausgetreten, da die Kapsel eine hohe Dichtigkeit (Leckrate kleiner als 10^{-8} Torr l/s) aufweist.

2. Ursache für die aufgetretenen Überhitzungen können, wie sich in den heißen Zellen zeigte, neben Lunkern auch Anhäufungen von Korrosions- und Entmischungsprodukten im Wärmeübertragungsmedium sein. So wurden bei den Nachuntersuchungen im PbBi schon nach Bestrahlungszeiten von 1 bis 2 Monaten beträchtliche Mengen Korrosionsprodukte (maximal 1% Fe und Zr nach 5 Monaten) und erhebliche Bi-Ausscheidungen gefunden. Beide Erscheinungen führen zu einer nennenswerten Erhöhung der Schmelztemperatur des verunreinigten PbBi und zu einer starken Beeinträchtigung der Wärmeübertragungseigenschaften. Es lag nach einiger Zeit also offenbar keine eutektische Legierung mehr vor, sondern eine Vielstofflegierung mit undefinierbaren Eigenschaften. Da die Korrosionsprodukte im schwereren PbBi aufschwammen, wurde in Höhe des Füllstandes oftmals ein poröser Pfropfen fester Bestandteile (Fe, Cr, Ni, Zr) mit einem Schmelzpunkt von z. T. über 600°C gefunden. Es muß dazu gesagt werden, daß die Korrosionsprodukte nicht von einer sehr starken örtlichen, sondern von einer kaum wahrnehmbaren, aber gleichmäßigen flächenhaften Korrosion stammen.

3. Eine weitere Schwierigkeit, die sich durch die erhebliche Länge der Brennstabsäule, etwa 1000 mm, ergab, wurde ebenfalls erst in den heißen Zellen deutlich. In mehreren Fällen waren die Gewindepapfen an den Brennstabendstopfen, die zur Verbindung der einzelnen Stäbe dienen, abgerissen. Vermutlich erstarrt das PbBi beim schnellen Abkühlen nach einem Reaktor-Schnellschluß entsprechend der etwa cosinusförmigen Leistungs- und Temperaturverteilung an den Enden der 1 m langen Brennstabsäule zuerst, was zu einer Einspannung an den Stabenden führt, so daß die einzelnen Brennstäbe an ihren Verbindungsstellen überlastet werden können. Wohl aus dem gleichen Grund ist auch bei Kapselausführung 1 in 3 Fällen das zur Vermeidung zu starker Flüssigmetall-Konvektion dienende Zwischenrohr gerissen. Die Brennstabhüllen wurden dadurch in keinem Fall beschädigt. Nach dem Erkennen dieser Schwierigkeiten wurde die Zahl der Brennstäbe je Kapsel zunächst auf 3 und schließlich auf 2, entsprechend einer Brennstabsäulenlänge von 50 cm, reduziert.

4. Infolge axialer Spannungen und Dehnungen wurden auch in den ersten Kapseln nahezu alle Thermoelemente mit ihren Befestigungsbügeln von den Hüllrohren abgerissen. Die kleinen Bügel fanden sich dann häufig in der porösen »Korrosionsprodukt-Schlacke« in Höhe des Füllstandes wieder.

The *post-irradiation examinations* in the hot cells resulted in the following findings:

1) In 4 out of the 17 capsules irradiated and examined the top-most fuel pin had burnt out at its top end owing to overheating. In addition to the 4 burn-outs, 3 further fuel pins showed leaks due to severe thermal deformations (see (3) further down). In no case, however, did a fuel pin leak endanger the reactor, although some EIR had been irradiated for several weeks with open cans. In no case did fission products leak from a capsule into the cooling water of the reactor because the capsules have a high degree of tightness (leak rate less than 10^{-8} Torr l/s).

2) Examination in the hot cells showed that the observed instances of overheating could have been due not only to cavities but also to accumulations of corrosion and unmixed products in the heat transfer medium. Appreciable quantities of corrosion products were found in the PbBi after irradiation times of only 1 to 2 months (up to 1% Fe and Zr after 5 months), as well as a considerable degree of segregation of bismuth. Both phenomena result in an appreciable rise of the melting point of the contaminated PbBi and in a considerable deterioration of its heat transfer properties. Evidently, after a certain time, the capsule filling was no longer an eutectic alloy but a multiple alloy with undefinable properties. As the corrosion products floated up in the heavier PbBi, we often found at the top of the filling a porous plug of solid components (Fe, Cr, Ni, Zr) with a melting point exceeding 600°C in some cases. It should be noted in this context that the corrosion products originated not from heavy local corrosion but from a barely perceptible uniformly distributed surface corrosion.

3) A further difficulty, due to the considerable length of the fuel pin column (about 1000 mm), also became apparent only in the course of the examinations in the hot cells. In many cases the threaded taps attached to the end stoppers of the fuel cans and serving to connect individual fuel pins to each other were torn off. The rapid cooling down after a reactor scram follows a cosine power and temperature distribution so that, presumably, the PbBi solidified first at the ends of the 1 m long fuel pin column and gripped the two ends of the column; as a result, individual fuel pins were overstressed at their connections. This was no doubt also the reason why the separator pipe, provided in type 1 capsules for reducing convection in the molten metal, was found ruptured in 3 cases. The fuel cans were not damaged in any of these cases. After this cause of damage was recognised, the number of fuel pins per capsule was reduced first to 3 and later to 2, thus reducing the length of the fuel pin column to 50 cm.

4) Owing to axial stresses and elongations, most of the thermocouples in the first capsules were torn off the fuel cans together with their attachment yokes. These small yokes were frequently found in the porous "corrosion product slag" at the top of the filling.

5) In some fuel pins the cans were found buckled inwards at the level of the fission gas plenum. This was obviously caused by pressure due to the first non-uniform melting of the as yet cavity-free PbBi filling.

6) The sheaths of thermocouples were found to be very brittle in all the capsules which had been irradiated for longer than one reactor cycle.

5. Concluding remarks

Within the framework of the "fast breeder" project, a large number of fuel pins in lead-bismuth capsules have been

5. Schließlich wurde an einigen Brennstäben das Hüllrohr in Höhe des Spaltgasplenums eingebeult. Das geschah offenbar durch Druckkräfte, wie sie beim ersten ungleichmäßigen Aufschmelzen des noch lunkerfreien PbBi auftreten können.

6. Bei allen Kapseln, die länger als einen Reaktorzyklus in Betrieb waren, wurde eine starke Versprödung der Thermo-elementmäntel festgestellt.

5. Schlußbemerkungen

Im Rahmen des Projektes »Schneller Brüter« wurden seit Anfang 1965 im Karlsruher FR 2 eine große Anzahl von Brennstäben in Blei-Wismut-Kapseln bis zu Abbränden von maximal 17 000 MWd/t Brennstoff bestrahlt. Die dabei aufgetretenen Schwierigkeiten waren anfangs erheblich, konnten aber durch gezielte und intensive Analyse und durch entsprechende Gegenmaßnahmen weitgehend überwunden werden, so daß die ursprüngliche Aufgabenstellung mit relativ gutem Erfolg bewältigt wurde. Leider haben erste Untersuchungsergebnisse aus den heißen Zellen erst nach der Bestrahlung von 9 Kapseln mit insgesamt 36 Brennstäben, also relativ spät, zur Verfügung gestanden, so daß Verbesserungen hinsichtlich der Schwierigkeiten durch das PbBi nur noch bei den letzten 8 Kapseln mit insgesamt 19 Brennstäben zum Tragen kommen konnten.

Da sich inzwischen die Aufgabenstellung wesentlich geändert hat, ist eine weitere Verwendung der bisherigen PbBi-Kapseln in diesem Rahmen nicht mehr möglich. Insbesondere hat sich der Brennstabdurchmesser wesentlich verringert und die Stableistung sowie die Hüllrohroberflächentemperatur erhöht. Es wird künftig eine Wärmestromdichte an der Brennstaboberfläche von maximal 400 W/cm², eine spezifische Leistung von 350 W/g und ein Abbrand von 70 000 MWd/t bis 100 000 MWd/t angestrebt.

Der geänderten Aufgabenstellung soll ein neuer Kapseltyp gerecht werden, bei dem die positiven und negativen Eigenschaften von Blei-Wismut mit denen von Natrium in geeigneter Weise kombiniert werden: Jeder Brennstab sitzt einzeln in einer Na-Kapsel. Maximal 4 solcher Na-Kapseln sind übereinander in einem zweiten Kapselrohr angeordnet und von PbBi umgeben. Damit wird erreicht, daß das Na durch zwei Wände vom Reaktor-Kühlwasser getrennt ist und daß die Temperaturen der mit PbBi in Berührung stehenden Oberflächen so niedrig sind, daß die Korrosion nur äußerst gering sein kann. Die Brennstäbe dieser kombinierten Na-PbBi-Kapsel erreichen je nach Coreposition einen Abbrand von 6000 bis 10 000 MWd/t je Reaktorzyklus. 12 Kapseln dieses Typs wurden oder werden bereits planmäßig und ohne jede Störung bestrahlt. 3 Prototyp-Kapseln wurden nach 1 bis 3 Reaktorzyklen in den heißen Zellen demontiert und untersucht. Es zeigten sich dabei keinerlei Mängel, auch die Brennstabhüllen waren in einwandfreiem Zustand. (Eingegangen am 2. 11. 1967)

irradiated at the Karlsruhe FR 2 reactor since early 1965 up to burn-ups not exceeding 17 000 MWd/t. Considerable difficulties were encountered initially but were largely overcome by directed intensive analysis and by appropriate counter-measures, with the result that the originally stipulated experimental objectives were achieved in relatively good measure. Unfortunately, the results of the first post-irradiation examinations in the hot cells became available relatively late, after 9 capsules with a total of 36 fuel pins had already been irradiated, so that the improvements required to overcome the difficulties caused by the use of PbBi could only be carried out on the last 8 capsules with a total of 19 fuel pins.

As the conditions of the problem have altered considerably in the meantime, it is no longer possible to use the same PbBi capsules in further experiments. In particular, the diameter of the fuel pins has been substantially reduced and the power per unit length as well as the can surface temperature have been increased. In future, it will be endeavoured to achieve a heat flow density at the fuel pin surface of up to 400 W/cm², a specific power of 350 W/g and a burn-up of 70 000 to 100 000 MWd/t.

These new conditions should be satisfied by a new type of capsule appropriately combining the positive and negative properties of lead-bismuth with those of sodium. In this new type, each fuel pin is housed individually in a sodium-filled capsule. Up to 4 such sodium capsules are placed one above the other in a second capsule tube in which they are surrounded with PbBi. In this manner the sodium is separated from the reactor cooling water by two walls whereas the temperatures of the surfaces in contact with the PbBi are sufficiently low so that only extremely slight corrosion can be expected. The fuel pins in these combined Na-PbBi capsules, depending on their composition, attain burn-up values of 6000 to 10 000 MWd/t per reactor cycle. Twelve prototypes have been, or are being irradiated according to schedule and without any malfunction. Three of these prototype capsules were disassembled and examined in the hot cells after one to three reactor cycles. No defects were found. The fuel cans were in perfect condition.

Literatur · References

[1] Oehme, H., und W. Marth: Kerntechnik 8, 253 (1966)